

Atomare Ionisationsdynamik in starken Laserfeldern

Dissertation
von
Richard Kopold

Institut für Theoretische Physik T30
Physik-Department
Technische Universität München

29. Januar 2001

Physik–Department
der Technischen Universität München
Institut für Theoretische Physik T30

Atomare Ionisationsdynamik in starken Laserfeldern

Richard Kopold

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Physik der Technischen Universität
München zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Univ. Prof. Dr. Dr. h.c. Alfred Laubereau

Prüfer der Dissertation:

1. Univ. Prof. Dr. Manfred Kleber
2. Univ. Prof. Dr. Harald Friedrich
3. Univ. Prof. Dr. Dr. h.c. mult. Herbert Walther,
Ludwig-Maximilians-Universität München

Die Dissertation wurde am 21.9.2000 bei der Technischen Universität München
eingereicht und durch die Fakultät für Physik am 20.12.2000 angenommen.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Effekte in starken Laserfeldern	1
1.2	Das simple man's Modell (SMM)	6
1.3	Theoretische Beschreibung	7
1.4	Übersicht	10
2	Das Konzept eines klassischen Elektrons im Laserfeld	13
I	Above-Threshold Ionisation (ATI)	17
3	Einleitung	19
4	Ein einfaches quantenmechanisches Modell der ATI	25
4.1	Das KFR-Matrixelement	26
4.2	Verallgemeinertes KFR-Matrixelement	27
5	Direkte Quantentrajektorien	35
6	Rückgestreute Quantentrajektorien	41
6.1	Allgemeine Formulierung	41
6.2	Das simple man's Modell (SMM)	46
7	Lineare Polarisation	51
7.1	Approximation durch Quantentrajektorien	51
7.2	Winkelverteilungen	58

8	Elliptische Polarisierung	63
8.1	Mögliche simple man's Modelle	63
8.2	Numerische Ergebnisse	65
8.3	Approximation durch Quantentrajektorien	66
8.4	Winkelverteilungen	74
9	Vergleich mit Experimenten	77
9.1	Interferenz von Quantentrajektorien	77
9.2	Channel-Closings	88
10	Zusammenfassung	101
II	Elektronspektren bei nichtsequentieller Doppelionisation	105
11	Einleitung	107
12	Motivation	111
13	Simultane Emission beider Elektronen bei der Rückkehr eines Elektrons	113
13.1	Formulierung des Matrixelements	113
13.2	Vergleich mit experimentellen Ergebnissen	116
14	Verzögerte Ionisation nach Anregung	127
14.1	Formulierung des Matrixelements	127
14.2	Ergebnisse einer eindimensionalen Auswertung	132
15	Zusammenfassung	133
A	Zero-Range-Potenzial	137
B	Sattelpunktmethoden	139
C	Atomare Einheiten	149
	Literaturverzeichnis	151

Abkürzungen

HHG	High-Harmonic Generation
MPI	Multiphoton Ionization
TI	Tunnelionization
ATI	Above-Threshold Ionization
HATI	High-Order Above-Threshold Ionization
NSDI	Non-Sequential Double Ionization
SMM	Simple Man's Model
SPA	Sattelpunktsapproximation
SFA	Strong-Field Approximation
ZRP	Zero-Range-Potential
TDSE	Time-Dependent-Schrödinger-Equation
SAE	Single-Active Electron
KFR	Keldysh, Faisal und Reiss
ADK	Ammosov, Delone und Krainov
XUV	extreme Ultraviolett

Kapitel 1

Einleitung

Die Physik von Materie in starken Laserfeldern hat sich in den letzten Jahren zu einem rasch wachsenden eigenständigen Gebiet im Bereich der Atom- und Molekülphysik sowie der Plasmaphysik entwickelt. Möglich wurde dies durch die enormen Fortschritte in der Entwicklung von leistungsstarken gepulsten Lasersystemen mit kurzen Pulslängen und hohen Repetitionsraten. Man spricht von einem starken Laserfeld, falls die Laser-Materie Wechselwirkung nicht mehr störungstheoretisch zu behandeln ist. In der herkömmlichen Spektroskopie an Atomen konnte Laserlicht stets als kleine Störung des atomaren Systems betrachtet werden. Für heute möglich gewordene Intensitäten bis über 10^{20} W/cm² ist die Situation gerade umgekehrt, das Laserfeld ist wesentlich stärker als das atomare Feld auf äußere Elektronen und ionisiert Atome im Wechselwirkungsgebiet teilweise bis vollständig. In einem sehr viel moderateren Laserfeld, in dem die Wechselwirkung vergleichbar stark mit dem atomaren elektrischen Feld auf äußere Elektronen ist, wurden interessante Effekte, wie die Erzeugung hoher Harmonischer (HHG) [1, 2, 3], die Above-Threshold Ionisation (ATI) [4], sowie die nichtsequentielle Doppelionisation (NSDI) [5, 6] gefunden. Die beiden letzten werden hier im Zusammenhang mit aktuellen Fragestellungen behandelt. Dabei wird der Zusammenhang mit der HHG betont. Im Folgenden werden diese drei Effekte detaillierter diskutiert.

1.1 Effekte in starken Laserfeldern

High-Harmonic Generation (HHG)

Die Erzeugung von Harmonischen kann in einem zeitunabhängigen Multiphotonbild einfach als die Absorption von einigen Photonen der Energie $\hbar\omega$ gefolgt von der Emission eines Photons einer höheren Frequenz $n\omega$ verstanden werden. In einem Inversionssymmetrischen Medium, wie einem atomaren Gas, erhält man so ausschließlich ein Spektrum aus ungeradzahigen Vielfachen der Frequenz ω . In niedrigster Ordnung Störungstheorie (LOPT) ist zur Erzeugung einer Harmonischen der Frequenz $n\omega$ eine Absorption von n Photonen aus dem Laserfeld notwendig. Jede Absorption oder Emission eines Photons

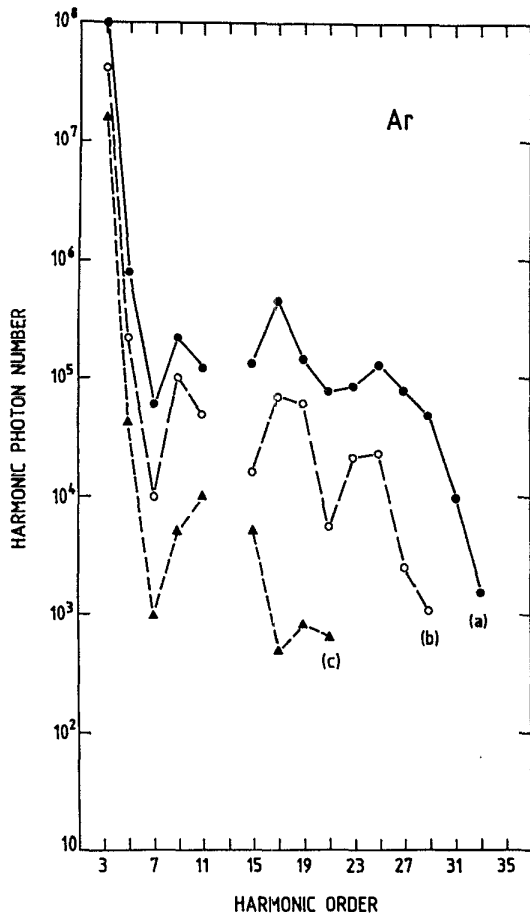


Abbildung 1.1: Spektrum der Harmonischen an Argon für Laserintensitäten von (a) 3 , (b) 2.2 und (c) $1.6 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ in Experimenten von Li et al. 1989 [3]. Die Wellenlänge des Lasers betrug 1064 nm bei einer Pulslänge von 36 ps . Erstaunlicherweise ist die $13.$ Harmonische an Argon für alle Intensitäten nicht nachweisbar. Bis zur $7.$ Harmonischen ist sowohl das Spektrum wie die im selben Experiment gemessene Intensitätsabhängigkeit durch die niedrigste Ordnung Störungstheorie zu erklären. Völlig verschieden ist dagegen das Verhalten der Harmonischen im Plateau: Unabhängig von der Ordnung nehmen die gezählten Photonen im gesamten Plateau mit zunehmender Intensität weitgehend gleichmäßig zu.

aus dem Laserfeld mit der Intensität $I \propto E^2$ ist proportional zur Amplitude E des Laserfeldes, so dass sich für die Wahrscheinlichkeit der Emission eines Photons der Frequenz $n\omega$ ein Potenzgesetz $P \propto (I/I_0)^n$ mit konstantem I_0 ergibt. Das Spektrum der Harmonischen sollte also mit zunehmender Frequenz schnell abfallen. Experimentell findet man in einem starker Laserfeld für die niedrigsten Harmonischen zunächst den erwarteten Abfall [7]. Eine erste Abweichung vom störungstheoretischen Verhalten wurde von McPherson et al. (1987) [1] beschrieben. Für zunehmende Laserintensität bildet sich ein Plateau mit einem Cutoff im Spektrum der Harmonischen aus, d.h. die Intensität der Harmonischen bleibt mit zunehmender Energie über ein ausgedehntes Plateau weitgehend konstant, und fällt erst nach Erreichen eines gut definierten Cutoffs stark ab. Abb. 1.1 zeigt derartige Spektren für Argon für verschiedene Intensitäten. In weiteren Experimenten an Argon, Krypton und Xenon bei einer Wellenlänge von 1064 nm und Intensitäten im Bereich von 10^{13} W/cm^2 wurde gezeigt, dass das beschriebene Verhalten generell bei der Erzeugung von Harmonischen bei hohen Intensitäten auftritt [2, 3].

Die daraufhin einsetzende Entwicklung sowohl im experimentellen als auch im theoretischen Bereich hat zu einer Ausweitung des Cutoffs bis in den XUV-Bereich geführt und hält weiter an. So konnten 1996 mit 25 fs Pulsen bei 800 nm und einer Spitzenintensität von etwa $2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ an Neon Harmonische bis zur $105.$ Ordnung (7.6 nm) aufgelöst

werden [8]. 1997 gelang ebenso mit 26 fs Pulsen und einer Wellenlänge von 800 nm die Erzeugung kohärenter schwacher Röntgenstrahlung mit einer Wellenlänge von 2.7 nm [9] und einer Auflösung von Harmonischen bis zur 221. Ordnung.

Durch eine weitere erhebliche Verkürzung der Pulslängen auf bis zu 5 fs gelang eine Erzeugung von kohärenter Röntgenstrahlung mit 500 eV bei einer Wellenlänge von 800 nm. Der Laserpuls besteht bei einem so kurzen Puls nur aus wenigen optischen Zyklen; das Emissionsspektrum wird dadurch praktisch kontinuierlich. Es besteht Aussicht, auch die Phase innerhalb eines derart kurzen Pulses reproduzierbar einzustellen. Die zeitliche Struktur der Harmonischen macht eine Erzeugung von Pulsen mit einer Länge kürzer als einer Femtosekunde (Attosekunden-Pulse) aussichtsreich. Die Schwierigkeit liegt vielmehr in einem Nachweis eines Attosekunden-Pulses denn in einer Erzeugung. Ein aktuellen Überblick findet man in [10, 11]. Die HHG stellt wegen ihrer herausragenden Eigenschaften wie guter Kohärenz, kurzer Pulsdauer, hoher Brillianz und einer hohen Repetitionsrate eine vielversprechende Quelle im XUV-Bereich dar, die relativ einfach im Labormaßstab realisiert werden kann. Gegenüber herkömmlichen XUV-Quellen, die i.a. eine höhere Photonenzahl möglich machen, zeichnet sich die HHG durch eine besonders kurze Pulsdauer im fs-Bereich aus.

Above-Threshold Ionisation (ATI)

Ist das Ionisationspotenzial I_P eines Elektrons größer als die Photonenergie der Lichtwelle, so ist eine Photoionisation nur durch eine Absorption von mehreren Photonen möglich. Dieser als Multiphotonionisation (MPI) bezeichnete Prozess ist für niedrige Intensitäten I und hohe Frequenz störungstheoretisch beschreibbar. Wie für die niedrigsten Harmonischen folgt die Ionisationsrate einem Potenzgesetz $(I/I_0)^n$, wobei n durch $(n-1)\hbar\omega < I_P < n\hbar\omega$ gegeben ist. Agostini et al. konnten 1979 durch energieaufgelöste Experimente zeigen, dass ein Elektron bei der Ionisation auch mehr als die minimal notwendige Anzahl von Photonen absorbieren kann, was später als Above-Threshold Ionisation (ATI) bezeichnet wurde. Ein ATI Spektrum besteht demzufolge aus einzelnen peaks im Abstand $\hbar\omega$ bei Energien $n\hbar\omega - I_P$. Ein nicht störungstheoretisches Verhalten findet sich erstmals in der Unterdrückung niedriger peaks (**peak-suppression**) [12]. Ursache dafür ist die ponderomotorische Verschiebung von Kontinuumszuständen. Bei stärkeren Feldern wird die zeitgemittelte Oszillationsenergie eines Elektrons im Feld, die als **ponderomotorisches Potenzial** U_P bezeichnet wird, größer als ein Vielfaches der Photonenergie.

Durch die Verwendung von kurzen Laserpulsen wurden Substrukturen zwischen einzelnen ATI-peaks nachweisbar, die keine ponderomotorische Verschiebung aufweisen und durch eine resonante Ionisation über transiente angeregte Zustände erklärt werden konnten (Freeman Resonanzen) [13]. Einen Überblick über diese frühen Arbeiten bis 1992 ist in [14] zu finden. Für neuere Arbeiten dazu sei auf [15, 16] verwiesen.

Sehr viel später als das Plateau im Spektrum der Harmonischen wurden auch bei der Above-Threshold Ionisation Abweichungen von dem erwarteten starken Abfall der ATI-peaks mit zunehmender Energie [18] festgestellt. Paulus et al. fanden eine Plateaustruktur gefolgt von einem Cutoff für alle Edelgase ähnlich dem im Photo-Emissionsspektrum [17]. Abb. 1.2 zeigt ATI-Spektren in Richtung der Laserpolarisation für alle Edelgase.

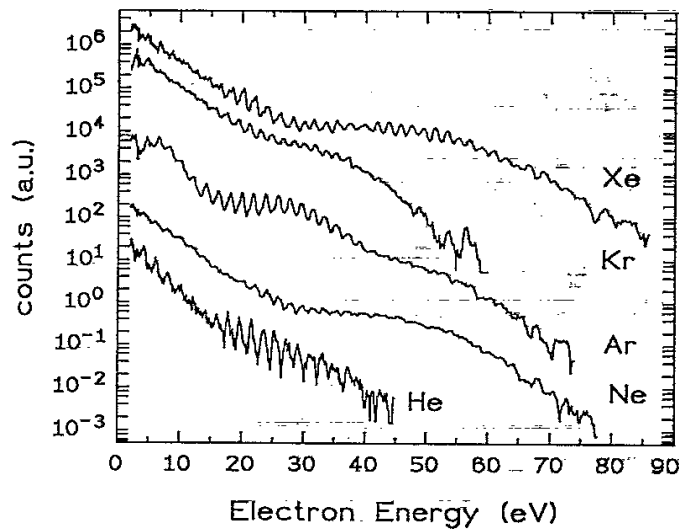


Abbildung 1.2: Experimentell bestimmte ATI-Spektren von Paulus et al. 1994 [17]. Für eine Laserintensität zwischen 2 und $3 \cdot 10^{14}$ W/cm^2 und einer Wellenlänge von 630 nm (2 eV) bei einer Pulsdauer von 40 fs. Wie im Spektrum der Harmonischen findet sich für alle Edelgase nach einem steilen Abfall für niedrige Elektronenergien ein ausgedehnter Plateaubereich in dem die Zahl der nachgewiesenen Elektronen trotz zunehmender Energie konstant bleibt. Nach Erreichen eines Cutoffs fallen die Spektren dann wieder ähnlich stark wie für niedrige Energien ab.

Nachdem zunächst für kleine Energie die Anzahl der nachgewiesenen Elektronen stark abfällt, bleibt sie über einen weiten Energiebereich fast konstant und fällt erst nach einem Cutoff wieder stark ab. Wie bei der HHG gelang auch bei der ATI der Nachweis sehr hoher Ordnungen. An Helium und Neon konnte mit Spitzenintensitäten um 10^{15} W/cm^2 bei 780 nm eine Ausdehnung des Plateaus bis über 500 eV nachgewiesen werden [19, 20].

Gleichzeitig treten für hohe Elektronenergien mit dem Beginn des Plateaus anormale Winkelverteilungen auf [18, 21]. Für kleine Elektronenergien nimmt die Breite der Winkelverteilung um die Polarisationsrichtung des linear polarisierten Feldes mit steigender Elektronenergie stark ab. Am Beginn des Plateaus wird die Verteilung wieder deutlich breiter und man findet auch eine von der Polarisationsrichtung des Lasers abweichende Emission von Elektronen. Die dabei auftretenden Winkelverteilungen sind unter dem Begriff **side-lobes** bekannt. Hin zum Cutoff nimmt die Breite der Winkelverteilung dann wieder ab und ist am Cutoff und für Energien darüber in Richtung der Laserpolarisation ausgerichtet.

Sowohl die HHG als auch die ATI lassen sich in einem ganz erstaunlichem Maße durch eine Modellierung mit einem aktiven Elektron beschreiben. Auch die Doppel- und Mehrfachionisation ist in den überwiegenden Fällen durch eine unabhängige aufeinanderfolgende Ionisation von jeweils nur einem Elektron verständlich (**sequentielle Ionisation**). Im Unterschied zur ATI und HHG finden sich hier aber Parameterbereiche, in denen nicht-

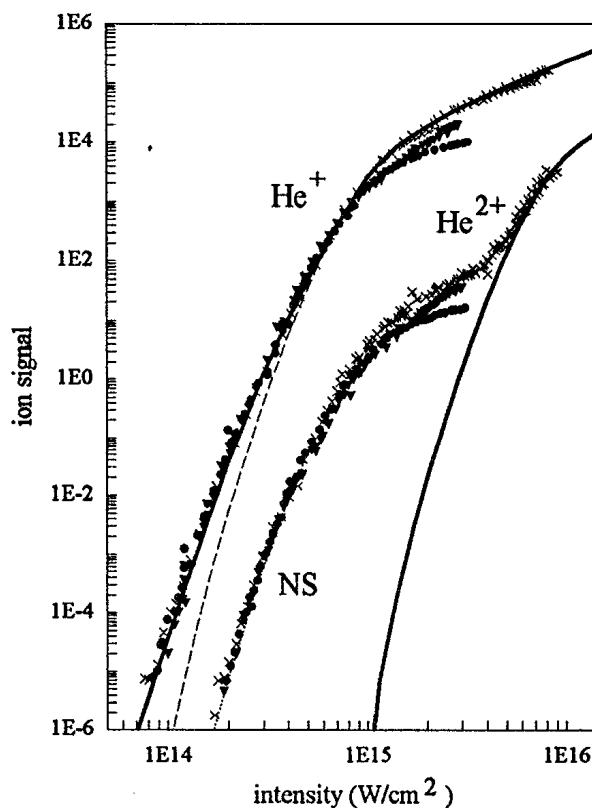


Abbildung 1.3: Gemessene He-Ionensignale (Kreuze, Kreise, Dreiecke) bei linearer Polarisation und einer Pulsdauer von 100 fs bei einer Wellenlänge von 780 nm [22]. Die gestrichelte (links) und die durchgezogene Linie (rechts) gibt die berechneten Ionensignale unter Annahme der ADK-Rate [23] für die sequentielle Ionisation an. Die gemessenen He²⁺ Signale (NS) weichen um viele Größenordnungen deutlich von dem unter Annahme eines sequentiellen Ionisationsmechanismus berechneten He²⁺ Signals (durchgezogene Linie rechts) ab. (Die durchgezogene Linie links (He⁺) ergibt sich aus der numerischen Lösung der TDSE in der SAE-Approximation.)

triviale Mehrteilcheneffekte eine Rolle spielen: Die Ionisation ist um Größenordnungen höher als Voraussagen unter Annahme eines sequentiellen Mechanismus erwarten lassen.

Nichtsequentielle Doppel- und Mehrfachionisation

Der erste experimentelle Hinweis auf eine höhere Ionisationsrate, als aus dem sequentiellen Prozess unter Annahme einer Ionisationsrate für die erste Ionisation von Xe in Xe⁺ und einer zweiten davon unabhängigen Rate für die Ionisation von Xe⁺ in Xe²⁺ folgt, findet sich bereits 1983 bei Huillier et al. [24, 25, 5] bei einer Wellenlänge von 532 nm und 1064 nm. Huillier et al. nahmen zusätzlich zu den bekannten Ionisationsraten von einem Elektron für Xe und Xe⁺ eine zusätzliche nichtsequentielle Doppelionisationsrate (NSDI) von Xe in Xe²⁺ an. Damit ließ sich die mittels Ratengleichungen berechnete Ionisation an die experimentell gefundene anpassen¹. In späteren Arbeiten von Fittinghoff et al. 1992 [6] und Walker et al. 1994 [22] an Helium bei 614 nm und 780 nm und sehr viel kürzeren Pulsen um 100 fs findet sich eine sehr viel stärkere Abweichung von der rein sequentiellen Ionisation. Trägt man die totale Ionisation als Funktion der Intensität auf einem doppelt logarithmischen Plot wie in Abb. 1.3 auf, so ist die Abweichung von der

¹Die experimentell gefundene Rate für die direkte Doppelionisation vom neutralen Xenon ist etwas höher als eine angenommene direkte Multiphotonionisation von Xe in Xe²⁺ der notwendigen Ordnung erwarten lassen [26, 27]. Erst 1994 wurde ein etwas anderer Mechanismus beschrieben [28]: Demzufolge findet zunächst eine Zwei-Elektronen Anregung statt, aus der ein Elektron ionisiert wird und das Ion in einem angeregten Zustand zurücklässt. Das zweite Elektron wird danach durch einen Multiphotonprozess niedrigerer Ordnung ebenso ionisiert.

sequentiellen Ionisation durch eine ausgeprägte Knie-Struktur auffällig. Im Unterschied zu den Experimenten von Huillier kann, aufgrund des hohen Ionisationspotenzials von Helium verglichen mit der Photonenergie, die MPI für diese Experimente als mögliche Ursache für die Knie-Struktur ausgeschlossen werden. Die Ionisation kann in diesem Parameterbereich in guter Näherung durch eine Tunnel- oder Above-Barrier Ionisation in einem quasi-statischen Feld verstanden werden. Die Frage nach dem Mechanismus dieser erhöhten Doppelionisation wurde in den folgenden Jahren heftig diskutiert und ist auch heute noch nicht vollständig aufgeklärt. Neue experimentelle Arbeiten, in denen die Impulse der bei der Ionisation erzeugten Teilchen experimentell bestimmt werden, erlauben einen sehr viel detaillierteren Test der vorgeschlagenen Mechanismen. Im Teil II wird eine einfache quantenmechanische Modellierung analog zur ATI vorgeschlagen und mit allen bislang veröffentlichten differentiellen Experimenten verglichen.

1.2 Das simple man's Modell (SMM)

Einen Meilenstein im Verständnis der Physik in starken Laserfeldern stellt die Formulierung des quasistatischen 3-Stufen Modells [29, 30] von Corkum und Kulander dar², das eine gemeinsame Erklärung der drei angesprochenen Phänomene der Laser-Materie Wechselwirkung ermöglicht. Der Hauptpunkt dabei ist, dass nach einer Ionisation eines Atoms das System aus Ion und Elektron nicht sofort als getrennt betrachtet wird, sondern die Möglichkeit besteht, dass das Elektron getrieben vom Laserfeld wieder zurück zum Atom gelangt. Das SMM geht von drei Stufen aus (Abb. 1.4):

- Im ersten Schritt verlässt ein Elektron zu einem Zeitpunkt t_0 das atomare Bindungspotenzial $V(x)$, indem es durch die vom Laserfeld $E(t_0)$ und dem atomaren Feld gebildete Potentialschwelle tunnelt.
- Für ein ionisiertes Elektron ist das atomare Potenzial in der unmittelbaren Umgebung des Ions gegenüber dem elektrischen Feld des Lasers vernachlässigbar klein. Die klassische Mechanik eines Elektrons im Laserfeld bestimmt somit die Dynamik des Elektrons. Der Schwerpunkt des im ersten Schritt erzeugten Wellenpaketes folgt dabei der klassischen Trajektorie.
- Ein so modelliertes Elektron kann mit einer großen kinetischen Energie wieder zurück zum Ion gelangen und mit diesem in einem dritten Schritt auf vielfältige Weise wechselwirken.

So besteht die Möglichkeit, dass das Elektron unter Emission eines Photons wieder zurück in den Grundzustand des Atoms gelangt. Die Photonenergie ergibt sich aus der Energiedifferenz zwischen maximaler kinetischer Energie bei der Rückkehr und der Bindungsenergie des Grundzustands zu maximal $|E_0| + 3.17U_P$, in Übereinstimmung mit den experimentellen und theoretischen Ergebnissen.

²Derartige Modelle werden nach [31] oft als simple man's Modell bezeichnet und wurden bereits von unterschiedlichen Autoren benutzt [31, 32, 33, 34].

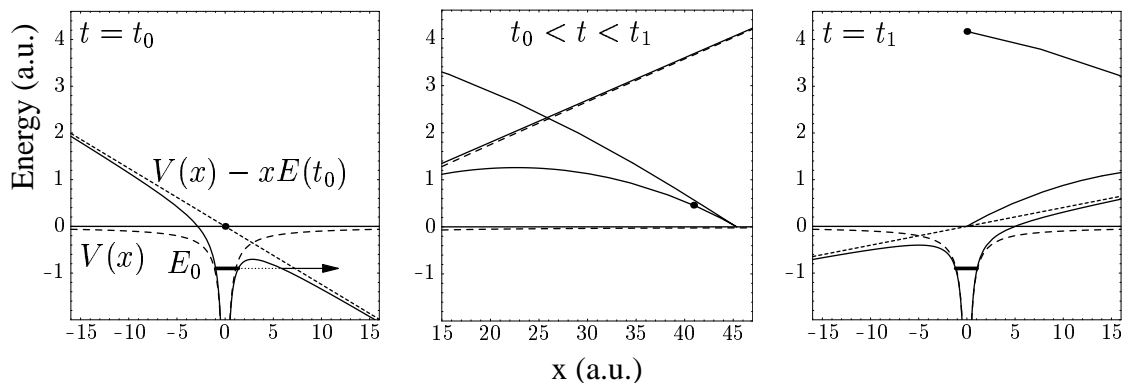


Abbildung 1.4: Visualisierung des quasistatischen 3-Stufen Modells. Die drei Figuren zeigen zu verschiedenen Zeiten innerhalb eines Laserzykluses das Potenzial, dem ein Elektron durch die Wechselwirkung mit dem Ion $V(x)$ (lang gestrichelt) und die Wechselwirkung mit dem Laserfeld $-xE(t)$ (kurz gestrichelt) ausgesetzt ist. Sie entsprechen den 3 Stufen des simple man's Modell (SMM). Die eingezeichnete Spur zeigt die kinetische Energie eines klassischen Elektrons nach der Ionisation zur Zeit t_0 bis zur Rückkehr zur Zeit t_1 . Als Anfangsbedingung ist dazu $x(t_0) = 0$ und $\dot{x}(t_0) = 0$ angenommen, der Startzeitpunkt ist so gewählt, dass die kinetische Energie bei der Rückkehr maximal ist. Während der Exkursion des Elektrons ($t_0 < t < t_1$) ist das atomare Potenzial vernachlässigbar klein. Es wurde eine Wellenlänge $\lambda = 800$ nm und ein Intensität von $6 \cdot 10^{14}$ W/cm² angenommen.

Eine andere Möglichkeit der Elektron-Ion Wechselwirkung bei der Rückkehr besteht in einer elastischen oder inelastischen Streuung. Letztere kann für ausreichend hohe kinetische Energie zur Ionisation eines weiteren Elektrons führen. Dies stellt einen möglichen Mechanismus der NSDI dar.

Eine elastische Rückstreuung am Ion führt dagegen zu hohen Driftimpulsen. Durch eine einfache rein klassische Berechnung ergibt sich eine maximale Driftenergie von $10 U_P$. Dies erklärt den experimentell gefundenen Cutoff bei der ATI. Darüberhinaus lassen sich durch eine rein klassische Rechnung die side-lobes qualitativ mit dem klassisch maximalen Streuwinkel erklären (Regenbogenstreuung) [35].

Durch eine quantitative Abschätzung jeder einzelnen Stufe des Prozesses lässt sich auch eine Wahrscheinlichkeit für den Gesamtprozess angeben. Ergebnisse von Corkum (1993) [30] für die Doppelionisation von Helium sind in guter Übereinstimmung mit den ersten experimentellen Ergebnissen von Fittinghoff [6].

1.3 Theoretische Beschreibung

Eine theoretische Beschreibung der in starken Laserfeldern auftretenden Effekte erscheint zunächst als äußerst schwierig. Bei der einführenden Beschreibung der Effekte wurde

bereits darauf hingewiesen, dass eine störungstheoretische Beschreibung des Laserfeldes misslingt. Das simple man's Modell macht dies eindrucksvoll deutlich: Das im ersten Schritt ionisierte Elektron wird im zweiten Schritt auf atomarer Skala sehr weit vom Ion wegbewegt³. Die Kraft auf das Elektron durch das atomare Potenzial ist dabei sehr klein gegenüber der Kraft, die das Laserfeld auf das Elektron ausübt. In einer störungstheoretischen Beschreibung werden deshalb sehr hohe nicht mehr handhabbare Ordnungen wichtig.

Ein möglicher Ansatz, trotzdem zu theoretischen Aussagen zu gelangen, ist die numerische Lösung der Schrödinger-Gleichung auf einem Gitter. Der numerische Aufwand dafür ist für ein realistisches dreidimensionales atomares Potenzial enorm und erst durch eine Steigerung der Rechenkapazität in den letzten Jahren denkbar geworden. Eine derartige Simulation ist bereits für ein Elektron schwierig; für zwei Elektronen ist sie nur durch eine erhebliche Parallelisierung möglich [36]. Eine erhebliche Vereinfachung bringt die Approximation durch nur ein aktives Elektron (als single-active-electron (SAE)-Approximation bezeichnet). Dabei löst man die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung für ein Elektron im externen Feld des Lasers und einem effektiven atomaren Potenzial, das aus den restlichen Elektronen und dem Kern gebildet wird [37]. Eine wirklich dreidimensionale Integration, die z.B. für ein elliptisch polarisiertes Laserfeld notwendig wäre, konnte auch so bislang nicht ausgeführt werden [38]. Ein vielversprechender Ansatz dazu wurde von Muller [39] unternommen. Darüberhinaus werden numerische Simulation in einer Raumdimension unter Benutzung eines Modellpotenzials durchgeführt, die numerisch sehr viel einfacher auszuführen sind [40]. Insbesondere gilt dies für Rechnungen zur Doppelionisation [41, 42, 43] und für sehr hohe Intensitäten, für die eine relativistische Behandlung notwendig wird. Derartige Simulationen sind im Prinzip als numerische Experimente an einem vereinfachten Atom zu verstehen.

Ein andere Möglichkeit besteht in der Formulierung von Modellen mit sehr viel drastischeren Approximationen, wie z.B. das SMM. Ein auf Keldysh 1964 [44] bzw. auf die adiabatische Approximation in der Quantenmechanik [45] zurückreichender Ansatz erlaubt eine einfache quantenmechanische Beschreibung der Physik von Atomen in starken Laserfeldern. Diese gründet sich auf zwei wichtige Punkte:

- Die atomare Dynamik eines Elektrons ohne Laserfeld ist einfach.
- Die Propagation eines Elektrons allein im Laserfeld ist exakt lösbar.

Lässt sich die Dynamik eines Elektrons, die gleichermaßen durch das atomare Potenzial und durch das Laserfeld bestimmt ist, in wenige disjunkte Zeitintervalle unterteilen, in denen jeweils nur das atomare Potenzial oder das Laserfeld die Propagation bestimmt, so ist dieser Ansatz erfolgreich. Zuerst wurde für die direkte Ionisation aus dem Grundzustand

³Die Größenordnung dafür ist durch die klassische Oszillationsamplitude eines Elektrons im Laserfeld gegeben und beträgt für ein typisches Laserfeld einer Intensität $5 \cdot 10^{14}$ W/cm² und einer Wellenlänge von 800 nm etwa 36 a.u.

(ohne transiente Resonanzen) von Keldysh [44], Faisal [46] (KFR) und Reiss [47] ein derartiges Matrixelement abgeleitet. Es erlaubt eine einfache Beschreibung der experimentellen Photoionisationsspektren für den niederenergetischen Teil des Spektrums. Durch eine Verallgemeinerung des KFR-Matrixelements ist auch eine Modellierung der Plateaustruktur in der Above-Threshold Ionisation möglich [48, 49]. Eine zur KFR-Theorie analoge Beschreibung der HHG wurde von Lewenstein [50] und Becker [51, 52] angegeben. In letzterer wird das Atom durch ein Zero-Range-Potenzial Modell approximiert. Die Resultate beider Modelle sind im wesentlichen identisch [53]. Sie liefern eine sehr gute Approximation des atomaren Responses [54] und wurden in den letzten Jahren ausgiebig zur Analyse und zur Optimierung der HHG benutzt [55, 56, 57, 58]. Die ursprüngliche Modellierung für Atome lässt sich auch auf Molekülonen verallgemeinern [59, 60].

Eine Auswertung der Matrixelemente durch eine Sattelpunktsapproximation, die in diesem Zusammenhang zuerst von Lewenstein et al. [50, 61] eingeführt wurde, führt auf eine semiklassische Beschreibung. Sowohl das differentielle Matrixelement der HHG wie der ATI lässt sich damit durch eine Summe über die Beiträge einzelner Quantentrajektorien⁴

$$M = \sum_n a_n \exp iS_n \quad (1.1)$$

darstellen. S_n bezeichnet dabei eine Approximation der Wirkung entlang der n -ten Quantentrajektorie für ein Elektron im Sinne der von KFR beschriebenen Philosophie. Jeder Index n steht für genau eine komplexwertige raumzeitliche Quantentrajektorie. Der Realteil dieser Trajektorie stellt eine Visualisierung der Bewegung eines freien Elektrons dar. Er ist ähnlich den rein klassischen Trajektorien, die im simple man's Modell zur Beschreibung des Elektrons im Laserfeld benutzt werden.

Im Unterschied zu einer kürzlich ausgeführten semiklassischen Berechnung der exakten Propagation [62, 63] für die ATI, für die eine sehr große Zahl von reellen Trajektorien notwendig ist, trägt in der Summe (1.1) im allgemeinen nur eine kleine Zahl von komplexen Trajektorien bei. Der in der Wirkung S_n auftretende Imaginärteil bestimmt im wesentlichen die Gewichte der einzelnen Trajektorien in der Summe (1.1).

Durch (1.1) ist eine denkbar einfache Entwicklung der Matrixelemente für die Ionisation und die Erzeugung von hohen Harmonischen in starken Laserfeldern in Termen von Trajektorien möglich. Die Darstellung erinnert an die Feynmansche Formulierung der Quantenmechanik durch Pfadintegrale [64, 65], die äquivalent zur ursprünglichen Formulierung der Quantenmechanik in einem Hilbertraum ist, und vor allem in der modernen Quantenfeldtheorie benutzt wird. Das physikalische Bild hinter Feynmans Formulierung von einer Superposition von einzelnen Pfaden zeigt sich so als äußerst nützlich für die Beschreibung der Physik von Atomen in starken Laserfeldern.

⁴Der Begriff Quantentrajektorie oder Quantenpfad wird hier gleichbedeutend mit komplexer Trajektorie verwendet. Die Bezeichnung Quantentrajektorie wird in der Literatur auch in anderen Zusammenhängen mit einer unterschiedlichen Bedeutung verwendet.

1.4 Übersicht

Im ersten Teil wird ausgehend vom verallgemeinerten KFR-Matrixelement, in Anlehnung an erste Arbeiten von Lewenstein [61], eine systematische Entwicklung des Matrixelements nach komplexen Trajektorien vorgenommen. Es wird gezeigt, dass eine derartige Entwicklung möglich ist und auch für kleine Intensitäten eine zufriedenstellende Approximation darstellt. Dazu werden erstmals auch Trajektorien berücksichtigt, deren Reisezeit größer als eine Oszillationsperiode des Laserfeldes ist⁵. Für ein elliptisch polarisiertes Feld erschien eine Entwicklung nach komplexen Trajektorien anfänglich sogar für den einfacheren Fall der HHG als schwer durchführbar [66]. Dies liegt nicht zuletzt daran, dass im Unterschied zur linearen Polarisation für elliptische Polarisation ein SMM nicht einfach formuliert werden kann. In Kapitel 8 wird ausgehend von der vollständigen Entwicklung nach Quantentrajektorien für lineare Polarisation (Kapitel 7) zum erstenmal auch eine Entwicklung für elliptische Polarisation möglich. Im Unterschied zur linearen Polarisation, in der die Trajektorien mit der kürzesten Reisezeit bereits eine gute Approximation darstellen und die Beiträge längerer Trajektorien mit zunehmender Reisezeit immer unwichtiger werden, wird bei elliptischer Polarisation eine starke Unterdrückung der kürzesten Trajektorien gefunden. Der größte Beitrag kommt von Trajektorien mit der nächstlängeren Reisezeit und nimmt dann mit ansteigender Reisezeit wieder ab. Dies erlaubt eine Identifikation von einzelnen spektralen Bereichen mit einzelnen Trajektorien und eröffnet die Möglichkeit einer direkten experimentellen Bestätigung der Realität der Quantentrajektorien. Für die HHG ergibt sich ein ganz analoges Ergebnis mit ganz ähnlichen Trajektorien [67].

Am Ende des ersten Teils wird in Kapitel 9 auf bislang unverstandene Effekte in den Rückstreuenspektren der ATI eingegangen:

Photoelektronen hoher Energie sind für lineare Polarisation sehr stark in Richtung der Laserpolarisation ausgerichtet. Für elliptische Polarisation findet eine Aufspaltung dieses Plateaus statt. In Abschnitt 9.1 wird gezeigt, dass dies durch eine Interferenz von Elektronen, die direkt ionisiert werden — also keine Rückstreuung am Ion erfahren — und von rückgestreuten Elektronen verstanden werden kann. Dies ergibt sich im Prinzip ohne die zuvor abgeleitete Trajektorienanalyse, gewinnt aber dadurch erheblich an Anschaulichkeit. Eine Interferenz zwischen den Beiträgen der direkten Trajektorien konnte bereits zuvor bei der Messung von Photoelektronen einer konstanten Energie als Funktion der Elliptizität nachgewiesen werden [68]. Die theoretische Interpretation basiert auch dabei auf einer Entwicklung nach Quantentrajektorien, die jedoch für die direkten Elektronen wesentlich einfacher ist und ganz wesentlich zur Motivation dieser Arbeit beigetragen hat.

In Abschnitt 9.2 wird auf ein an Argon und Xenon experimentell gefundenes [69, 70] stark ausgeprägtes resonantes Verhalten im Plateau- oder Rückstreubereich der ATI-Elektronen eingegangen. Innerhalb eines kleinen Intensitätsbereichs nimmt dabei die Zählrate für eine Gruppe von ATI-peaks um bis zu eine Größenordnung zu. Über mögliche Ursachen

⁵Als Reisezeit kann die Differenz zwischen dem Rückstreuzeitpunkt und dem Ionisationszeitpunkt im simple man's Modell verstanden werden.

dafür wurde in den letzten Jahren viel spekuliert, der Effekt blieb aber bislang weitgehend unerklärt. Numerische Simulationen von Muller für Argon zeigen, dass es sich um einen Einelektron-Effekt handelt [71, 72, 73]. Die Simulationen weisen weiter darauf hin, dass ähnlich wie bei den sehr viel früher gefundenen Freeman Resonanzen im niederenergetischen Teil des ATI-Spektrums Rydbergzustände eine wichtige Rolle spielen. Hier wird gezeigt, dass der Effekt überraschenderweise im Rahmen der verallgemeinerten KFR-Theorie beschreibbar ist. Das Bindungspotenzial wird dazu durch ein ZRP, das nur einen gebundenen Zustand besitzt, approximiert. Daher treten ausgeprägte Schwelleneffekte bei einem Channel-Closing auf, die den experimentell gefundenen Resonanzeffekten sehr ähnlich sind. Für ein Channel-Closing gilt $U_P - E_0 = n\hbar\omega$, d.h. die minimale Energiedifferenz zwischen den ponderomotorisch verschobenen Kontinuumszuständen und dem Bindungszustand (Bindungsenergie E_0) entspricht gerade einem Vielfachen der Photonenenergie. Für eine etwas höhere Intensität und damit höheres U_P ist ein Photon mehr zur Ionisation notwendig. Sowohl die Resonanzintensität als auch die Einhüllende des ATI-Spektrums der numerischen Simulation und der Experimente werden dadurch sehr gut approximiert. Die Trajektorienanalyse zeigt, dass in diesem Fall sehr viel mehr Trajektorien beitragen, die alle konstruktiv interferieren und so zu der resonanten Überhöhung führen. Dies erklärt, warum nur der untere Teil des Plateaus eine resonanzartige Erhöhung erfährt. Es wird ein Vergleich mit neueren Experimenten angestellt, der zeigt, dass sich, wie in der Modellierung, der Effekt für höhere Intensitäten beim übernächsten Channel-Closing wiederholt.

In Teil II wird auf der Grundlage der KFR-Theorie eine Verallgemeinerung des Ionisationsmatrixelements für die Einfachionisation auf die Doppelionisation vorgenommen, die es erlaubt winkelaufgelöste Elektronspektren zu berechnen. Für die Einfachionisation liefert das in Teil I ausgiebig diskutierte verallgemeinerte KFR-Matrixelement bereits für eine Approximation des atomaren Potenzials durch eine Zero-Range Potenzial eine sehr gute Beschreibung aller wesentlichen Aspekte. Eine systematische Entwicklung der S-Matrix, ähnlich wie sie für die Above-Threshold Ionisation für ein Elektron durchgeführt wurde, ist für die Doppelionisation wesentlich schwieriger. Becker und Faisal [74, 75] haben eine derartigen Weg beschritten.

Hier wird ein anderer Ansatz verfolgt. Aus der Modellierung der ATI und der HHG wird klar, dass die jeweiligen Matrixelemente im wesentlichen durch eine Approximation der Wirkung bestimmt sind. Dazu wird zu unterschiedlichen Zeiten für die Propagation und damit für die Approximation der Wirkung entweder das atomare Potenzial oder das Laserfeld vernachlässigt. Für einen gegebenen Mechanismus der Doppelionisation, wie z.B. den von Corkum vorgeschlagenen inelastischen Streuprozess, lässt sich so in vielen Fällen sehr leicht eine derartige Approximation der Wirkung angeben. Es werden zwei Szenarien untersucht, die beide auf dem von Corkum vorgeschlagenen inelastischen Streumodell basieren (SMM). Die zur Ionisation eines Elektrons notwendige Wechselwirkung wird für jedes Elektrons durch eine Kontaktwechselwirkung am Ort des Ions approximiert.

Vor kurzem wurde ein experimentelle Untersuchung der Impulsverteilungen der bei der Doppel- und Mehrfachionisation erzeugten Elektronen und Ionen möglich. Erste experimentelle Ergebnisse konzentrieren sich auf die Ionenimpulse [76, 77, 78]. Ein Ex-

periment an Neon, das bei relativ hoher Intensität ausgeführt wurde, ist in sehr guter Übereinstimmung mit den hier durchgeführten Modellrechnungen unter Annahme einer einfachen inelastischen Streuung. Eine Untersuchung der Intensitätsabhängigkeit führt aber zu einer Diskrepanz mit Ergebnissen einer zweiten experimentellen Gruppe, die Messungen an Helium und Argon bei niedrigeren Intensitäten durchführte. Am Ende von Teil II wird ein etwas komplexerer Ionisationsmechanismus angenommen, der die gefundene Diskrepanz möglicherweise verständlich macht.

Die in Teil II formulierte Approximation lässt darüberhinaus eine Untersuchung anderer denkbarer Szenarien zu. Eine Verallgemeinerung auf den Fall einer Ionisation von mehr als zwei Elektronen ist genauso denkbar und wird kurz skizziert. Alle expliziten Resultate wurden für ein linear polarisiertes Laserfeld abgeleitet, die Formulierung aber für ein allgemeines Feld angegeben. Eine Ableitung von Resultaten für ein elliptisch polarisiertes Feld sollte daher einfach möglich sein.

Kapitel 2

Das Konzept eines klassischen Elektrons im Laserfeld

In starken Laserfeldern sind die Eigenschaften eines ionisierten Elektrons ganz wesentlich vom Laserfeld selbst bestimmt. Bereits die Betrachtung eines klassischen Elektrons, das zu einem gegebenen Zeitpunkt t_i ins Laserfeld gelangt erlaubt weitreichende Aussagen.

Die in der gesamten Arbeit betrachteten Wellenlängen und Intensitäten erlauben eine Dipolapproximation des Laserfeldes. Die Feldstärke \mathbf{E} wird damit ausschließlich zeitabhängig. Die Lagrangefunktion für ein Elektron ist in Längeneichung durch

$$L = \frac{1}{2}m \dot{\mathbf{r}}^2 + e \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t) \quad (2.1)$$

gegeben. Die Einführung eines speziellen Vektorpotenzials $\mathbf{A}(t)$ durch

$$\mathbf{A}(t) = - \int dt \mathbf{E}(t) \quad \text{und} \quad \langle \mathbf{A}(t) \rangle_T = 0 \quad (2.2)$$

führt im allgemeinen zu wesentlich einfacheren Ausdrücken. Dabei bezeichnet $\langle \cdot \rangle_T$ das Zeitmittel über eine Periode des Feldes. Die Newtonsche Bewegungsgleichung für das Elektron ist damit durch

$$m\ddot{\mathbf{r}}(t) = -e \partial_t \mathbf{A}(t) \quad (2.3)$$

gegeben. Die Geschwindigkeit des Elektrons für $t > t_i$ ergibt sich mit der Anfangsbedingung $\dot{\mathbf{r}}(t_i) = \mathbf{v}_i$ zu

$$\dot{\mathbf{r}}(t) = -\frac{e}{m} [\mathbf{A}(t) - \mathbf{A}(t_i)] + \mathbf{v}_i \quad (2.4)$$

Durch eine Zeitmittelung über eine Periode T des Laserfeldes ergibt sich daraus der Driftimpuls \mathbf{p} des Elektrons

$$\mathbf{p} = m \langle \dot{\mathbf{r}}(t) \rangle_T = e \mathbf{A}(t_i) + m \mathbf{v}_i. \quad (2.5)$$

Die Geschwindigkeit des Elektrons ausgedrückt durch den Driftimpuls ist durch

$$m\dot{\mathbf{r}}(t) = \mathbf{p} - e\mathbf{A}(t) \quad (2.6)$$

gegeben.

Zusätzlich zum Drift führt das Elektron getrieben vom Laserfeld eine Oszillation aus. Die gesamte kinetische Energie ergibt sich im Zeitmittel zu

$$\frac{1}{2}m \langle \dot{\mathbf{r}}^2(t) \rangle_T = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + \frac{e^2 \langle \mathbf{A}^2(t) \rangle_T}{2m}, \quad (2.7)$$

besteht also aus der Driftenergie und der sogenannten ponderomotorischen Energie

$$U_P = \frac{e^2 \langle \mathbf{A}^2(t) \rangle_T}{2m}, \quad (2.8)$$

die die zeitgemittelte Oszillations-Energie des Elektrons darstellt. U_P ist proportional zur Intensität I eines Laserfeldes und kann deshalb für konstante Frequenz auch als Maß für die Intensität dienen.

Bei Ionisationsexperimenten mit kurzen Laserpulsen durchläuft ein Elektron auch bei einer starken Fokussierung praktisch keinen räumlichen Feldgradienten. Der Driftimpuls im Laserfeld ist damit identisch mit dem in einem Detektor gemessenen kinematischen Impuls des Elektrons außerhalb des Laserfeldes.

Approximiert man eine Ionisation eines Atoms einfach dadurch, dass man zu einem Zeitpunkt t_i ein Elektron ins Feld des Lasers setzt und auf die Dynamik des ionisierten Elektrons den Einfluss des atomaren Potentials vernachlässigt, dann ist der Driftimpuls des klassisch betrachteten Elektrons durch Gl. (2.5) gegeben. Nimmt man weiter an, dass die Startgeschwindigkeit des Elektrons zum Zeitpunkt der Ionisation Null ist, so ist der Driftimpuls durch das Vektorpotential zum Zeitpunkt der Ionisation bestimmt

$$\mathbf{p} = e \mathbf{A}(t_i). \quad (2.9)$$

Die Driftenergie eines Elektrons ist damit durch

$$\frac{\mathbf{p}^2}{2m} = \frac{e^2 \mathbf{A}^2(t_i)}{2m}. \quad (2.10)$$

gegeben. Für ein monochromatisches linear polarisiertes Laserfeld $\mathbf{A}(t) = \mathbf{A} \cos \omega t$ ergibt sich daraus eine Driftenergie

$$\frac{\mathbf{p}^2}{2m} = \frac{e^2 \mathbf{A}_0^2 \cos^2 \omega t_i}{2m} \leq \frac{e^2 \mathbf{A}_0^2}{2m} = 2U_P. \quad (2.11)$$

Die klassische Grenze von $2U_P$ wird deshalb oft als Cutoff der **direkten** Elektronen bezeichnet. Im Spektrum ist ein derartiger Cutoff aber kaum zu erkennen, wie in Kapitel 5 gezeigt wird. Ursache dafür ist, dass die Ionisation von der Größe des elektrischen Feldes zum Ionisationszeitpunkt $\mathbf{E}(t_i)$ abhängt. Ist aber das elektrische Feld groß, so ist

das Vektorpotenzial und damit der Driftimpuls klein. Größere Driftimpulse werden so immer unwahrscheinlicher. Klassische Abschätzungen durch das simple man's Modell für die HHG oder die ATI im Plateau stellen eine Verallgemeinerung dieser einführenden Überlegungen dar und werden in Abschnitt 6.2 diskutiert.

Für ein elliptisch polarisiertes monochromatisches Feld $\mathbf{A}(t) = A_0 [\hat{\mathbf{e}}_1 \cos \omega t + \xi \hat{\mathbf{e}}_2 \sin \omega t]$ ist die klassische Driftenergie durch

$$\frac{2 U_P \xi^2}{1 + \xi^2} \leq \frac{\mathbf{p}^2}{2m} \leq \frac{2U_P}{1 + \xi^2}. \quad (2.12)$$

beschränkt. Da die größte Ionisationswahrscheinlichkeit zu Zeitpunkten t_i gegeben ist, an denen das elektrische Feld $\mathbf{E}(t) = A_0 \omega [-\hat{\mathbf{e}}_1 \sin \omega t + \xi \hat{\mathbf{e}}_2 \cos \omega t]$ am größten ist, also für $\omega t_i = n\pi + \pi/2$ ($\xi \leq 1$ angenommen), ergibt sich für den Driftimpuls

$$\mathbf{p} = \pm e A_0 \hat{\mathbf{e}}_2, \quad (2.13)$$

das Elektron erhält also einen großen Driftimpuls in Richtung der kleinen Komponente der Feldellipse. Dieser als **dodging** bezeichnete Effekt tritt tatsächlich auf, wie in den experimentellen Winkelverteilungen in Abb. 9.1 und Abb. 9.5 zu sehen.

Die Annahme eines relativ gut definierten Ionisationszeitpunktes ist nur dann sinnvoll wenn die Ionisation verglichen mit der Oszillation des Feldes schnell verläuft. Eine grobe Orientierung ist durch den Adiabazitäts- oder **Keldysh-Parameter** [44]

$$\gamma = \sqrt{\frac{|E_0|}{2U_P}} \quad (2.14)$$

möglich. Darin bezeichnet E_0 die Bindungsenergie des Elektrons im Atom. Für $\gamma \ll 1$ spricht man von **Tunnelionisation** (TI), eine Abschätzung der Tunnelzeit ergibt einen kleinen Wert verglichen mit der Periode des Feldes, für $\gamma \gg 1$ dagegen von **Multiphotonionisation** (MPI), d.h. der Ionisationsprozess dauert lange verglichen mit der Periode des Feldes. Für sehr starke Felder und ausreichend lange Periodendauer gelangt man in den Bereich der **Above-Barrier Ionisation**. Die Potenzialbarriere

$$-\frac{e^2}{|\mathbf{r}|} - e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t_i) \quad (2.15)$$

gegeben durch das Laserfeld und das atomare Potenzial ist soweit abgesenkt, dass das Elektron aus seinem Bindungszustand ohne einen Tunnelprozess ionisieren kann. Die Annahme eines konkreten Startzeitpunkts ist hierbei ganz besonders sinnvoll.

Teil I

Above-Threshold Ionisation (ATI)

Kapitel 3

Einleitung

Alle frühen theoretischen und experimentellen Arbeiten bis etwa 1993 zur Above-Threshold Ionisation (ATI) beziehen sich auf den direkten Teil des ATI-Spektrums. Die Ionisation findet dabei entweder über transiente angeregte Zustände des Atoms statt (Freeman Resonanzen [13]) oder durch eine direkte Ionisation aus dem Grundzustand. Darunter ist zu verstehen, dass das Elektron nach der Ionisation keine wesentliche Wechselwirkung mit dem Potenzial des zurückgebliebenen Ions mehr erfährt. Das entstehende Spektrum fällt für zunehmende Energie stark ab und verschwindet schließlich im Rauschen. Bereits 1993 wurden dabei allerdings sehr hohe ATI-Ordnungen nachgewiesen mit Elektronenergien bis 400 eV bei einer Photonenergie von 1.51 eV [79]. Erst die Entwicklung von Lasersystemen mit Repetitionsraten von einem kHz machten einen Nachweis von ATI-Elektronen über mehrere Größenordnungen möglich und führten so 1994 zur Entdeckung des Plateaus im hochenergetischen Teil des ATI-Spektrums und eines Cutoffs [17], ähnlich wie im Spektrum der Harmonischen. ATI-Elektronen im hochenergetischen Plateau-Bereich des ATI-Spektrum treten um einige Größenordnungen seltener auf als ATI-Elektronen mit niedrigen Energien. Dies erfordert eine Analyse der Spektren auf logarithmischer Skala. Abb. 3.1 zeigt am Beispiel von Xenon, wie sich bei Laserintensitäten von einigen 10^{13} W/cm² langsam eine Plateaustruktur entwickelt.

Eine einfache quantenmechanische Modellierung der Plateaustruktur ist durch eine Verallgemeinerung des KFR-Matrixelements unter Berücksichtigung **einer** Wechselwirkung des Elektrons mit dem Ion nach der Ionisation gelungen [48]. Das nach Keldysh, Faisal und Reiss benannte KFR-Matrixelement beschreibt nur den niederenergetischen, direkten Teil des ATI-Spektrums. Die Position des Cutoffs bei $10 U_P$ ergibt sich durch eine einfache klassische Rechnung im Rahmen eines simple man's Modells (SMM) [35], das darüberhinaus die enge Beziehung zwischen der ATI und der Erzeugung hoher Harmonischer (HHG) deutlich macht: Im quasistatischen 3-Stufen Modell [30] sind die ersten beiden Stufen des Modells für die ATI und die HHG identisch.

In Teil I wird erstmals eine vollständige systematische Entwicklung des verallgemeinerten KFR-Matrixelements in Trajektorien ausgeführt. Wie bei der semiklassischen Approximation des Propagators ergibt sich die im Folgenden auch häufig als Trajektorienanalyse

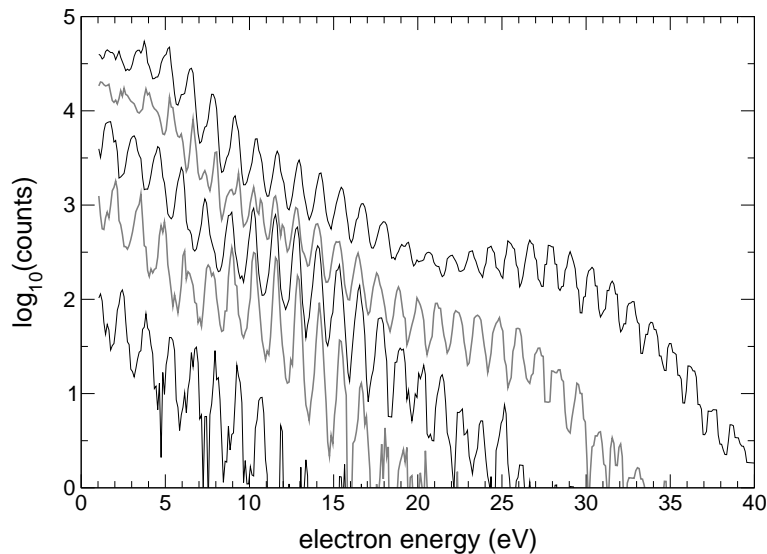


Abbildung 3.1: Experimentelle ATI-Spektren an Xenon von Paulus et al. (bislang nicht veröffentlicht) in Richtung des Laserfeldes für lineare Polarisation für Intensitäten zwischen etwa 3 bis $5 \cdot 10^{13}$ W/cm^2 . Die Pulsdauer betrug etwa 40 fs bei einer Wellenlänge von 800 nm. Mit zunehmender Intensität (von unten nach oben) wird für die beiden höchsten Intensitäten ein ausgeprägtes Plateau sichtbar.

bezeichnete semiklassische Approximation der S-Matrix durch eine Sattelpunktsapproximation. Man erhält dabei komplexe Sattelpunkte und Trajektorien, die eine geeignete einfache und anschauliche Basis zur Entwicklung des Matrixelements darstellen. Es wird gezeigt, dass alle wesentlichen Aspekte im hochenergetischen Plateaubereich der ATI dadurch verständlich werden. Die Trajektorien für die ATI und HHG bei entsprechender Energie sind einander sehr ähnlich [67].

Im Unterschied zur HHG werden ATI-Experimente bei niedrigen Drücken durchgeführt. Typischerweise wird durch mehrere Laserpulse im Mittel nur ein Elektron erzeugt. Damit werden Raumladungseffekte, die die Energieverteilung der erzeugten Elektronen beeinflussen, vermieden, so dass im Prinzip der atomare Response gemessen wird. ATI-Experimente sollten daher besonders geeignet zum Nachweis der hier beschriebenen Quantentrajektorien sein. Für direkte Trajektorien im niederenergetischen Teil des Spektrums ist dies auch bereits für ein elliptisch polarisiertes Laserfeld gelungen [68].

Für die HHG konnte vor kurzem eindrucksvoll die Realität dieser Trajektorien experimentell gezeigt werden [80]. Dies ist insofern erstaunlich, da im Unterschied zur ATI in der HHG der atomare Response nicht direkt messbar ist, da bei den erforderlichen Drücken die Propagation der erzeugten Photonen durch die Dispersion des jeweiligen Mediums verändert wird. Ganz wesentlich dabei ist, ob die an unterschiedlichen Atomen erzeugten Harmonischen in Phase zueinander sind (phasematching) [81]. Ein wichtiges Ergebnis der Trajektorienanalyse für die HHG ist eine unterschiedliche Intensitätsabhängigkeit der Phase unterschiedlicher Trajektorien. Daraus resultiert ein unterschiedliches Propagati-

onsverhalten, was zu einer makroskopischen Trennung im Raum- und Frequenzbereich führt [82]. Im Experiment von Bellini et al. wurde dies ausgenutzt, um interferometrisch die Existenz der Trajektorien zu zeigen.

Im Folgenden Absatz werden die wesentlichen Punkte des Experiments und dessen Interpretation kurz dargestellt.

Für die HHG ist die Berechnung des atomaren Responses nur der erste Schritt. Die nichtlineare Polarisierbarkeit aller einzelnen Atome im Fokus des Lasers geht in die Maxwellgleichungen ein, aus denen der kollektive Response des gesamten Mediums berechnet werden kann. Dieser ist entscheidend von der Intensitätsabhängigkeit der Phase der an einem Atom erzeugten Harmonischen abhängig [81]. Eine sehr gute voll quantenmechanische Modellierung des atomaren Responses der HHG in Analogie zum SMM wurde unabhängig voneinander von Lewenstein [50] und Becker [52] entwickelt. Lewenstein führte eine Sattelpunktsapproximation zur Auswertung der notwendigen Integrale aus, die auf einer Entwicklung nach Beiträgen unterschiedlicher Trajektorien führt. Der wesentliche Beitrag zum atomaren Dipolmatrixelement

$$D_n(I) = \int dt e^{in\omega t} \langle \psi(t) | \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{r} | \psi(t) \rangle \quad (3.1)$$

für eine gegebene Harmonische der Frequenz $n\omega$ und einer Intensität I des Laserfeldes stammt von zwei Trajektorien oder Sattelpunkten. Das atomare Dipolmatrixelement kann so in eine Summe

$$D_n(I) = A_1(I)e^{-iI\alpha_1} + A_2(I)e^{-iI\alpha_2} \quad (3.2)$$

über die Beiträge einzelner elektronischer Trajektorien oder Quanten-Pfade zerlegt werden. Die α_i sind eng mit der Reisezeit einer Trajektorie verknüpft, die im wesentlichen durch die Differenz zwischen der Rückkehrzeit und der Startzeit im SMM gegeben ist und i.a. mit τ_i bezeichnet wird. In [82, 83] wird gezeigt, dass auch ein $D_n(I)$, das aus einer numerischen Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung berechnet wird, in gleicher Weise zerlegbar ist. Gaarde et al. [82] finden so für die Realteile von α_1 und α_2 , durch die die Phase der n -ten Harmonischen für die zwei hauptsächlich beitragenden Trajektorien gegeben ist, ein ähnliches Ergebnis wie in der Modellierung von Lewenstein. Die unterschiedlichen α_i führen auf das unterschiedliche Propagationsverhalten der Trajektorien: Die Beiträge der Trajektorie mit der kürzeren Reisezeit τ_1 werden durch die Propagation stärker fokussiert als die Beiträge der Trajektorie τ_2 . Dies eröffnet die Möglichkeit eines experimentellen Nachweises. Dazu sei auch auf eine weitere etwas systematischere Untersuchung verwiesen [84].

Wie bereits angesprochen spielen bei ATI-Experimenten Propagationseffekte keine Rolle, so dass dadurch eine sehr viel direktere Beobachtung von Effekten der unterschiedlichen Trajektorien möglich sein sollte. In der Tat ist dies bereits für die direkten Elektronen bei der Messung von Elliptizitätsverteilungen gelungen [68]. Wesentlicher Bestandteil dieses

ersten Teils ist eine systematische Entwicklung des verallgemeinerten Matrixelements in Trajektorien, die am Ion rückgestreut werden.

In Kapitel 4 wird zu Beginn das hier benutzte verallgemeinerte KFR-Matrixelement abgeleitet und mit einer exakten numerischen Lösung der Schrödinger-Gleichung für Wasserstoff verglichen. Das atomare Potenzial wird durch ein Zero-Range-Potenzial approximiert.

In Kapitel 6-8 wird erstmals eine systematische Entwicklung des Ionisationsmatrixelements für starke Laserfelder nach Quantentrajektorien durchgeführt. Diese stützt sich auf erste Arbeiten von Lewenstein et al. [61]. Abgesehen von der Bedeutung der Quantentrajektorien für die Propagationseigenschaften der Harmonischen stellen diese eine geeignete einfache Basis zur Darstellung von Ionisationsmatrixelementen genauso wie von Dipolmatrixelementen in starken Laserfeldern dar und sind daher von theoretischem Interesse. Zunächst wird in Kapitel 5 der mathematisch wesentlich einfachere Fall der direkten Elektronen behandelt. Für die rückgestreuten Elektronen ist eine Sattelpunktsapproximation für ein mindestens zweidimensionales Integral mit komplexen Sattelpunkten auszuführen, was eine mathematisch strenge Vorgehensweise, die für die direkten Trajektorien noch möglich ist, erheblich erschwert. Ausgehend vom Grenzfall verschwindender Bindungsenergie, der für lineare Polarisation auf das rein reelle klassische simple man's Modell für die ATI führt, gelingt auch eine Approximation für die komplexen Sattelpunkte in Kapitel 7. In Kapitel 8 wird so erstmals auch eine Entwicklung nach Quantentrajektorien für elliptische Polarisation möglich. Damit werden verschiedene Aspekte der Spektren bei elliptischer Polarisation sowohl in den Spektren als auch den Winkelverteilungen nachvollziehbar.

Im Zusammenhang mit der vorliegenden Arbeit konnten für die HHG kürzlich auch noch kompliziertere Laserfelder, mit zwei Frequenzen bei zirkularer und linearer Polarisation [85, 86], analysiert werden. Darüberhinaus wurde ein Cutoff-Gesetz für elliptische Polarisation abgeleitet [87]. Für Intensitäten, die eine relativistische Behandlung notwendig machen, erwartet man, dass die Methode besonders nützlich ist.

Am Ende des ersten Teils wird in Kapitel 9 auf Basis der zuvor abgeleiteten Theorie eine einfache Interpretation von zwei neuen Effekten im Rückstreubereich der Photoelektronen möglich.

Für lineare Polarisation ist die Ausdehnung des Plateaus in unterschiedlichen Emissionsrichtungen bezüglich der Polarisation des Laserfeldes sehr gut klassisch verständlich. Dies zeigt sich deutlich an den in den Winkelverteilungen gefundenen "side-lobes". Deren Position ist qualitativ durch den klassisch maximalen Streuwinkel bei fester Energie erklärbar (Regenbogenstreuung). Für elliptische Polarisation zeigen die Experimente ein qualitativ ganz anderes Verhalten. Die für lineare Polarisation für zunehmende Elektronenergie immer enger werdenden Winkelverteilungen sind bei elliptischer Polarisation weitgehend unabhängig von der Energie der Elektronen und über den Cutoff der rückgestreuten Elektronen hinaus strukturiert. Es wird gezeigt, dass dies durch eine Interferenz von Elektronen, die direkt ionisiert werden — also keine Rückstreuung am Ion erfahren — und von rückgestreuten Elektronen verstanden werden kann. Dies ergibt sich

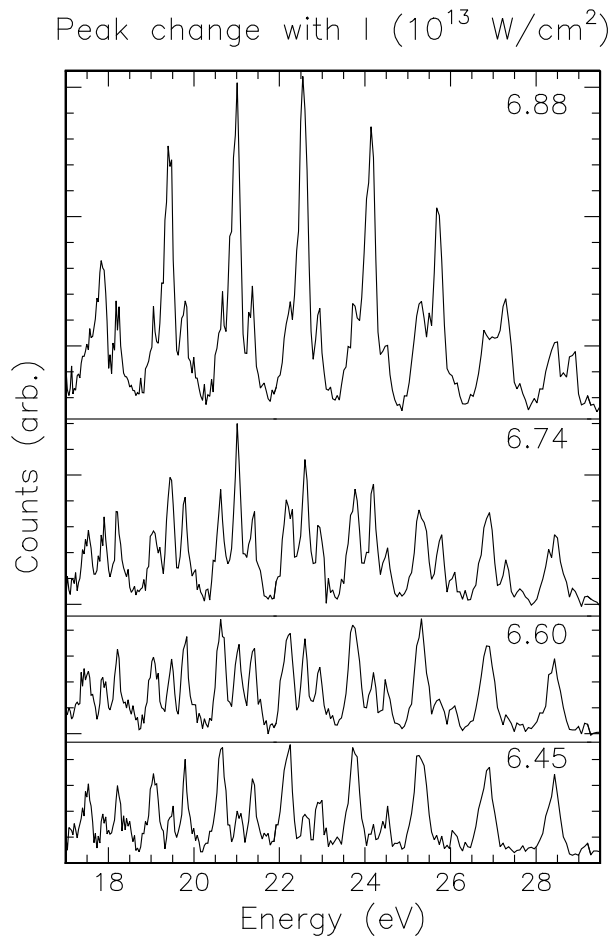


Abbildung 3.2: Ausschnitt aus dem Plateau-Bereich eines ATI-Spektrum gemessen von Hertlein et al. [70] an Argon. Die Photonenergie beträgt $\hbar\omega = 1.55$ eV. Für eine von Bild unten ($6.45 \cdot 10^{13}$ W/cm²) nach oben ($6.88 \cdot 10^{13}$ W/cm²) zunehmende Spitzenintensität im Laserfokus nimmt die Anzahl der nachgewiesenen ATI-Elektron im dargestellten Energieintervall resonanzartig zu.

im Prinzip ohne die zuvor abgeleitete Trajektorienanalyse. Diese liefert jedoch eine anschauliche Interpretation.

In den letzten Jahren wurde auch im Rückstreubereich der ATI-Elektronen (d.h. für Energien, die viel höher sind als die, bei denen die Freeman Resonanzen auftreten) ein resonanzartiges Ansteigen einer Gruppe von ATI-Peaks sowohl für Xenon als auch Argon gefunden [70, 69]. Abb. 3.2 zeigt die Ergebnisse von Hertlein et al. [70] für Argon. In einer numerischen Simulation für Argon wurde von Muller gezeigt, dass es sich dabei um einen Einelektron-Effekt handelt. Die Simulationen weisen darauf hin, dass dafür wie für die direkten Elektronen angeregte Zustände eine wichtige Rolle spielen. Dies ist sehr erstaunlich, da alle angeregten Zustände bei der fraglichen Resonanzintensität oberhalb der aus dem Laserfeld und dem atomaren Feld gebildeten Ionisationsschwelle liegen und daher innerhalb von weniger als einer Periode des Laserfeldes ionisieren sollten.

Erstaunlicherweise ist, wie am Ende von Teil I gezeigt wird, auch dieser Effekt im Rahmen einer verallgemeinerten KFR-Theorie zu verstehen. Als Bindungspotenzial wird wie im gesamten ersten Teil ein Zero-Range-Potenzial verwendet, das keine angeregten gebundenen Zustände besitzt. Daher treten ausgeprägte Schwelleneffekte bei einem Channel-Closing auf, die den experimentell gefundenen Resonanzeffekten sehr nahe kommen. Auch in diesem Falle ist eine Entwicklung des Matrixelements nach Quanten-

trajektorien möglich. Diese erlaubt eine einfache semiklassische Interpretation: Im Unterschied zum normalen Fall, in dem das Matrixelement durch eine Interferenz von wenigen Trajektorien zu erklären war, interferieren bei einem Channel-Closing alle Trajektorien im Energiebereich der Resonanz konstruktiv. Damit gelingt eine neue semiklassische Interpretation, die sich nicht auf eine atomare Resonanz stützt, deren Relevanz bei den in Frage stehenden Intensitäten schwer verständlich ist.

Kapitel 4

Ein einfaches quantenmechanisches Modell der ATI

In der Approximation, in der nur ein Elektron als aktiv angenommen wird (SAE-Approximation), kann das Ionisationsmatrixelement als

$$M_{\mathbf{p}} = \lim_{\substack{t \rightarrow \infty \\ t' \rightarrow -\infty}} \langle \psi_{\mathbf{p}}(t) | U(t, t') | \phi_{E_0}(t') \rangle \quad (4.1)$$

geschrieben werden. Dabei bezeichnet $|\phi_{E_0}(t')\rangle$ den Zustand, in dem sich das betrachtete Elektron im effektiven Bindungspotenzial des Atoms vor Ankunft des Laserpulses befindet. Dies sei ein Eigenzustand des atomaren Hamiltonoperators mit Eigenwert E_0 , der Bindungsenergie des Elektrons. Nach dem Laserpuls soll sich das Elektron in einem Streuzustand des Bindungspotenzials mit Impuls \mathbf{p} befinden. Abhängig vom gewählten Bindungspotenzial sind sowohl der Endzustand als auch der Anfangszustand gegeben. Die Schwierigkeit liegt in der Berechnung des Zeitentwicklungsoperators $U(t, t')$. Er ist Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung zum Hamiltonoperator

$$H(t) = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} - e \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t) + V(\mathbf{r}) \quad (4.2)$$

mit der Randbedingung $U(t, t) = 1$.

Für starke Laserfelder ist die Wechselwirkung des Elektrons mit dem Laserfeld $-e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t)$ nicht mehr als Störung gegenüber der Wechselwirkung mit dem Bindungspotenzial zu betrachten. Dies gilt für höher angeregte, quasigebundene Zustände, und vor allem für Kontinuumszustände. Der tiefste gebundene Zustand wird am wenigsten vom Feld beeinflusst.

Im folgenden Abschnitt wird nach Keldysh, Faisal und Reiss [44, 46, 47] (KFR) eine Näherungslösung für das Ionisationsmatrixelement für starke Laserfelder abgeleitet. Sie ist Ausgangspunkt für eine Verallgemeinerung [49], die im darauf folgenden Abschnitt abgeleitet wird.

4.1 Das KFR-Matrixelement

Für eine Ableitung des KFR-Matrixelements wird zunächst eine exakte Integralgleichung für den Zeitentwicklungsoperator im Matrixelement (4.1) benutzt. Die Dyson-Gleichung für die Zeitentwicklungsoperatoren $U_{a,b}(t, t')$, die jeweils die Schrödinger-Gleichung zum Hamiltonoperator $H_{a,b}(t_0)$ mit der Randbedingung $U_{a,b}(t, t) = 1$ lösen, lautet

$$U_b(t, t') = U_a(t, t') - \frac{i}{\hbar} \int_{t'}^t dt_0 U_b(t, t_0) [H_b(t_0) - H_a(t_0)] U_a(t_0, t'). \quad (4.3)$$

Ist $H_a(t) \equiv H_0 = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V$ der atomare Hamiltonian und $H_b(t) = H(t)$, so beschreibt $H(t) - H_a(t)$ die Wechselwirkung zwischen dem betrachteten Elektron und dem Laserfeld. Ersetzt man im Matrixelement (4.1) den Zeitentwicklungsoperator $U(t, t')$ gemäß der Integralgleichung (4.3), so erhält man

$$M_{\mathbf{p}} = -\frac{i}{\hbar} \lim_{t \rightarrow \infty} \int_{-\infty}^t dt_0 \langle \psi_{\mathbf{p}}(t) | U(t, t_0) [H(t_0) - H_0(t_0)] | \phi_{E_0}(t_0) \rangle, \quad (4.4)$$

wobei $U_0(t_0, t') | \phi_{E_0}(t') \rangle = | \phi_{E_0}(t_0) \rangle$ und die Orthogonalität zwischen dem Streuzustand $|\psi_{\mathbf{p}}(t)\rangle$ und dem ungestörten gebundenen Zustand $|\phi_{E_0}(t)\rangle$ für $t \rightarrow \infty$ benutzt wurde. Dabei ist angenommen, dass das Laserfeld für $t \rightarrow \pm\infty$ abgeschaltet wird und damit $\lim_{t \rightarrow \pm\infty} H(t) = H_0$ gilt.

Das bisherige Matrixelement ist noch exakt. Die KFR-Näherung besteht nun in der Ersetzung $\langle \psi_{\mathbf{p}}(t) | U(t, t_0) = \langle \psi_{\mathbf{p}}(t_0) |$ durch den *Volkovzustand* $\langle \psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t_0) |$. Dieser ist Lösung der Schrödinger-Gleichung zum Hamiltonoperator

$$H_V = [\mathbf{p} - e\mathbf{A}(t)]^2/2m. \quad (4.5)$$

Das approximierte Ionisationsmatrixelement wird damit zu

$$M_{\mathbf{p}}^{(0)} = -\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt_0 \langle \psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t_0) | H_W(t_0) | \phi_{E_0}(t_0) \rangle. \quad (4.6)$$

Darin ist $H_W = H - H_0 = -e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t_0)$ die Wechselwirkung des Elektrons mit dem äußeren Feld. Damit wird die Bedeutung der KFR-Näherung verständlich. Nach der Wechselwirkung mit dem Laserfeld $H(t_0) - H_0(t_0) = -e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t_0)$ wird der Zustand des Elektrons allein durch das Laserfeld bestimmt, zuvor dagegen ausschließlich durch das Atom. Dies ist nur für stark gebundene Elektronen und für starke Laserfelder sinnvoll. Der von Reiss geprägte Begriff der Strong-Field Approximation (SFA) für die KFR-Näherung bringt dies besonders zum Ausdruck.

Zur weiteren Auswertung speziell für kurzreichweitige Potenziale ist eine andere Form des KFR-Matrixelements nützlich. Diese erhält man durch Anwendung der Operatoren

$H_0(t_0)$ und $H_V(t_0) = H(t_0) - V$ in Gl. (4.4) nach rechts bzw. links. Es ergibt sich unter Benutzung der jeweiligen Schrödinger-Gleichung $\pm i\hbar\partial_{t_0}$. Die beiden entstehenden Terme können nun einfach integriert werden. Es ergibt sich

$$M_{\mathbf{p}} \approx -\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt_0 \langle \psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t_0) | V | \phi_{E_0}(t_0) \rangle + \frac{i}{\hbar} [\langle \psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t_0) | \phi_{E_0}(t_0) \rangle]_{-\infty}^{\infty}, \quad (4.7)$$

wobei der letzte Term wegen $t_0 \rightarrow \pm\infty$ keinen Beitrag liefert. Das KFR-Matrixelement ist damit durch

$$M_{\mathbf{p}}^{(0)} = -\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt_0 \langle \psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t_0) | V | \phi_{E_0}(t_0) \rangle \quad (4.8)$$

gegeben [88].

Für ein Zero-Range-Potenzial (ZRP) kann die räumliche Integration einfach ausgeführt werden, und es bleibt nur eine Integration über die Ionisationszeit t_0 übrig. Approximiert man das Laserfeld durch eine ebene Welle, ist diese Integration ebenso analytisch gegeben, und man erhält abgesehen von Vorfaktoren eine verallgemeinerte Besselfunktion. Für ein elliptisch polarisiertes Laserfeld wird das explizite Ergebnis im Zusammenhang mit einer verallgemeinerten KFR-Näherung in Gl. (4.22) angegeben.

Die bisherige Näherung beschreibt lediglich Ionisationsprozesse derart, dass ein Elektron aus einem ungestörten Zustand des Bindungspotenzials direkt in einen durch das Bindungspotenzial unbeeinflussten Volkovzustand zu einer Ionisationszeit t_0 übergeht. Die dabei entstehenden freien Elektronen werden deshalb auch als *direkte* Elektronen bezeichnet. Will man eine weitere Wechselwirkung mit dem Bindungspotenzial nach diesem ersten Ionisationsprozess im Rahmen der KFR-Näherung beschreiben, wird man bei dem noch exakten Matrixelement Gl. (4.4) ansetzen und eine verbesserte Näherung für den Zeitentwicklungsoperator U suchen.

4.2 Verallgemeinertes KFR-Matrixelement

Ausgangspunkt für eine Verallgemeinerung des Keldysh Matrixelements ist Gl. (4.4). Der darin vorkommende Zeitentwicklungsoperator ist eine Lösung der Schrödinger-Gleichung für ein Elektron im Laserfeld und dem atomaren Potenzial. In der KFR-Näherung wird sowohl für den Streuzustand als auch den Zeitentwicklungsoperator das atomare Potenzial vernachlässigt. Korrekturen dazu durch das atomare Potenzial lassen sich leicht mit der schon angegebenen Dysongleichung (4.3) mit $H_a = H_V$ und $H_b = H$ und damit

$H(t) - H_V(t) = V$ einführen:

$$M_{\mathbf{p}} = -\frac{i}{\hbar} \lim_{t \rightarrow \infty} \int_{-\infty}^t dt_0 \left\langle \psi_{\mathbf{p}}(t) \left| \left[U^{(V)}(t, t_0) - \right. \right. \right. \\ \left. \left. \left. - \frac{i}{\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 U(t, t_1) V U^{(V)}(t_1, t_0) \right] [V + H_V(t_0) - H_0(t_0)] \right| \phi_{E_0}(t_0) \right\rangle. \quad (4.9)$$

Vernachlässigt man nun wiederum im Sinne der Keldysh-Näherung im Zeitentwicklungsoperator U und im Streuzustand $\psi_{\mathbf{p}}$ das atomare Bindungspotenzial durch Einsetzen von $U^{(V)}$ bzw. $\psi_{\mathbf{p}}^{(V)}$, so ergibt sich, neben dem bereits bekannten Term $M_{\mathbf{p}}^{(0)}$, eine Korrektur durch die zusätzliche Streuung am Potenzial V :

$$M_{\mathbf{p}} = M_{\mathbf{p}}^{(0)} - \frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_0 \times \\ \times \left\langle \psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t_1) \left| V U^{(V)}(t_1, t_0) [V + H_V(t_0) - H_0(t_0)] \right| \phi_{E_0}(t_0) \right\rangle. \quad (4.10)$$

Dabei wurden die Integrationen über t_0 und t_1 vertauscht. Die Operatoren H_V und H_0 werden wiederum nach links bzw. rechts mit bekanntem Ergebnis angewandt, so dass die Integration über t_0 für die letzten beiden Terme ausgeführt werden kann. Am oberen Ende ergibt sich $-M_{\mathbf{p}}^{(0)}$. An der unteren Integrationsgrenze ist

$$-\frac{i}{\hbar} \lim_{t_0 \rightarrow -\infty} \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \left\langle \psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t_1) \left| V U^{(V)}(t_1, t_0) \right| \phi_{E_0}(t_0) \right\rangle = 0 \quad (4.11)$$

wegen des Faktors $1/(t_1 - t_0)^{3/2}$ im Zeitentwicklungsoperator U . Übrig bleibt damit allein der kompakte Ausdruck

$$M_{\mathbf{p}}^{(0,1)} = -\frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_0 \left\langle \psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t_1) \left| V U^{(V)}(t_1, t_0) V \right| \phi_{E_0}(t_0) \right\rangle. \quad (4.12)$$

Wie im vorherigen Abschnitt, wurde die partielle Integration bezüglich t_0 durchgeführt, um zur Ionisationszeit t_0 statt der Wechselwirkung mit dem Laserfeld eine Wechselwirkung mit dem Potenzial zu generieren. Dieses kompakte Ergebnis beinhaltet sowohl die *direkten*, als auch die nochmals am Potenzial gestreuten Elektronen. Das Ergebnis erlaubt eine einfache Interpretation: Zu einer Zeit t_0 gelangt das bis dahin gebundene Elektron innerhalb der Reichweite des Potenzials aus einem ungestörten Bindungszustand $|\phi_{E_0}(t_0)\rangle$ in einen Zwischenzustand. Die Propagation in diesem Zwischenzustand wird durch den Volkovpropagator, also allein durch das Laserfeld bestimmt, beschrieben. Zu einem späteren Zeitpunkt $t_1 \geq t_0$ wird eine Streuung des Wellenpakets am Potenzial berücksichtigt. Das Elektron gelangt so schließlich in einen durch einen Volkovzustand approximierten Endzustand. Nimmt man, wie im Folgenden, für das Bindungspotenzial ein Zero-Range-Potenzial an, so sind lediglich zwei Zeitintegrationen über die *Start-* und *Rückkehrzeit* auszuführen. Als Startzeit sind jene Zeiten bezeichnet, zu denen das Elektron von einem atomaren Bindungszustand in einen Volkovzustand gelangt. Zur

Rückkehrzeit ist eine Streuung mit dem Potenzial berücksichtigt. Für ein Zero-Range-Potenzial findet diese am gleichen Ort statt, an dem das Elektron zur Startzeit zunächst in einen Volkovzustand gelangt. Wiederum ist für eine Approximation des Laserpulses durch eine ebene Welle die Integration über die Rückkehrzeit analytisch durchführbar, so dass nur eine eindimensionale numerische Integration notwendig ist.

Das Ergebnis lautet für ein elliptisch polarisiertes Laserfeld mit Elliptizität ξ [89]

$$M_{\mathbf{p}}^{(0,1)} = \sum_{\nu} (-1)^{\nu} \delta \left(U_P + |E_0| + \frac{\mathbf{p}^2}{2m} - \nu \hbar \omega \right) \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_{\nu+2n}(\alpha_0 p_{\xi}) e^{i(\nu+2n)\phi_{\xi}} \times \\ \times \left\{ e^{i\frac{\pi}{2}} \frac{\sqrt{\hbar \kappa}}{m} J_n \left(\frac{\eta \zeta}{2} \right) - e^{i\frac{\pi}{4}} \sqrt{\frac{\omega}{2\pi m \kappa}} \int_0^{\infty} \frac{d\tau}{\tau^{3/2}} \exp i \left(\frac{E_0 \tau}{\hbar \omega} \right) \times \right. \\ \left. \times \left[\exp i \left(-\eta \tau + \frac{4 \eta \sin^2 \frac{\tau}{2}}{\tau} - n \phi(\tau) \right) J_n[\eta \zeta y(\tau)] - J_n \left(\frac{\eta \zeta}{2} \right) \right] \right\}. \quad (4.13)$$

Darin ist die Integration über t_0 durch eine Integration über die dimensionslose Reisezeit $\tau = \omega(t_1 - t_0)$ ersetzt worden. ω bezeichnet die Frequenz des Laserfeldes, das durch ein Vektorpotenzial

$$\mathbf{A}(t) = A_0 [\hat{\mathbf{e}}_1 \cos \omega t + \xi \hat{\mathbf{e}}_2 \sin \omega t] \quad (4.14)$$

beschrieben sei. Der elektrische Feldvektor beschreibt eine Ellipse in der durch die Einheitsvektoren $\hat{\mathbf{e}}_1$ und $\hat{\mathbf{e}}_2$ aufgespannten Ebene. Die reellen Funktionen $y(\tau)$ und $\phi(\tau)$, sowie p_{ξ} und ϕ_{ξ} ergeben sich aus

$$y(\tau) e^{i\phi(\tau)} = \frac{1}{2} - i e^{i\tau} \left(\frac{4 \sin^2 \frac{\tau}{2}}{\tau} - \sin \tau \right) \quad p_{\xi} e^{i\phi_{\xi}} = \mathbf{p} \cdot (\hat{\mathbf{e}}_1 + i \xi \hat{\mathbf{e}}_2). \quad (4.15)$$

Die Funktionen $J_n(\cdot)$ sind ganzzahlige Besselfunktionen. Sie entstehen bei der Entwicklung von $\exp i(a \sin \omega t_1)$ in eine Fourierreihe. Die klassische Oszillationsamplitude eines freien Elektrons im Laserfeld ist mit

$$\alpha_0 = -\frac{e A_0}{m \omega} \quad (4.16)$$

gegeben. Schließlich ist

$$\zeta = \frac{1 - \xi^2}{1 + \xi^2} \quad (4.17)$$

und

$$\eta = \frac{U_P}{\hbar \omega} = \frac{e^2 A_0^2}{4m \hbar \omega} (1 + \xi^2) \quad (4.18)$$

bezeichnet das ponderomotorische Potenzial U_P in Vielfachen von $\hbar \omega$.

Der in (4.13) für die numerische Auswertung des Integrals über τ notwendige Regularisierungsterm [90]

$$\int_0^\infty \frac{d\tau}{\tau^{3/2}} \exp i \left(\frac{E_0 \tau}{\hbar \omega} \right) J_n \left(\frac{\eta \zeta}{2} \right) \quad (4.19)$$

ergibt sich formal aus Gl. (4.12) durch Subtraktion und Addition des Zeitentwicklungsoperators $U^{(F)}(t_1, t_0)$ für ein freies Elektron

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}}^{(0,1)} = & -\frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^\infty dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_0 \langle \psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t_1) | V [U^{(V)}(t_1, t_0) - U^{(F)}(t_1, t_0)] V | \phi_{E_0}(t_0) \rangle \\ & - \frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^\infty dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_0 \langle \psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t_1) | V U^{(F)}(t_1, t_0) V | \phi_{E_0}(t_0) \rangle. \end{aligned} \quad (4.20)$$

Im zweiten Term führt die Integration über die Startzeit t_0 auf $i\hbar |\phi_{E_0}(t_1)\rangle$. Es ergibt sich der Ausdruck für die direkten Elektronen. Das Matrixelement hat damit die Form

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}}^{(0,1)} = & M_{\mathbf{p}}^{(0)} - \\ & - \frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^\infty dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_0 \langle \psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t_1) | V [U^{(V)}(t_1, t_0) - U^{(F)}(t_1, t_0)] V | \phi_{E_0}(t_0) \rangle. \end{aligned} \quad (4.21)$$

Dies lässt eine Identifikation der Terme im expliziten Ergebnis (4.13) zu. Der erste Term in der geschweiften Klammer ergibt das Matrixelement für die direkten Elektronen

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}}^{(0)} = & e^{i\frac{\pi}{2}} \frac{\sqrt{\hbar \kappa}}{m} \sum_{\nu} (-1)^{\nu} \delta \left(U_P + |E_0| + \frac{\mathbf{p}^2}{2m} - \nu \hbar \omega \right) \times \\ & \times \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{i(\nu+2n)\phi_{\xi}} J_{\nu+2n}(\alpha_0 p_{\xi}) J_n \left(\frac{\eta \zeta}{2} \right). \end{aligned} \quad (4.22)$$

Die Summe über n führt auf eine verallgemeinerte Besselfunktion. Der zweite Term in Gl. (4.13) mit der Integration über τ ergibt den Beitrag der gestreuten Elektronen.

Die in diesem Abschnitt abgeleitete Näherung für die Ionisationsamplitude, Gl. (4.12), enthält bereits wesentliche Annahmen über die Ionisationsdynamik in starken Laserfeldern. Das abgeleitete Matrixelement beinhaltet eine zeitliche Stufung des Ionisationsprozesses, die durch die Zeiten t_0 und t_1 gegeben ist. Jede Stufe wird geeignet approximiert. So wurde in den Zwischenzuständen, also für die Propagation von der Startzeit t_0 an bis zur Rückkehrzeit t_1 , als auch im Endzustand für Zeiten größer als t_1 , das atomare Potenzial vollkommen vernachlässigt. Für Zeiten kleiner als t_0 wurde ein vom Laserfeld ungestörter Bindungszustand des atomaren Potentials angenommen. Die Modellierung beinhaltet damit keine Ionisation über angeregte Zustände des Atoms. Diese Annahmen erscheinen für starke Laserfelder und kleine Photonenergien sinnvoll:

- Die Starkverschiebung des Grundzustands ΔE_0 ist wesentlich geringer als die ponderomotorische Verschiebung der Ionisationsschwelle um U_P und damit vernachlässigbar klein. Zusätzlich zu $|\Delta E_0| \ll U_P$ muss $|\Delta E_0| \ll \hbar\omega$ gelten.
- Die Oszillationsamplitude α_0 eines freien Elektrons ist groß verglichen mit der Ausdehnung des Atoms. Das atomare Feld nimmt quadratisch mit dem Abstand ab und ist damit bis auf die unmittelbare Umgebung des Atoms vernachlässigbar klein verglichen mit dem Laserfeld.

Daraus ist klar, dass die durchgeführten Approximationen umso besser gerechtfertigt sind je kürzer die Reichweite des atomaren Potentials ist. Für ein Zero-Range-Potential (ZRP) Modell sollte daher die Approximation am besten geeignet sein. Ein ZRP besitzt nur einen gebundenen Zustand, so dass auch die Annahme einer direkten Ionisation ohne Beteiligung angeregter Zustände konsistent ist. Darüberhinaus vereinfacht es die numerische Auswertung und erlaubt eine Abgrenzung von Effekten, die durch die lange Reichweite des atomaren Potentials bedingt sind. Natürlich ist es eine andere Frage, wie gut eine Approximation eines effektiven Potentials (in SAE-Approximation) für ein beliebiges Atom durch ein ZRP-Modell in einem starken Laserfeld ist. Ist die Anregungsenergie aus dem Grundzustand in einen ersten angeregten Zustand, wie bei allen Edelgasen der Fall, sehr hoch, erscheint eine Modellierung durch ein ZRP mit nur einem gebundenen Zustand sinnvoll. Im Folgenden wird ein Vergleich zwischen einer numerischen Simulation von Wasserstoff und einer ZRP-Modell-Rechnung für ein starkes Laserfeld diskutiert.

Für ein linear polarisiertes Laserfeld ist für ausreichend kurze Pulse eine numerische Integration der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung in drei Dimensionen möglich. Daraus lassen sich durch Projektion auf Streuzustände des Potentials nach dem Laserpuls differentielle ATI-Spektren berechnen. Abb. 4.1 zeigt einen Vergleich zwischen so bestimmten ATI-Spektren an Wasserstoff und Ergebnissen des in dieser Arbeit benutzten ZRP-Modells und Gl. (4.12). Ein qualitativer Vergleich der exakten Rechnung (oben) und dem ZRP-Modell (unten) zeigt, dass alle spektralen Strukturen der exakten Rechnung auch in der ZRP-Modell Rechnung auftreten [92]. Es wird die Emissionswahrscheinlichkeit für Elektronen in verschiedenen Raumrichtungen bezüglich der Laserpolarisation verglichen (Winkel ϕ). Die Übereinstimmung um den jeweiligen Cutoff und für höhere Elektronenergien ist auch quantitativ hervorragend. Die im Plateau auftretenden Interferenzstrukturen stimmen sowohl in ihrer Anzahl, ihrer energetischen Position und auch in der relativen Wahrscheinlichkeit gut überein. Eine wesentliche Diskrepanz ist allerdings in der Höhe des Plateaus verglichen mit den direkten niederenergetischen Elektronen festzustellen. Im ZRP-Modell liegt das Plateau um bis zu ca. drei Größenordnungen unter den direkten Elektronen, bei der numerischen Simulation für Wasserstoff dagegen um bis zu 4-5 Größenordnungen. Die Form des Spektrums ist aber auch für den direkten Teil sehr ähnlich. Ein Vergleich einer numerischen Simulation für ein effektives Einteilchenpotential für Argon mit dem ZRP-Modell in Abschnitt 9.2 Abb. 9.13 und 9.11 zeigt, dass in diesem Fall das ZRP-Modell das Verhältnis zwischen direkten und rückgestreuten Elektronen um etwa 2 Größenordnungen überschätzt. Eine Approximation durch ein Coulombpotential ergäbe für Argon eine schlechtere Übereinstimmung als das ZRP-Modell.

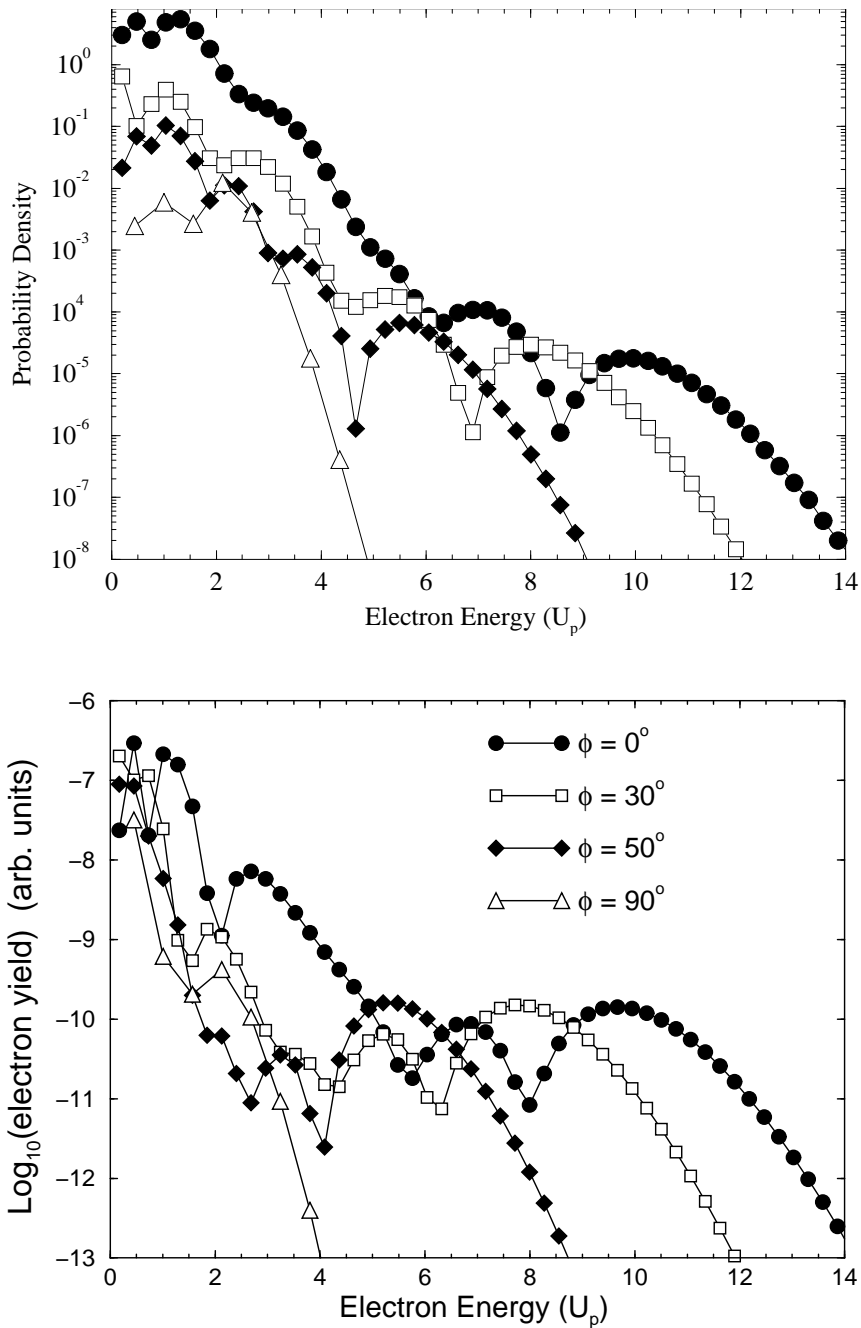


Abbildung 4.1: Ein durch numerische Integration der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung in drei Dimensionen (technisch 2 wegen der Rotationssymmetrie um die Richtung der Laserpolarisation) gewonnenes ATI-Spektrum für Wasserstoff [91] (oben). Die Intensität beträgt $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, die Photonenergie ist $\hbar\omega = 2 \text{ eV}$. Dazu unten ein für die gleichen Parameter berechnetes ATI-Spektrum nach Gl. (4.12) für ein Zero-Range-Potenzial (ZRP). Die Bindungsenergie des ZRP ist mit $E_0 = -0.5 \text{ a.u.}$ identisch mit der Bindungsenergie von Wasserstoff. Es sind unterschiedliche Emissionswinkel ϕ der Elektronen bezüglich der Polarisation des Lasers verglichen.

Die durch eine Verallgemeinerung des KFR-Matrixelements durchgeführte Erweiterung von zwei auf drei Stufen im Ionisationsprozess zeigt die Einbettung des quasistatischen 3-Stufen Modells (SMM) von Kulander und Corkum [29, 30] in eine voll quantenmechanische Beschreibung. Der wesentliche Unterschied besteht in der rein quantenmechanischen Formulierung des KFR-Matrixelements. Um im SMM zu quantitativen Aussagen zu kommen, wird für den ersten Schritt eine Ionisationsrate und für die Wechselwirkung mit dem Ion bei der Rückkehr ein Wirkungsquerschnitt angenommen. Darüberhinaus wird zur Startzeit t_0 ein Gaußsches Wellenpaket konstruiert. Auch dazu sind weitere Annahmen nötig. Eine korrekte Behandlung von am Ion gestreuten Wellenpaketen, die zu einer differentiellen Beschreibung von ATI-Spektren führt, ist so schwer durchführbar, ebenso wenig wie eine korrekte Behandlung von Interferenzeffekten. Die quantenmechanische Formulierung erlaubt dagegen nur eine eingeschränkte Interpretierbarkeit der Ergebnisse. Im Anschluss an dieses Kapitel wird deshalb ausgehend vom ZRP-Modell eine Sattelpunktsapproximation des Matrixelements ausgeführt. Damit ist eine Entwicklung des Matrixelement in wenige miteinander interferierende Terme möglich. Jeder Term entspricht einer komplexen raumzeitlichen Elektrontrajektorie, deren Realteil eine anschauliche Interpretation ermöglicht. Im nächsten Kapitel wird zunächst der wesentlich einfachere Fall der direkten Trajektorien behandelt, im darauf folgenden die am Potenzial gestreuten Trajektorien.

Kapitel 5

Direkte Quantentrajektorien

Die Berechnung des KFR-Matrixelements zur Ionisation aus einem Zero-Range-Potenzial wurde in Kapitel 4 auf Zeitintegrationen zurückgeführt. Dabei wird für die Propagation des Elektrons in unterschiedlichen Stufen des Ionisationsprozesses entweder das Laserfeld oder das Bindungspotenzial vernachlässigt. Im Falle der **direkten Ionisation** ist eine Integration über die Startzeit t_0 auszuführen. Für $t < t_0$ propagiert das Elektron ungestört vom Laserfeld ausschließlich im atomaren Potenzial. Für $t > t_0$ wird die Propagation allein vom Laserfeld bestimmt. Das Elektron startet also zur Zeit t_0 im Kontinuum. Das Matrixelement ist für einen festen asymptotischen Driftimpuls \mathbf{p} des Elektrons eine Superposition aus beliebigen reellen Startzeitpunkten.

In diesem Abschnitt wird das KFR-Matrixelement der direkten Elektronen mit Hilfe einer Sattelpunktsapproximation durch konkrete Startzeitpunkte t_{0s} approximiert. Jeder Startzeitpunkt legt für die Bewegung des Elektrons im Laserfeld eine Trajektorie fest. Eine semiklassische Beschreibung des Elektrons für $t > t_{0s}$ ist aufgrund der Vernachlässigung des Bindungspotenzials exakt. Die Ionisation zu einem reellen Startzeitpunkt ist klassisch nicht möglich, daher werden die so festgelegten Trajektorien und Startzeiten stets komplex. Der Realteil der einzelnen Trajektorien stellt eine Approximation der Bahn des Elektrons dar, der Imaginärteil gewichtet die möglichen Trajektorien. Für die direkten Elektronen ergeben sich innerhalb einer Oszillationsperiode des Laserfeldes für einen gegebenen Driftimpuls zwei Trajektorien mit gleichem Gewicht, deren Beiträge miteinander interferieren.

Eine Sattelpunktsapproximation des KFR-Matrixelements für die direkten Elektronen (4.8) erfordert eine Approximation eines eindimensionalen Integrals und ist daher mathematisch wesentlich einfacher als der im nächsten Kapitel behandelte Fall der rückgestreuten Elektronen. Eine Sattelpunktsapproximation stellt in einem gewissen Sinne eine asymptotische Entwicklung des Matrixelements dar [93].

Das Bindungspotenzial $V(\mathbf{r})$ in (4.8) wird wie im vorangegangenen Abschnitt durch ein Zero-Range-Potenzial (ZRP) approximiert. So ist die Ortsintegration im Matrixelement

einfach ausführbar und man erhält

$$M_{\mathbf{p}}^{(0)} = \frac{i}{2\pi m} \sqrt{\frac{\kappa}{\hbar}} \int_{-\infty}^{\infty} dt_0 \exp[iS_{\mathbf{p}}(t_0)/\hbar] \quad (5.1)$$

mit der Wirkung

$$S_{\mathbf{p}}(t_0) = -\frac{1}{2m} \int_{t_0}^{\infty} d\tau [\mathbf{p} - e\mathbf{A}(\tau)]^2 - \int_{-\infty}^{t_0} d\tau E_0. \quad (5.2)$$

In der klassischen Mechanik ist die Wirkung eindeutig durch zwei Randbedingungen $\mathbf{r}(t_a) = \mathbf{r}_a$ und $\mathbf{r}(t_b) = \mathbf{r}_b$ für den klassischen Pfad $\mathbf{r}(t)$ vom Ort \mathbf{r}_a zur Zeit t_a zum Ort \mathbf{r}_b zur Zeit t_b bestimmt. Im Unterschied dazu ist in $S_{\mathbf{p}}(t_0)$ die Energie für $t = t_a \rightarrow -\infty$ und der Driftimpuls für $t = t_b \rightarrow \infty$ spezifiziert. Die dadurch entstehende Divergenz von $S_{\mathbf{p}}$ ist bedeutungslos, da $S_{\mathbf{p}}(t_0)$ in Gl. (5.1) nur als Phase auftritt.

Die Bezeichnung von $S_{\mathbf{p}}(t_0)$ als Wirkung ist aber durchaus gerechtfertigt, wie durch Einführung von endlichen Grenzen $t_{a,b}$ klar wird:

Bis zur Zeit t_0 ist in der KFR-Approximation die Energie des Elektrons konstant und identisch mit seiner Bindungsenergie E_0 im Atom. Der zweite Term in $S_{\mathbf{p}}(t_0)$ gibt somit bis zum Zeitpunkt t_0 bis auf eine unbedeutende Konstante die Wirkung des Elektrons an. Die klassische Wirkung für ein Elektron im Laserfeld entlang seiner Trajektorie $\mathbf{r}(t)$ von \mathbf{r}_0 zur Zeit t_0 zu einem Ort \mathbf{r}_b zur Zeit t_b ist durch

$$S_{\text{cl}}(\mathbf{r}_b, t_b; \mathbf{r}_0, t_0) = \int_{\mathbf{r}_0, t_0}^{\mathbf{r}_b, t_b} dt L(\mathbf{r}(t), \dot{\mathbf{r}}(t), t) = \int_{t_0}^{t_b} dt \left[\frac{1}{2} m \dot{\mathbf{r}}^2(t) + e \mathbf{r}(t) \cdot \mathbf{E}(t) \right] \quad (5.3)$$

gegeben. Ersetzt man $e\mathbf{E}(t)$ durch $m\ddot{\mathbf{r}}(t)$ nach der Bewegungsgleichung und integriert den zweiten Term partiell erhält man

$$S_{\text{cl}}(\mathbf{r}_b, t_b; \mathbf{r}_0, t_0) = - \int_{t_0}^{t_b} d\tau \frac{1}{2} m \dot{\mathbf{r}}(\tau)^2 + m [\dot{\mathbf{r}}(t_b) \cdot \mathbf{r}(t_b) - \dot{\mathbf{r}}(t_0) \cdot \mathbf{r}(t_0)]. \quad (5.4)$$

Der erste Term ist für $t_b \rightarrow \infty$ identisch mit dem ersten Term von $S_{\mathbf{p}}(t_0)$. Zur Ableitung von Gl. (5.1,5.2) wurde ein ZRP angenommen. Daraus ergibt sich als Randbedingung für die klassische Mechanik des Elektrons $\mathbf{r}(t_0) = 0$. Für $t_b \rightarrow \infty$ gilt $\mathbf{r}(t) \rightarrow \infty$ wegen $\mathbf{p} > 0$. Damit ist $\lim_{t_b \rightarrow \infty} S_{\text{cl}}(\mathbf{r}_b, t_b; \mathbf{r}_0, t_0)$ bis auf einen unbedeutenden divergenten Term identisch mit dem ersten Term von $S_{\mathbf{p}}(t_0)$.

Für ausreichend großes $\eta = U_P/\hbar\omega$ ist der Integrand eine stark oszillierende Funktion von ωt_0 , so dass eine Auswertung des Integrals mittels stationärer Phase gerechtfertigt ist. Man erhält so eine asymptotische Entwicklung des Matrixelements nach dem Parameter η .

Zur Auswertung eines Integrals mittels stationärer Phase sucht man zunächst die stationären Punkte der Phase mittels $dS_{\mathbf{p}}/dt_0 = 0$. Den hauptsächlichen Beitrag zum Integral liefert eine kleine Umgebung um diese stationären Punkte. Zur Integration ist deshalb eine Entwicklung des Exponenten um jeden stationären Punkt ausreichend. Liegen alle

stationären Punkte ausreichend weit voneinander entfernt, kann das Integrationsgebiet in disjunkte Bereiche aufgeteilt werden, deren Integrationsgrenzen jeweils geeignet ausgeweitet werden können. Man erhält eine Summe über die Beiträge aller Punkte stationärer Phase, die im ursprünglichen Integrationsgebiet liegen. Verschwindet der quadratische Term in der Taylorentwicklung des Exponenten nicht, so weitet man die Integration um jeden stationären Punkt nach $\pm\infty$ aus und erhält eine Summe Gaußscher Integrale.

Im vorliegenden Fall ist die Phase durch die Wirkung S gegeben. Die stationären Punkte t_{0s} ergeben sich aus Lösung der Gleichung

$$\frac{\partial S_{\mathbf{p}}}{\partial t_0} = -E_0 + \frac{1}{2m} [\mathbf{p} - e\mathbf{A}(t_0)]^2 = 0. \quad (5.5)$$

Die Wirkung wird um diese Punkte bis zur zweiten Ordnung entwickelt

$$S_{\mathbf{p}}(t_0) \approx S_{\mathbf{p}}(t_{0s}) + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 S_{\mathbf{p}}(t_0)}{\partial t_0^2} \right|_{t_{0s}} (t_0 - t_{0s})^2. \quad (5.6)$$

Nach Ausführung der Gaußschen Integration ergibt sich das Matrixelement als eine Summe über alle stationären Punkte t_{0s}

$$M_{\mathbf{p}}^{(0)} = \frac{i}{2\pi m} \sqrt{\frac{\kappa}{\hbar}} \sum_s \sqrt{\frac{2\pi i \hbar}{\partial^2 S_{\mathbf{p}} / \partial t_0^2 |_{t_{0s}}}} \exp [iS_{\mathbf{p}}(t_{0s}) / \hbar]. \quad (5.7)$$

Für die Approximation des Laserfeldes durch eine ebene Welle ist wegen der Periodizität von Gl. (5.5) über unendlich viele stationäre Punkte zu summieren. Nutzt man vor Ausführung der stationären Phase die Eigenschaft

$$S_{\mathbf{p}}(t_0 + T) = \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + U_P - E_0 \right) T + S_{\mathbf{p}}(t_0) \quad (5.8)$$

der Wirkung aus, so lässt sich die Integration über t_0 auf einfache Weise auf eine Periode T des Feldes reduzieren¹

$$M_{\mathbf{p}}^{(0)} = \frac{i\omega}{2\pi m} \sqrt{\hbar\kappa} \sum_n \delta \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + U_P - E_0 - n\hbar\omega \right) \int_0^T dt_0 \exp [iS_{\mathbf{p}}(t_0) / \hbar]. \quad (5.9)$$

Man erhält, wie im expliziten Resultat für das KFR-Matrixelement im vorherigen Abschnitt, eine Deltafunktion, die die Position der ATI-Peaks auf diskrete Energien festlegt.

Führt man erst jetzt die Approximation durch stationäre Phase aus, so sind nur stationäre Punkte mit $0 < t_{0s} < T$ zu berücksichtigen. Das Matrixelement ergibt sich so zu

$$M_{\mathbf{p}}^{(0)} = \frac{i\hbar\omega}{2\pi m} \sqrt{\frac{\kappa}{\hbar}} \sum_n \delta \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + U_P - E_0 - n\hbar\omega \right) \times \sum_s \sqrt{\frac{2\pi i \hbar m}{e[\mathbf{p} - e\mathbf{A}(t_{0s})] \cdot \mathbf{E}(t_{0s})}} \exp [iS_{\mathbf{p}}(t_{0s}) / \hbar]. \quad (5.10)$$

¹beachte dazu $\sum_n e^{in\Delta x} = \frac{2\pi}{\Delta} \sum_n \delta(x - 2\pi n / \Delta)$

Für $E_0 < 0$, besitzt Gl. (5.5) jedoch keine reellen stationären Punkte — alle Lösungen t_{0s} sind komplex. Die Integration mittels stationärer Phase ist damit an sich nicht anwendbar. Da der Integrand eine analytische Funktion von t_0 ist, kann die Integration entlang der reellen Achse in die komplexe t_0 -Ebene verformt werden, ohne den Wert des Integrals zu verändern. Die Methode der stationären Phase ist durch die Methode des stärksten Gefälles (steepest descent) zu ersetzen.

Das Ergebnis für jeden Sattelpunkt ist formal identisch mit dem Resultat (5.7) der stationären Phase, wie im Anhang B gezeigt wird. Allerdings ist die Auswahl der zu berücksichtigenden Sattelpunkte durch den Verlauf der Integrationskontur bestimmt. Die Kontur muss so verformt werden, dass ausgehend von jedem Sattelpunkt der Beitrag zum Integral schnell klein wird. Im allgemeinen liegen damit nicht alle Sattelpunkte auf der Kontur, so dass nicht alle Sattelpunkte in der Summe (5.7) beitragen. Im Anhang B wird die so mathematisch korrekte Auswahl der Sattelpunkte für den vorliegenden Fall nach einer ausführlichen Beschreibung der Sattelpunktmethode behandelt. Im Folgenden wird ein physikalisches Argument zur Auswahl der Sattelpunkte benutzt.

Für ein linear polarisiertes Laserfeld, für das $\mathbf{A}(t) = \hat{\mathbf{e}}A_0 \cos \omega t$ angenommen wird, sind die Sattelpunkte analytisch angebar

$$\begin{aligned} \cos^2(\operatorname{Re} \omega t_{0s}) &= \frac{1}{2} \left(1 + \gamma^2 + \frac{E_p}{2U_P} \right) - \frac{1}{2} \sqrt{\left(\frac{E_p}{2U_P} \right)^2 + (1 + \gamma^2)^2 + \frac{E_p}{U_P} (\gamma^2 - \cos 2\phi)} \\ \cosh(\operatorname{Im} \omega t_{0s}) &= - \sqrt{\frac{E_p}{2U_P} \frac{\cos \phi}{\cos(\operatorname{Re} \omega t_{0s})}}. \end{aligned} \quad (5.11)$$

Dabei ist $E_p = \mathbf{p}^2/2m$ die Driftenergie des Elektrons und ϕ gibt den Winkel zwischen \mathbf{p} und der Polarisationsrichtung $\hat{\mathbf{e}}$ des Laserfeldes an.

Für jeden Driftimpuls existieren vier verschiedene Sattelpunkte ωt_{0s} , die durch komplexe Konjugation ineinander übergehen. Wie Gl. (5.5) zeigt, ist die Symmetrie der Sattelpunkte für einen gegebenen Driftimpuls \mathbf{p} durch das Vektorpotenzial bestimmt.

Abb. 5.1 zeigt den Verlauf der Lösungen (5.11) für Driftenergien bis etwa $3U_P$ und $\phi = 0$. Das elektrische Feld des Lasers und das Vektorpotenzial sind angedeutet. Die Imaginärteile für die Sattelpunkte t_{01} und t_{02} sind für gegebenen Driftimpuls \mathbf{p} identisch. Ihre Realteile erfüllen aufgrund der Symmetrie des Vektorpotenzials die Gl. $\operatorname{Re} t_{02} = 2\pi - \operatorname{Re} \omega t_{01}$. Damit ist der Imaginärteil der Wirkung $S_{\mathbf{p}}(t_0)$ für beide Sattelpunkte identisch. Ihre Beiträge zu der Summe (5.10) sind absolut gleich groß, so dass eine ausgeprägte Interferenz in den Spektren zu erwarten ist.

Abb. 5.2 zeigt ein mittels Gl. (5.10) berechnetes Elektronenspektrum für die in Abb. 5.1 angegebenen Parameter. Dazu wurden nur die Sattelpunkte t_{01} und t_{02} berücksichtigt. Die dazu komplex konjugierten Lösungen haben wegen $S_{\mathbf{p}}(t_{0s}^*) = S_{\mathbf{p}}^*(t_{0s})$ ein nicht sinnvolles Ansteigen der Rate für eine kleinere Laserintensität zur Folge. Dieses physikalische Argument wäre bei einem mathematisch exakten Vorgehen, wie es im Anhang B skizziert wird, nicht notwendig.

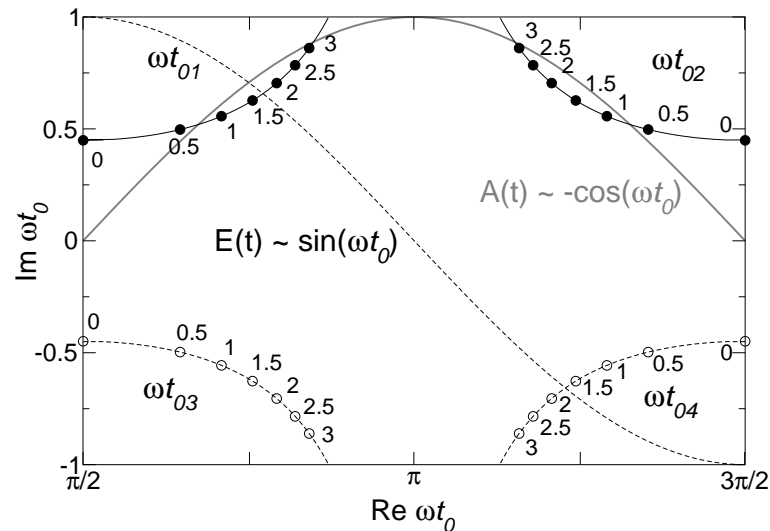


Abbildung 5.1: Lösungen der Sattelpunktgleichung (5.5) für ein linear polarisiertes Laserfeld für Driftenergien $\mathbf{p}^2/2m$ von 0 bis etwa $3U_P$. Der Driftimpuls \mathbf{p} ist parallel zur Polarisation $\hat{\mathbf{e}}$ des Lasers angenommen. Der Keldysh Parameter ist $\gamma = 0.464$. Er ergibt sich z.B. für Helium ($E_0 = -0.9$ a.u.) und ein ponderomotorisches Potenzial $U_P = 2.09$ a.u. Für eine Wellenlänge $\lambda = 780$ nm entspricht das einer Intensität von 10^{15} W/cm². Die gestrichelte Linie zeigt das elektrische Feld des Lasers für verschiedene Startzeiten. Nur die Beiträge mit positiven Imaginärteil sind zu berücksichtigen (siehe Text).

Als Funktion der Driftenergie entstehen eine Reihe von konstruktiven und destruktiven Interferenzen zwischen den beiden berücksichtigten Trajektorien. Diese sind stark von der Intensität abhängig, wie ein Vergleich mit einer etwas niedrigeren Intensität zeigt. An der Position der Interferenzminima für eine Intensität von 10^{15} W/cm² liegen für die etwas geringere Intensität $9 \cdot 10^{14}$ W/cm² Interferenzmaxima. Die starke Abhängigkeit dieser Interferenzen von der Intensität des Lasers macht eine direkte Beobachtung im Experiment, aufgrund der dabei immer vorhandenen Summation von Beiträgen aus verschiedenen Raumbereichen im Laserfokus mit unterschiedlichen Intensitäten, schwierig. Für ein elliptisch polarisiertes Laserfeld konnte eine Interferenz der direkten Trajektorien experimentell nachgewiesen werden [68]. Ebenso wie im Spektrum, ergeben sich als Funktion der Elliptizität, bei konstanter Energie der Elektronen, Interferenzen zwischen den direkten Trajektorien. Im Unterschied zu den Interferenzen im Spektrum der Elektronen ist die Interferenz in der Ionisation als Funktion der Elliptizität nur sehr schwach von der Intensität des Lasers abhängig. So wurde ein experimenteller Nachweis möglich.

Im einführenden Kapitel 2 wurden durch eine rein klassische Betrachtung unter der Annahme einer Startgeschwindigkeit Null einige Überlegungen für die Ionisation eines Elektrons in einem starken Laserfeld angestellt. Nimmt man in der Sattelpunktgleichung (5.5) $E_0 = 0$ an, so ergibt sich für ein linear polarisiertes Laserfeld und für einen Driftimpuls $\mathbf{p} \parallel \hat{\mathbf{e}}$ die Annahme $m\mathbf{v}(t_0) = \mathbf{p} - e\mathbf{A}(t_0) = 0$ der klassischen Betrachtung. Qualitativ verhalten sich die Realteile der komplexen Lösungen tatsächlich so wie die reellen

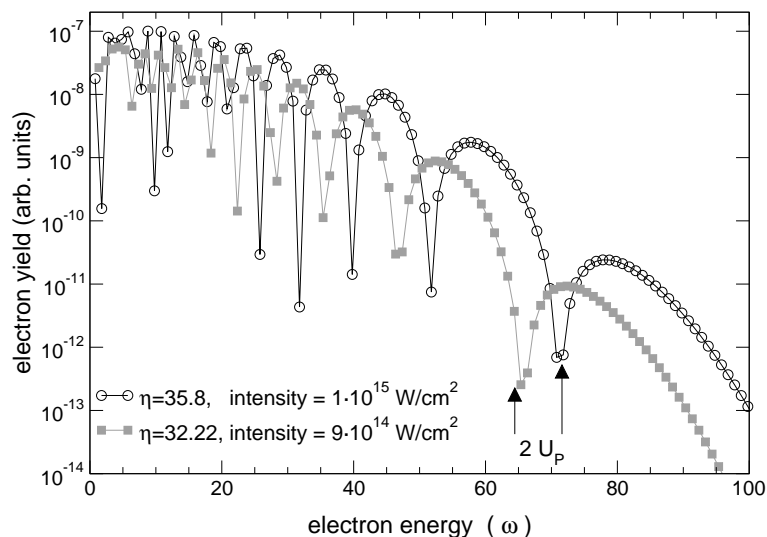


Abbildung 5.2: ATI-Spektren der direkten Elektronen für vergleichbar große Intensitäten. Die Bindungsenergie beträgt $E_0 = -0.9$ a.u., die Laserfrequenz ist $\omega = 0.0584$ a.u. Die exakten Energien der ATI-Peaks sind mit Symbolen gekennzeichnet. An den Positionen ausgeprägter Interferenzminima bei der höheren Intensität liegen für die etwas niedrigere Intensität Interferenzmaxima.

Lösungen. Aus $\mathbf{p} = eA_0\hat{\mathbf{e}}\cos\omega t$ ergibt sich $\cos\omega t = \pm\sqrt{E_p/2U_P}$. Für zunehmende Driftenergie $E_p < 2U_P$ rücken die Lösungen mit gleichem Driftimpuls, also gleiches Vorzeichen von $\cos\omega t$, immer näher aneinander. Die komplexen Lösungen verhalten sich ähnlich. Allerdings werden diese für zunehmende Driftenergie nicht identisch sondern weichen einander in Richtung der imaginären Achse aus. Dies trägt dem zur Startzeit $\text{Re } t_0$ immer kleiner werdenden elektrischen Feld und damit einer geringeren Ionisationswahrscheinlichkeit Rechnung.

Kapitel 6

Rückgestreute Quantentrajektorien

In diesem und den folgenden zwei Kapiteln wird eine detaillierte Trajektorienanalyse des verallgemeinerten ATI-Matrixelements vorgestellt. Zunächst wird in diesem Kapitel die allgemeine Formulierung der Methode diskutiert. Im Anschluss daran wird das simple man's Modell für lineare Polarisation behandelt. Es erlaubt bereits erste Aussagen über die zu erwartenden Lösungen im Falle linearer Polarisation. Die im nächsten Kapitel ausgeführte exakte Lösung der Sattelpunktgleichung für ein linear polarisiertes Laserfeld wird dadurch erheblich vereinfacht.

Im Folgenden wird genauso wie bei der Trajektorienanalyse der direkten Elektronen vorgegangen. Im Unterschied dazu ist nun eine Analyse eines höherdimensionalen Integrals mittels Sattelpunktsapproximation notwendig. Dazu wird zunächst davon ausgegangen, dass alle Sattelpunkte reell sind. Damit ist eine Auswertung des Integrals mittels stationärer Phase möglich. In das so erhaltene Ergebnis werden die komplexen Lösungen der Sattelpunktgleichungen eingesetzt. Für ein eindimensionales Integral ist im Anhang B gezeigt, dass diese Vorgehensweise gerechtfertigt ist. Die einzige Schwierigkeit liegt in der Auswahl der zu berücksichtigenden Sattelpunkte.

6.1 Allgemeine Formulierung

Zunächst wird der Volkovpropagator $U^{(V)}(t_1, t_0)$ im Matrixelement (4.12) in Volkovzustände entwickelt

$$M_{\mathbf{p}}^{(0,1)} = -\frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_0 \int d^3k \left\langle \psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t_1) \left| V \right| \psi_{\mathbf{k}}^{(V)}(t_1) \right\rangle \times \left\langle \psi_{\mathbf{k}}^{(V)}(t_0) \left| V \right| \phi_{E_0}(t_0) \right\rangle. \quad (6.1)$$

Zusätzlich zu den Zeitintegrationen ist damit noch ein 3-dimensionales Integral über den Driftimpuls \mathbf{k} des Zwischenzustandes auszuwerten. Diese zusätzliche Integration erlaubt eine direktere physikalische Interpretation der Sattelpunktgleichungen. Die Sattelpunktsapproximation ist bezüglich des neu eingeführten Impulses \mathbf{k} exakt, da \mathbf{k} nur bis

zur quadratischen Ordnung in der Wirkung auftritt. Nach Ausführung der Matrixelemente im Integranden, wobei für das Bindungspotenzial $V(\mathbf{r})$ ein Zero-Range-Potenzial (ZRP) verwendet wird, ergibt sich

$$M_{\mathbf{p}}^{(0,1)} = \frac{1}{\sqrt{2\pi\kappa} (2\pi\hbar)^{\frac{3}{2}} m^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_0 \int d^3k \exp [iS_{\mathbf{p}}(t_1, t_0, \mathbf{k})/\hbar] \quad (6.2)$$

mit

$$S_{\mathbf{p}}(t_1, t_0, \mathbf{k}) = - \int_{t_1}^{\infty} d\tau \epsilon_{\mathbf{p}}(\tau) - \int_{t_0}^{t_1} d\tau \epsilon_{\mathbf{k}}(\tau) - \int_{-\infty}^{t_0} d\tau E_0 \quad (6.3)$$

wobei

$$\epsilon_{\mathbf{k}}(\tau) = \frac{1}{2m} [\mathbf{k} - e\mathbf{A}(\tau)]^2 \quad (6.4)$$

die kinetische Energie eines Elektrons mit Driftimpuls \mathbf{k} im Laserfeld bezeichnet. $\mathbf{A}(\tau)$ ist das entsprechende Vektorpotenzial des Laserfeldes, das sich gemäß $\mathbf{E}(\tau) = -\partial_{\tau}\mathbf{A}(\tau)$ ergibt.

Wie bereits bei den direkten Elektronen ist das Matrixelement durch die Phase $S_{\mathbf{p}}$ bestimmt, die eine Approximation an die Wirkung beinhaltet. Zusätzlich zu den bekannten Termen für $t < t_0$ und $t > t_1$ tritt der Term $-\int_{t_0}^{t_1} d\tau \epsilon_{\mathbf{k}}(\tau)$ auf, der für gegebenen Driftimpuls

$$\mathbf{k} = \frac{1}{t_1 - t_0} \int_{t_0}^{t_1} d\tau e\mathbf{A}(\tau) \quad (6.5)$$

die klassische Wirkung $S_{cl}(0, t_1; 0, t_0)$ eines Elektrons auf einer geschlossenen Trajektorie, mit dem Startzeitpunkt t_0 und dem Rückkehrzeitpunkt t_1 , angibt.

Zur Auswertung des Integrals wird zunächst angenommen, dass alle Sattelpunkte reell sind, so dass eine Auswertung mit stationärer Phase möglich ist. Zur Methode der stationären Phase in mehr als einer Dimension wird auf [93] verwiesen. Man entwickelt dazu die Wirkung um die Sattelpunkte, unter der Annahme, dass der Hauptbeitrag zum Integral aus der unmittelbaren Umgebung eines Sattelpunkts stammt. Eine Taylorentwicklung der Wirkung ergibt

$$S_{\mathbf{p}}(\mathbf{q}) = S_{\mathbf{p}}(\mathbf{q}_s) + \frac{1}{2} (\mathbf{q} - \mathbf{q}_s) \cdot \left(\frac{\partial^2 S_{\mathbf{p}}}{\partial q_i \partial q_j} \right)_{i,j} \Big|_{\mathbf{q}_s} \cdot (\mathbf{q} - \mathbf{q}_s)^T \quad (6.6)$$

mit $\mathbf{q} = (t_0, t_1, \mathbf{k})$ und $\mathbf{q}_s = (t_{0s}, t_{1s}, \mathbf{k}_s)$. Die Punkte stationärer Phase bestimmen sich aus

$$\partial S_{\mathbf{p}}(\mathbf{q})/\partial \mathbf{q} = 0. \quad (6.7)$$

Im Folgenden wird anstatt von stationären Punkten gleichbedeutend von Sattelpunkten und in Bezug auf die Gln. (6.7) von Sattelpunktgleichungen gesprochen.

Liegen alle stationären Punkte im Integrationsgebiet ausreichend weit voneinander entfernt, so können alle stationären Punkte unabhängig voneinander betrachtet werden. Nach der Entwicklung (6.6) ist eine Ausdehnung des Integrationsgebietes auf den gesamten fünfdimensionalen Raum möglich, da der Hauptbeitrag eines stationären Punktes aus dessen Umgebung herrührt. Damit ist ein fünfdimensionales Gaußsches Integral zu berechnen. Man erhält so für jeden Sattelpunkt \mathbf{q}_s einen Term

$$\frac{(2\pi i\hbar)^{5/2}}{\sqrt{\det (\partial^2 S_{\mathbf{p}}/\partial q_i \partial q_j)|_{\mathbf{q}_s}}} \exp [iS_{\mathbf{p}}(\mathbf{q}_s)/\hbar]. \quad (6.8)$$

Ausgedrückt durch die Lösungen \mathbf{q}_s der Gl. (6.7) ergibt sich das Matrixelement schließlich zu

$$M_{\mathbf{p}}^{(0,1)} = \frac{\hbar\omega}{\sqrt{2\pi\kappa} m^2} \sum_n \delta \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + U_P - E_0 - n\hbar\omega \right) \times \\ \times \sum_s \left(\frac{e^{i\pi/2}}{\det (\partial^2 S_{\mathbf{p}}/\partial q_i \partial q_j)|_{\mathbf{q}_s}} \right)^{1/2} \exp [iS_{\mathbf{p}}(\mathbf{q}_s)/\hbar]. \quad (6.9)$$

Dazu wurde die Eigenschaft

$$S_{\mathbf{p}}(t_1 + T, t_0, \mathbf{k}) = \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + U_P - E_0 \right) T + S_{\mathbf{p}}(t_1, t_0, \mathbf{k}) \quad (6.10)$$

der Wirkung, für die Approximation des Laserfeldes durch eine *ebene Welle*, berücksichtigt, so dass sich die Integration über t_1 auf eine Periode T des Feldes reduziert. Es entsteht eine Summe über Deltafunktionen. Für die zu berücksichtigenden Sattelpunkte \mathbf{q}_s bedeutet dies, dass alle Rückkehrzeiten t_{1s} in einer Periode des Laserfeldes liegen müssen. Im Gegensatz zu den direkten Elektronen existiert nun aber nicht nur ein Paar von Lösungen \mathbf{q}_s , sondern, für die Annahme eines zeitlich unendlich ausgedehnten Feldes, unendlich viele diskrete Sattelpunkte \mathbf{q}_s mit unterschiedlichen *Reisezeiten* $t_{1s} - t_{0s}$. Die Reisezeit gibt die Dauer der Exkursion des Elektrons nach seiner Ionisation bis zur Streuung am Potenzial an. Währenddessen verbreitert sich das Wellenpaket, so dass davon auszugehen ist, dass Sattelpunkte \mathbf{q}_s mit steigender Reisezeit $t_{1s} - t_{0s}$ immer kleinere Beiträge liefern. Die Integrationsgrenzen der Integration über t_0 stellen sicher, dass ausschließlich positive Reisezeiten auftreten.

Die Matrix $(\partial^2 S_{\mathbf{p}}/\partial q_i \partial q_j)_{i,j=1..5}$ lautet

$$\begin{bmatrix} \frac{e}{m} \mathbf{E}(t_{1s}) \cdot (\mathbf{p} - \mathbf{k}) & 0 & -\frac{1}{m} [\mathbf{k} - e\mathbf{A}(t_{1s})]^T \\ 0 & \frac{e}{m} \mathbf{E}(t_{0s}) \cdot [\mathbf{k} - e\mathbf{A}(t_{0s})] & \frac{1}{m} [\mathbf{k} - e\mathbf{A}(t_{0s})]^T \\ -\frac{1}{m} [\mathbf{k} - e\mathbf{A}(t_{1s})] & \frac{1}{m} [\mathbf{k} - e\mathbf{A}(t_{0s})] & \frac{t_{0s} - t_{1s}}{m} \mathbb{E} \end{bmatrix}. \quad (6.11)$$

Nun soll näher auf die Sattelpunktgleichungen eingegangen werden. Sie ergeben sich

aus $\partial S_{\mathbf{p}}(\mathbf{q})/\partial \mathbf{q}$

$$\partial_{t_0} S = 0 \rightarrow \frac{1}{2m} [\mathbf{k} - e\mathbf{A}(t_0)]^2 = -|E_0|, \quad (6.12)$$

$$\partial_{\mathbf{k}} S = 0 \rightarrow \int_{t_0}^{t_1} d\tau [\mathbf{k} - e\mathbf{A}(\tau)] = 0, \quad (6.13)$$

$$\partial_{t_1} S = 0 \rightarrow [\mathbf{k} - e\mathbf{A}(t_1)]^2 = [\mathbf{p} - e\mathbf{A}(t_1)]^2. \quad (6.14)$$

Physikalisch stellt die erste und letzte Gleichung Energieerhaltung bei der Ionisation aus dem Grundzustand mit Bindungsenergie E_0 in einen Volkovzustand und bei der Streuung zum Zeitpunkt t_1 sicher. Die erste Gleichung ist identisch mit der Sattelpunktgleichung für die direkten Elektronen (5.5). Der Impuls \mathbf{k} ist nun jedoch *nicht* der vorgegebene Driftimpuls \mathbf{p} des Elektrons im Endzustand, sondern der Driftimpuls des Elektrons im Zwischenzustand. In den Zwischenzuständen wird das atomare Potenzial vernachlässigt. Da zusätzlich das Laserfeld wegen der Dipolnäherung nicht vom Ort abhängt, ist der Driftimpuls \mathbf{k} eine Erhaltungsgröße. Für $t_{0s} < t < t_{1s}$ ist die Geschwindigkeit des Elektrons durch

$$\dot{\mathbf{r}}(t) = \mathbf{k} - e\mathbf{A}(t) \quad (6.15)$$

gegeben. Eine Integration der Sattelpunktgleichung (6.13) ergibt also

$$\mathbf{r}(t_0) = \mathbf{r}(t_1), \quad (6.16)$$

das Elektron kehrt zur Zeit t_1 an genau den Ort zurück, an dem es zur Zeit t_0 gestartet ist. Zur Zeit t_1 ist eine Streuung am Bindungspotenzial berücksichtigt. Im ZRP-Fall kann diese nur am Ursprung stattfinden. Die exakte Rückkehr an den Startpunkt ist damit Ausdruck des hier verwendeten ZRP. Die letzte Sattelpunktgleichung stellt Energieerhaltung bei der Streuung sicher. Dabei ändert sich der Impuls \mathbf{k} des Elektrons vor der Streuung in den durch das Matrixelement vorgegebenen Driftimpuls \mathbf{p} nach der Streuung.

Komplexe Trajektorien

Aufgrund der ersten Sattelpunktgleichung werden für nicht verschwindende Bindungsenergie E_0 alle Lösungen komplex. Da durch die Sattelpunktgleichungen die Anfangsbedingungen der klassischen Dynamik des Elektrons im Laserfeld gegeben sind, werden die Trajektorien ebenfalls komplex. Vor der Streuung $\text{Re}(t_{1s}) > t > \text{Re}(t_{0s})$ gilt

$$\begin{aligned} m\mathbf{v}(t) &= \mathbf{k}_s - e\mathbf{A}(t) \\ m\mathbf{r}(t) &= \mathbf{k}_s(t - t_{0s}) - \int_{t_{0s}}^t d\tau e\mathbf{A}(\tau) \end{aligned} \quad (6.17)$$

und nach der Streuung $t > \text{Re}(t_{1s})$ ist

$$\begin{aligned} m\mathbf{v}(t) &= \mathbf{p} - e\mathbf{A}(t) \\ m\mathbf{r}(t) &= \mathbf{p}(t - t_{1s}) - \int_{t_{1s}}^t d\tau e\mathbf{A}(\tau). \end{aligned} \quad (6.18)$$

Die Geschwindigkeit des Elektrons nach der Streuung ist also stets reell, der Ort hat wegen des Imaginärteils der Rückkehrzeit einen konstanten Imaginärteil. Dies liegt gewissermaßen in der Formulierung des Matrixelements begründet. Es wird nur der Impuls für $t \rightarrow \infty$ spezifiziert, jedoch kein Ort. Zwischen der Ionisation und der Streuung hat die Geschwindigkeit wegen $\text{Im } \mathbf{k}_s \neq 0$ einen konstanten Imaginärteil. Der Imaginärteil des Ortes ändert sich damit linear mit der Zeit.

Im Folgenden wird zunächst auf den speziellen Fall eines linear polarisierten Laserfeldes näher eingegangen. Um einen Überblick über die Lösungen der Sattelpunktgleichungen (6.12-6.14) zu erhalten, wird im nächsten Abschnitt eine Lösung im Reellen gesucht. Erst im darauf folgenden Abschnitt werden die komplexen Lösungen der Sattelpunktgleichungen bestimmt. Die so erhaltene Entwicklung des Matrixelements wird mit einer exakten numerischen Auswertung verglichen.

6.2 Das simple man's Modell (SMM)

Für ein linear polarisiertes Laserfeld mit $\mathbf{A}(t) = A(t) \hat{\mathbf{e}}$ ergibt sich aus der zweiten Sattelpunktsgleichung Gl. (6.13)

$$\mathbf{k} = \frac{1}{t_1 - t_0} \int_{t_0}^{t_1} d\tau eA(\tau) \hat{\mathbf{e}}. \quad (6.19)$$

Der Driftimpuls \mathbf{k} des Elektrons im Zwischenzustand ist also parallel zur Polarisationsrichtung $\hat{\mathbf{e}}$ des Laserfeldes. Setzt man die Bindungsenergie E_0 gleich Null, so folgt aus der ersten Sattelpunktsgleichung (6.12) eine Startgeschwindigkeit identisch Null für das Elektron

$$\mathbf{v}(t_{0s}) = \mathbf{k}_s - e\mathbf{A}(t_{0s}) = 0. \quad (6.20)$$

Im simple man's Modell (SMM) wird dies gewöhnlich als Anfangsbedingung für die klassische Behandlung des ionisierten Elektrons angenommen. Die Lösung der Sattelpunktsgleichungen mit der Annahme $E_0 = 0$ wird damit für einen klassisch erreichbaren Driftimpuls des Elektrons identisch mit der Lösung des SMM.

Durch die Sattelpunktsapproximation lässt sich so ein SMM ableiten, für das sich die Anfangsbedingungen $\mathbf{v}(t_0) = 0$ und $\mathbf{r}(t_0) = 0$ ergeben. Das Elektron wird für $t > t_0$ rein klassisch betrachtet.

Die hier gegebene Ableitung der Anfangsbedingungen für die klassische Behandlung des Elektrons im Laserfeld durch die Annahme $E_0 = 0$ ist keinesweg eindeutig und ist letztlich von dem konkreten Ionisationsprozess abhängig. In einem statischen Tunnelionisationsbild (wie in Abb. 1.4 links) erscheint als Startort der Ausgang des Tunnels, der näherungsweise durch $\mathbf{r}(t_0) = \hat{\mathbf{e}} |E_0|/eE(t_0)$ geben ist und $\dot{\mathbf{r}}(t_0) = 0$ sinnvoll. Eine Berechnung der Wignerfunktion für eine Tunnelionisation in einem statischen Feld zeigt jedoch, dass diese Annahme nicht unbedingt gerechtfertigt ist [94]. Das Maximum der Wignerfunktion am Tunnelausgang liegt deutlich bei einer von Null verschiedenen Geschwindigkeit. Das Elektron wird also bereits im Tunnel beschleunigt.

Im Folgenden werden die oben abgeleiteten Anfangsbedingungen benutzt. Bis auf einen isotropen elastischen Stoß am Ursprung zu einem Zeitpunkt $t_1 > t_0$ ist die Bewegung des Elektrons nur vom Laserfeld bestimmt. Wie im Folgenden gezeigt wird, ergibt sich so eine maximale Driftenergie von $10U_P$ nach einer Rückstreuung des Elektrons.

Einen Überblick über die möglichen Lösungen des SMM erhält man durch eine grafische Konstruktion. Diese ergibt sich durch einsetzen von Gl. (6.19) in Gl. (6.20). Mit der Definition $\alpha(t) = \frac{e}{m} \int dt A(t)$ erhält man

$$\alpha(t_1) = \alpha(t_0) + \dot{\alpha}(t_0)(t_1 - t_0). \quad (6.21)$$

Ein möglicher Rückkehrzeitpunkt t_1 ist durch den Schnittpunkt einer zur Zeit t_0 an die Funktion $\alpha(t)$ angelegten Tangente mit der Funktion $\alpha(t)$ gegeben. Abb. 6.1 illustriert

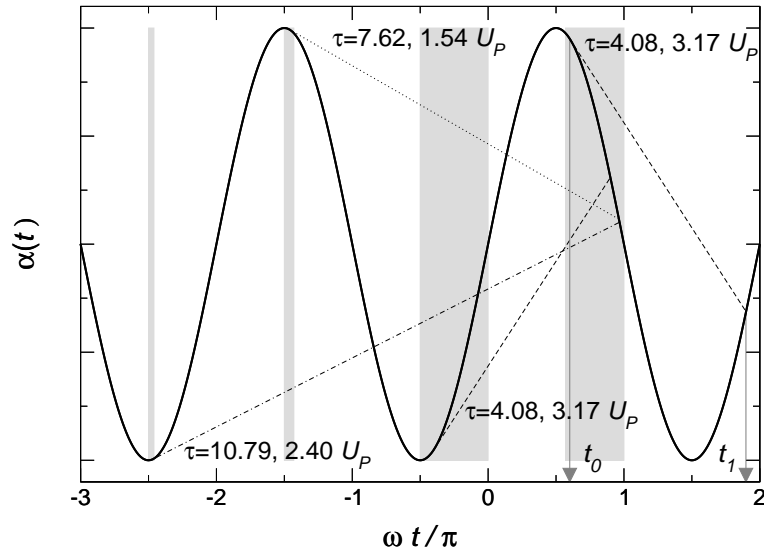


Abbildung 6.1: Grafische Bestimmung der möglichen Rückkehrzeiten t_1 und Startzeiten t_0 im SMM nach Gl. (6.21). Die dargestellten Tangenten an $\alpha(t)$ kennzeichnen ein Maximum der Rückkehreregie. Das Intervall möglicher Rückkehrzeiten ist hier durch $0 < \omega t_1 < 2\pi$ festgelegt. Damit ergeben sich als mögliche Startzeiten die grau unterlegten Intervalle. Für zunehmende Reisezeit $\tau = \omega(t_1 - t_0)$ wird der Bereich möglicher Startzeiten immer kleiner.

die grafische Lösung von Gl. (6.21) für ein monochromatisches Feld der Frequenz ω . Für diesen Fall ist $\alpha(t) \propto E(t) = -\partial_t A(t)$. Wegen der Bedingung $t_1 > t_0$ ergibt sich nur für $\ddot{\alpha} < 0$ eine Lösung. Für längere Reisezeiten τ wird so das Intervall möglicher Startzeiten beginnend an den Maxima von $|\alpha(t)|$ immer kleiner. Diese sind in der Abbildung grau markiert. Die Rückkehrzeit ωt_1 wurde dazu auf ein Intervall zwischen 0 und 2π beschränkt, was wegen der angenommenen Periodizität des Feldes gerechtfertigt wird.

Aus der Energieerhaltung bei der Streuung — der Sattelpunktgleichung (6.14) — ergibt sich der Betrag des Driftimpulses $p = |\mathbf{p}|$ nach der Streuung für einen bezüglich der Polarisation $\hat{\mathbf{e}}$ gewählten Beobachtungswinkel ϕ mit $\mathbf{p} \cdot \hat{\mathbf{e}} = p \cos \phi$ durch Lösung einer quadratischen Gleichung

$$p^2 \sin^2 \phi + [p \cos \phi - eA(t_1)]^2 = e^2 [A(t_0) - A(t_1)]^2 \quad (6.22)$$

als Funktion von t_0 oder t_1 . In [95] ist dies ausführlich in Zusammenhang mit der grafischen Konstruktion dargestellt. Als Funktion der Reisezeit $\tau = \omega(t_1 - t_0)$ lassen sich explizite Ausdrücke angeben.

Zunächst ergibt sich die kinetische Energie des Elektrons zum Rückkehrzeitpunkt t_1 für ein monochromatisches Laserfeld zu

$$E_{\text{back}}(\tau) = \frac{2(2 - 2 \cos \tau - \tau \sin \tau)^2}{2 + \tau^2 - 2 \cos \tau - 2\tau \sin \tau} U_P \quad (6.23)$$

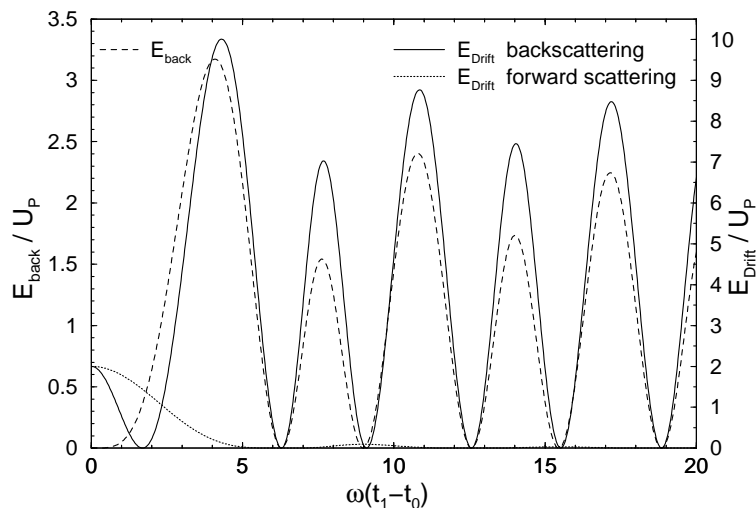


Abbildung 6.2: Kinetische Energie zum Zeitpunkt der Rückkehr (gestrichelt, Skala links), Driftenergie nach einer Rückstreuung (durchgezogen, Skala rechts) und Driftenergie nach Vorwärtsstreuung (gepunktet, Skala rechts) als Funktion der Reisezeit im SMM.

In Abb. 6.2 ist die universelle Funktion (6.23) gestrichelt dargestellt. Sie besitzt mehrere Maxima an den Nullstellen von $2 - 2 \cos \tau + \tau^2 \cos \tau - 2\tau \sin \tau$. Das absolute Maximum ist $3.17U_P$ bei $\tau = 4.08$. Geht das Elektron zum Zeitpunkt t_1 durch Emission eines Photons in den Grundzustand des Atoms mit Bindungsenergie E_0 über, so ergibt sich die klassische Energie des Photons aus der Differenz $E_{\text{back}}(\tau) - E_0$ zu maximal $3.17U_P + |E_0|$, dem Cutoff des HHG Spektrums. Aus Gl. (6.21) ergeben sich abhängig von τ die Start- und Rückkehrzeitpunkte t_0 und t_1 .

Wird für die elastische Streuung zum Zeitpunkt t_1 eine Rück- oder Vorwärtsstreuung angenommen, so ergibt sich für alle Reisezeiten $\tau > 0$ eine Driftenergie

$$\frac{p^2}{2m} = U_P \times \begin{cases} \frac{2(3 - 3 \cos \tau - 2\tau \sin \tau)^2}{2 + \tau^2 - 2 \cos \tau - 2\tau \sin \tau} & \text{Rückstreuung} \\ \frac{2(1 - \cos \tau)^2}{2 + \tau^2 - 2 \cos \tau - 2\tau \sin \tau} & \text{Vorwärtsstreuung.} \end{cases} \quad (6.24)$$

Die Unterscheidung in Vorwärts- und Rückwärtsstreuung ist relativ zum Geschwindigkeitsvektor bei der Rückkehr zu verstehen, also

$$[p - eA(t_1)] = \mp [k - eA(t_1)] \begin{cases} \text{Rückstreuung} \\ \text{Vorwärtsstreuung.} \end{cases} \quad (6.25)$$

Darüberhinaus sind alle Streuwinkel zwischen π und 0 möglich. Damit ist auch ein Driftimpuls ungleich Null senkrecht zur Laserpolarisation möglich. In Zusammenhang mit Winkelverteilungen wird dies in Abschnitt 7.2 diskutiert.

In Abb. 6.2 sind die möglichen Driftenergien als Funktion der Reisezeit sowohl für die Vorwärtsstreuung als auch die Rückstreuung dargestellt. Driftenergien über $2U_P$ bis zu

$10U_P$ sind nur durch eine Rückstreuung möglich. Dabei wird das Elektron in die gleiche Richtung beschleunigt, in die auch seine Startgeschwindigkeit zeigt. So kann es einen wesentlich höheren Driftimpuls erreichen. Für eine Rückstreuung sind die Maxima durch die Nullstellen von $2 - 2 \cos \tau + 2\tau^2 \cos \tau - 3\tau \sin \tau$ gegeben. Das absolute Maximum von $10U_P$ ergibt sich für eine etwas längere Reisezeit $\tau = 4.3$ als das Maximum der Rückkehrenergie bei $\tau = 4.08$.

Kapitel 7

Lineare Polarisation

7.1 Approximation durch Quantentrajektorien

Die exakte Lösung der Sattelpunktgleichungen (6.12-6.14) für eine nicht verschwindende Bindungsenergie $E_0 < 0$ ist sehr viel schwieriger als die Lösung unter der Annahme $E_0 = 0$, die im vorherigen Abschnitt ausgeführt wurde und auf ein simple man's Modell führte. Aufgrund der ersten Sattelpunktgleichung

$$\frac{1}{2m} [\mathbf{k} - e\mathbf{A}(t_0)]^2 = -|E_0|, \quad (7.1)$$

werden alle Sattelpunkte komplex. Geht man von den reellen Lösungen für $E_0 = 0$ aus, lässt sich iterativ eine Lösung im Komplexen finden. Dazu erhöht man in jedem Iterationsschritt in kleinen Schritten ausgehend von $E_0 = 0$ die Bindungsenergie E_0 bis zu dem gewünschten Wert. Ausgehend von den Lösungen für einem Driftimpuls \mathbf{p} unterhalb der niedrigsten Cutoffenergie des SMM sind wiederum iterativ auch Lösungen für Driftimpulse oberhalb des jeweiligen Cutoffs einer Trajektorie zugänglich. Wie bereits bei den direkten Elektronen in Abschnitt 5 ist zusätzlich zu der so gefundenen Lösung auch die komplex konjugierte Lösung eine Lösung der Sattelpunktgleichungen. Die Abhängigkeit einer gefundenen Lösung von der Intensität erlaubt eine Auswahl zwischen den zueinander komplex konjugierten Lösungen. Für den höherenergetischen Teil des Spektrums spielen, wie bereits das SMM nahe legt, nur die Trajektorien eine Rolle, die am Potenzial rückgestreut werden.

Abb. 7.1 zeigt so gefundene Lösungen der Sattelpunktgleichungen (6.12-6.14) für die Startzeit t_0 und die Rückkehrzeit t_1 und die nicht verschwindende Komponente des Impulses \mathbf{k} für die sechs kürzesten Trajektorien. Als Funktion der Driftenergie des Elektrons nach der Rückstreuung ergeben sich Spuren in der komplexen t_0, t_1 und k_{\parallel} Ebene. Ausgewählte Driftenergien $\mathbf{p}^2/2m$ in Einheiten von U_P sind mit Kreisen gekennzeichnet. Die Sattelpunktösungen sind nach ansteigendem Realteil der Reisezeit $t_1 - t_0$ nummeriert und zu Paaren zusammengefasst dargestellt. Ihre jeweiligen Imaginärteile sind in einem

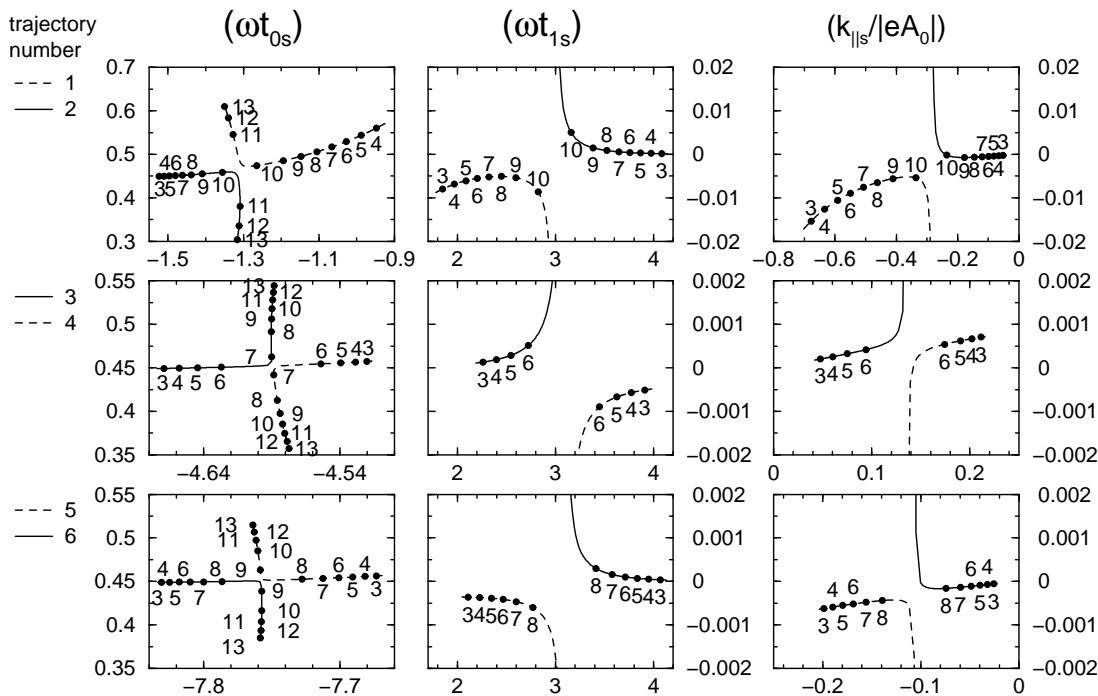


Abbildung 7.1: Lösungen der Sattelpunktgleichungen für die sechs kürzesten Trajektorien für die rückgestreuten Elektronen. Der Driftimpuls ist parallel zur Laserpolarisation des linear polarisierten Laserfeldes. Als Funktion der Driftenergie des Elektrons ergeben sich Spuren in der komplexen t_0 -, t_1 - und $k_{||}$ -Ebene. Auf der horizontalen Achse ist der Realteil, auf der vertikalen der Imaginärteil angegeben. Es sei auf die sehr viel kleinere Skala des Imaginärteils der Rückkehrzeiten t_1 verglichen mit der Startzeit t_0 hingewiesen. Die Kreise markieren Sattelpunkte für ausgewählte Driftenergien in Einheiten von U_P . Nach dem Cutoff eines Paares wird nur mehr die durch die durchgezogene Kurve dargestellte Trajektorie eines Paares berücksichtigt. In die Berechnung der Sattelpunkte geht ausschließlich der Keldyshparameter γ ein; es ist $\gamma = 0.464$.

weiten Energiebereich annähernd identisch, so dass ihr individueller Beitrag zum Matrixelement vergleichbar groß ist. Die Imaginärteile der Rückkehrzeiten t_{1s} sind für klassisch erlaubte Werte der Driftenergie wesentlich kleiner als der Imaginärteil der jeweiligen Startzeiten t_{0s} . Diese sind im Plateau in erster Näherung durch den Tunnelprozess zur Startzeit $\text{Re } t_{0s}$ bestimmt. Eine Entwicklung der Lösungen der Sattelpunktgleichungen nach γ ergibt $\text{Im } \omega t_{0s} \approx \gamma$. Zusätzlich zu den in Abb. 7.1 angegebenen sind auch die dazu komplex konjugierten Lösungen eine Lösung der reellen Sattelpunktgleichungen (6.12-6.14). Wie bereits bei den direkten Elektronen können diese jedoch als unphysikalische Lösungen identifiziert werden, da für diese Lösungen mit zunehmender Intensität des Laserfeldes der Beitrag zum Matrixelement kleiner wird. Darüberhinaus existieren weitere Lösungen, die sich aus den vorwärts gestreuten Elektronen des SMM ergeben. Ihre Beitrag wird jedoch nur für Driftenergien unterhalb $2U_P$ wichtig, wie aus Abb. 6.2 ersichtlich ist.

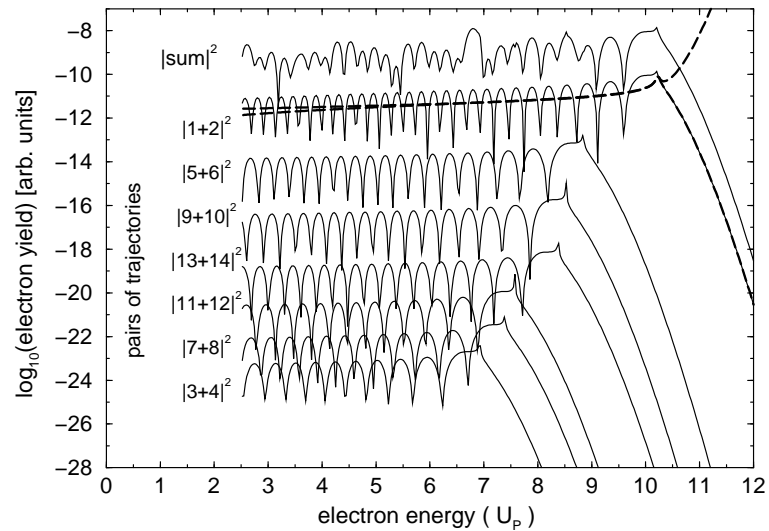


Abbildung 7.2: Beiträge einzelner Paare ($2s-1,2s$) von Trajektorien, geordnet nach ihrem jeweiligen Cutoff, zur Gesamtsumme (oben). Für steigende Reisezeit $t_{1s} - t_{0s}$ oszilliert der Wert des Cutoff immer weniger um den asymptotischen Wert $8 U_P$. Die relativen Beiträge der einzelnen Paare sind zur Übersichtlichkeit verschoben dargestellt, siehe Abb. 7.3. Für das erste Paar mit den kürzesten Reisezeiten ist der absolute Beitrag der einzelnen Trajektorien $|1|^2$ und $|2|^2$ gestrichelt angegeben. Hinter dem Cutoff wächst der Beitrag der ersten Trajektorie exponentiell an, während der Beitrag der zweiten exponentiell klein wird.

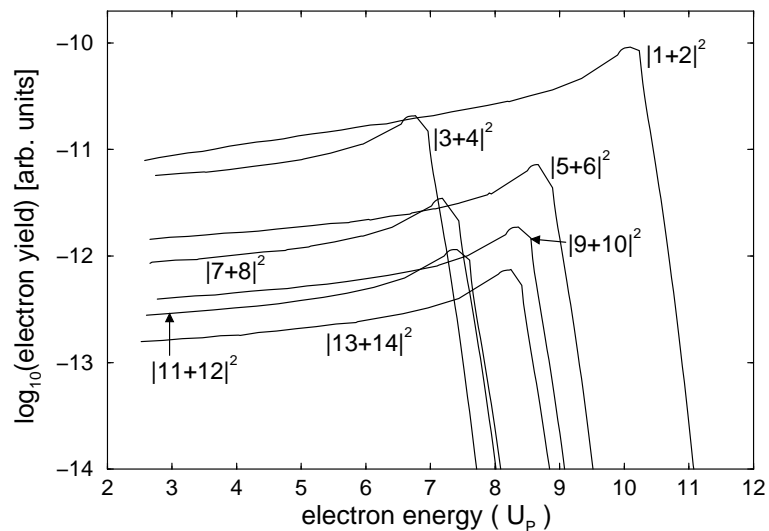


Abbildung 7.3: Einhüllende der Paare ($2n-1, 2n$) von Trajektorien aus Abb. 7.2. Die relativen Verhältnisse sind richtig wiedergegeben. Generell nimmt die quantitative Bedeutung der Trajektorienpaare mit ihrer Reisezeit ab.

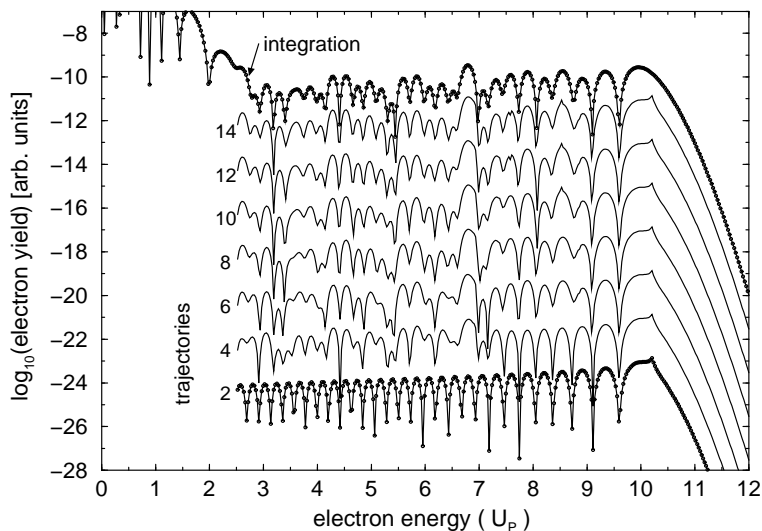


Abbildung 7.4: Berechnetes ATI-Spektrum (oben) verglichen mit seiner Approximation durch komplexe Trajektorien, wie sie sich aus der Sattelpunktsnäherung ergibt. Die Anzahl der berücksichtigten Trajektorien wächst von zwei (unten) bis zu 14, was einer Reisezeit $\text{Re}(t_{1s} - t_{0s})$ bis zu ca. 4 Laserperioden entspricht. Die Laserintensität beträgt 10^{15} W/cm^2 , die Photonenergie ist $\hbar\omega = 0.0584 \text{ a.u.}$. Die Bindungsenergie ist mit $E_0 = -0.9 \text{ a.u.}$ an Helium angeglichen. Es ergibt sich $\eta = U_P/\hbar\omega = 35.8$ und ein Keldyshparameter $\gamma=0.464$.

Aus den gefundenen Sattelpunkten ergibt sich mit Gl. (6.9) eine Approximation an das Matrixelement in Termen von Trajektorien. Für die in Abb. 7.2 dargestellten Spektren wurde für jedes Paar von Lösungen das Matrixelement einzeln berechnet. Die einzelnen Spektren sind der Übersicht wegen verschoben dargestellt. Abb. 7.3 gibt Auskunft über die relativen Beiträge unterschiedlicher Paare. Die Spektren unterschiedlicher Paare zeigen dasselbe qualitative Verhalten. Einem flachen Plateaubereich für niedrige Energien, der durch regelmäßige starke Einschnitte strukturiert ist, folgt ein Cutoff, nach dem die Rate schnell abfällt. Die Trajektorien 1 und 2 mit der kürzesten Reisezeit besitzen den höchsten Cutoff bei etwa $10U_P$. Die Trajektorien 3 und 4 mit einer um etwa einer halben Periode längeren Reisezeit besitzen dagegen den niedrigsten bei ca. $7U_P$. Der Cutoff der folgenden Paare liegt abwechselnd über und unter dem asymptotischen Wert von etwa $8U_P$. Aus Abb. 7.1 und Abb. 7.2 erkennt man, dass mit zunehmender Driftenergie bis zum Cutoff die einzelnen Lösungspaare durch eine fast ausschließliche Veränderung ihres Realteils aufeinander zuwandern. Dies ist ganz ähnlich dem SMM, bei dem die Lösungen am Cutoff schließlich identisch werden. Die komplexen Lösungen beginnen sich jedoch entlang der imaginären Achse auszuweichen. Nach dem Cutoff bleibt der Realteil weitgehend konstant, die Imaginärteile werden immer unterschiedlicher. In Abb. 7.2 ist für die Trajektorien 1 und 2 das Matrixelement getrennt dargestellt. Trajektorie 2 verhält sich nach dem Cutoff wie erwartet: Die Rate wird mit steigender Driftenergie geringer. Trajektorie 1 (gestrichelt dargestellt) dagegen zeigt ein irreguläres Verhalten. Die Rate

wächst nach dem Cutoff exponentiell an. Die höheren Trajektorienpaare mit längeren Reisezeiten verhalten sich ganz analog. In Abb. 7.1 sind jeweils die Trajektorien, die sich jenseits des Cutoffs irregulär verhalten, gestrichelt dargestellt. Ihr Beitrag wird in der Berechnung für Energien oberhalb eines Cutoffs fortgelassen. Der individuelle Beitrag einer Trajektorie ist bis zum Cutoff kaum von der Energie abhängig. Allein durch die Interferenz eines Paares ergeben sich die starken Einschnitte im Spektrum. Nach dem Cutoff treten keine Interferenzen auf, da nur eine Trajektorie beiträgt. Dies gilt auch für die Summe über alle Trajektorien, da der Beitrag der Trajektorie 2 oberhalb $10 U_P$ bei weitem überwiegt. Auch im Plateau ist der Beitrag der Trajektorie 1 und 2 am größten, gefolgt von der Trajektorie 3 und 4. Abb. 7.2 zeigt die relativen Beiträge der einzelnen Paare. Dazu ist linear zwischen den Interferenzmaxima interpoliert. Generell nimmt die Rate für längere Trajektorien immer mehr ab. Dies ist durch die zunehmende Verbreiterung des zur Startzeit erzeugten Wellenpakets zu verstehen. Zum Rückkehrzeitpunkt ist die Streuamplitude proportional zum Absolutwert des Wellenpakets am Streuzentrum.

In Abb. 7.4 wurden zur Berechnung des Matrixelements (6.9) Trajektorien mit immer längeren Reisezeiten aufgenommen und mit dem exakten Integrationsergebnis verglichen. Für das exakte Ergebnis ist die Position der ATI-Peaks durch Kreise markiert. Für alle anderen Spektren ist jeweils nur die Einhüllende der ATI-Peaks gezeigt. Bereits die ersten beiden Trajektorien approximieren das exakte Ergebnis für Energien größer als $9 U_P$ sehr gut. Für kleinere Energie ist die Höhe des Plateaus bereits im Mittel ganz gut approximiert. Im Unterschied zum exakten Ergebnis ist die von den ersten beiden Trajektorien erzeugte Interferenzstruktur ganz regelmäßig. Die Berücksichtigung von 4 Trajektorien reproduziert bereits im wesentlichen die irregulären Interferenzstrukturen der exakten Integration für Energien kleiner als $7 U_P$. Nimmt man die ersten sechs Trajektorien in die Summe auf, so ist auch zwischen 7 und $9 U_P$ die Interferenzstruktur des exakten Ergebnisses zu erkennen. Die Beiträge noch längerer Reisezeiten werden wegen der zunehmender Wellenpaketsverbreiterung immer geringer. Nimmt man 14 Trajektorien in die Summe auf, ist bis auf Spitzen am Cutoff einzelner Paare auch auf linearer Skala kein Unterschied mehr zum exakten Ergebnis. Die Spitzen an den einzelnen Cutoffs sind auf das bereits diskutierte beginnende divergente Verhalten jeweils einer der Trajektorien eines Paares zurückzuführen. Diese sind in Abb. 7.1 durch eine gestrichelte Spur gekennzeichnet.

In Abb. 7.5 ist die Wirkung für die beiden kürzesten Trajektorien angegeben. Für zunehmende Driftenergie nimmt der Realteil der Wirkung schnell zu. Die Imaginärteile verändern sich im Plateau nur sehr wenig. Im Gegensatz zu den Spuren der Start- und Rückkehrzeiten sowie des Impulses \mathbf{k}_s , die sich am Cutoff ausweichen, kreuzen sich die Spuren der Wirkung in der komplexen Ebene. Die Gewichte der einzelnen Trajektorien sind hauptsächlich durch den Imaginärteil der Wirkung $S_{\mathbf{p}}(t_{1s}, t_{0s}, \mathbf{k}_s)$ bestimmt. Im Plateau ist der Beitrag von Trajektorie 1 etwas stärker als der von Trajektorie 2. Hin zum Cutoff werden sich die Trajektorien und deren Beiträge jedoch immer ähnlicher. Aufgrunddessen ist die letzte konstruktive Interferenz am Cutoff immer am stärksten ausgeprägt. Schließlich vertauschen sich die Gewichte und nur mehr eine der beiden Trajektorien darf weiter berücksichtigt werden. Im eindimensionalen Fall der direkten Trajektorien tritt dies nur bei elliptischer Polarisierung auf, wie im Anhang B ausführlich gezeigt wird.

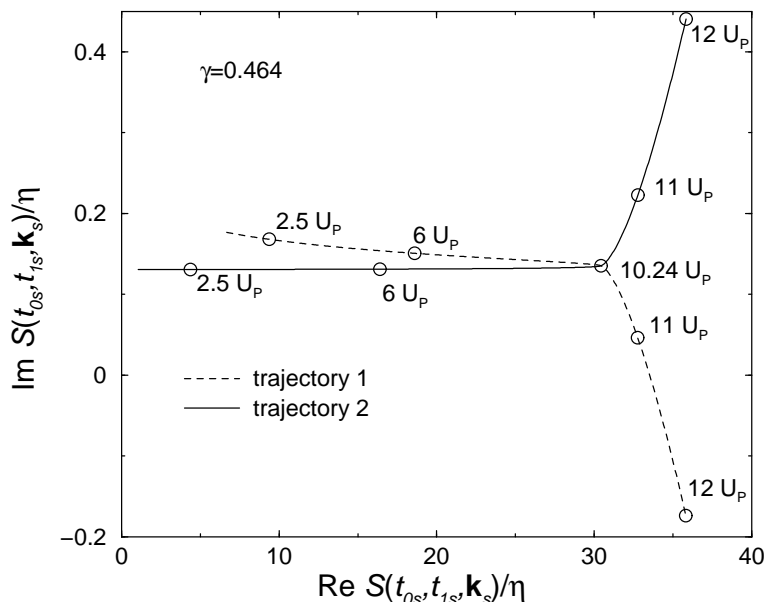


Abbildung 7.5: Die Wirkung S_p der beiden kürzesten Trajektorien in der komplexen Ebene, für Driftenergien zwischen 1.5 und $12 U_P$, berechnet aus den Lösungen der Sattelpunktgleichung Abb. 7.1.

Nachdem im Detail der Einfluss einzelner Trajektorien bzw. Trajektorienpaare diskutiert wurde, sind in Abb. 7.6 für eine Energie von $6 U_P$ die komplexen Trajektorien als Funktion der Zeit dargestellt. Im Bild oben ist für die Bahn sowohl der Real- (durchgezogene Linien) als auch der Imaginärteil (gestrichelte Linien) in Einheiten der Oszillationsamplitude $\alpha_0 = \frac{eA_0}{m\omega}$ geplottet. Genauso wie die Sattelpunkte in der gewählten Skalierung von Abb. 7.1 allein vom Keldyshparameter abhängen, sind die Bahnen in Einheiten von α_0 ebenso nur von γ abhängig. Mit den Parametern von Abb. 7.4 ergibt sich $\alpha_0 = 49.5$ a.u. Das Atom befindet sich am Ursprung. Die Bahn beginnt, anders als vielleicht zunächst erwartet, nicht am Ursprung sondern etwas davon entfernt am Tunnelausgang, der durch das elektrische Feld zum Startzeitpunkt und die Bindungsenergie bestimmt ist. Ursache dafür ist, dass die Bahnen als Funktion einer reellen Zeit t geplottet sind. Die Randbedingungen der Trajektorien sind aber durch die komplexen Lösungen der Sattelpunkte gegeben. Es ist also $\mathbf{r}(t_{0s}) = 0$ aber $\mathbf{r}(t = \text{Re } t_{0s}) \neq 0$. Gleiches gilt für die Rückstreuposition. Der Imaginärteil der Rückkehrzeit ist jedoch sehr viel kleiner als der Imaginärteil der Startzeit, so dass sich $\mathbf{r}(t = \text{Re } t_{1s}) \approx 0$ ergibt. In der unteren Bildhälfte sind die Geschwindigkeiten der einzelnen Trajektorien als Funktion der Zeit dargestellt. Wieder sind die Imaginärteile wesentlich kleiner als die Realteile. Nach der Rückstreuung sind die Imaginärteile identisch Null. Der Realteil oszilliert nun ponderomotorisch mit einer Oszillationsamplitude $eA_0/m = \omega\alpha_0$ um den Mittelwert $v = \sqrt{2 \cdot 6U_P/m} = 5$ a.u.

Die gesamte Interpretation des Matrixelements durch komplexe Trajektorien ist auf eine Sattelpunktsapproximation des zugrundeliegenden Matrixelements gestützt. Das Ergebnis kann formal als eine asymptotische Entwicklung des Integrals in $\eta = U_P/\hbar\omega$ aufge-

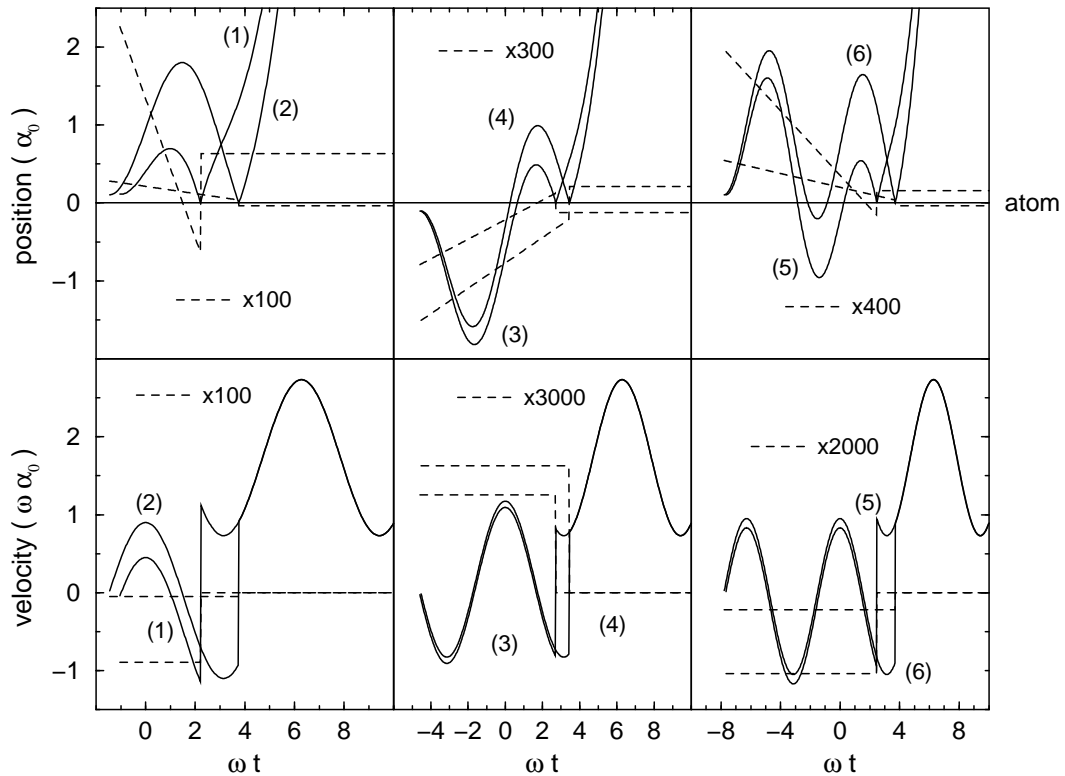


Abbildung 7.6: Zeitlicher Verlauf der Real- (durchgezogene) und Imaginärteile (gestrichelte Linien) der Trajektorien und der Geschwindigkeiten der sechs kürzesten Trajektorien für eine Driftenergie von $6U_P$ nach der Rückstreuung. Die Position des Elektrons ist in Einheiten von $\alpha_0 = eA_0/m\omega$ angegeben, seine Geschwindigkeit in Einheiten von eA_0/m . Die Imaginärteile wurden mit den angegebenen Faktoren multipliziert. Mit dieser Skalierung hängen die Bahnen und die Geschwindigkeiten, wie bereits die Lösungen der Sattelpunktgleichungen in Abb. 7.1, nur vom Keldysh-Parameter γ ab.

fasst werden und ist somit für hohe Intensitäten gerechtfertigt. Für das hier diskutierte Beispiel ist $\eta = 35.8$ und der Keldyshparameter ist $\gamma = 0.464$.

Die hier gewählten Parameter orientieren sich an ATI-Experimenten im Tunnelregime von Walker et al. [19]. Dabei wurden ATI-Spektren an Helium für Elektronenergien bis über 500 eV gemessen. Die meisten ATI-Experimente werden jedoch bei sehr viel niedrigeren Intensitäten und höheren Keldyshparametern nahe bei eins durchgeführt. Abb. 7.7 zeigt, dass die Approximation durch komplexe Trajektorien auch für sehr viel niedrigere Intensitäten durchaus gerechtfertigt ist. Bei einer Intensität von $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und einer Frequenz von $\omega = 0.0735 \text{ a.u.}$ ergibt sich $\eta = 3.58$. Als Bindungsenergie wurde $E_0 = -0.5 \text{ a.u.}$ angenommen, so dass sich ein Keldysh-Parameter $\gamma = 0.97$ ergibt. Die Parameter sind wie in Abb. 4.1 gewählt. Bei dieser niedrigen Intensität ist das Plateau nur durch ein Interferenzmaximum gefolgt von einem Minimum direkt unterhalb des Cutoffs strukturiert. Die ersten beiden Trajektorien mit der kürzesten Reisezeit approximieren

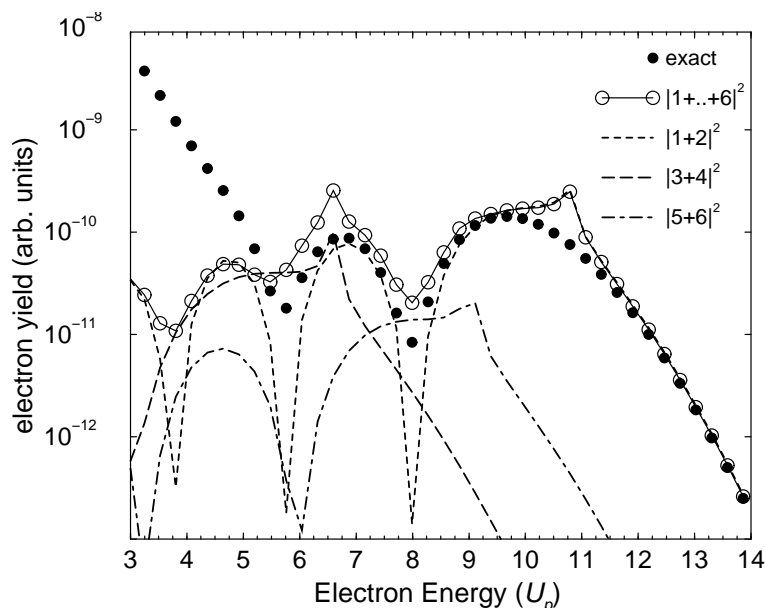


Abbildung 7.7: Vergleich zwischen exakter Integration (gefüllte Kreise) und den Ergebnissen der Sattelpunktsapproximation bei Berücksichtigung von sechs Trajektorien (offene Kreise) für den hochenergetischen Teil des ATI-Spektrums. Die Intensität ist $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, die Frequenz $\hbar\omega = 0.0735 \text{ a.u.}$ und die Bindungsenergie des ZRP ist $E_0 = -0.5 \text{ a.u.}$ Daraus ergibt sich ein Keldyshparameter $\gamma = 0.975$ und $\eta = 3.85$ gegenüber $\gamma = 0.464$ und $\eta = 35.8$ in Abb. 7.4. Die Position der ATI-Peaks ist teilweise durch Kreise angedeutet. Für Energien kleiner als $5.5U_P$ dominieren die direkten Elektronen das Spektrum, siehe auch Abb. 4.1. Das Plateau besteht in diesem Fall also lediglich aus ca. 20 ATI-Peaks. Für die einzelnen Paare ist nur die Einhüllende gezeigt.

das exakte Resultat bereits sehr gut (kurz gestrichelte Linie). Die längeren Trajektorien begrenzen im wesentlichen nur die Tiefe der Interferenzminima. In Abschnitt 9.2 Abb. 9.15 sind weitere Beispiele einer Sattelpunktsapproximation bei noch niedrigeren η und höherem Keldyshparameter gezeigt. Die Übereinstimmung ist auch in diesen Fällen noch sehr gut.

7.2 Winkelverteilungen

In diesem letzten Abschnitt wird untersucht, wie sich die Entwicklung des Matrixelements nach komplexen Trajektorien auf die Winkelverteilungen der rückgestreuten Elektronen auswirkt. Hält man die Driftenergie konstant und verändert den Winkel zwischen dem Driftimpuls und der Polarisation des Feldes, erhält man Winkelverteilungen wie sie in Abb. 7.9 dargestellt sind. ϕ bezeichnet dabei den Winkel zwischen Driftimpuls \mathbf{p} und Polarisationsrichtung $\hat{\mathbf{e}}$ des Laserfeldes. Da die Emission der Elektronen um diese Richtung rotationssymmetrisch ist, sind nur Winkel $\phi > 0$ dargestellt. Die Parameter entsprechen

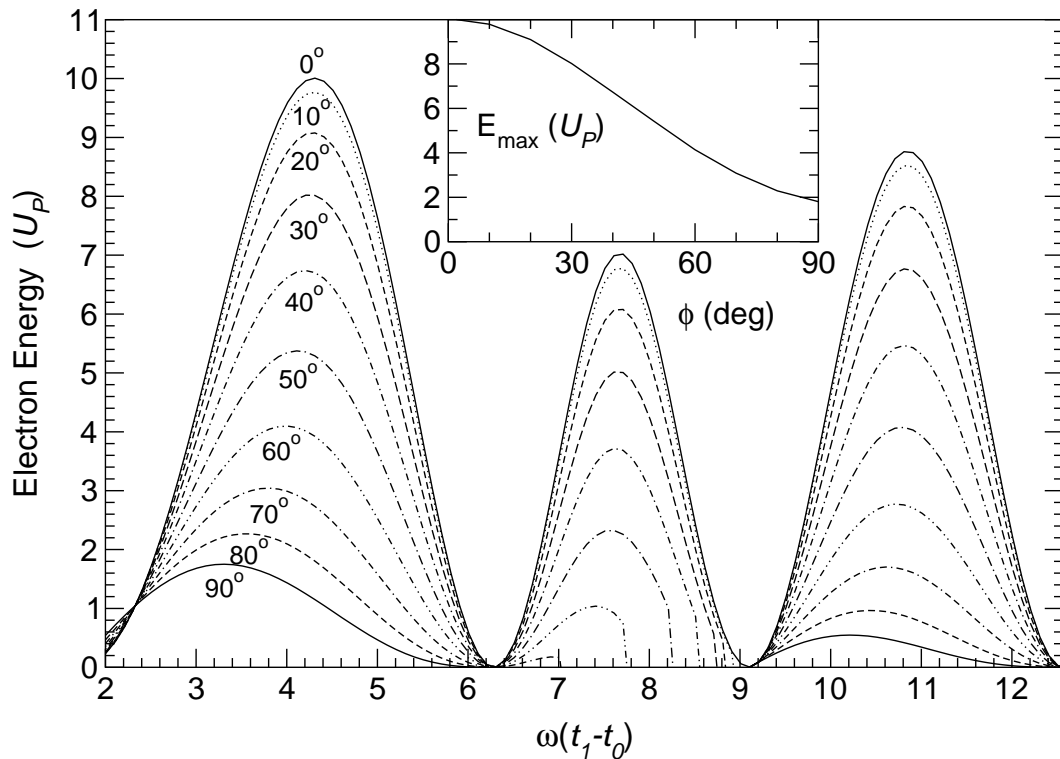


Abbildung 7.8: Lösung des SMM für Rückstreuung in unterschiedlichen Richtungen. Es ist die Driftenergie als Funktion der Reisezeit für eine Reihe von Emissionswinkeln ϕ bezüglich der Polarisation des elektrischen Feldes angegeben. Der Inset zeigt die sich daraus ergebende maximale Driftenergie E_{\max} in Abhängigkeit vom Emissionswinkel.

den in Abb. 7.4 angegebenen. Im Unterschied zu den gezeigten Spektren sind die Ergebnisse der Sattelpunktsapproximation und der exakten Auswertung des Matrixelements hier auf linearer Skala wiedergegeben. Zunächst ist festzustellen, dass für zunehmende Energien der Elektronen die Winkelverteilungen immer enger werden. Dies ist aus der expliziten Form des Matrixelements nur schwer ersichtlich. Bezeichnet man den von \mathbf{p} unabhängigen Term in Gl. (4.13) mit $I_n(\eta, E_0, \omega)$ kann das Matrixelement in der Form

$$M_{\mathbf{p}} \sim \sum_{\nu} \delta \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + U_P + |E_0| - \nu \hbar \omega \right) \sum_n J_{\nu+2n}(\alpha_0 \mathbf{p} \cdot \hat{\mathbf{e}}) I_n(\eta, E_0, \omega), \quad (7.2)$$

geschrieben werden. Das Integral I_n wird ähnlich wie die Besselfunktion J_n für ausreichend große n sehr schnell klein. Damit ist zwar die gesamte Winkelabhängigkeit im Argument der Besselfunktion enthalten, aber die Summation über n machte eine Analyse schwierig.

Im Rahmen des SMM bzw. der Sattelpunktsapproximation ist dies einfach physikalisch zu verstehen. Im SMM ist die kinetische Energie E_{back} bei der Rückkehr zum Atom als Funktion der Reisezeit durch Gl. (6.23) gegeben. Aus der Energieerhaltung bei der

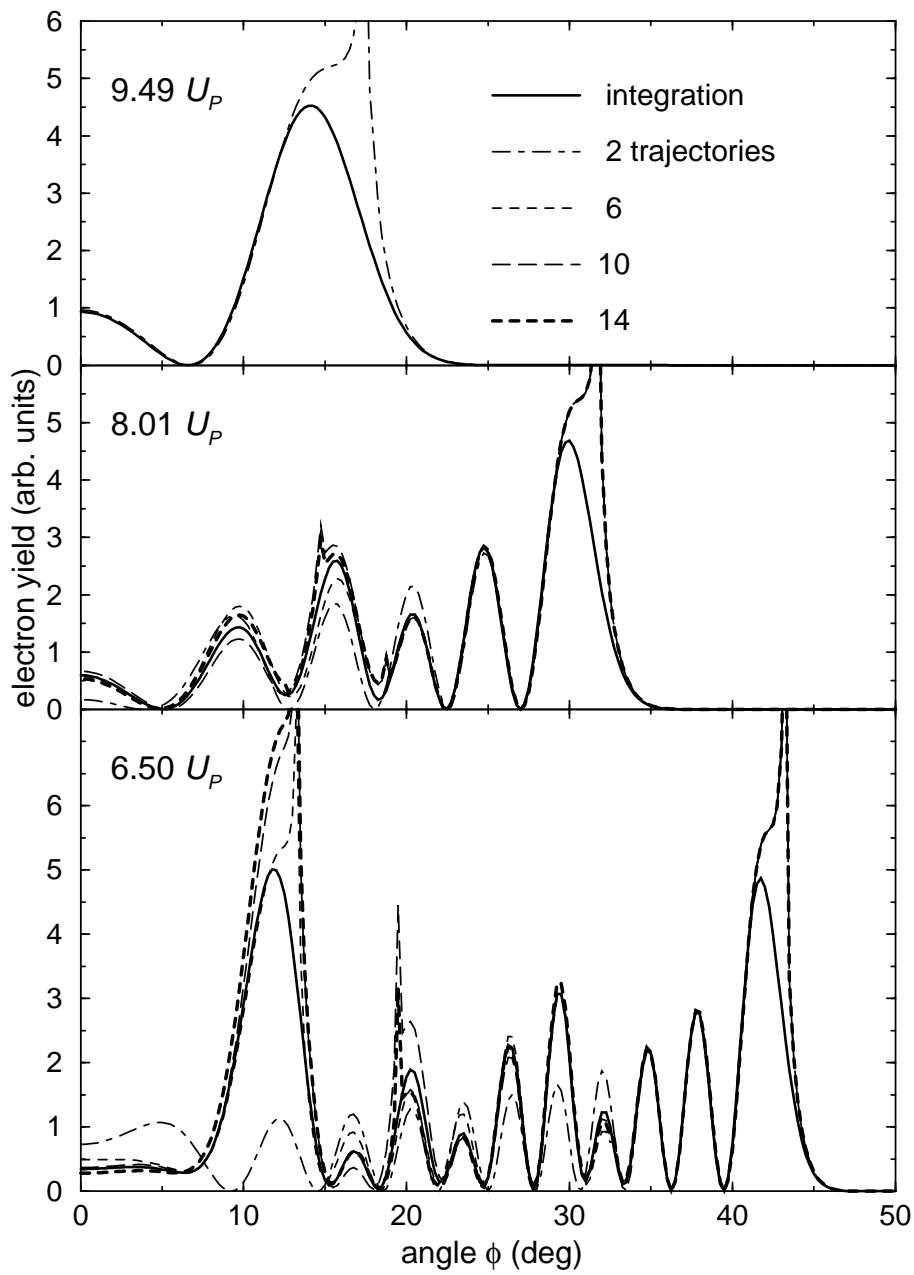


Abbildung 7.9: Sattelpunktsapproximation verglichen mit exakter Integration für Winkelverteilungen auf linearer Skala für verschiedene Driftenergien.

Streuung Gl. (6.14) ergibt sich

$$E_{\text{back}} = \frac{m}{2} v_{\parallel}^2 + \frac{\mathbf{p}_{\perp}^2}{2m}, \quad (7.3)$$

da die Geschwindigkeit des Elektrons senkrecht zum Feld nach der Rückstreuung konstant bleibt. v_{\parallel} bezeichnet die Geschwindigkeit des Elektrons unmittelbar nach der Streuung in Richtung des Feldes. Ein Driftimpuls senkrecht zur Laserpolarisation \mathbf{p}_{\perp} führt, da $E_{\text{back}} < 3.17U_P$ ist, zu einer kleineren Startgeschwindigkeit des Elektrons in Richtung des Feldes. Dies vermindert die erreichbare Driftenergie

$$\frac{\mathbf{p}^2}{2m} = E_{\text{back}} + \frac{e^2 \mathbf{A}^2(t_1)}{2m} + eA(t_1)v_{\parallel}. \quad (7.4)$$

Mit den in Abschnitt 6.2 angegebenen Ausdrücken für die Rückkehrenergie und den Rückkehrzeitpunkt ergibt sich die Driftenergie als Funktion der Reisezeit und des Emissionswinkels zu

$$\frac{\mathbf{p}^2}{2m} = 2U_P f(\tau) \left[g(\tau) \cos \phi + \sqrt{1 - g(\tau)^2 (\sin \phi)^2} \right]^2 \quad (7.5)$$

mit

$$f(\tau) = \frac{(2 - 2 \cos \tau - \tau \sin \tau)^2}{2 + \tau^2 - 2 \cos \tau - 2\tau \sin \tau} \quad \text{und} \quad g(\tau) = \frac{1 - \cos \tau - \tau \sin \tau}{2 - 2 \cos \tau - \tau \sin \tau}. \quad (7.6)$$

Für $\phi = 0$ und $\pm 180^\circ$ erhält man das Resultat für die Rückstreuung und die Vorwärtsstreuung von Abschnitt 6.2. In Abb. 7.8 ist die so berechnete Driftenergie als Funktion der Reisezeit τ für verschiedene Winkel ϕ gezeigt. Winkel größer als 90° entsprechen formal einer Vorwärtsstreuung mit einer maximalen Energie kleiner als $2U_P$ und sind daher nicht mit aufgeführt. Für $\phi \neq 0$ existiert nicht mehr für alle τ eine Lösung. In der Abb. zeigt sich dies durch unterbrochene Linien bei kleinen Driftenergien und großen Emissionswinkeln. Wie in Richtung der Polarisation des Lasers, wird die maximale Driftenergie für einen gegebenen Winkel nur von den ersten beiden Trajektorien erreicht. Der Cutoff längerer Trajektorienpaare alterniert wie bei $\phi = 0$ um einen asymptotischen Wert.

Für die Winkelverteilungen ergibt sich als Funktion des Winkels dasselbe Verhalten wie im Spektrum als Funktion der Energie. Abb. 7.9 zeigt eine Approximation der Winkelverteilungen mit komplexen Trajektorien für drei verschiedene Driftenergien. Für $9.49U_P$ sind allein die ersten beiden Trajektorien ausreichend. Für Winkel $\phi > 17^\circ$ ist nur eine Trajektorie berücksichtigt. Die Trajektorie mit der kürzesten Reisezeit beginnt wie im Spektrum zu divergieren. Die Approximation wird bereits nah am Cutoff wegen der eng benachbarten Sattelpunkte in der hier benutzten Form nicht mehr anwendbar. Jenseits des Cutoffs sind die Sattelpunkte jedoch wieder ausreichend weit voneinander entfernt und die Approximation durch den regulären Sattelpunkt ist sehr gut. Sieht man davon ab, so sind für kleinere Driftenergien um den Cutoff weiterhin die ersten beiden Trajektorien vollkommen ausreichend. Bei einer Energie von $8.01U_P$ modifizieren längere Trajektorien für $\phi < 22^\circ$ kaum die Interferenzstruktur, die durch die ersten beiden Trajektorien

vorgegeben ist. Ihr Einfluss ist insgesamt gering. Dagegen dominieren bei $6.5 U_P$ längere Trajektorien für kleine Winkel die Verteilung. Die Cutoffs längerer Trajektorien führen bei $\phi \approx 10^\circ$ und $\phi = 20^\circ$ zu der Diskrepanz zwischen dem exakten Ergebnis und der ansonsten sehr guten Approximation mit bis zu 14 Trajektorien.

Bereits das SMM sagt die Position der Cutoffs sehr gut voraus. Für Driftenergien von 9.5, 8 und $6.5 U_P$ liest man aus Abb. 7.8 maximale Emissionswinkel von $\phi = 15^\circ, 30^\circ$ und 41° ab. Auch bei dem in Abb. 4.1 gegebenen Vergleich der verallgemeinerten Keldyshtheorie mit einer numerischen Simulation für Wasserstoff bei sehr viel niedrigerer Intensität findet man die Vorhersage der Cutoff Energien im SMM für verschiedene Emissionswinkel bestätigt. Aus Abb. 4.1 ergeben sich Cutoff-Energien von 8, 5.5 und $2 U_P$ für Emissionswinkel von $30^\circ, 50^\circ$, und 90° .

Kapitel 8

Elliptische Polarisation

8.1 Mögliche simple man's Modelle

Eine Erweiterung des simple man's Modell (SMM), das für lineare Polarisation Ausgangspunkt für die Lösung der Sattelpunktgleichungen (6.12-6.14) war, ist auf ein elliptisch polarisiertes Feld nicht ohne Weiteres möglich. Bleibt man bei der Annahme einer Startgeschwindigkeit Null wie bei linearer Polarisation, so gilt weiter $\mathbf{k} = e\mathbf{A}(t_0)$. Für ein monochromatisches Feld lässt sich die Rückkehrbedingung, Gl. (6.21), als

$$\mathbf{E}(t_1) = \mathbf{E}(t_0) + \frac{\partial}{\partial t_0} \mathbf{E}(t_0)(t_1 - t_0). \quad (8.1)$$

schreiben. Das elektrische Feld ist für elliptische Polarisation durch $\mathbf{E}(t) = \hat{E}(\sin \omega t \hat{e}_1 - \xi \cos \omega t \hat{e}_2)$ gegeben. Das Elektron kann für reelle Start- und Rückkehrzeiten nicht gleichzeitig in \hat{e}_1 - und \hat{e}_2 -Richtung zurück zum Startpunkt gelangen. Dies sieht man in der grafischen Konstruktion der Lösungen in Abb. 6.1 sehr leicht: Das elektrische Feld in Richtung \hat{e}_2 ist um $\omega \Delta t = \pi/2$ gegenüber dem in Richtung \hat{e}_1 verschoben. Mögliche Intervalle von Startzeiten t_0 nach dem Maximum des Feldes sind daher für die Richtungen \hat{e}_1 und \hat{e}_2 stets getrennt. Eine Trajektorie mit Startgeschwindigkeit Null kehrt also nie an seinen Startort zurück.

Quantenmechanisch tritt jedoch aufgrund der Wellenpaketsverbreiterung, für ein zum Startzeitpunkt t_0 mit Geschwindigkeit Null präpariertes Wellenpaket, zu einer späteren Zeit t_1 ein Überlapp mit dem ionisierten Atom auf. Für die Erzeugung hoher Harmonischer trägt im wesentlichen die Rekombination mit dem Grundzustand bei [96]. Hochenergetische Photo-Elektronen werden durch eine Rückstreuung am Ion erzeugt. In beiden Fällen ist also ein Überlapp mit am Atom lokalisierten Wellenfunktionen entscheidend. Dieser von Corkum vorgeschlagene Mechanismus führt auf das Gaußsche-Überlapp-Modell [97, 98], bei dem das zum Startzeitpunkt t_0 präparierte Wellenpaket als gaußförmig angenommen wird. Bei der Propagation im Laserfeld bleibt das Wellenpaket

gaußförmig, die Breite $a(t)$ nimmt stark zu

$$a^2(t > t_0) = a_0^2 + \left(\frac{\hbar}{m a_0} \right)^2 (t - t_0)^2. \quad (8.2)$$

Der Schwerpunkt bewegt sich entlang der klassischen Trajektorien des SMM. Als kritische Größe erweist sich vor allem die anfängliche Breite a_0 des Wellenpakets zur Startzeit t_0 . Eine Angleichung an die transversale Stromdichte am Tunnelausgang im Fall eines statischen Feldes führt für die HHG zu sehr guten Resultaten [98]. Der ‘‘Rückkehrzeitpunkt’’ t_1 wird dabei durch die Rückkehr des Wellenpaketes in Richtung der großen Komponente \hat{e}_1 des elektrischen Feldes bestimmt. Für größere Elliptizitäten werden die Felder in beiden Richtungen vergleichbar groß, so dass dieses Verfahren fragwürdig wird. Darüberhinaus führt es nur in einem kleinen Energieintervall unterhalb des Cutoffs zu eindeutigen Voraussagen. Im Modell ist keine Information über die Phase des Wellenpaketes enthalten. Es zeigt sich, dass für Energien im Plateau mehrere Start- und Rückkehrzeiten wichtig werden. Das Modell macht wegen der fehlenden Phaseninformation keine Aussage darüber, wie die unterschiedlichen Beiträge zu addieren sind. Der Energiebereich über dem klassischen Cutoff kann nicht behandelt werden. Für HATI führt die einmalige Rückstreuung an einem ZRP bereits zu ganz guten Resultaten, wie der Vergleich mit numerischen Simulationen zeigt. Das rückkehrende Elektron hat klassisch maximal eine kinetische Energie von $3.17U_P$. Entscheidend für die Driftenergie nach der Rückstreuung ist jedoch der Zeitpunkt, an dem die Rückstreuung stattfindet. Dessen Bestimmung ist jedoch wegen der Annahme verschwindender Startgeschwindigkeit problematisch.

Die Trajektorienanalyse in Kapitel 7 für lineare Polarisation zeigt, dass im Rahmen der Sattelpunktmethode Interferenzen zwischen einer ganzen Reihe von Trajektorien richtig berücksichtigt werden können. Man gelangt gleichzeitig zu Ergebnissen für Energien oberhalb der klassischen Grenzen. Die Bestimmung der Start- und Rückkehrzeiten ist eindeutig, die Lösungen werden allerdings komplex.

Versucht man eine Formulierung eines SMM ausgehend von den Sattelpunktgleichungen (6.12-6.14) analog zur linearen Polarisation, stößt man auf Schwierigkeiten. Aus der ersten Sattelpunktgleichung ergibt sich mit $m\mathbf{v} = \mathbf{k} - e\mathbf{A}(t_0)$

$$\mathbf{v}^2 = (\text{Re}(\mathbf{v}))^2 - (\text{Im}(\mathbf{v}))^2 + 2i \text{Re}(\mathbf{v}) \cdot \text{Im}(\mathbf{v}) = -2m|E_0| \quad (8.3)$$

Im Gegensatz zur rein imaginären Startgeschwindigkeit bei linearer Polarisation

$$\mathbf{v} \cdot \hat{\mathbf{e}} = \pm i \sqrt{2m|E_0|}, \quad (8.4)$$

ist nun der Geschwindigkeitsvektor zur Startzeit komplex. Der Real- und Imaginärteil sind lediglich orthogonal zueinander. Setzt man die Bindungsenergie identisch Null, gilt für die Komponenten der Startgeschwindigkeit $\mathbf{v} = v_1 \hat{\mathbf{e}}_1 + v_2 \hat{\mathbf{e}}_2$

$$v_1 = \pm i v_2 \quad (8.5)$$

wobei $v_{1,2}$ komplexe Größen sind. Alle drei Sattelpunktgleichungen werden nun, auch für $E_0 = 0$, nur für komplexe t_0, t_1 und \mathbf{k} gelöst. Der Fall verschwindender Bindungsenergie ist damit nicht wesentlich einfacher als die Sattelpunktsanalyse für ein $E_0 < 0$.

Allerdings erlaubt Gl. (8.5) ähnlich zum Fall linearer Polarisation eine explizite Bestimmung der Rückkehrenergie als Funktion der Reisezeit.

Ausgehend von den komplexen Lösungen bei linearer Polarisation erhält man Lösungen für elliptische Polarisation, indem man in kleinen Schritten die Elliptizität erhöht.

8.2 Numerische Ergebnisse

Zunächst werden ATI-Spektren diskutiert, die sich direkt aus dem verallgemeinerten KFR-Matrixelement gemäß Abschnitt 4.2, Gl. (4.13), mittels einer eindimensionalen numerischen Integration ergeben. Der Driftimpuls ist dabei in Richtung der großen Komponente des elliptisch polarisierten Feldes gewählt.

In Abb. 8.1 sind mehrere Spektren von linearer Polarisation bis zu Elliptizitäten von $\xi = 0.7$ gezeigt. Die Parameter sind, bis auf eine halb so große Intensität, die gleichen wie im vorangegangenen Abschnitt. Der niederenergetische Bereich im Spektrum bis etwa 3 bis 4 U_P wird von direkten Elektronen dominiert. Deren Beitrag ist in dem verallgemeinerten KFR-Matrixelement einfach zu identifizieren, siehe Abschnitt 4.2. Für elliptische Polarisation wird die Emission von direkten Elektronen in der hier betrachteten Richtung der großen Komponente der Feldellipse stark unterdrückt. Tatsächlich ist die winkelintegrierte Ionisation kaum verschieden, die direkten Elektronen weichen in Richtung der kleinen Komponente des Feldes aus. Dieser als Dodging bezeichnete Mechanismus ist leicht klassisch zu verstehen. Die Tunnelwahrscheinlichkeit ist in der Nähe des Maximums des elektrischen Feldes am größten. Damit erhalten die Elektronen in Richtung der großen Komponente nur einen sehr geringen Driftimpuls. In Richtung der kleinen Komponente geht das elektrische Feld aber gerade durch eine Nullstelle, so dass es in dieser Richtung größere Driftimpulse erreicht. Im Folgenden sollen die hochenergetischen Photoelektronen untersucht werden.

Im Rückstreubereich fällt zunächst der starke Abfall des gesamten Plateaus für zunehmende Elliptizität auf: Die Rate der Cutoff-Elektronen ist bei einer Elliptizität von $\xi = 0.5$ um 10 Größenordnungen geringer als bei linearer Polarisation. Dies ist mit dem angesprochenen Gaußschen Überlapp-Modell zu erklären, der Mechanismus ist also nicht das für die direkten Elektronen wichtige Dodging. Für Elektronen im Plateau ist der Abfall relativ zur linearen Polarisation wesentlich geringer: Nur etwa 5 bis 6 Größenordnungen bei einer Energie um 5 U_P . Damit ist der ganze Rückstreubereich nicht mehr flach und durch eine gemeinsame Rate beschrieben. Vielmehr zeigt das Plateau einen mehr oder weniger stetigen Abfall für zunehmende Elektronenergie. Nach dem Cutoff nimmt der Abfall der Zählrate dann nochmals zu, und ist vergleichbar stark wie bei linearer Polarisation nach dem Cutoff. Tatsächlich ist der stetige Abfall der Rate durch das Auftreten mehrerer Plateaus verursacht. Bei einer Elliptizität von 0.36 sind deutlich zwei "Treppeinstufen" vorhanden. Die erste für eine Energie zwischen 3.5 und 6 U_P , danach fällt die Rate sehr rasch um etwa zwei Größenordnungen ab. Von 6.5 bis etwa 9 U_P , der klassisch maximalen Energie für diese Elliptizität, bleibt die Rate dann wieder weitgehend

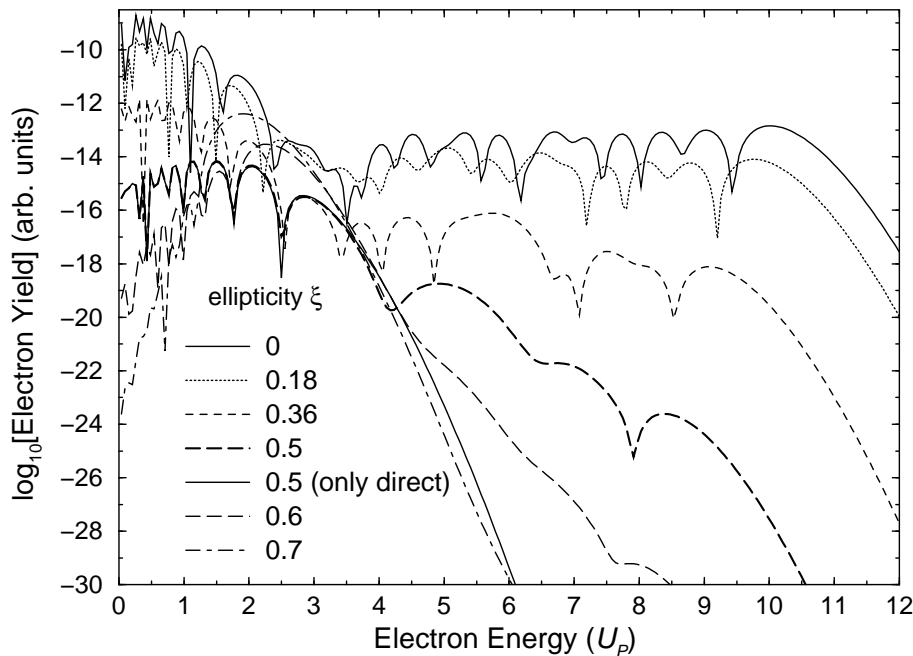


Abbildung 8.1: ATI-Spektren in Richtung der großen Komponente eines elliptisch polarisierten Laserfeldes $\mathbf{E}(t) = (\hat{E}/\sqrt{1+\xi^2})(\hat{e}_1 \sin \omega t - \xi \hat{e}_2 \cos \omega t)$. Für ansteigende Elliptizität ist das ponderomotorische Potenzial konstant. Die Parameter sind bis auf eine halb so große Intensität $I = 5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ wie in Abb. 7.2 gewählt: $\hbar\omega = 0.0584 \text{ a.u.}$, $U_P/\hbar\omega = 17.9$ und die Bindungsenergie ist $E_0 = -0.9 \text{ a.u.}$

konstant. Bei einer Elliptizität von $\xi = 0.5$ sind dieser Anschauung folgend drei Plateaus oder Stufen zu identifizieren. Gleichzeitig verschwinden mit zunehmender Elliptizität die starken Interferenzen, die bei linearer Polarisation das ansonsten flache Plateau strukturieren. Für die höchste dargestellte Elliptizität von $\xi = 0.7$ liegt der Cutoff weit unterhalb des dargestellten Bereichs bei einer Rate von 10^{-38} und einer Energie von etwa $8.2U_P$.

8.3 Approximation durch Quantentrajektorien

Mit Hilfe der Sattelpunktsapproximation gelingt es, die einzelnen Plateaus im Rückstreubereich einzelnen Paaren von Trajektorien zuzuordnen. Für die niederenergetischen direkten Elektronen wurden die Trajektorien bereits im einführenden Abschnitt zur eindimensionalen Sattelpunktsapproximation und in Anhang B bestimmt. In Abb. 8.1 ist für eine Elliptizität von 0.5 der Beitrag der direkten Elektronen eingezeichnet. Ab einer Energie von ca. $4.5 U_P$ wird das Spektrum vollständig von den rückgestreuten Elektronen gebildet.

Für die Elliptizität von $\xi = 0.5$ wird nun beispielhaft die Approximation mittels der Sattelpunktsapproximation diskutiert. Es werden nur die rückgestreuten Elektronen be-

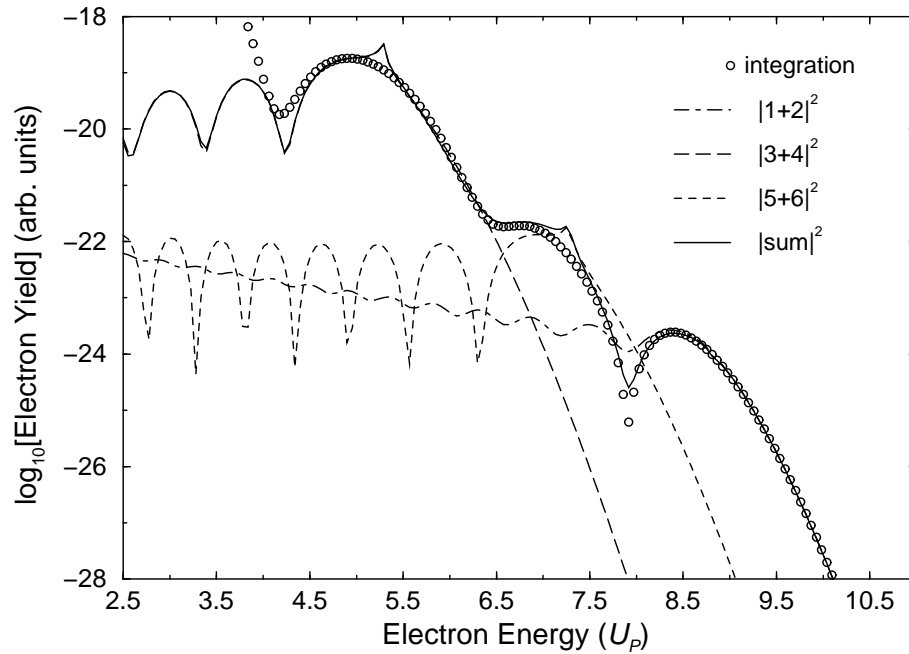


Abbildung 8.2: Vergleich eines ATI-Spektrums aus Abb. 8.1 für eine Elliptizität $\xi = 0.5$ mit den Ergebnissen der Sattelpunktsapproximation für die sechs kürzesten Trajektorien.

trachtet. Abb. 8.2 zeigt die Beiträge zum Matrixelement für die sechs kürzesten Trajektorien. Ihre Summe approximiert bereits das mittels numerischer Integration gewonnene Ergebnis von Abb. 8.1 sehr gut. Die Kreise geben die Position der exakten ATI-Peaks der numerischen Integration wieder. Berücksichtigt man in der Summe über alle Sattelpunkte, Gl. (6.9), nur die beiden Lösungen mit der kürzesten Reisezeit (1,2), so wird das Spektrum nur um den letzten Cutoff, also für Energien größer als $8 U_P$ gut approximiert. Unterhalb davon weicht das Spektrum der ersten beiden Trajektorien um bis zu drei Größenordnungen vom tatsächlichen Spektrum ab. Die Rate oszilliert leicht um einen konstanten Abfall von ca. einer Größenordnung über eine Elektronenergie von $6 U_P$. Das Verhalten ähnelt dem Beitrag des ersten Paares bei linearer Polarisation in Abb. 7.2. Allerdings ist deren Beitrag von starken Interferenzen innerhalb eines flachen Plateaus gekennzeichnet. Der Beitrag der Lösungen 3,4 und 5,6 mit längerer Reisezeit ist ebenfalls paarweise wiedergegeben. Für eine Energie von 4.5 bis $6.5 U_P$ ist offensichtlich der Beitrag der Lösungen 3 und 4 ausreichend. Die Schulter bei einer Energie zwischen 6.5 und $8 U_P$ dagegen erweist sich als der Cutoff-Bereich der Lösungen 5 und 6. Diese bilden, genauso wie die Lösungen 3 und 4, ein dem linearen Fall ganz ähnliches flaches Plateau mit starken Interferenzen innerhalb des Paares. In der Summe aller sechs Lösungen verschwinden aber, abgesehen von dem Einbruch bei etwa $8 U_P$, alle destruktiven Interferenzen. Vielmehr dominiert der Cutoffbereich der einzelnen Trajektorienpaare das ganze Rückstreuungsspektrum ab einer Energie von $4.5 U_P$. Die Approximationen durch Trajektorien zeigen wieder die charakteristischen Spitzen am jeweiligen Cutoff eines Paares. Wie bei linearer Polarisation durchläuft dabei der Wirkung $S_p(t_{0s}, t_{1s}, \mathbf{k}_s)$ in der komplexen

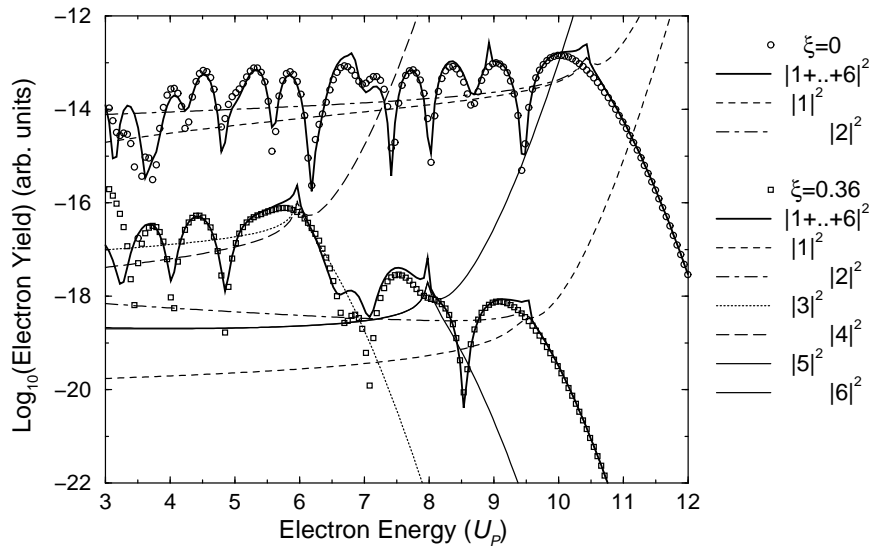


Abbildung 8.3: Vergleich von linearer Polarisation mit einer geringeren Elliptizität $\xi = 0.36$ als in Abb. 8.2. In der Approximation ist wieder über die sechs kürzesten Trajektorien summiert. Die Kreise bzw. die Rechtecke kennzeichnen die ATI-Peaks der exakten Integration.

Ebene für die beiden Trajektorien eines Paares eine Kreuzung ähnlich Abb. 7.5.

In Abb. 8.3 sind die Spektren für lineare Polarisation und für eine geringere Elliptizität $\xi = 0.36$ mit den Ergebnissen der SPA verglichen. Zusätzlich zu der Summe über die sechs kürzesten Trajektorien, die auch in diesem Fall eine zufriedenstellende Approximation liefern, sind die Beiträge der einzelnen Trajektorien mit angegeben. Bei linearer Polarisation sind die beiden kürzesten Trajektorien über den ganzen Plateaubereich wichtig. Anders bei der Elliptizität von 0.36: Die Trajektorien 1 und 2 sind nur für Energien über $7 U_P$ wichtig. Für Elektronen mit einer Energie kleiner als $7 U_P$ sind aber genau wie bei $\xi = 0.5$ die Beiträge der 3. und 4. Trajektorie, mit einer fast doppelt so langen Reisezeit wie die ersten beiden Trajektorien, ausschlaggebend. Damit ist für elliptische Polarisation nicht nur eine Unterscheidung in direkte und rückgestreute Elektronen möglich. Für alle Energien ist genau ein Paar von Trajektorien von Bedeutung.

Aus dem Gaußschen Überlapp-Modell, das bisher am ehesten für eine Interpretation der Verhältnisse bei elliptischer Polarisation heranziehbar ist, erhält man bereits Hinweise darauf, dass längere Trajektorien beitragen [98]. Die SPA erlaubt erstmals eine detailliertere Analyse für elliptische Polarisation. Teilweise ist sie zu diesem komplementär: Im SMM wird von einer Startgeschwindigkeit Null ausgegangen, das Elektron kehrt daher nicht exakt zum Atom zurück. In der SPA ergibt sich eine Startgeschwindigkeit ungleich Null.

Anhand der Lösungen der Sattelpunktgleichungen wird nun der Unterschied zur linearen Polarisation näher erläutert. Abb. 8.4 und 8.5 zeigt die Lösungen für die ersten vier Trajektorien, jeweils für lineare Polarisation und $\xi = 0.5$. Anstatt der Startzeit t_0 sind die

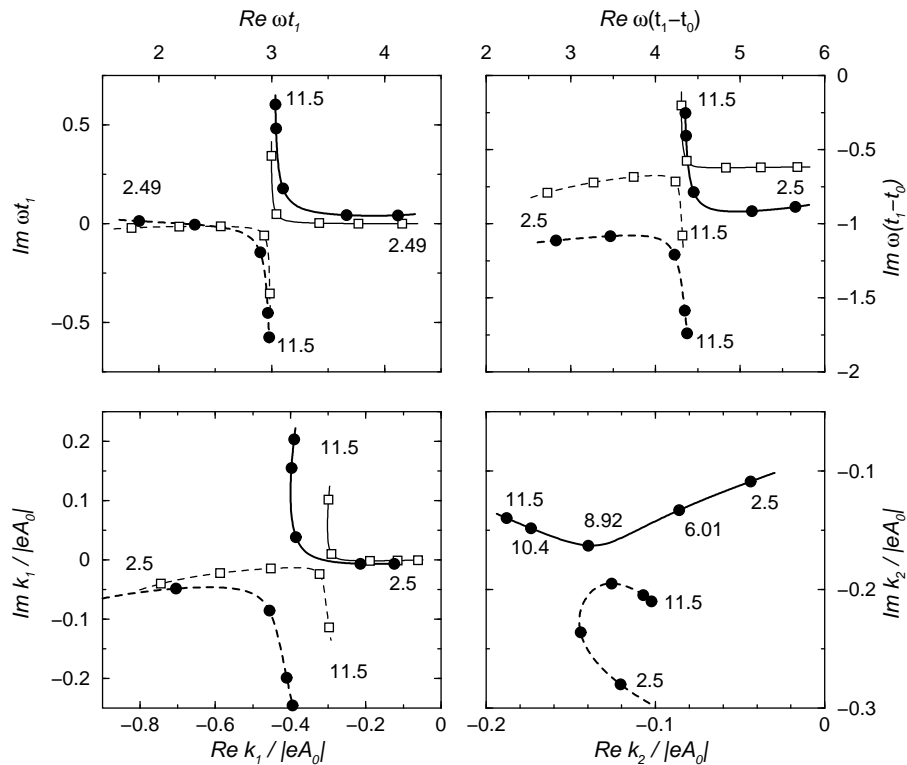


Abbildung 8.4: Sattelpunkte für die Trajektorien 1 und 2 für eine Elliptizität $\xi = 0.5$ verglichen mit $\xi = 0$. Für $\xi = 0.5$ geben die gefüllten Kreise die Lösungen für verschiedene Elektronenergien (2.5, 6.01, 8.92, 10.4, und $11.5 U_P$) an; die offenen Quadrate gelten für lineare Polarisation. Die Sattelpunkte sind in der benutzten Skalierung nur vom Keldyshparameter γ und ξ abhängig. Für die Parameter von Abb. 8.1 ergibt sich $|eA_0| = 2.04$ a.u.

komplexen Reisezeiten $t_1 - t_0$ aufgetragen. Die Rückkehrzeiten unterscheiden sich kaum vom Fall der linearen Polarisation. Bei einer Energie von $8.92 U_P$ sind die Wirkungen der beiden ersten Trajektorien für $\xi = 0.5$ identisch. Für höhere Energien wird wiederum die Trajektorie 1 nicht berücksichtigt. Ihr Beitrag wird divergent, wie Abb. 8.3 zeigt. Dies ist wie in allen anderen derartigen Abbildungen durch eine gestrichelte Spur der Lösungen in der komplexen Ebene angedeutet. Bei linearer Polarisation wird der so definierte Cutoff bei einer Energie von $10.4 U_P$ erreicht, und die Lösungen der beiden Trajektorien am Cutoff liegen sehr viel näher aneinander als bei $\xi = 0.5$. Als Folge davon ist für $\xi = 0.5$ auf logarithmischer Skala die bei linearer Polarisation deutlich sichtbare Spitze nicht zu erkennen. Der Beitrag der ab dem Cutoff nicht mehr zu berücksichtigenden Trajektorie 1 ist, wie bei $\xi = 0.36$, Abb. 8.3, vor dem Cutoff weitaus geringer als der von Trajektorie 2. Dies spiegelt sich vor allem in den unterschiedlichen Imaginärteilen der Reisezeit im Plateau wieder. Als Folge davon sind auch die Interferenzen innerhalb dieses Paares sehr viel schwächer als bei linearer Polarisation. Dagegen sind die Imaginärteile der Reisezeit von Trajektorien 3 und 4 im Plateau wie bei linearer Polarisation fast identisch.

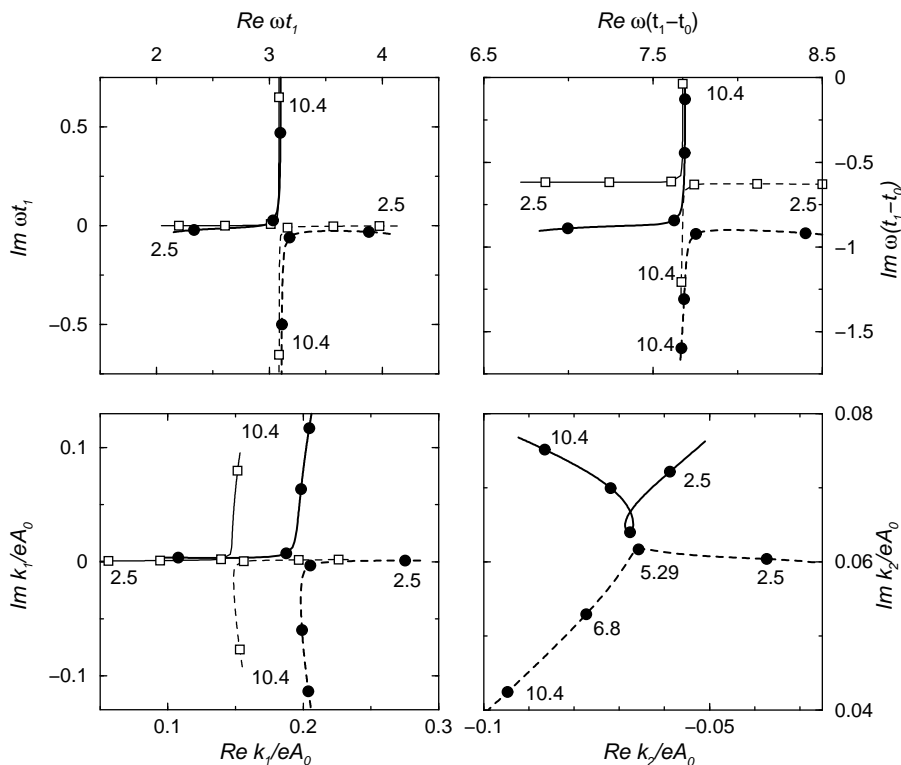


Abbildung 8.5: Wie Abb. 8.4 für die Trajektorien 3 und 4. Die markierten Punkte entsprechen Driftenergien von 2.5, 5.29, 6.8, und 10.4 U_P . Für die Parameter von Abb. 8.1 ist $|eA_0| = 2.04$ a.u.

Tatsächlich zeigt dieses Paar auch bei elliptischer Polarisation ausgeprägte Interferenzen. Auch der Cutoff bei 5.29 U_P ist wegen der nahe aneinanderliegenden Lösungen durch eine charakteristische Spitze im Spektrum deutlich sichtbar. Die Realteile der Reise- und Rückkehrzeit nähern sich beim Erreichen des Cutoffs in etwa den gleichen Werten an: $\omega t_{1s} \approx 3$ bzw. 3.1 und $\omega(t_{1s} - t_{0s}) \approx 4.2$ bzw. 7.7. Allein die Imaginärteile der Reisezeit sind deutlich verschieden. Bei den Impulsen \mathbf{k} des Elektrons in Richtung der großen Komponente des Feldes k_1 im Zwischenzustand unterscheiden sich dagegen deutlich die Realteile. Bei linearer Polarisation ist am Cutoff der Realteil etwa $-0.3|eA_0|$ gegenüber $-0.4|eA_0|$ bei $\xi = 0.5$ für die ersten beiden Trajektorien. Für das zweite Paar ist der Unterschied nur etwa halb so groß. Für die betrachteten Parameter ist $|eA_0| = 2.04$ a.u., zum Vergleich $U_P = \eta\omega = 1.04$ a.u. Die Driftenergien im Zwischenzustand sind also kleiner als $0.5U_P$. Das ist physikalisch sinnvoll, das Elektron darf für eine Wechselwirkung mit dem Potenzial nicht vom Atom wegdriften. Für zunehmende Reisezeiten wird der Driftimpuls im Zwischenzustand entsprechend kleiner. Qualitativ ändert sich der Driftimpuls in Richtung der großen Komponente gegenüber linearer Polarisation jedoch nicht. Dies ist auch kaum verwunderlich, die Bedingungen in dieser Richtung sind bis auf ein um den Faktor $1/\sqrt{1+\xi^2}$, also etwa 0.89 für $\xi = 0.5$, reduziertes elektrisches Feld kaum von linearer Polarisation verschieden. In Richtung der kleinen Komponente ist dies anders.

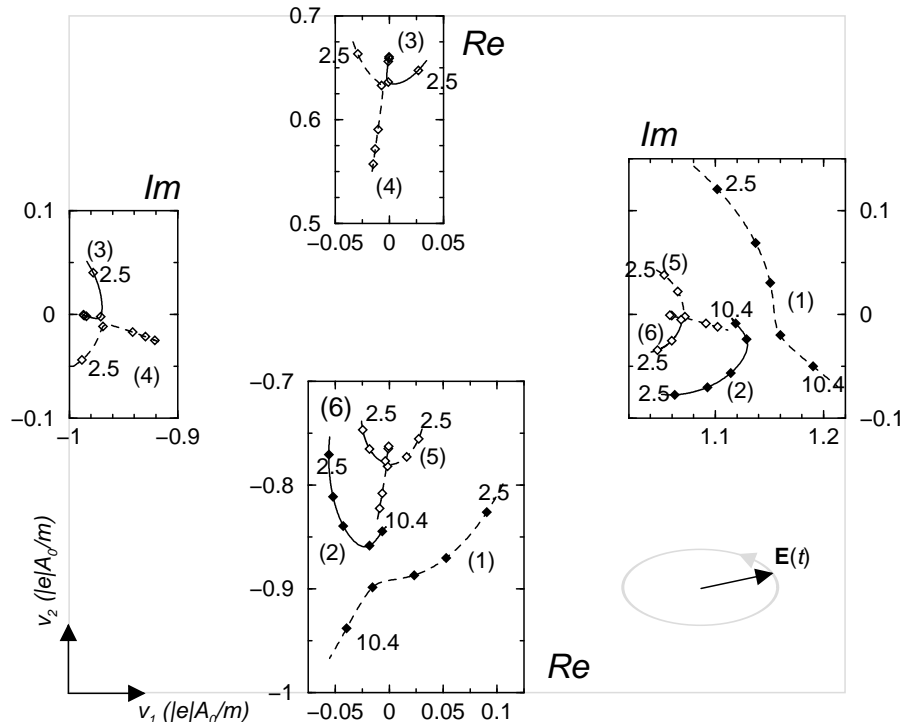


Abbildung 8.6: Startgeschwindigkeiten für die ersten sechs Trajektorien. Driftenergien mit 2.5, 5.29, 7.3, 8.92, und 10.4 U_P sind durch Punkte markiert. Für die Parameter von Abb. 8.1 ist $|eA_0| = 2.04$ a.u.

Der Impuls für lineare Polarisierung ist in dieser Richtung für alle Energien identisch Null. Für elliptische Polarisierung findet man vergleichbar große von Null verschiedene Werte für den Real- und den Imaginärteil.

Aus den Lösungen der Sattelpunktgleichungen ergeben sich die komplexen Startgeschwindigkeiten gemäß $\mathbf{v} = \mathbf{k} - e\mathbf{A}(t_0)$. Das erlaubt eine physikalische Interpretation. Zur Erinnerung: Für lineare Polarisierung ist die Startgeschwindigkeit parallel zum elektrischen Feld und rein imaginär, $\mathbf{v} = \pm i \sqrt{2m|E_0|} \hat{\mathbf{e}}$. Sie ist für alle Trajektorien und das ganze Spektrum identisch. Für elliptische Polarisierung dagegen wird Gl. (8.3) nicht mehr trivial mit $\text{Re}(\mathbf{v}) = 0$ gelöst. Es gilt

$$(\text{Re } \mathbf{v})^2 - (\text{Im } \mathbf{v})^2 = -2m|E_0| \quad \text{und} \quad \text{Re } \mathbf{v} \cdot \text{Im } \mathbf{v} = 0, \quad (8.6)$$

der Real- und Imaginärteil sind nur orthogonal zueinander. Abb. 8.6 gibt eine Zusammenfassung der Startgeschwindigkeiten für die ersten sechs Trajektorien für $\xi = 0.5$. In den beiden mittleren Diagrammen sind die Realteile der Startvektoren aufgetragen, links und rechts davon die Imaginärteile. Die Nummer der Trajektorien ist in Klammern angegeben. Als Funktion der Driftenergie ergeben sich Spuren in der durch die Vektoren $\hat{\mathbf{e}}_1$ und $\hat{\mathbf{e}}_2$ aufgespannten Ebene. Die Imaginärteile der Startgeschwindigkeiten in Richtung $\hat{\mathbf{e}}_1$, also in Richtung der großen Komponente, sind etwas größer als ihr Wert bei linearer Polarisierung $\sqrt{2m|E_0|}$. Der Imaginärteil in Richtung $\hat{\mathbf{e}}_2$, der kleinen Komponente des

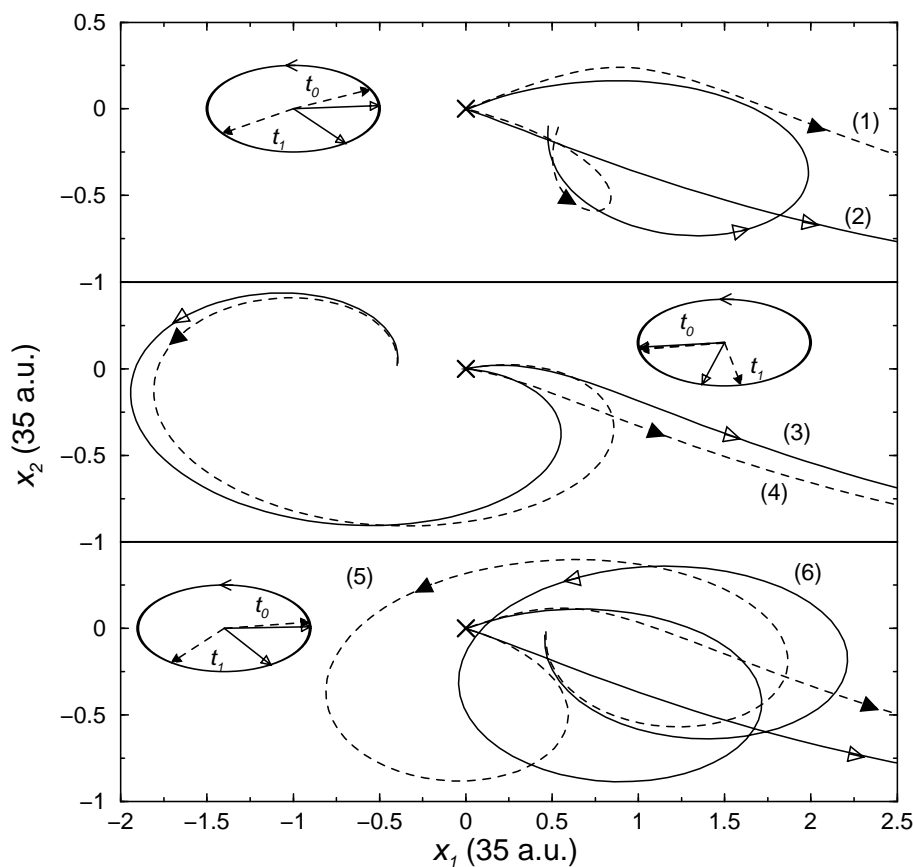


Abbildung 8.7: Realteile der ersten sechs Trajektorien für eine Driftenergie von $5.01 U_P$. Die Position des Atoms ist mit einem Kreuz gekennzeichnet. Die Kraft auf das Elektron durch das Laserfeld $e\mathbf{E}(t)$ ist jeweils für den Realteil des Start- und Rückkehrzeitpunkts eingezeichnet. Der elektrische Feldvektor rotiert gegen den Uhrzeigersinn in der x_1, x_2 -Ebene. Die Pfeilrichtung gibt den zeitlichen Durchlauf der Bahn an.

Feldes, ist damit verglichen klein. Somit verhält sich der Imaginärteil ähnlich dem linear polarisierten Fall. Anders hingegen die Realteile: deren Komponente in Richtung $\hat{\mathbf{e}}_1$ ist vernachlässigbar klein gegenüber der Komponente in Richtung der kleinen Halbachse der Feldellipse.

Dies ist physikalisch sinnvoll. Das Elektron startet weiterhin zu Zeitpunkten, in denen das elektrische Feld groß ist: Einerseits, weil damit das Vektorpotenzial klein ist, so dass sich im SMM ein kleiner Driftimpuls ergibt, das Elektron also zurückkommen kann; andererseits weil die Tunnelwahrscheinlichkeit, die exponentiell von der Feldstärke abhängt, sehr viel größer ist. Senkrecht zur Richtung, in der das Elektron aus dem atomaren Potenzial tunnelt, hat es eine verglichen mit der Tunnelrichtung breite Geschwindigkeitsverteilung [94, 99]. Da das Vektorpotenzial in Richtung der kleinen Komponente des Feldes gerade sein Maximum annimmt, braucht das Elektron eine relativ große Startgeschwindigkeit, um zum Rückkehrzeitpunkt wieder zum Atom zu gelangen. Die Ge-

schwindigkeitsverteilung orthogonal zur Feldrichtung zum Startzeitpunkt ist, orientiert man sich am statischen Feld, annähernd gaußförmig. Dies erklärt die kleinere Rate für Plateauelektronen für zunehmende Elliptizität. Darüberhinaus wird auch die höhere Rate für die 3. und 4. Trajektorie gegenüber dem ersten Paar verständlich. Die Reisezeit der ersten und zweiten Trajektorie ist nur etwas länger als eine halbe Oszillationsdauer des Feldes. Da das Elektron in etwa zum Maximum des Feldes in Richtung der großen Komponente ionisiert wird, zeigt das Feld in Richtung der kleinen Komponente während der gesamten Reisezeit $t_1 - t_0$ immer in dieselbe Richtung. Für eine Reisezeit von etwas mehr als einer Periode des Feldes, wie für Trajektorie 3 und 4, ändert das Feld in Richtung der kleinen Komponente sein Vorzeichen. Damit muss die Startgeschwindigkeit in dieser Richtung für Trajektorie 3 und 4 nicht so groß wie für die ersten beiden Trajektorien sein. Tatsächlich ergeben sich für Trajektorie 3 und 4 die niedrigsten Realteile der Startgeschwindigkeit, siehe Abb. 8.6. Kleine Startgeschwindigkeiten sind aber wegen der exponentiellen Abhängigkeit sehr viel wahrscheinlicher. **Demzufolge ergibt sich eine höhere Rate für die Beiträge der Trajektorien 3 und 4 gegenüber 1 und 2.** Eine längere Reisezeit hat aber auch ein stärkeres Zerlaufen des zum Ionisationszeitpunkt erzeugten Wellenpaketes zur Folge, so dass zu lange Reisezeiten ebensowenig optimal sind.

In Abb. 8.7 ist dies näher veranschaulicht. Es sind die Realteile der ersten sechs komplexen Trajektorien aufgezeichnet, wie sie sich aus den Sattelpunktgleichungen und der Newtonschen Mechanik im Feld des Lasers ergeben, Gl. (6.17, 6.18). Es wurde eine Driftenergie von $5.01 U_P$ gewählt, eine Energie, für die jedes Paar noch im Plateaubereich liegt. Die Trajektorien starten nicht am Atom, wie man aus den Sattelpunktgleichungen zunächst erwarten würde. Dies liegt an der reellen Wahl von t als Bahnparameter. Die Trajektorien sind ab dem Zeitpunkt $t = \text{Re}(t_{0s})$ mit reellen Zeitschritten dargestellt. Der komplexe Startzeitpunkt wird somit nie erreicht. Der Rückkehrzeitpunkt ist jedoch annähernd reell, so dass sich $\mathbf{r}(\text{Re } t_{1s}) \approx 0$ ergibt. Zu den Start- und Rückkehrzeiten ist jeweils das Feld mit eingezeichnet. Das Elektron startet zunächst wegen der nichtverschwindenden Startgeschwindigkeit fast senkrecht zum momentanen elektrischen Feld. Für die ersten beiden Trajektorien unterscheiden sich die Rückkehrzeiten um $\Delta t = 0.26T$. Für dieses Paar ist die gewählte Energie von $5.01 U_P$ noch sehr weit vom Cutoff bei $8.92 U_P$ entfernt. Das Feld bei der Rückkehr zeigt hier in unterschiedliche Richtungen. Für Trajektorie 3 und 4 sind die Startzeiten fast identisch und auch die Rückkehrzeiten unterscheiden sich nur um $0.07 T$. Die Zeitdifferenz zwischen Ionisation und Rückstreuung liegt für Trajektorie 3 und 4 bereits bei $1.2 T$. Trajektorie 5 und 6 mit einer nochmals längeren Reisezeit von $1.6 T$ bzw. $1.8 T$ unterscheiden sich bereits wieder stärker voneinander.

Der Driftimpuls nach der Rückstreuung liegt für alle dargestellten Trajektorien in Richtung \hat{e}_1 . Für lineare Polarisierung erfordert das für die Elektronen zum Rückkehrzeitpunkt eine totale Rückstreuung; nicht so bei elliptischer Polarisierung wie die Abbildung zeigt: Die Geschwindigkeiten vor und nach der elastischen Streuung zeigen in etwas unterschiedliche Richtungen.

Wie in [67] gezeigt wurde, ergeben sich für elliptische Polarisierung für die HHG bis zum

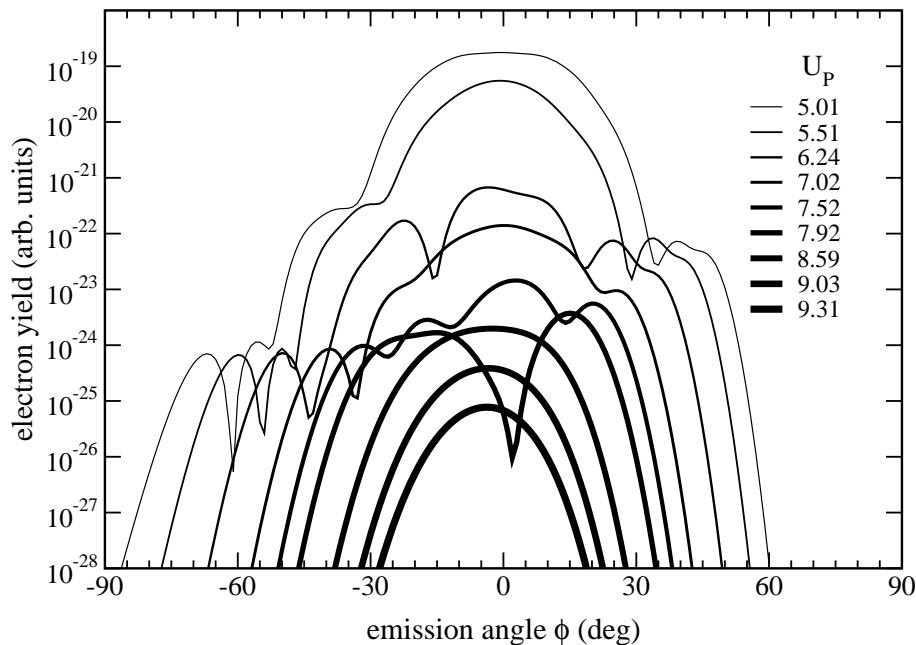


Abbildung 8.8: Winkelverteilungen für eine Elliptizität von $\xi = 0.5$ für verschiedene Elektronenergien. Die Parameter sind wie in Abb. 8.1 gewählt. Ein Winkel von $\phi = 0^\circ$ entspricht einer Emission des Elektrons in Richtung der großen Komponente des Feldes.

Rückkehrzeitpunkt t_1 ganz ähnliche komplexe Trajektorien wie für die HATI. In [67] wurde zur Modellierung der HHG das Lewenstein Modell [50, 66] benutzt. Dies illustriert sehr anschaulich die Ähnlichkeit zwischen HHG und HATI.

8.4 Winkelverteilungen

In allen bisher betrachteten Spektren für elliptische Polarisation wurde als Beobachtungsrichtung die Orientierung der großen Komponente des elektrischen Feldes gewählt. Bei linearer Polarisation findet man in Richtung der Laserpolarisation die höchsten Energien. Bei elliptischer Polarisation ist zunächst nicht klar, in welcher Richtung das Elektron nach der Rückstreuung die größte Energie aufnehmen kann. Für nicht allzu große Elliptizitäten ist jedoch zu erwarten, dass die Emissionsrichtung, in der die größten Energien auftreten, weitgehend mit der großen Halbachse der Feldellipse übereinstimmt. Für den Grenzfall zirkularer Polarisation ergibt sich ein in der Polarisationsebene isotropes Spektrum, das identisch mit dem Spektrum der direkten Elektronen ist. Der Cutoff liegt bei $2U_P$.

Für die in Abb. 8.1 gezeigten Spektren in Richtung der großen Komponente der Feldellipse und eine Elliptizität $\xi = 0.5$ zeigt Abb. 8.8 Winkelverteilungen für verschiedene Elektronenergien. Im Unterschied zur linearen Polarisation, in der die Spektren rotations-symmetrisch um die Polarisation des Laserfeldes sind, zeigen die Elektronverteilungen

bei elliptischer Polarisation nur eine Inversionssymmetrie und eine Spiegelsymmetrie an der Polarisationssebene [100]. Für eine Beobachtung in der Polarisationssebene ist damit eine Darstellung der Winkelverteilungen über ein Intervall von 180° ausreichend.

Beginnend am Cutoff bei $8.59 U_P$ nimmt die Rate sehr schnell ab. Das Maximum der Verteilung liegt konstant bei einem Winkel von ca. -5° . Für niedrigere Energien nimmt die Rate bis etwa $7.5U_P$ nur verhältnismäßig langsam zu. Die Verteilungen verbreitern sich hauptsächlich, und es bilden sich erste Interferenzstrukturen aus. Die erste auftretende Interferenz ist wie bei linearer Polarisation am stärksten ausgeprägt (bei einer Energie von $7.92U_P$). Genau bei dieser Energie ist auch der größte Einbruch im Spektrum bei 0° (in Abb. 8.2) zu sehen. Zufälligerweise ist die destruktive Interferenz gerade bei 0° am deutlichsten zu sehen. In der Entwicklung nach Sattelpunkten, vgl. die beiden oberen Diagramme in Abb. 8.9, ist dies gut zu erkennen. Bei $8.59 U_P$ ist das Trajektorienpaar mit der kürzesten Reisezeit ausreichend. Die Spitzen bei 10° und -20° markieren den Übergang von einer zu zwei Trajektorien: Im Bereich -20° bis 10° tragen beide Trajektorien bei, außerhalb nur eine. Die jeweils fortgelassene Lösung steigt exponentiell an. Man findet das Cutoff-Verhalten aus den Spektren in den Winkelverteilungen wieder. Bei einer Energie von $7.92 U_P$ wird die Größenordnung der Winkelverteilung noch sehr gut von Trajektorie 1 und 2 wiedergegeben. Wie bereits aus den SPA der Spektren ersichtlich ist, interferieren die ersten beiden Trajektorien kaum miteinander. Das ausgeprägte Interferenzminimum kommt ausschließlich durch Berücksichtigung längerer Trajektorien zustande. Aus den unteren beiden Diagrammen für niedrigere Energien wird deutlich, dass die schwache Interferenz der ersten beiden Trajektorien nicht für alle Winkel auftritt. In Richtung negativer Winkel zeigen sich bei kleineren Energien immer ausgeprägtere Interferenzstrukturen, die Beiträge von Trajektorie 1 und 2 werden vergleichbar groß. Zu positiven Winkeln hin verschieben sich die Gewichte weiter zu einer Trajektorie, erst kurz vor dem Cutoff werden die Beiträge wieder miteinander vergleichbar. Oberhalb des Cutoffs divergiert die irreguläre Trajektorie sehr schnell, gleichzeitig fällt die reguläre schnell ab. Als Folge davon ist der Abfall nach dem Cutoff bei positiven Winkeln steiler als bei negativen Winkeln. Die Beiträge der Trajektorie 3 und 4 zeigen kein derartiges Verhalten. Ihre Verteilung ist nur etwas zu negativen Winkeln versetzt. Für die Trajektorien 5 und 6 zeigt sich darüberhinaus im Plateau eine unsymmetrische Interferenzstruktur. Genauso wie im Spektrum lässt sich auch in den Winkelverteilungen für einen gegebenen Emissionswinkel und eine gegebene Energie im wesentlichen ein Trajektorienpaar oder gar eine Trajektorie als bestimmend identifizieren.

Ein experimenteller Nachweis dieser für elliptische Polarisation auftretenden Stufen steht noch aus. Allerdings zeigen erste Experimente starke Indizien dafür. Damit wäre der denkbar direkteste Nachweis der in diesem Kapitel ausführlich behandelten Quantentrajektorien erbracht.

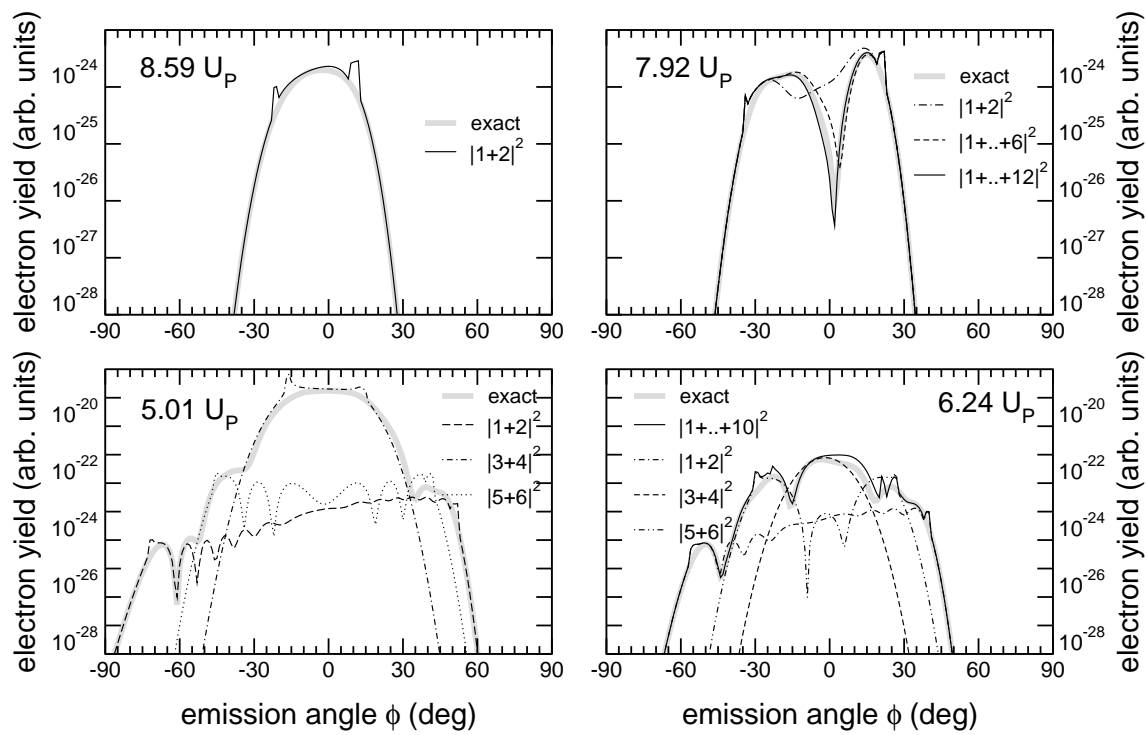


Abbildung 8.9: Sattelpunktsapproximation der Winkelverteilungen für eine Elliptizität von $\xi = 0.5$. Es sind einige ausgewählte Elektronenergien aus Abb. 8.8 gezeigt.

Kapitel 9

Vergleich mit Experimenten

9.1 Interferenz von Quantentrajektorien

In diesem Abschnitt werden neue experimentelle Ergebnisse für elliptische Polarisati-on aufgegriffen und qualitativ mit Hilfe der verallgemeinerten KFR-Theorie verständlich gemacht. Paulus et al. haben systematisch die Winkelverteilungen für ATI-Elektronen für verschiedene Elliptizitäten untersucht. Dazu wurden in verschiedenen Richtungen in der Ebene der Laserpolarisation in Schritten von etwa 2.5° die Energieverteilungen der Photoelektronen mittels Flugzeitspektroskopie (TOF) bestimmt. Die Experimente wurden mit zwei verschiedenen Lasersystemen mit Wellenlängen von 630 und 800 nm und einer Pulsdauer von ca. 50 fs durchgeführt. Zunächst wird das Experiment bei 630nm diskutiert.

Der Hamiltonoperator für ein Elektron in einem isotropen atomaren Potenzial und einem linear polarisierten Laserfeld besitzt zylindrische Symmetrie um die Polarisationsrichtung des Lasers. Die Winkelverteilungen der Photoelektronen sind deshalb symmetrisch um $\phi = 0^\circ$ verteilt. Der Winkel ϕ wird zwischen Detektor und Polarisationsrichtung des Feldes gemessen. Abb. 9.1 zeigt Winkelverteilungen von Photoelektronen an Xenon. Am Beginn des Plateaus für Energien größer als $13 \hbar\omega$ findet man die bereits früher beobachteten side-lobes [101, 21, 102]. Für zunehmende Energie richten sich die side-lobes immer stärker in Richtung der Polarisati-on aus und verschwinden schließlich. Dadurch werden die Winkelverteilungen mit zunehmender Energie schmaler. Bei etwa $19 \hbar\omega$ ist auch in Richtung der Laserpolarisation der Cutoff erreicht und die Zählrate fällt stark ab. Photoelektronen mit niedriger Energie besitzen zunächst eine breite Verteilung, die sich bis zum Beginn des Plateaus immer stärker einschnürt. Dabei fällt die Zählrate exponentiell um zwei bis drei Größenordnungen ab und bleibt dann bis zum Ende des Plateaus weitgehend konstant.

Bei elliptischer Polarisati-on findet man sehr viel kompliziertere Winkelverteilungen mit einer niedrigeren Symmetrie. Für den direkten Teil des ATI-Spektrums wurde dies bereits 1987 von Bashkansky et al. beschrieben [100, 103]. Allgemein lässt sich zeigen [104],

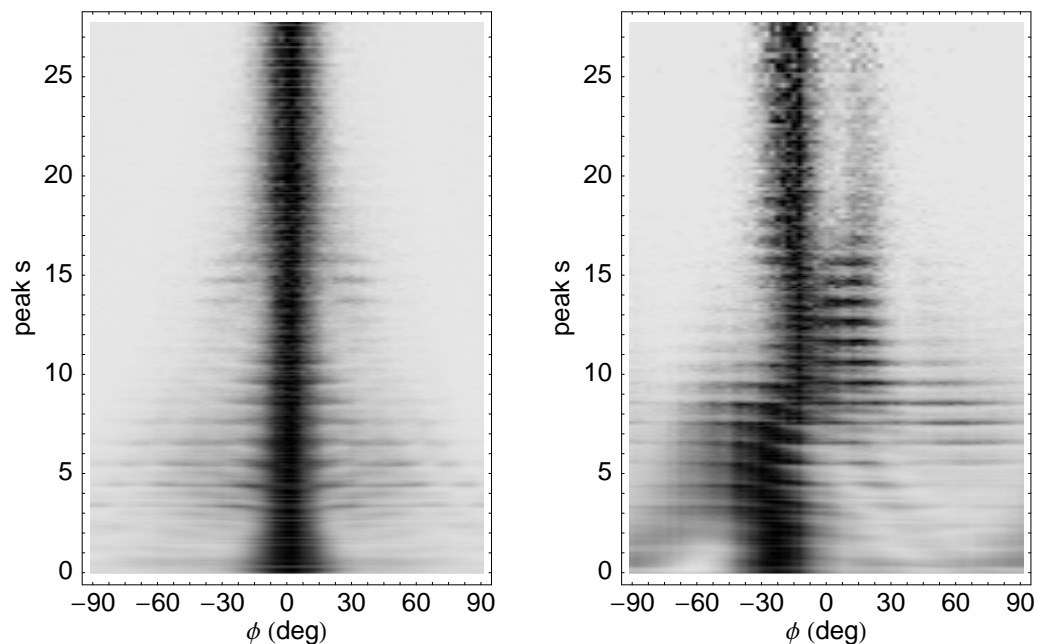


Abbildung 9.1: Dichteplots energieaufgelöster Winkelverteilungen für Xenon. Experimentelles Ergebnis von Paulus et al., für eine Laserpulsdauer von 50 fs und einer Spitzenintensität von 10^{14} W/cm² bei einer Wellenlänge von 630 nm. Links sind die Messungen für linear polarisiertes Laserfeld dargestellt; rechts für eine Elliptizität von $\xi = 0.36$. Der Winkel ϕ wird in der Polarisations Ebene gemessen; $\phi = 0^\circ$ entspricht einer Emission der Elektronen in Richtung der großen Halbachse der Polarisationsellipse, für lineare Polarisation einer Emission in Richtung der Laserpolarisation. Die vertikale Skala gibt die Energie der Elektronen in Vielfachen der Photonenergie $\hbar\omega$ an. Die Graustufen sind proportional zu den den gezählten Elektronen normiert innerhalb eines Streifens von -90° bis 90° und einem Energieintervall von einem ATI-peak. Dabei entspricht eine dunkle Schattierung einer hohen Elektronenzahl. Die Graustufen sind damit nicht entlang der vertikalen Energieskala interpretierbar. Der Cutoff für $\phi = 0$ liegt bei ca. $s = 19$.

dass im Falle elliptischer Polarisation die Winkelverteilungen der ionisierter Elektronen symmetrisch bezüglich einer Inversion und einer Spiegelung an der Polarisations Ebene sind. Für die gezählten Elektronen M in der Polarisations Ebene, die hier untersucht werden, bedeutet dies

$$M_s(\phi - 90^\circ) = M_s(\phi + 90^\circ). \quad (9.1)$$

Der Winkel ϕ wird dazu bei elliptischer Polarisation in der Polarisations Ebene relativ zur großen Komponente der Feldellipse gemessen. Wegen der Symmetrien ist eine Darstellung eines Winkelbereichs von 180° ausreichend. Bereits bei kleinen Elliptizitäten (in der Abb. ist die Elliptizität $\xi = 0.36$) besitzen die Verteilungen eine Asymmetrie um $\phi = 0^\circ$. Für Elektronen niedriger Energie ist die Asymmetrie um $\phi = 0^\circ$ sehr viel stärker als für die hochenergetischen. Man findet eine Unterdrückung (dodging) der Emission

in Richtung der großen Komponente des Laserfeldes [105, 68]. Im Vergleich zu linearer Polarisation ist die Hauptemissionsrichtung der Elektronen um ca. -30° versetzt. Für ansteigende Energie wird die Verteilung wie bei linearer Polarisation enger und richtet sich zwischen 8 und 9 $\hbar\omega$ abrupt in Richtung der großen Komponente des Feldes aus. Gleichzeitig bilden sich zwei parallele Streifen bei $\pm 15^\circ$, die bis weit über $10 U_P$ ($s \approx 19$) mit ausreichendem Kontrast auflösbar sind. Im Vergleich zur linearen Polarisation wird die Verteilung innerhalb des Rückstreubereichs für zunehmende Energie nicht schmaler:

Für Energien bis über $10 U_P$ sind zwei parallele Plateaus auflösbar.

Dasselbe qualitative Verhalten findet sich auch in den Experimenten bei 800 nm Abb. 9.5. Die Repetitionsrate bei diesem Lasersystem ist höher als bei dem 630 nm Experiment, so dass in einer vertretbaren Messzeit wesentlich mehr Elektronen registriert werden konnten. Der hochenergetische Teil des Spektrums zeigt wieder ein zweites Plateau bei positiven Winkeln, das durch ein deutliches Minimum vom ersten Plateau bei -10° getrennt ist. Zwischen 30° und 60° und Energien um 25 eV ist sogar ein weiteres Minimum zu erkennen. Abb. 9.6 zeigt die gleichen Daten in einem 3-D Plot, der einen Vergleich der Zählraten für die unterschiedlichen Elektronenergien zulässt. Daraus ist zu erkennen, dass das Plateau zwischen 0° und -15° stärker ausgeprägt ist als das dazu parallele bei positiven Winkeln. Es sei auf die logarithmische Skala der Elektronenzahl im Unterschied zu den linearen Darstellungen der Dichteplots hingewiesen. Ähnliche Ergebnisse, wie sie hier exemplarisch für Xenon und einer Elliptizität $\xi = 0.36$ dargestellt wurden, finden sich bei allen Edelgasen. Es wurden verschiedene Elliptizitäten bis hin zu zirkularer Polarisation untersucht.

Die Winkelverteilungen bei linearer Polarisation sind qualitativ bereits sehr gut verstanden. Die side-lobes am Beginn des Plateaus erklären sich durch die Winkelverteilungen der rückgestreuten Elektronen.

Anders bei elliptischer Polarisation: Für die niederenergetischen direkten Elektronen ist die KFR-Theorie nicht ausreichend. Sie liefert eine zusätzliche Symmetrie um $\phi = 0^\circ$. Approximiert man den Streuzustand nicht durch eine ebene Volkov-Welle, wie bei KFR, sondern berücksichtigt das atomare Potenzial, wird diese zusätzliche Symmetrie gebrochen und die Ergebnisse besitzen die gleiche Symmetrie wie die Experimente [106, 107, 108]. Vollkommen unverständlich erscheint jedoch der höherenergetische Teil des Spektrums. Für die rückgestreuten Elektronen erwartet man nach der Analyse bei höherer Intensität im letzten Kapitel eine kleine Verschiebung der Hauptemissionsrichtung der Elektronen von $\phi = 0^\circ$ zusammen mit leicht asymmetrischen weniger ausgeprägten side-lobes. Jenseits des Cutoffs, der bei elliptischer Polarisation bei geringeren Elektronenergien verglichen mit linearer Polarisation liegt, sollten keine Strukturen erkennbar sein. Im Experiment zeigen sich dagegen zwei parallele Plateaus, die bis über den $10 U_P$ Cutoff bei linearer Polarisation reichen.

Im Rahmen der verallgemeinerten KFR-Theorie gelingt es, diese parallelen Strukturen für hohe Elektronenergien auf die Interferenz zwischen direkten und rückgestreuten Elektronen zurückzuführen [109]. Das wird im Folgenden gezeigt.

Das verallgemeinerte KFR-Ionisationsmatrixelement kann, wie in Abschnitt 4.2 ausgeführt,

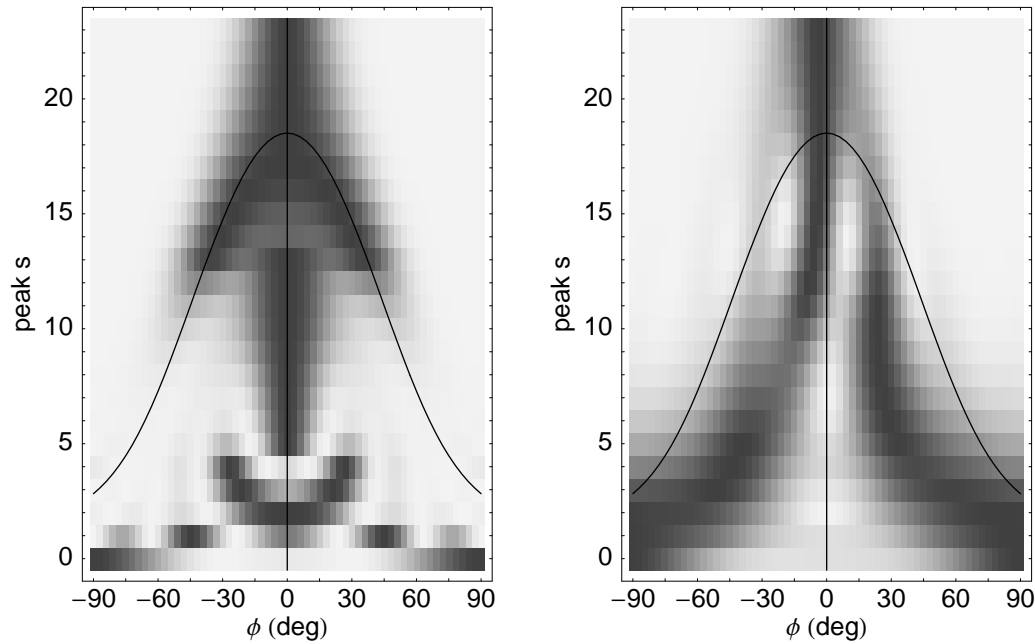


Abbildung 9.2: Berechnete Winkelverteilungen für lineare (links) und elliptische Polarisierung (rechts) für Elektronenergien bis $23 \hbar\omega$. Die Elliptizität ist $\xi = 0.5$, die Laserfrequenz $\omega = 0.0724$ a.u. und das ponderomotorische Potenzial ist $U_P = 1.9\hbar\omega$. Die Bindungsenergie E_0 des ZRP ist mit 0.436 a.u. etwas niedriger als die des am schwächsten gebundenen Elektrons in Xenon gewählt. Die vertikale Achse gibt die Energie der Elektronen in Vielfachen der Photonenergie an. Die eingezeichnete Linie gibt den klassischen Cutoff der rückgestreuten Elektronen nach dem simple man's Modell (SMM) für lineare Polarisierung an.

als Summe

$$M_{\mathbf{p}} = M_{\mathbf{p}}^{(0)} + M_{\mathbf{p}}^{(1)} \quad (9.2)$$

von direkten und rückgestreuten Elektronen ausgedrückt werden. Der erste Term beschreibt Elektronen, die durch Wechselwirkung mit dem Laserfeld aus einem ungestörten Bindungszustand des Atoms mit Bindungsenergie E_0 direkt in einen Volkovzustand mit Driftimpuls \mathbf{p} gelangen. Der zweite Term berücksichtigt nach einer Ionisation genau eine Streuung am Potenzial. Durch eine Rückstreuung werden so bei linearer Polarisierung Elektronenergien bis zu $10U_P$ möglich.

Sowohl die direkten als auch die rückgestreuten Elektronen können, wie in Kapitel 5 und 6 gezeigt, in Termen von Quantentrajektorien dargestellt werden. Dies sei hier kurz zusammengefasst, für eine detaillierte Betrachtung wird auf die früheren Abschnitte verwiesen. Die beiden Matrixelemente können in Sattelpunktsapproximation als

$$M_{\mathbf{p}}^{(0)} \sim \sum_{s=1,2} (\partial_t^2 S_{\mathbf{p},s}^{(0)})^{-1/2} \exp [iS_{\mathbf{p}}^{(0)}(t_s)] \quad (9.3)$$

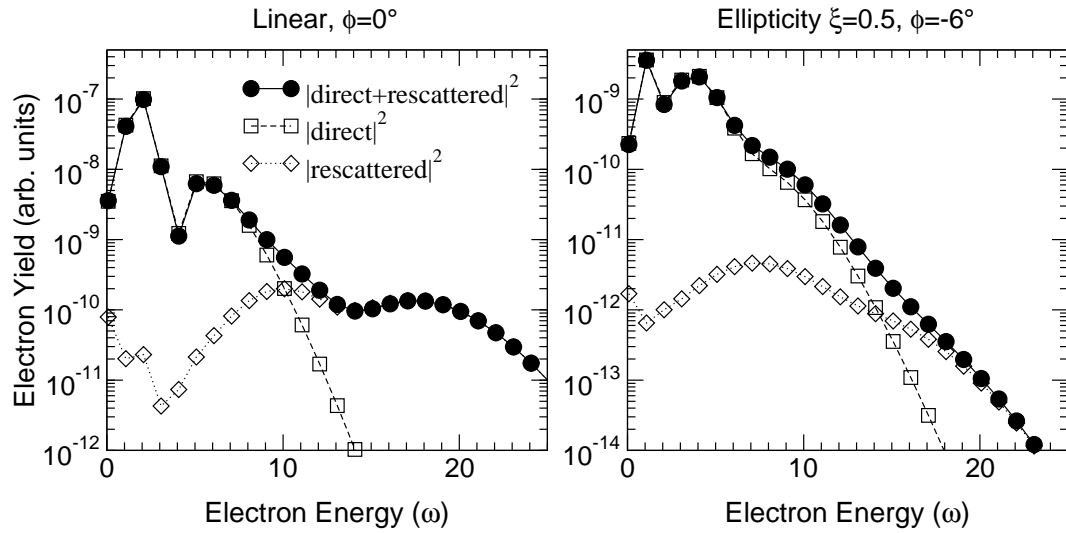


Abbildung 9.3: Spektrum für lineare Polarisation und elliptische Polarisation bei festem Winkel ϕ für Parameter wie in Abb. 9.2.

bzw.

$$M_{\mathbf{p}}^{(1)} \sim \sum_{s=1}^{\infty} (\det \partial_{\mathbf{q}}^2 S_{\mathbf{p},s}^{(1)})^{-1/2} \exp [iS_{\mathbf{p}}^{(1)}(t_{0s}, t_{1s}, \mathbf{k}_s)] \quad (9.4)$$

geschrieben werden. Der Summationsindex s läuft über alle Sattelpunkte, die jeweils eine Trajektorie bestimmen. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein gegebener Driftimpuls gemessen wird, ergibt sich aus dem Absolutquadrat des Matrixelements

$$|M_{\mathbf{p}}|^2 = |M_{\mathbf{p}}^{(0)} + M_{\mathbf{p}}^{(1)}|^2. \quad (9.5)$$

Für die direkten Elektronen existieren für alle Energien höchstens zwei interferierende Quantentrajektorien. Sie bestimmen das Spektrum für niedrige Energien. Für die rückgestreuten Elektronen gibt es im Prinzip unendlich viele Trajektorien. Jeweils zwei Trajektorien mit vergleichbarer Reisezeit bilden ein Paar, dem ein charakteristischer Cutoff gemeinsam ist, jenseits dessen nur eine Trajektorie eines Paares in der Summe berücksichtigt werden darf. Da die unterschiedlichen Paare für längere Reisezeiten $t_{1s} - t_{0s}$ niedrigere Cutoffenergien und -winkel besitzen, trägt nach dem Cutoff mit der höchsten Energie praktisch nur mehr eine Trajektorie bei. Somit treten keine Interferenzen mehr auf. Die direkten Trajektorien besitzen bei elliptischer Polarisation im Unterschied zu linearer Polarisation ebenfalls einen Cutoff. Dies ist in Anhang B eingehend diskutiert. Es gibt höchstens zwei gleich wichtige Beiträge. Diese nehmen jedoch ab einer Energie von $2 U_P$ exponentiell ab. Die gezeigten theoretischen Ergebnisse in diesem Abschnitt beruhen ausschließlich auf der numerischen Auswertung von Gl. (4.13). Diese erlaubt bereits die Unterscheidung von direkten und rückgestreuten Elektronen. Die Trajektorienanalyse liefert die anschauliche Interpretation.

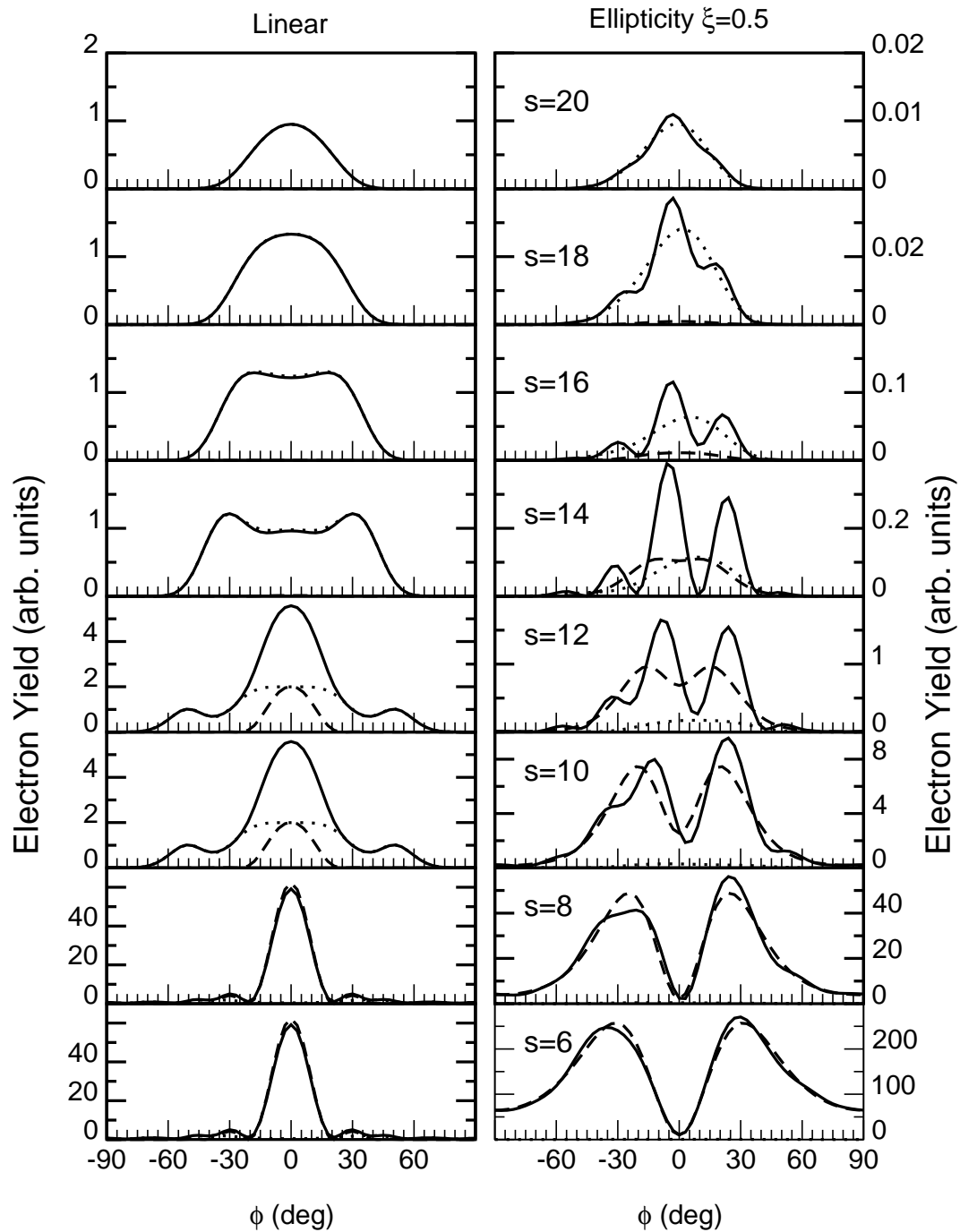


Abbildung 9.4: Vergleich zwischen linearer und elliptischer Polarisation für einige ATI-Peaks. Die Raten für die direkten (gestrichelt) und die rückgestreuten (gepunktet) Elektronen sind separat dargestellt. Die durchgezogene Linie entspricht der Rate die sich aus der Interferenz beider Terme (Gl. (9.5)) ergibt. Die Parameter sind wie in Abb. 9.2 gewählt.

In Abb. 9.2 sind berechnete Winkelverteilung in gleicher Weise wie die experimentellen Daten in Abb. 9.1 dargestellt. Zur besseren Orientierung ist der klassische Cutoff des simple man's Modell (SMM) für lineare Polarisation durch eine Linie sowohl für die Verteilungen bei linearer und elliptischer Polarisation angedeutet. Dazu sei auf die Behandlung des SMM in Abschnitt 6.2 und insbesondere auf Abb. 7.8 verwiesen. In Abb. 9.3 ist jeweils ein Spektrum in einer ausgewählten Richtung sowohl für lineare als auch elliptische Polarisation gezeigt.

Für lineare Polarisation ergeben sich symmetrische Winkelverteilungen um die Polarisationsrichtung. Außerhalb der klassisch bestimmaren Cutoffwinkel nach Abschnitt 7.2 Gl. (7.5), treten wie erwartet keine Interferenzen mehr auf. In Kapitel 7 ist dies ausführlich für eine höhere Intensität diskutiert. Für steigende Intensität treten immer mehr Interferenzringe im Plateaubereich auf. Die letzte Interferenz kurz vor dem Cutoff ist am stärksten ausgeprägt. Bei der hier sehr viel niedrigeren Intensität ist nur eine destruktive Interferenz im Plateau vorhanden. Es sei in diesem Zusammenhang auch auf den in Abb. 4.1 angegebenen Vergleich der verallgemeinerten KFR-Theorie mit numerischen Simulationen für Wasserstoff [91] hingewiesen. Die side-lobes zeigen sich dort als das letzte Interferenzmaximum bei einem Emissionswinkel von 30° und einer Energie von $8 U_P$. Die Elektronen in Richtung der Laserpolarisation besitzen bei dieser Energie gerade ein Interferenzminimum.

Für lineare Polarisation bestimmen ab dem 13. ATI-peak ausschließlich die rückgestreuten Elektronen das Spektrum. Für Winkel ungleich Null beginnt der Rückstreubereich bereits bei niedrigeren Energien. Darunter sind die direkten Elektronen bestimmend.

Auch für elliptische Polarisation ist für kleine Energien das direkte Matrixelement $M_{\mathbf{p}}^{(0)}$ wesentlich größer als $M_{\mathbf{p}}^{(1)}$. Das direkte KFR-Matrixelement besitzt zusätzlich zur Inversionssymmetrie eine Spiegelsymmetrie um die beiden Hauptachsen der Polarisationsellipse ($\phi = 0^\circ, \pm 90^\circ$) [100]. Die höhere Symmetrie der Winkelverteilungen im direkten Matrixelement tritt wegen der Approximation des Endzustands durch einen Volkovzustand auf und ist kein Artefakt des hier benutzten Zero-Range-Potenzials. Berücksichtigt man im Streuzustand das Bindungspotenzial des Atoms, so verschwindet diese zusätzliche Symmetrie. Von verschiedenen Autoren wurde deshalb im KFR-Matrixelement der Streuzustand anstatt durch einen reinen Volkovzustand durch einen Coulomb-Volkovzustand approximiert [108]. Die Bedeutung der Approximation ist jedoch nicht klar und führt auf Schwierigkeiten. Im verallgemeinerten KFR-Matrixelement wird das Bindungspotenzial im Streuzustand in erster Ordnung berücksichtigt. Vertauscht man in Gl. (4.12) die beiden Zeitintegrationen kann das verallgemeinerte KFR-Matrixelement als

$$M_{\mathbf{p}}^{(0,1)} = -\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt_0 \langle \psi_{\mathbf{p}}(t_0) | V | \phi_{E_0}(t_0) \rangle \quad (9.6)$$

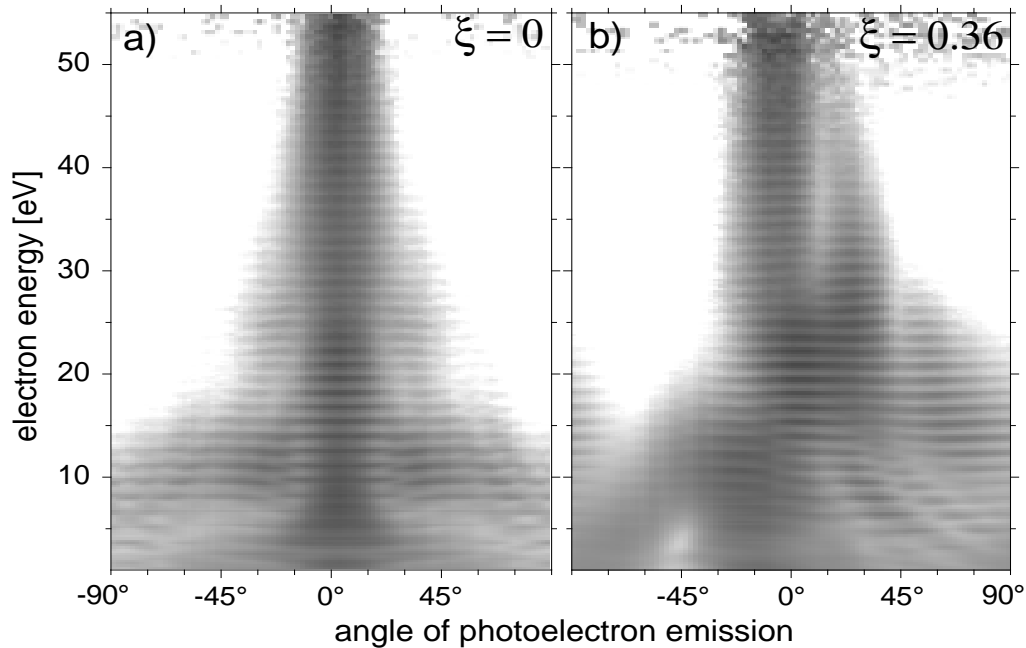


Abbildung 9.5: Dichteplots energieaufgelöster Winkelverteilungen für Xenon. Experimentelles Ergebnis von Paulus et al. [109], für eine Laserpulsdauer von unter 50 fs und einer Spitzenintensität von $7.7 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ bei einer Wellenlänge von 800 nm. a) linear polarisiertes Laserfeld, b) elliptisch polarisiertes Laserfeld mit einer Elliptizität von $\xi = 0.36$. Ein Winkel von 0° entspricht einer Emission des Elektronen in Richtung der großen Halbachse der Polarisationsellipse. Die Winkelverteilung sind für alle Elektronenergien normiert. Eine hohe Elektronenzahl entspricht dunklen Schattierungen.

abnehmend beschrieben werden. Das ist formal identisch mit dem einfachen KFR-Matrixelement. Der Endzustand ist nun aber kein Volkovzustand, sondern durch

$$\langle \psi_{\mathbf{p}}(t_0) | = -\frac{i}{\hbar} \int_{t_0}^{\infty} dt_1 \langle \psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t_1) | V U^{(V)}(t_1, t_0) \quad (9.7)$$

gegeben. Im Endzustand ist in erster Ordnung das Potenzial berücksichtigt. Damit werden die Winkelverteilungen asymmetrisch. Die Asymmetrie zeigt sich jedoch aufgrund des kurzreichweitigen Potenzials erst für höhere Elektronenergien. In Abb. 9.2 ist eine merkliche Asymmetrie ab einer Energie von $9 \hbar\omega$ vorhanden.

Ab einer Energie von $10 \hbar\omega$ zeigen sich qualitativ die gleichen parallelen Strukturen wie in den Experimenten. Die Aufspaltung in zwei Plateaus hält bis $10 U_P$ an.

Das Spektrum in Abb. 9.3 für elliptische Polarisation gibt einen ersten Hinweis auf die Ursache. Die Beiträge der direkten und rückgestreuten Elektronen sind über einen weiten Energiebereich vergleichbar groß. Dies erklärt sich sowohl aus der stärkeren Unterdrückung des Plateaus gegenüber den direkten Elektronen, wie dessen Neigung, verglichen mit linearer Polarisation. Für lineare Polarisation ist das Plateau flach. Die ersten beiden Trajektorien der SPA leisten den wesentlichen Beitrag. In Richtung der großen

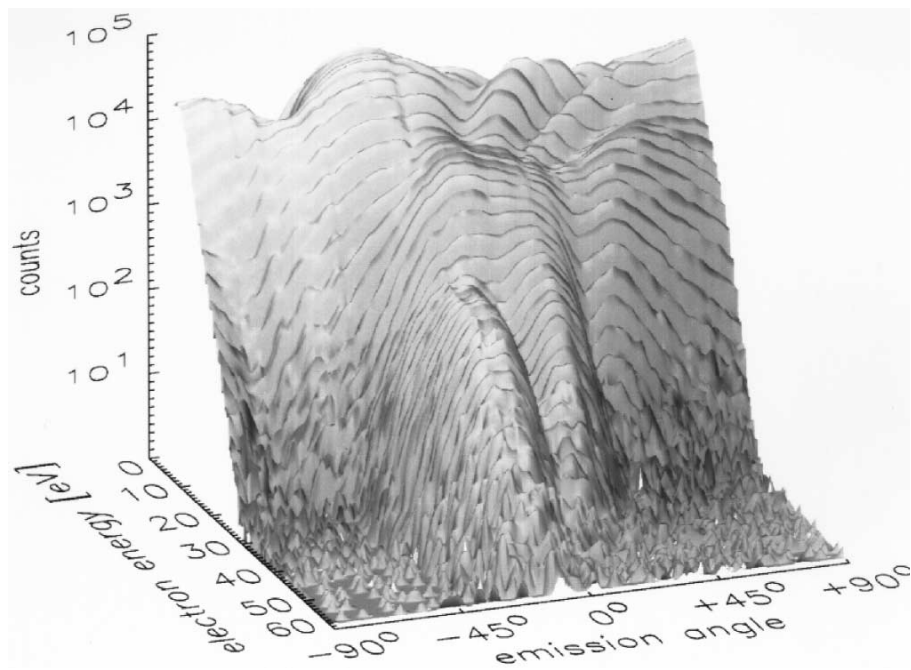


Abbildung 9.6: 3D-Plot der Daten aus Abb. 9.5, der einen Vergleich zwischen Zählraten unterschiedlicher Energie erlaubt. Die Elektronenzahl ist im Unterschied zur linearen Skalierung von Abb. 9.5 logarithmisch aufgetragen.

Komponente der Feldellipse tragen für Energien unter etwa $6 U_P$ die Trajektorien 3 und 4 sehr viel stärker bei als Trajektorie 1 und 2. Deren Beitrag ist für Energien über $6U_P$ bestimmend. Damit ergibt sich eine für zunehmende Energie leicht Rate. In Kapitel 8 ist dies ausführlicher behandelt.

Abb. 9.4 zeigt Winkelverteilungen für jeden zweiten ATI-peak für höhere Energien. Zusätzlich zur Rate des gesamten Matrixelements sind die Raten für die direkten und rückgestreuten Elektronen separat angegeben. Bei elliptischer Polarisation ist der Beitrag der rückgestreuten Elektronen, der ab $s=12$ erkennbar wird, vollkommen unstrukturiert. Der direkte Term besitzt bis zu $s=12$ ein immer schwächer ausgeprägtes Minimum bei 0° . Das dodging wird für höhere Energien schwächer, da sich der Ionisationszeitpunkt vom Maximum des Feldes wegbewegt. Ab $s=14$ besitzen die Winkelverteilungen der direkte Elektronen kein Minimum mehr. **Die Summe aus direkten und rückgestreuten Beiträgen interferiert zwischen $s=12$ bis $s=18$ sehr stark und bildet weitgehend energieunabhängige Maxima und Minima mit hohem Kontrast aus.** Die Lage der Maxima und Minima verschiebt sich für niedrigere Intensitäten nur sehr schwach, so dass die Interferenz auch nach der experimentell immer vorhandenen Mittelung über das Volumen des Laserfokus bestehen bleibt.

In Abb. 9.7 sind berechnete Winkelverteilungen für die Laserparameter aus Abb. 9.5 sowohl für lineare und elliptische Polarisation dargestellt. Es zeigen sich im Rückstrebereich ebenso parallele Strukturen bei elliptischer Polarisation. Dies kann auch hier

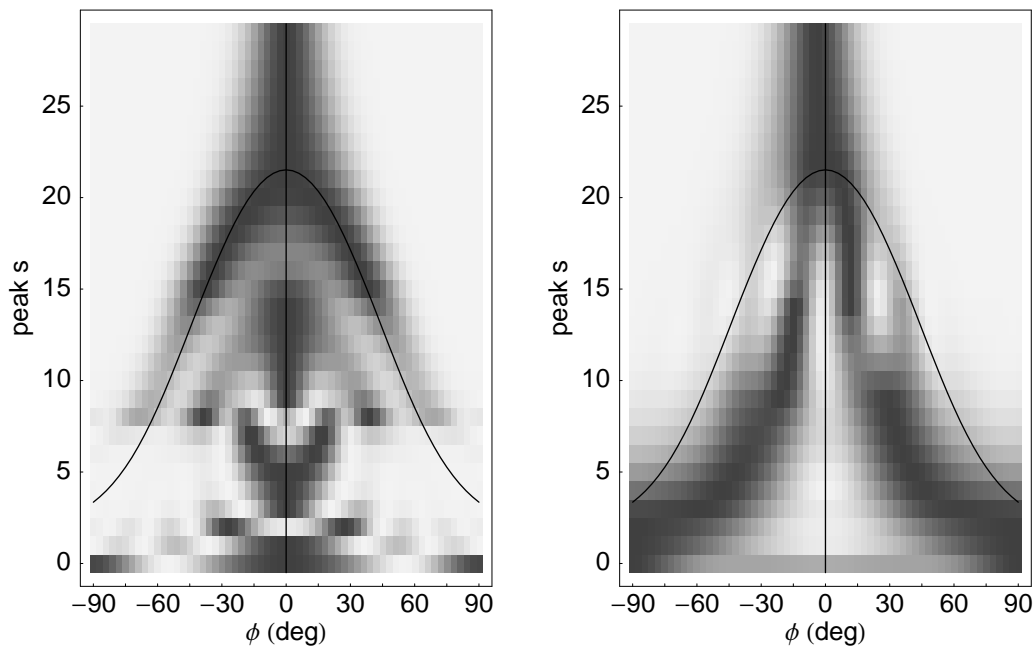


Abbildung 9.7: Dichteplots der Winkelverteilungen für lineare (links) und elliptische Polarisation (rechts). Die Elliptizität ist $\xi = 0.48$, die Frequenz $\omega = 0.057$ a.u., das ponderomotorische Potenzial ist $U_P = 2.2\hbar\omega$ und die Bindungsenergie ist $E_0 = -0.436$. Die vertikale Achse gibt die Energie der Elektronen in Vielfachen der Photonenergie an. Die eingezeichnete Linie gibt den klassischen Cutoff der rückgestreuten Elektronen nach dem simple man's Modell (SMM) für lineare Polarisation an.

auf die Interferenz von direkten und rückgestreuten Elektronen zurückgeführt werden. In Abb. 9.8 sind für einige ATI-Peaks berechnete und gemessene Winkelverteilungen gegenübergestellt. Für $s=17$ ist exemplarisch der Beitrag der direkten und der rückgestreuten Elektronen getrennt aufgeführt. Nur die Interferenz aus beiden Termen führt auf das charakteristische doppelte ATI-Plateau bei hohen ATI-Peaks.

Eine numerische Simulation der Einteilchen-3D-Schrödinger-Gleichung für einen derartigen Fall ist bislang nicht gelungen. Die elliptische Polarisation erfordert ein sehr großes Gitter in der Polarisationsebene des Feldes, was eine numerische Integration sehr erschwert. Ein vielversprechender Ansatz dazu wird von Muller unternommen [38]. Die bisher einzige vorhandene Erklärung der zweiten Plateaustruktur bei elliptischer Polarisation ist die hier ausgeführte. In einer numerischen Simulation ist die identifizierte Ursache — eine Interferenz zwischen direkten und rückgestreuten Elektronen — darüberhinaus schwer auszumachen, da sich beide Prozesse nur sehr schwer voneinander trennen lassen. In der verallgemeinerten KFR-Theorie ergeben sich die beiden Terme dagegen ganz selbstverständlich. Das Konzept von direkten und rückgestreuten Elektronen ergibt sich erst daraus.

Zusammen mit den Interferenzen der direkten Trajektorien bei elliptischer Polarisation [68] und den Interferenzen der rückgestreuten Trajektorien, die bei linearer Polarisation

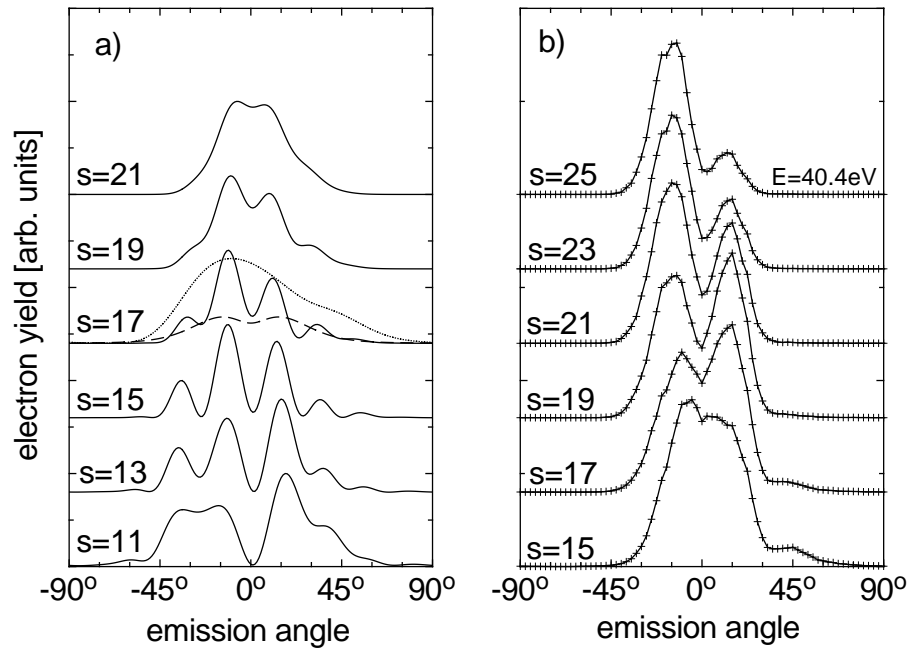


Abbildung 9.8: Vergleich zwischen Theorie a) und Experiment b) für einige ATI-Peaks aus Abb 9.7 und Abb. 9.5. Für die Rechnung wurden etwas andere Parameter benutzt; eine Elliptizität $\xi = 0.48$ und ein Laserintensität von $5.7 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$. Der einzige Parameter des ZRP, die Bindungsenergie E_0 , wurde zu 0.436 a.u. angenommen, etwas unterhalb des am schwächsten gebundenen Elektrons in Xenon (0.464 a.u.).

die experimentell gefundenen side-lobes erklären [48, 61], sind nun auch Interferenzen zwischen direkten und rückgestreuten Trajektorien identifiziert. Für alle drei Interferenzeffekte sind zwei direkte Quantentrajektorien und bis zu sechs rückgestreute Quantentrajektorien für eine qualitative Erklärung vollkommen ausreichend.

9.2 Channel-Closings

Das Plateau im Spektrum der Photoelektronen, wie auch im Spektrum der emittierten Photonen eines Atoms, das einem starken Laserfeld ausgesetzt wird, kann durch das klassische simple man's Modell (SMM) verstanden werden, d.h. durch eine am Atom startende Exkursion von Elektronen im Laserfeld und eine darauf folgende Rekombination oder Streuung am Ion. Vollständig quantenmechanische Modellrechnungen im Rahmen der Strong-Field Approximation bestätigen dieses Bild sowohl für die Above-Threshold Ionisation hoher Ordnung wie auch für die Erzeugung hoher Harmonischer. Elektronen, die zu unterschiedlichen Zeiten ins Laserfeld gelangen, erzeugen eine für das Plateau charakteristische Interferenzstruktur.

Für das Photo-Elektron-Spektrum wurde in den vorangegangenen Kapiteln ausführlich eine semiklassische Approximation des verallgemeinerten KFR-Matrixelements dargestellt. Sie erlaubt eine Entwicklung des Matrixelements nach miteinander interferierenden Quantentrajektorien. Deren Dynamik ist weitgehend vom Laserfeld bestimmt. Das Atom spielt dabei ausschließlich als Quelle für Elektronen und als Streuzentrum eine Rolle. Dies kommt in der Approximation des atomaren Bindungspotenzials durch ein Zero-Range-Potenzial besonders zum Ausdruck.

Für ein realistisches Potenzial, das neben einem tief liegenden Grundzustand eine Vielzahl von angeregten Zuständen besitzt, bedarf dieses einfache Modell einer Erweiterung. Experimentell findet man für nicht allzu hohe Intensitäten zusätzlich zu den einzelnen ATI-peaks eine Rydberg-artige Substruktur bei den niederenergetischen peaks. Diese konnte als resonante Ionisation über ponderomotorisch verschobene Rydbergzustände interpretiert werden [13]. Abb. 9.9 veranschaulicht dies: Aus einem als unverschoben angenommenen Grundzustand mit Bindungsenergie E_0 kann das Elektron durch Absorption von k Photonen resonant in einen näherungsweise durch U_P verschobenen Rydbergzustand mit Bindungsenergie E_R übergehen

$$|E_0| - |E_R| + U_P = k\hbar\omega, \quad (9.8)$$

um dann durch Absorption weiterer Photonen zu ionisieren. Ein so erzeugter peak im Spektrum wird als **Freeman Resonanz** bezeichnet. Seine Energie E_p ist nach Absorption von insgesamt n Photonen durch

$$\frac{\mathbf{p}^2}{2m} = n\hbar\omega - U_P - |E_0| = (n - k)\hbar\omega - |E_R| \quad (9.9)$$

gegeben und nicht ponderomotorisch verschoben. Im Experiment werden stets Elektronen aus verschiedenen Bereichen des Laserfokuses detektiert. Die Elektronen stammen damit aus Atomen, die unterschiedlichen Laserintensitäten ausgesetzt sind. Die Rydbergstruktur des Atoms wird so auf das gemessene ATI-Spektrum abgebildet. Für zunehmende Intensität wird die direkte Ionisation aus dem Grundzustand jedoch immer entscheidender. Das KFR-Matrixelement gibt die Form des Spektrums dann sehr gut wieder.

In den letzten Jahren wurde auch im Rückstrebereich bei höheren Elektronenergien ein resonantes Verhalten von ATI-peaks sowohl an Argon [70] als auch Xenon

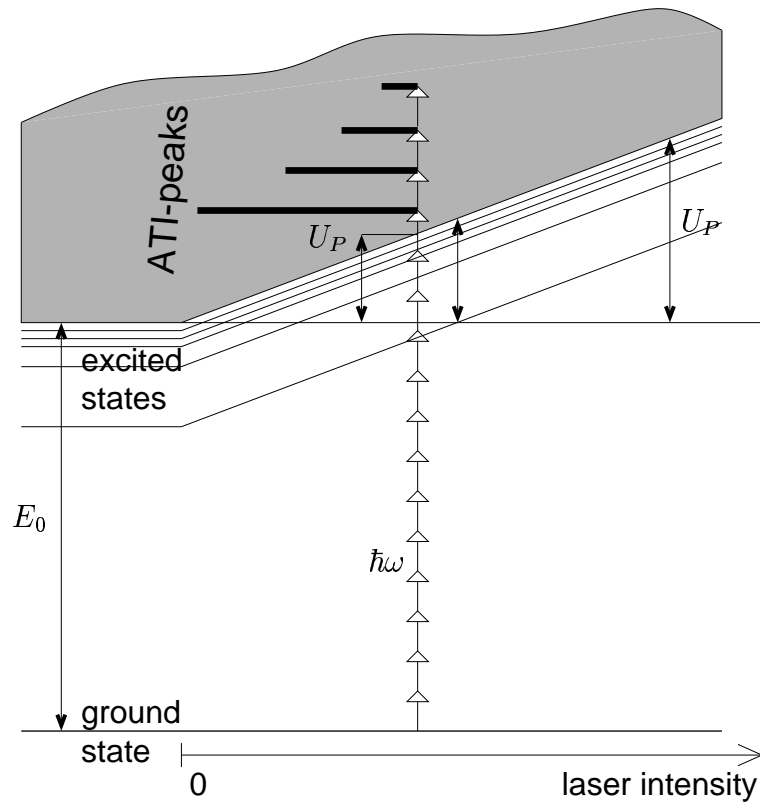


Abbildung 9.9: Above-Threshold-Ionisation

[69] experimentell gefunden. Innerhalb eines kleinen Intensitätsbereiches des Lasers steigt die Zählrate für eine Gruppe von ATI-peaks sehr viel stärker an als oberhalb oder unterhalb der Resonanz-Intensität. Für Argon konnten diese Resonanzen durch numerische Integration der Einteilchen-Schrödinger-Gleichung sehr gut reproduziert werden, was zeigt, dass es sich um einen Ein-Elektronen-Effekt handelt [71, 73, 72]. Die Simulationen weisen weiter darauf hin, dass auch für diese Resonanzen die Rydbergzustände des Atoms wie bei den Freeman-Resonanzen entscheidend sind. Dies ist sehr überraschend, da derart hochliegende Zustände bei den nötigen Intensitäten innerhalb einer Laserperiode ionisieren. Die Zustände sollten daher stark verbreitert sein und mit benachbarten Zuständen überlappen. Für den feldfreien Fall ist in Abb. 9.10 das Anregungsspektrum aller Edelgase dargestellt. Wegen der abgeschlossenen Schale ist zwischen dem Grundzustand und den dicht liegenden angeregten Zuständen bei allen Edelgasen eine große Energielücke.

Im Folgenden wird gezeigt, dass im Rahmen der verallgemeinerten KFR-Theorie, zusammen mit einer Approximation des atomaren Potentials durch ein Zero-Range-Potential, die gefundenen Resonanzen als Channel-Closings interpretiert werden können. Ein ZRP besitzt nur einen gebundenen Zustand und ein fast ungestörtes Kontinuum aus ebenen Wellen. Die Grenze zwischen diskretem und kontinuierlichem Spektrum ist verglichen mit einem realen Atompotential, das unterhalb des Kontinuums eine hohe Zustandsdichte

besitzt, sehr viel wichtiger. Dies kommt im Wignerschen Schwellengesetz zum Ausdruck. Für eine kurzreichweitiges Potenzial verhält sich der Wirkungsquerschnitt wie $E^{l+1/2}$ für einen Kanal mit Drehimpuls l und kleinen Energien E über der Schwelle [110, 111]. Für ein Coulombpotenzial wird dieses Verhalten durch dicht liegende Zustände unter der Schwelle stark modifiziert.

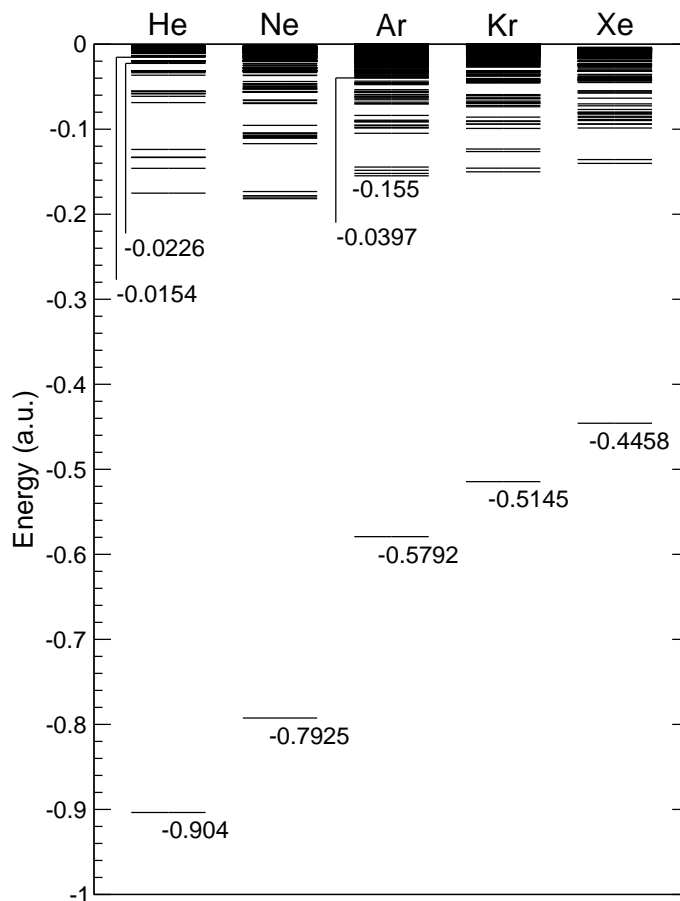


Abbildung 9.10: Energieniveaus der Edelgase ohne Laserfeld [112].

Wie bereits angesprochen, werden die Rydbergzustände sehr stark durch das Laserfeld modifiziert. Dies kommt in der Verschiebung um U_P deutlich zum Ausdruck. Sie verhalten sich diesbezüglich wie das Kontinuum. Gleichzeitig verbreitern sie sich aufgrund einer hohen Ionisationswahrscheinlichkeit. Zur Modellierung mit einem ZRP wird deshalb dessen Bindungsenergie E_0 nicht an die Bindungsenergie des Grundzustands des betrachteten Edelgases angepasst, sondern an die Energiedifferenz zwischen dem Grundzustand und dem Beginn sehr dicht liegender Rydbergzustände, die in Anwesenheit eines Feldes quasi ein Kontinuum bilden, das nach unten durch eine Schwelle begrenzt ist.

Im Falle von Argon ist in der grafischen Darstellung des Spektrums eine so “definierte” mögliche Grenze bei einer Energie von etwa -0.04 a.u. erkennbar. Eine solche Festlegung ist keinesfalls eindeutig und wegen der nicht bekannten Verschiebung und Verbrei-

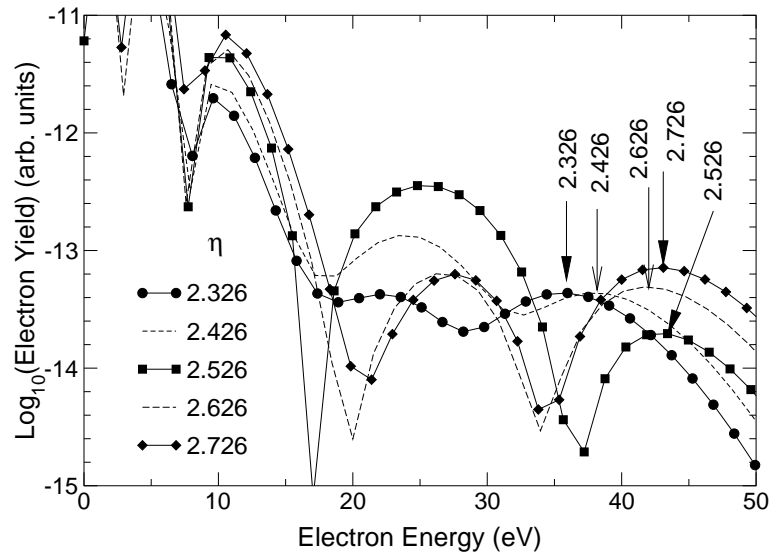


Abbildung 9.11: Berechnete ATI-Spektren für fünf verschiedene Intensitäten um den 12-Photon Channel-Closing. Bei einer Intensität von $6.57 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ und einer Laserfrequenz von $\omega = 0.057 \text{ a.u.}$ ist $\eta = U_P/\hbar\omega = 2.526$; damit ist $U_P + |E_0| = 12\hbar\omega$. Die Bindungsenergie des Zero-Range-Potenzials (ZRP) wurde mit $E_0 = -0.54 \text{ a.u.}$ an Argon angepasst (siehe Text). Die Pfeile markieren jeweils die aus der Abbildung abgelesenen Cutoff-Energien für alle dargestellten Intensitäten: Die Cutoff-Energie ist innerhalb des betrachteten kleinen Intensitätsbereiches nicht proportional zur Intensität.

terung der Zustände nur als Anhaltspunkt zu verstehen. Für die Modellierung von Argon ergibt sich damit eine Bindungsenergie des ZRP von etwa $E_0 = -0.54 \text{ a.u.}$

Abb. 9.11 zeigt für diese Bindungsenergie mit dem verallgemeinerten KFR-Matrixelement von Abschnitt 4.2 berechnete ATI-Spektren für ein ZRP. Es sind Rechnungen für fünf Intensitäten zwischen 6.05 und $7.09 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ dargestellt. Daraus ergibt sich ein $\eta = U_P/\omega$ zwischen 2.326 und 2.726 . Bei $\eta = 2.526$ ist $(U_P + |E_0|)/\hbar\omega = 12$ und markiert daher genau einen Channel-Closing. Ist $\eta < 2.526$ so sind zur Ionisation 12 Photonen ausreichend, für $\eta > 2.526$ sind 13 Photonen notwendig, um die Ionisationsschwelle $|E_0| + U_P$ zu überwinden. Bei $\eta = 2.526$ schließt sich deshalb der Ionisationskanal mit $n = 12$. Auf das Spektrum hat dies im Rückstreubereich dramatische Konsequenzen. Für Elektronenergien zwischen 20 und 30 eV steigt die Rate für eine kleine Erhöhung der Intensität um fast eine Größenordnung an. Erhöht man die Intensität weiter, fällt sie rasch auf eine vergleichbar große Rate wie vor dem Channel-Closing. Gleichzeitig springt der Cutoff des Spektrums von 36 eV bei $\eta = 2.326$ vor dem Channel-Closing um 7 eV auf 43 eV bei $\eta = 2.526$. Bei einer Erhöhung von U_P um nur etwa 9% verändert sich die Cutoffposition um 19% überproportional. Unmittelbar nach dem Channel-Closing bleibt die Cutoff-Position weitgehend unverändert, die Rate steigt aber schnell an.

Erhöht man die Intensität weiter, verhalten sich die Spektren wieder gewissermaßen einfach: Allein aufgrund der Nichtlinearität des Ionisationsprozesses nimmt auf logarith-

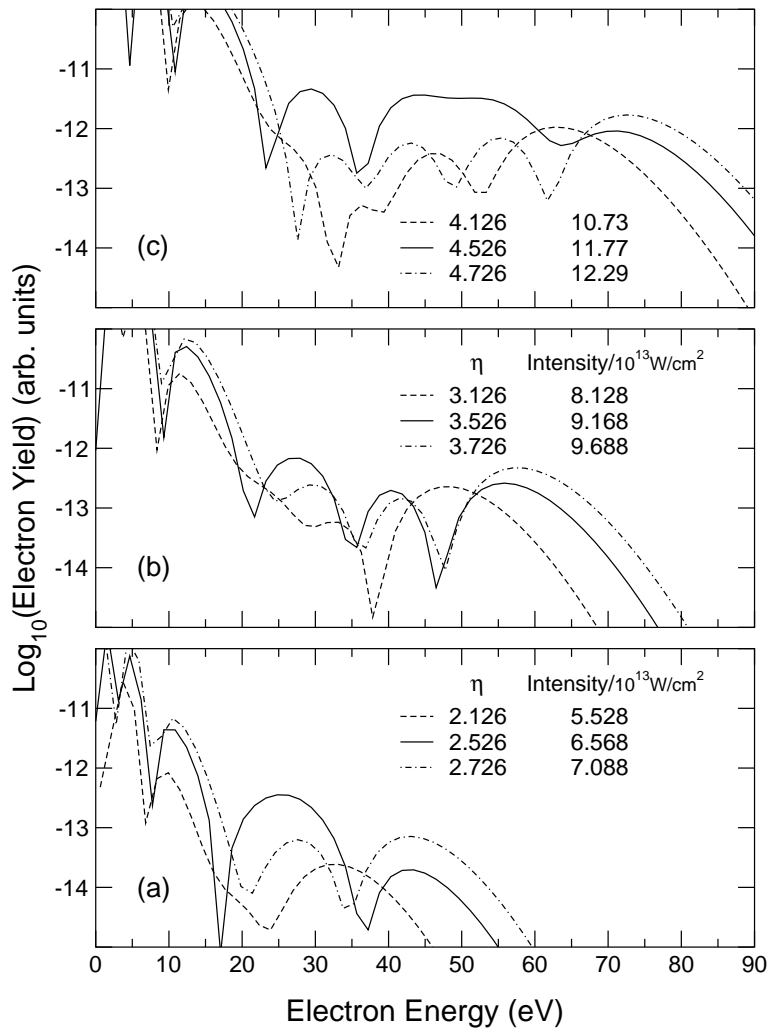


Abbildung 9.12: Einhüllende berechneter ATI-Spektren um den $n = 12$ (a), $n = 13$ (b) und $n = 14$ -Photon Channel-Closing (c) eines Zero-Range-Potenzials (ZRP). Es sind jeweils Spektren für eine Intensität unterhalb, oberhalb und bei der Channel-Closing Intensität (durchgezogene Linie) dargestellt. Bei einem Channel-Closing ist $U_P + |E_0| = n\hbar\omega$. Die Bindungsenergie des ZRP wurde mit $E_0 = -0.54$ a.u. an Argon angepasst.

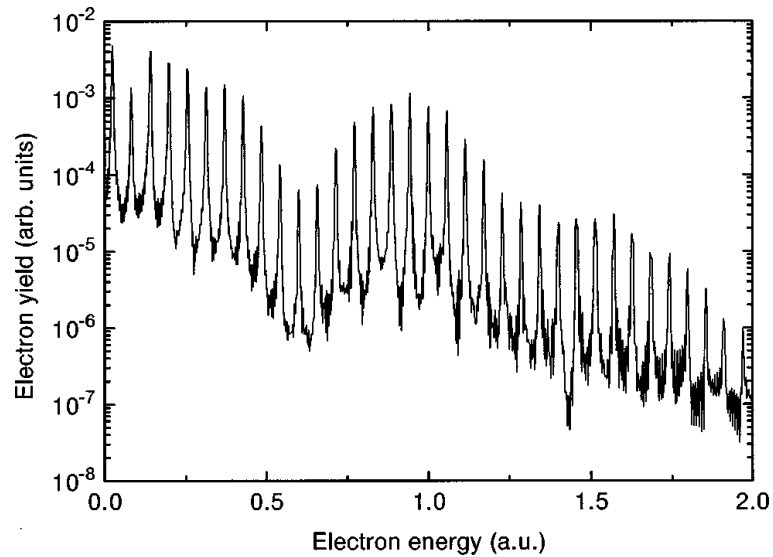


Abbildung 9.13: Berechnetes ATI Spektrum für Argon von H. G. Muller [73]. Aus einer effizienten numerischen Integration der zeitabhängigen Einteilchen-Schrödinger-Gleichung in drei Dimensionen wird durch Projektion ein ATI-Spektrum entlang der Polarisation des linear polarisierten Feldes berechnet. Die Wellenlänge beträgt 800 nm. Es wurde ein flacher 19-Zyklus Puls mit einer Spitzenfeldstärke von 0.044 a.u. verwendet. Der An- und Abschaltvorgang betrug nur jeweils eine halbe Laserperiode. Das ATI Spektrum wurde lediglich aus den letzten zehn Zyklen gewonnen. Die Überhöhung der ATI-peaks um 25 eV ist bei der dargestellten Intensität von $6.8 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ maximal. Wird die Intensität um 5 % größer oder kleiner gewählt, so fallen die Raten der entsprechenden ATI-peaks um eine Größenordnung ab.

mischer Skala die Rate der direkten und rückgestreuten Elektronen gleichmäßig zu. Es bilden sich durch die Interferenz von Quantentrajektorien weitere Interferenzminima und Maxima im Plateau und im Bereich der direkten Elektronen.

Für $\eta = U_P/\omega = 3.526$ erreicht man einen weiteren Channel-Closing mit $n = 13$. Im Unterschied zum $n = 12$ Channel-Closing wird nun das Spektrum weit weniger dramatisch beeinflusst. Erst für $n = 14$ findet man wieder über einen weiten Energiebereich einen zunächst raschen Anstieg gefolgt von einem starken Abfall der Rate. In Abb. 9.12 ist dies durch jeweils drei Intensitäten, am, unterhalb und überhalb des Channel-Closings, dargestellt.

In Abb. 9.13 ist ein aus einer numerischen Integration der 3-D Schrödinger-Gleichung berechnetes ATI-Spektrum gezeigt [73]. In der von Muller ausgeführten Simulation wurde ein flacher Puls benutzt, so dass eine genaue Festlegung der Intensität möglich ist. Bei der dargestellten Intensität von $6.8 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ zeigt die Simulationen eine Erhöhung der ATI-peaks im Plateau zwischen 17 und 35 eV. Für eine 5% höhere oder niedrigere Intensität fallen die entsprechenden ATI-peaks um bis zu einer Größenordnung ab.

Das Verhalten ist identisch mit dem des ZRP-Modells an einem Channel-Closing in Abb. 9.11. Gleichzeitig stimmt das in Abb. 9.11 bei der Channel-Closing Intensität $6.57 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ mit der verallgemeinerten KFR-Theorie berechnete Spektrum (Quadrate) im Rückstreubereich erstaunlich gut mit dem Ergebnis der numerischen Simulation von Argon überein. Die etwas kleinere Intensität ist durch die starke Abhängigkeit eines Channel-Closing von der gewählten Bindungsenergie bedingt. Für die Modellrechnung wurde die Bindungsenergie $E_0 = -0.54$ a.u. durch eine grobe Abschätzung festgelegt. Wählt man stattdessen $E_0 = -0.535$ a.u., so ergibt sich ein Channel-Closing bei einer Intensität von $6.8 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$. Das Spektrum für diese Intensität ist kaum von dem für die etwas geringere Intensität $6.57 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ zu unterscheiden.

Im Unterschied zur numerischen Simulation von Muller in der die Plateauelektronen nur um bis zu zwei Größenordnungen tiefer als die direkten Elektronen liegen, beträgt die Differenz in der Modellrechnung in Abb. 9.11 bis zu 3 Größenordnungen. Darüberhinaus liegen im Unterschied zur numerischen Simulation die ATI-peaks in der Modellrechnung bei ganzzahligen Vielfachen der Photonenergie. Dazu sei bemerkt, dass das ZRP-Modell hier nur durch die Wahl eines Parameters an unterschiedliche Atome angepasst wurde. Die Höhe des Plateaus verglichen mit den direkten Elektronen ist jedoch kaum von der Bindungsenergie des ZRP-Modells abhängig. In Abb. 4.1, in der ein Vergleich der verallgemeinerten KFR-Theorie mit einer Simulation für Wasserstoff gezeigt ist, sind die Verhältnisse gerade umgekehrt: Das Verhältnis zwischen direkten und rückgestreuten Elektronen ist im ZRP um eine Größenordnung zu klein.

Für die unterschiedliche Position der ATI-peaks gilt ähnliches: Die Bindungsenergie wurde an die Anregungsenergie zwischen dem Grundzustand und "nicht mehr auflösbaren" Rydbergzuständen angepasst. Diese Festlegung ist nur für eine Bewegung des Elektrons in einem zwar großen, aber durch die Rydbergzustände begrenzten Raumbereich um das Atom sinnvoll — also im Rahmen der Verallgemeinerten KFR-Theorie Gl. (4.12) für die Bewegung des Elektrons in den durch Volkovzustände approximierten Zwischenzuständen für Zeiten $t_1 > t > t_0$. Nach einer Rückstreuung für Zeiten $t > t_1$ bewegt sich das Elektron aber beliebig weit weg vom Atom, so dass die getroffene Wahl für die Bindungsenergie bedeutungslos wird. Man könnte diesem Umstand Rechnung tragen indem man die Driftenergie des Elektrons separat festlegt, was hier aber nicht getan wurde.

Experimente von Paulus et al. an Argon zeigen alle beschriebenen Züge der Modellrechnung als Funktion der Spitzenintensität. Abb. 9.14 zeigt Spektren für verschiedene Spitzenintensitäten im Laserfokus. In a) nimmt die Intensität von 4 (unten) bis $8 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (oben) linear zu. Bis zu $6.4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ist das Plateau weitgehend flach. Die Zählrate nimmt bis dahin im gesamten Spektrum gleichermaßen zu. Der Cutoff des Plateaus verschiebt sich dabei langsam zu höheren Energien. Zwischen 6.4 und $7.2 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ nehmen dann aber plötzlich die ATI-peaks zwischen 15 und 25 eV deutlich stärker zu als die peaks in allen anderen Teilen des Spektrums. Gleichzeitig springt der Cutoff zu höheren Energien. Dies führt zu einer ausgeprägten Stufe im Plateau. Bei weiterer Erhöhung der Intensität nimmt die Anzahl der detektierten Elektronen dann wieder über das ganze Spektrum gleichmäßig zu. Ein ähnlich resonantes Verhalten einer Gruppe von ATI-peaks ist erst wieder zwischen 1.12 und $1.4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ zu beobachten. Wie im Teil b)

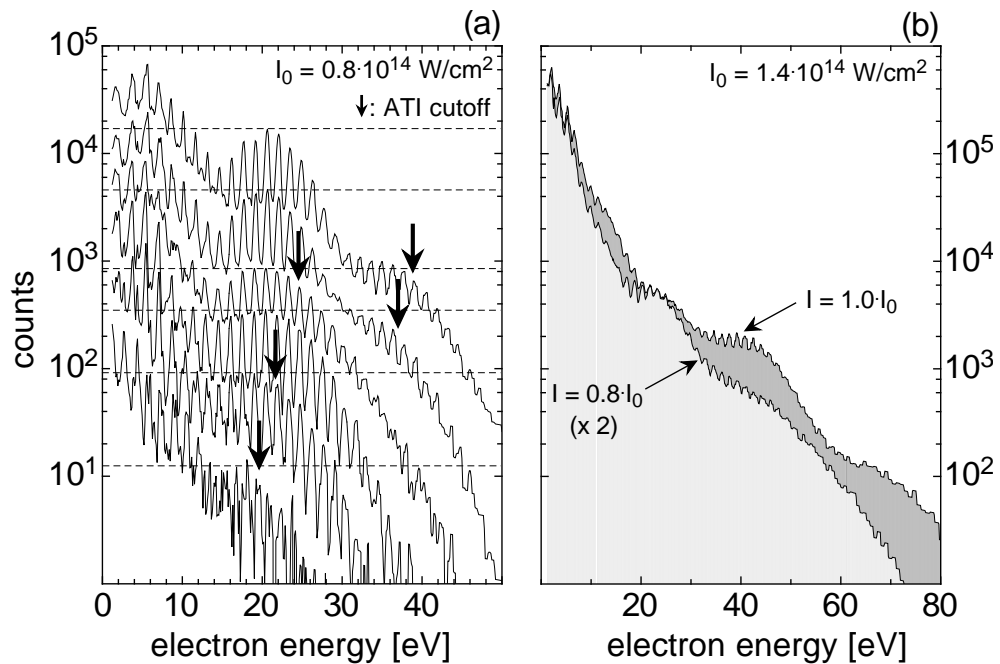


Abbildung 9.14: Experimentelle ATI-Spektren für Argon in Richtung des linear polarisierten Feldes bei einer Wellenlänge von 800 nm [113]. a) Verschiedene Spitzenintensitäten im Laserfokus. Die Intensität wächst von unten nach oben linear von 4 bis $8 \cdot 10^{13}$ W/cm^2 . Die horizontalen Linien geben das Maximum im Plateau an. Die Pfeile markieren den Cutoff des Plateaus. b) Spektren bei einer Intensität von $1.4 \cdot 10^{14}$ W/cm^2 und $1.12 \cdot 10^{14}$ W/cm^2 . Die Raten für die niedrigere Intensität sind verdoppelt.

der Abb. 9.14 zu sehen sind es nun die ATI-peaks mit einer Energie zwischen 35 eV und 50 eV, die sehr stark anwachsen. Der Cutoff macht auch hier wieder einen Satz auf etwa 65 eV. Wie zwischen 6.4 und $7.2 \cdot 10^{13}$ W/cm^2 bildet sich eine weitere Stufe im Plateau. In den Experimenten fällt die Anzahl der gezählten Elektronen im fraglichen Energiebereich nach dem raschen Anstieg zwischen 6.4 und $7.2 \cdot 10^{13}$ W/cm^2 bei einer weiteren Erhöhung der Intensität nicht wieder ab. Ursache dafür ist die im Experiment immer vorhandene Summation über Elektronen aus unterschiedlichen Bereichen des Laserfokus mit unterschiedlichen Intensitäten. Das Volumen mit der höchsten Intensität ist dabei am kleinsten. Außerhalb des Zentrums des Fokus wird die Intensität geringer, das Volumen nimmt jedoch zu. Das resonante Verhalten tritt zunächst in der Mitte des Laserfokus auf, wo die Intensität am höchsten ist. Für eine zunehmende Spitzenintensität im Zentrum des Fokus wandert der Intensitätsbereich indem sich das resonante Verhalten zeigt in weiter außen liegende Raumbereiche des Fokus und trägt so weiterhin bei.

Die Experimente zeigen wie die Rechnungen im direkten Bereich des Spektrums kein derartiges resonantes Verhalten. Faisal und Scanzano [114] haben für kleine Energien auf eine zusätzliche Gruppe von ATI-peaks bei einem Channel-Closing hingewiesen. Nach einer Mittelung über das Volumen des Fokus findet sich auch in der hier durchgeführten

Rechnung eine zusätzlich Gruppe von ATI-peaks bei ganzzahligen Vielfachen der Photonenergie. Deren Beitrag ist aber vergleichbar mit dem Beitrag, für den ein Channel-Closing keine Rolle spielt. Im Rückstreibereich dagegen steigt der Beitrag an einem ganzzahligen Channel-Closing um fast eine Größenordnung an.

Trajektorien

Um einen besseren Einblick in die physikalischen Verhältnisse am Channel-Closing zu gewinnen, wird das Matrixelement mit der Sattelpunktmethode von Kapitel 6 und 7 nach komplexen Trajektorien entwickelt. Da das Channel-Closing die direkten Elektronen kaum beeinflusst, reicht es, nur die rückgestreuten Elektronen zu betrachten. Für den $n = 12$ Channel-Closing zeigt Abb. 9.15 eine Approximation des exakten Ergebnisses aus Abb. 9.11 durch Trajektorien. In der Abbildung unten ist die Trajektorienanalyse mit dem exakten Ergebnis bei einer Intensität von $6.05 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ verglichen. Bereits die beiden kürzesten Trajektorien 1 und 2 geben eine erste Approximation an das Matrixelement. Berücksichtigt man die ersten 6 Trajektorien in der Entwicklung, so wird das exakte Ergebnis sehr gut angenähert. Allein direkt am Cutoff bei etwas mehr als 40 eV ist die Approximation aus den in Kapitel 7 diskutierten Gründen nicht ausreichend. Nimmt man die ersten 40 Trajektorien in die Entwicklung auf, so verändert sich das Ergebnis kaum. Die Reisezeit des Elektrons bis zur Rückstreuung kann dabei bis zu etwa 10 Zyklen des Laserfeldes betragen. In der Bildmitte ist die Approximation am Channel-Closing gezeigt. Um insbesondere zwischen 17 und 35 eV eine ausreichende Approximation zu erreichen, muss man nun alle 40 Trajektorien in der Entwicklung berücksichtigen. Die ersten beiden Trajektorien ergeben einen um eine Größenordnung zu niedrigen Beitrag. Die resonanzartige Struktur im Rückstreibespektrum wird also durch eine konstruktive Interferenz von Quantentrajektorien mit Reisezeiten zwischen etwas mehr als einer halben Periode T des Laserfeldes und Trajektorien mit einer Reisezeit von bis zu 10 Perioden erzeugt.

In den bereits angesprochenen numerischen Simulationen von Muller [71, 73] wurde bei der fraglichen Intensität eine Analyse der ionisierten Wellenpakete unternommen. Es zeigen sich Hinweise darauf, dass die Resonanzstruktur im Plateau wie auch hier festgestellt durch eine Interferenz von Wellenpaketen entsteht, die nach ihrer Erzeugung bis zu ihrer Rückstreuung über mehrere Perioden des Feldes am Atom verbleiben.

Am Cutoff wird bei dem Channel-Closing (in der Bildmitte von Abb. 9.15) das Ergebnis um ca. eine halbe Größenordnung überschätzt. Allein für Energien größer als 45 eV ist die Approximation bereits gut. In diesem Energiebereich ist ausschließlich die 2. Trajektorie ausschlaggebend. Für eine etwas höhere Intensität zeigt die Abb. 9.15 oben, dass bereits wieder wenige Trajektorien das Matrixelement bestimmen. Damit erhält man folgendes Bild: Bei einem Channel-Closing interferieren die Beiträge aller Trajektorien für Energien unterhalb $9 U_P$ konstruktiv und führen so zu einer resonanten Überhöhung im Plateau bis zu Energien von ca. $9U_P$. Für Energien über $9U_P$ findet dagegen eine allerdings bei weitem nicht so ausgeprägte destruktive Interferenz statt.

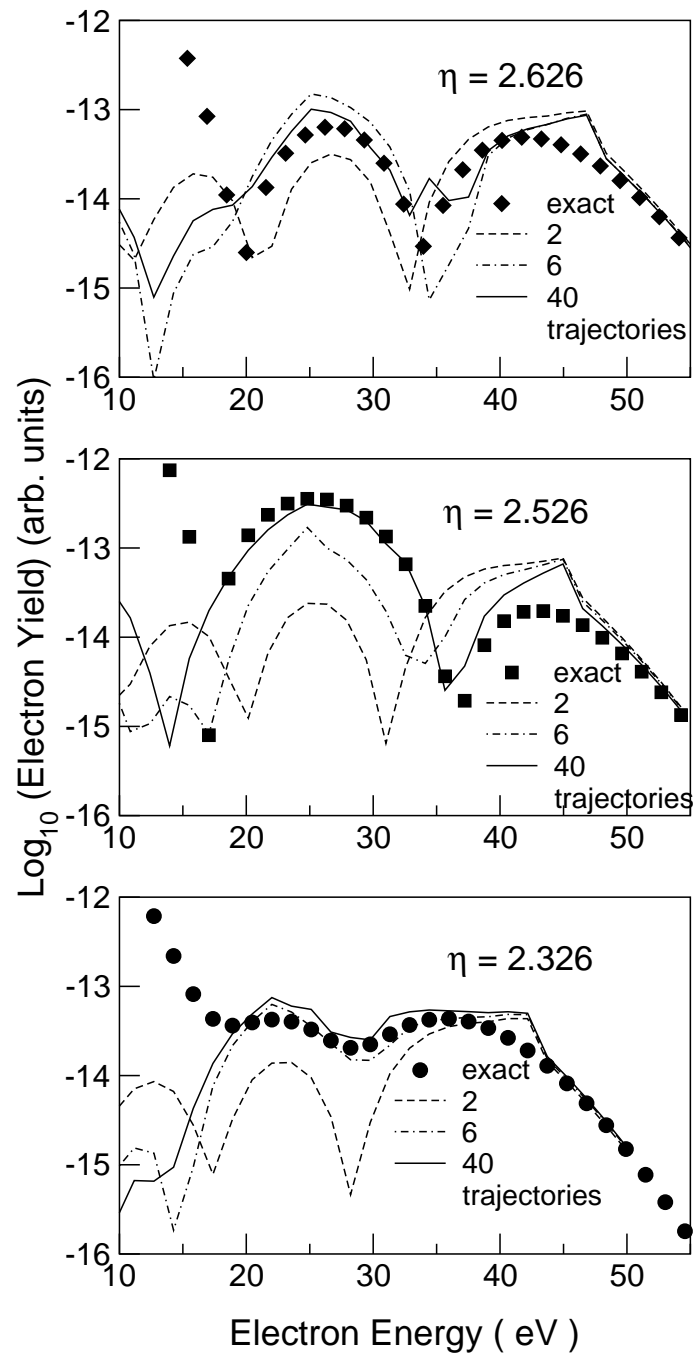


Abbildung 9.15: Approximation der exakten Resultate von Abb. 9.11 durch Trajektorien. In der Bildmitte ist eine Approximation des exakten Resultats am Channel-Closing ($\eta = 2.526$) mit bis zu 40 Trajektorien dargestellt (siehe auch Kapitel 7). Der untere Bildabschnitt zeigt eine Trajektorien-Approximation für die niedrigste Intensität aus Abb. 9.11 ($\eta = 2.326$) und im oberen Bildteil ist die Intensität etwas über der am Channel-Closing ($\eta = 2.626$) gewählt. Einzig am Channel-Closing sind 40 Trajektorien notwendig, um das exakte Ergebnis zu approximieren. Für die niedrigere bzw. höhere Intensität ergeben bereits die drei kürzesten Trajektorienpaare eine ausreichende Approximation.

Bei einer exakten Auswertung des verallgemeinerten KFR-Matrixelements nach Gl. (4.13), bei der über die reelle Reisezeit τ integriert wird, sollte sich dieses Verhalten in einer schlechteren Konvergenz des Integrals für große Reisezeiten τ zeigen. Im folgenden Abschnitt wird dazu eine Abschätzung durchgeführt.

Asymptotik

Das verallgemeinerte KFR-Matrixelement aus Abschnitt 4.2 lässt sich ohne Regularisierung in die Form

$$M_{\mathbf{p}}^{(0,1)} = -e^{i\frac{\pi}{4}} \sqrt{\frac{\omega}{2\pi m\kappa}} \sum_{\nu} (-1)^{\nu} \delta\left(U_P + |E_0| + \frac{\mathbf{p}}{2m} - \nu\hbar\omega\right) \times \\ \times \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_{\nu+2n}(\alpha_0 p_{\xi}) e^{i(\nu+2n)\phi_{\xi}} I_n \quad (9.10)$$

bringen. Darin ist I_n durch ein Integral über die dimensionslose Reisezeit $\tau = \omega(t_1 - t_0)$

$$I_n = \int_0^{\infty} \frac{d\tau}{\tau^{3/2}} \exp i\left(\frac{E_0\tau}{\hbar\omega}\right) \exp i\left(-\eta\tau + \frac{4\eta\sin^2\frac{\tau}{2}}{\tau} - n\phi(\tau)\right) J_n[\eta\zeta y(\tau)] \quad (9.11)$$

gegeben. Eine Regularisierung ist für $\tau \rightarrow 0$ notwendig und führt auf die direkten Elektronen. Hier soll der Beitrag zum Integral für Reisezeiten $\tau > \tau_{\min}$ abgeschätzt werden, so dass keine Regularisierung notwendig ist. Die durch Gl. (4.15) gegebenen Funktionen $y(\tau)$ und $\phi(\tau)$ verhalten sich für große τ wie

$$y \sim \frac{1}{2} \quad \text{und} \quad \phi(\tau) \sim 2\tau + \pi. \quad (9.12)$$

Dazu wurde

$$\frac{4\sin^2\tau/2}{\tau} \sim 0 \quad (9.13)$$

angenommen. I_n wird so zu

$$(-1)^n J_n\left(\frac{\eta\zeta}{2}\right) \int_{\tau_{\min}}^{\infty} \frac{d\tau}{\tau^{3/2}} e^{-i\left(\frac{|E_0|+U_P}{\hbar\omega}+2n\right)\tau}. \quad (9.14)$$

Ein großer Beitrag für längere Reisezeiten ergibt sich für

$$(|E_0| + U_P)/\hbar\omega = k = -2n, \quad (9.15)$$

d.h. bei einem Channel-Closing mit geradem k . In Abb. 9.12 wurde genau dieses Verhalten beschrieben. Für die geraden Channel-Closings $n = 12$ und 14 tritt am Channel-Closing eine Erhöhung von ATI-peaks um bis zu eine Größenordnung über fast den gesamten Plateaubereich bis zu einer Energie von ca. $9U_P$ auf, beim $n = 13$ Channel-Closing dagegen nur eine leichte Erhöhung der Rate am Beginn des Plateaus.

Das gleiche Verhalten zeigt sich auch bei Helium bei einer sehr viel höheren Intensität gleichermassen in einer von Muller durchgeführten numerischen Simulation und der hier ausgeführten verallgemeinerten KFR-Theorie und einem ZRP-Modell.

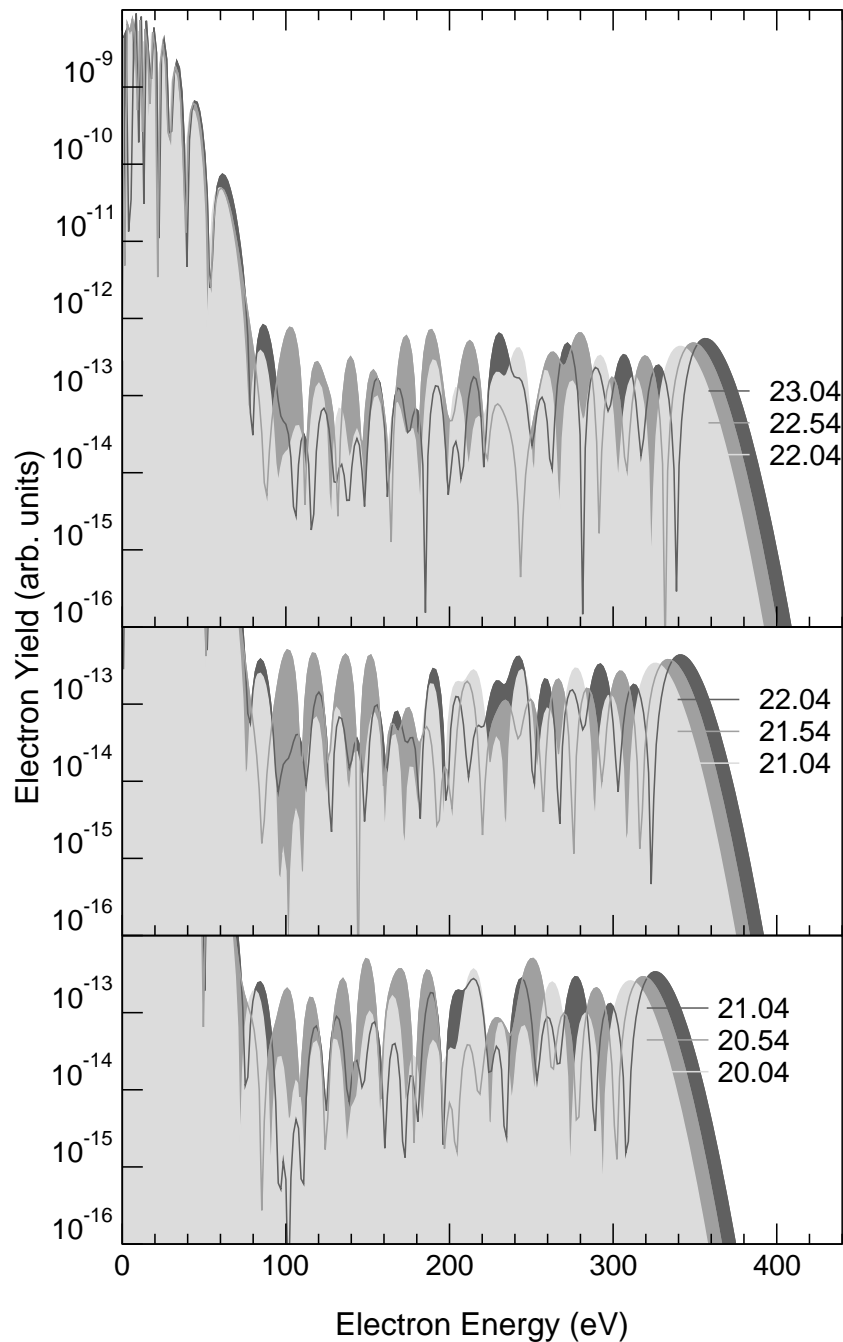


Abbildung 9.16: Einhüllende berechneter ATI-Spektren für verschiedene Intensitäten. Es ist jeweils $\eta = U_P/\hbar\omega$ angegeben. Die Laserfrequenz beträgt $\omega = 0.057$ a.u. Die Bindungsenergie des ZRP wurde an Helium angepasst ($E_0 = -0.881$ a.u.). Damit liegt für $\eta = 22.54, 21.54$ und 20.54 jeweils ein Channel-Closing vor. Dies entspricht jeweils der mittleren Graustufe. Eine hellere Graustufe markiert eine Intensität unterhalb, eine dunklere dagegen eine höhere Intensität verglichen mit der Channel-Closing Intensität. Bei geradzahligem Channel-Closing (Bild oben und unten) ist über einen großen Teil des Plateaus der Beitrag am Channel-Closing (mittlere Graustufe) bestimmend. Bei einem ungeradzahligem dagegen nur am Beginn des Plateaus. Die direkten Elektronen (Elektronenergien bis 80 eV) im Bild oben zeigen kein ungewöhnliches Verhalten bei einem Channel-Closing.

Helium

Vor kurzem wurde in einer numerischen Simulation von H. G. Muller [115] für Helium bei sehr hoher Intensität eine resonante Erhöhung des Plateaus für Energien bis etwa $8 U_P$ gezeigt. Es wurde ein Intensitätsbereich zwischen 4.2 und $6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ bei einer Frequenz von 0.057 a.u. untersucht. Ein resonantes Verhalten aller Plateauelektronen findet sich bei $U_P + |E_0| \approx (N + 0.5)\hbar\omega$ und wird auf eine Resonanz mit Zuständen einer Energie von etwa $-0.5\hbar\omega$ zurückgeführt. Für gerades N wird eine ausgeprägtere Resonanz gegenüber ungeradem N gefunden.

Abb. 9.16 zeigt ATI-Spektren, die aus dem verallgemeinerten KFR-Matrixelement und einem ZRP gewonnen wurden. Dessen Bindungsenergie ist unter Berücksichtigung des Anregungsspektrums von Helium in Abb. 9.10 zu $E_0 = -(0.904 - 0.0226)$ a.u. = -0.881 a.u. gewählt. Demzufolge ergibt sich bei einer Frequenz von 0.057 a.u. bei $\eta = k - 15.46$ ein Channel-Closing. In Abb. 9.16 sind Spektren für $k = 36, 37$ und 38 zusammen mit jeweils einer Intensität zwischen den Channel-Closings verglichen. Für den ungeraden Channel-Closing ergibt sich nur in einem kleinen Teil des Spektrums zwischen 100 und 160 eV (3 und $4.8 U_P$) ein resonantes Verhalten der Rate. Für gerade k zeigt sich dieses Verhalten dagegen bis etwa $8 U_P$. Im Fall $n = 38$ (Abb. oben) zeigt sich zunächst am Channel-Closing eine bis zu einer Größenordnung höhere Rate für alle Energien zwischen 100 und 220 eV (2.9 und $6.3 U_P$), gefolgt von einem kleinem Energieintervall von 220 bis 260 eV in dem die Rate am Channel-Closing gerade minimal ist. Für Energien von 260 bis 290 eV ist die Rate am Channel-Closing dann wieder maximal. Verglichen mit dem Maximum bei niedriger Energie ist die Erhöhung aber weniger ausgeprägt. Für Energien über $8.5 U_P$ ist kein Einfluss des Channel-Closing mehr zu finden wie generell auch für den Energiebereich der direkten Elektronen. Am $n = 36$ Channel-Closing (Abb. unten) ergibt sich ein ganz analoges Verhalten. Im Vergleich zu den Simulationen von Muller ergibt sich für ein ZRP mit einer etwas abgesenkten Ionisationsschwelle ein ganz gute Übereinstimmung.

Auf einen Unterschied gegenüber der numerischen Simulation von Muller sei jedoch hingewiesen: Allen hier gezeigten Spektren ist unabhängig vom Channel-Closing eine ausgeprägte Interferenzstruktur bis zum Cutoff eigen. Im Unterschied dazu findet Muller in numerischen Simulationen nur für die direkten Elektronen eine Interferenz mit ganz ähnlicher Energieabhängigkeit wie hier.

Kapitel 10

Zusammenfassung

Im Zusammenhang mit der Erzeugung hoher Harmonischer (HHG) an Atomen haben sich **Quantentrajektorien** in den letzten Jahren als außerordentlich hilfreich für die Analyse und Optimierung sowohl des atomaren als auch des makroskopischen Responses erwiesen. In einem kürzlich durchgeführten Experiment konnte dies eindrucksvoll gezeigt werden. Für die HHG ist dabei die von den Trajektorien akkumulierte Phase von besonderer Bedeutung. Ihre Intensitätsabhängigkeit bestimmt im wesentlichen den kollektiven Response eines dichten Gases im Fokus eines starken Laserpulses. In der HHG wurde deshalb dieser Aspekt in den letzten Jahren besonders betont. Die Above-Threshold Ionisation erlaubt gegenüber der HHG eine sehr viel direktere Beobachtung von Effekten derartiger Quantentrajektorien, da in ATI-Experimenten im Prinzip der atomare Response gemessen wird.

In Teil I wurde zum erstenmal eine systematische Entwicklung einer approximierten S-Matrix für die Ionisation eines Atoms in einem starken Laserfeld in Quantentrajektorien vorgestellt, die sich auf Arbeiten von Lewenstein et al. [61] und Becker et al. [48, 51] stützt. Als Ausgangspunkt dient dazu eine Approximation der S-Matrix, die auf Arbeiten von Keldysh [44] zurückgeht. Die Propagation eines Elektrons wird dabei abhängig vom jeweiligen Prozess zu unterschiedlichen Zeiten verschieden approximiert. Ist das Elektron gebunden, so wird das Laserfeld vernachlässigt, für freie Elektronen wird dagegen das Bindungspotenzial vernachlässigt. Für ein Zero-Range-Potenzial ist eine derartige Approximation besonders gerechtfertigt. Darüberhinaus erleichtert es die numerische Auswertung ganz erheblich. Sowohl für die HHG als auch die ATI wurde eine derartige Modellierung mit einem ZRP durchgeführt. In der hier verwendeten Approximation wird nach einer Ionisation des Elektrons höchstens **eine** weitere Wechselwirkung mit dem Bindungspotenzial berücksichtigt. Die wesentlichen Effekte, wie die Ausbildung eines Plateaus sowohl im Spektrum der Harmonischen wie auch der ATI-Elektronen, werden dadurch bereits sehr gut modelliert. In Abb. 4.1 ist dazu ein Vergleich mit einer exakten numerischen Integration der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung gezeigt.

Im Unterschied zur HHG sind für die ATI auch Trajektorien, die nach einer Ionisation keine weitere Wechselwirkung mit dem Potenzial erfahren, von Bedeutung. Diese wurden

am Anfang in Kapitel 5 deshalb kurz diskutiert. Sie ergeben sich wie in der HHG durch eine **Sattelpunktsapproximation** des zugrundeliegenden Matrixelements. Für diese **direkten** Trajektorien kann die Sattelpunktsapproximation einfach mathematisch korrekt abgeleitet werden (Anhang B). Für die **Rückgestreuten** ist dies erheblich schwieriger, da im Unterschied zu den direkten Trajektorien für die rückgestreuten Trajektorien eine mehrdimensionale Sattelpunktsapproximation auszuführen ist. In Anlehnung an die reellen Lösungen des simple man's Modell (SMM) wird jedoch auch eine Sattelpunktsapproximation für die rückgestreuten Trajektorien möglich. Es wird dazu aber keine strenge mathematische Ableitung gegeben, stattdessen wird ein Vergleich mit den numerisch ausgewerteten Matrixelementen angestellt. Für lineare Polarisation gelingt so eine systematische Entwicklung des Matrixelements nach Quantentrajektorien. Diese erweisen sich als eine geeignete, physikalisch motivierte Basis zur Darstellung des Matrixelements.

Im Unterschied zu den direkten Trajektorien existieren für die rückgestreuten Trajektorien im Prinzip unendlich viele Trajektorien mit unterschiedlichen Reisezeiten $\tau = t_1 - t_0$. Bisher wurde in der HHG ausschließlich der Beitrag der beiden Trajektorien mit der kürzesten Reisezeit in Betracht gezogen. Es wird gezeigt, dass dies für lineare Polarisation bereits eine gute Approximation darstellt. Ausgehend von den komplexen Trajektorien für lineare Polarisation wurde in Kapitel 8 auch erstmalig eine Trajektorienanalyse für elliptische Polarisation durchgeführt. Dabei bekommen Trajektorien mit längerer Reisezeit ein wesentlich stärkeres Gewicht. Es zeigt sich, dass für elliptische Polarisation das flache Plateau der linearen Polarisation in mehrere Stufen aufspaltet. Jeder Stufe entspricht dabei ein Paar von Trajektorien mit einer charakteristischen Reisezeit. Für niedrige Intensität rücken die Stufen näher aneinander und bilden so ein mit höherer Energie kontinuierlich abfallendes Plateau. Eine Anwendung der Trajektorienanalyse für elliptische Polarisation auch für die HHG ergibt ganz ähnliche Spektren mit praktisch identischen Trajektorien bis zum Rückkehrzeitpunkt t_1 [67]. Erste experimentellen Resultate zum Nachweis der vorhergesagten Stufenstruktur erscheinen vielversprechend [116].

In enger Zusammenarbeit mit einer experimentellen Gruppe am MPQ in Garching konnte bei elliptischer Polarisation eine Interferenz zwischen direkten und rückgestreuten Elektronen für ein von linearer Polarisation völlig verschiedenes experimentelles Spektrum der höherenergetischen Elektronen verantwortlich gemacht werden. Im untersuchten Parameterbereich ist das gesamte Rückstreuspektrum nicht wie bei linearer Polarisation weitgehend klassisch verständlich, sondern allein durch einen Quanteninterferenzeffekt. Versuche, dies durch eine numerische Integration der TDSE zu reproduzieren, haben sich als äußerst schwierig erwiesen und bisher nicht zum Erfolg geführt.

Resonanzartige Effekte im Rückstreubereich der ATI-Elektronen stellen für die hier benutzte Theorie eine besondere Herausforderung dar. Sowohl experimentell als auch theoretisch wurde Argon in diesem Zusammenhang am ausführlichsten untersucht. Auf den ersten Blick erscheint die Modellierung im Zusammenhang mit einem Zero-Range-Potenzial als aussichtslos, denn die seit 1997 durchgeführten numerischen Simulationen deuten auf einen starken Einfluss von Rydbergzuständen hin. Für die notwendigen Intensitäten liegen aber bereits alle angeregten Zustände von Argon über der Ionisationsschwelle. Der Einfluss des Laserfeldes auf diese Zustände ist also ganz erheblich.

Eine Analyse mit der hier benutzten Theorie reproduziert die experimentell gefundenen Effekte erstaunlicherweise sehr gut. Es konnte gezeigt werden, dass der resonanzartige Anstieg einer Gruppe von ATI-peaks im Rückstrebereich bei einem Channel-Closing des ZRP auftritt. Eine Trajektorienanalyse zeigt, dass im Falle eines Channel-Closings zur Approximation des Matrixelements Trajektorien mit sehr viel längeren Reisezeiten berücksichtigt werden müssen. Ihre Beiträge interferieren im Plateau bis zu einer Energie von ca. $9U_P$ an einem Channel-Closing konstruktiv, was zu einer resonanten Überhöhung im Plateau führt. Die Analyse liefert eine einfache Erklärung dafür, dass die Resonanz im Plateau nur ATI-peaks bis etwa $9U_P$ betrifft. Neue Experimente von Paulus et al. mit kürzeren Pulsen von unter 50 fs zeigen ein weiteres resonantes Verhalten für eine höhere Intensität, das in Übereinstimmung mit den hier durchgeführten Rechnungen am übernächsten Channel-Closing auftritt. In den Experimenten wurde erstmals nicht nur der resonanzartig erhöhte Plateaubereich als Funktion der Intensität systematisch untersucht sondern darüberhinaus auch der Cutoff-Bereich. Es zeigt sich, dass gleichzeitig mit der resonanten Überhöhung der Cutoff des Plateaus deutlich zu Energien oberhalb des klassischen Wertes von $10U_P$ springt. Das gleiche qualitative Verhalten findet sich in den hier durchgeführten Modellrechnungen [113].

Die hier vorgestellte verallgemeinerte KFR-Theorie erlaubt damit eine einfache qualitative teilweise auch quantitative Beschreibung aller bislang bekannten Effekte im Plateau- oder Rückstrebereich der ATI-Elektronen. Darüberhinaus ist eine semiklassische Entwicklung des verallgemeinerten KFR-Matrixelements durch sehr einfache komplexe Trajektorien möglich geworden.

Teil II

Elektronspektren bei nichtsequentieller Doppelionisation

Kapitel 11

Einleitung

Die Erzeugung hoher Harmonischer (HHG) und die in Teil I behandelte Above-Threshold Ionisation (ATI) lassen sich im wesentlichen durch ein aktives Elektron beschreiben. Für exaktere numerische Rechnungen ist eine Beschreibung eines Elektrons im effektiven Potenzial der restlichen Elektronen und des Kerns ausreichend. Dies wurde kürzlich für die ATI sehr eindrucksvoll durch einen Vergleich mit Experimenten bestätigt [72].

In vielen Fällen ist auch die Doppel- und Mehrfachionisation durch ein aktives Elektron zu beschreiben. Voraussetzung dafür ist, dass die Ionisation sequentiell verläuft. Damit sind für die Ionisation des neutralen Atoms und der jeweiligen Ionen voneinander unabhängige Raten angebar. Durch Lösen der Ratengleichungen erhält man aus den jeweiligen Raten die gesamte Ionisation für einen gegebenen Laserpuls. Durch frühe Arbeiten von Huillier et al. [24] und später durch Fittinghoff et al. 1992 [6] und Walker et al. 1994 [22] wurde klar, dass zur Erklärung der Experimente ein zusätzlicher nicht-sequentieller Mechanismus notwendig ist. Ein Beispiel ist in Abb. 1.3 dargestellt. In einem doppelt logarithmischen Plot der totalen Ionisation als Funktion der Intensität ist die Abweichung von der sequentiellen Ionisation um viele Größenordnungen durch eine ausgeprägte Knie-Struktur zu erkennen.

Die Frage nach dem Mechanismus dieser erhöhten Doppelionisation wurde in den folgenden Jahren heftig diskutiert und ist auch heute noch nicht vollständig aufgeklärt. Die möglichen Prozesse sollen im Folgenden kurz angesprochen werden:

- Abgesehen von der direkten Multiphotonionisation wurde zunächst von Fittinghoff ein *“shake-off” Mechanismus* vorgeschlagen [6]. Demzufolge wird durch eine instantane Ionisation eines Elektrons das Potenzial für ein zweites Elektron so rasch verändert, dass eine erhebliche Wahrscheinlichkeit besteht, auch gleichzeitig das zweite Elektron zu ionisieren. Dies ist analog zu dem Prozess der Doppelionisation durch Absorption von nur einem Photon mit einer Energie sehr viel größer als das Ionisationspotenzial.
- Der von Corkum [30] vorgeschlagene *inelastische Streumechanismus* unterscheidet sich von der Modellierung der HHG und ATI im simple man’s Modell (SMM)

nur in der letzten Stufe. Das zum Ion zurückkehrende Elektron wird nun nicht elastisch rückgestreut wie für hochenergetische ATI-Elektronen, sondern ionisiert durch einen Elektron-Elektron Stoß ein noch gebundenes Elektron.

- Ein an die KFR-Theorie angelehntes Modell von Becker und Faisal [74] beruht auf einer Entwicklung des exakten Zwei-Teilchen Zeitentwicklungsoperators ähnlich der verallgemeinerten KFR-Theorie für ein Teilchen, wie sie in Kapitel 4 dargestellt wurde. Eine systematische Ausführung ist jedoch für mehr als ein Teilchen wesentlich problematischer und führt auf eine große Anzahl von Termen. Darauf wird später noch näher eingegangen. Becker und Faisal haben versucht, ihre Modellierung mit wesentlichen Einschränkungen auf die Berechnung von totalen Ionisationsraten von mehr als zwei Elektron zu erweitern. Die Ergebnisse sind weitgehend in sehr guter Übereinstimmung mit den Experimenten [117, 118].
- Ein weitere Modellierung von Watson et al. [119] für Helium geht ebenso zunächst von der Ionisation eines Elektrons aus, das als äußeres Elektron bezeichnet wird. Das zweite weiterhin in He^+ gebundene Elektron — als inneres Elektron bezeichnet — ist durch die Propagation des äußeren Elektrons und dem Laserfeld einem zeitabhängigen Potenzial ausgesetzt. Dagegen ist das äußere Elektron nur dem Laserfeld und einem effektiven zeitunabhängigen Hartree-Fock Potenzial, das vom Kern und dem inneren Elektron gebildet wird, ausgesetzt. Diese Vorgehensweise kann als Korrektur zur SAE-Approximation betrachtet werden. Sowohl die Modellierung von Becker und Faisal als auch die Modellierung von Watson et al. erlauben eine Stoßionisation bei der Rückkehr des ionisierten Elektrons zum Ion im Sinne der Modellierung von Corkum.
- Kürzlich wurde als weiterer Mechanismus eine kollektive Tunnelionisation vorgeschlagen [120]. Eine Abschätzung der Ionisationsraten auf Basis einer numerischen Lösung der Schrödinger-Gleichung in einer Dimension in einem statischen elektrischen Feld ergibt aber eine viel zu niedrige nichtsequentielle Rate für diesen Mechanismus.

Eine Entscheidung über den tatsächlichen Mechanismus allein aufgrund der Messung der totalen Ionisationsraten als Funktion der Intensität ist schwer möglich. Eine Kniestruktur wie in Abb. 1.3 in der totalen Ionenausbeute entsteht durch Lösen der Ratengleichungen nach Einführung einer zusätzlichen nichtsequeentiellen Ionisationsrate unabhängig vom Mechanismus.

Die unterschiedliche Abhängigkeit der einzelnen Modelle von der Elliptizität des Laserfeldes erlaubt eine gewisse Beurteilung der einzelnen Modelle bezüglich ihrer Allgemeingültigkeit. Die zuletzt vorgeschlagene empirische Tunnelformel entzieht sich einer derartigen Beurteilung, da keine Aussage über den Mechanismus gemacht wird. Der shake-off Mechanismus sagt auch für elliptische Polarisierung eine ähnliche erhöhte Doppelionisationsrate voraus im Widerspruch zu den experimentellen Befunden [97, 121]. Dagegen ist der von Corkum vorgeschlagene Mechanismus [97] ebenso wie die Vielteilchen S-Matrix Formulierung und das sogenannte “crapola”-Modell von Watson et al.

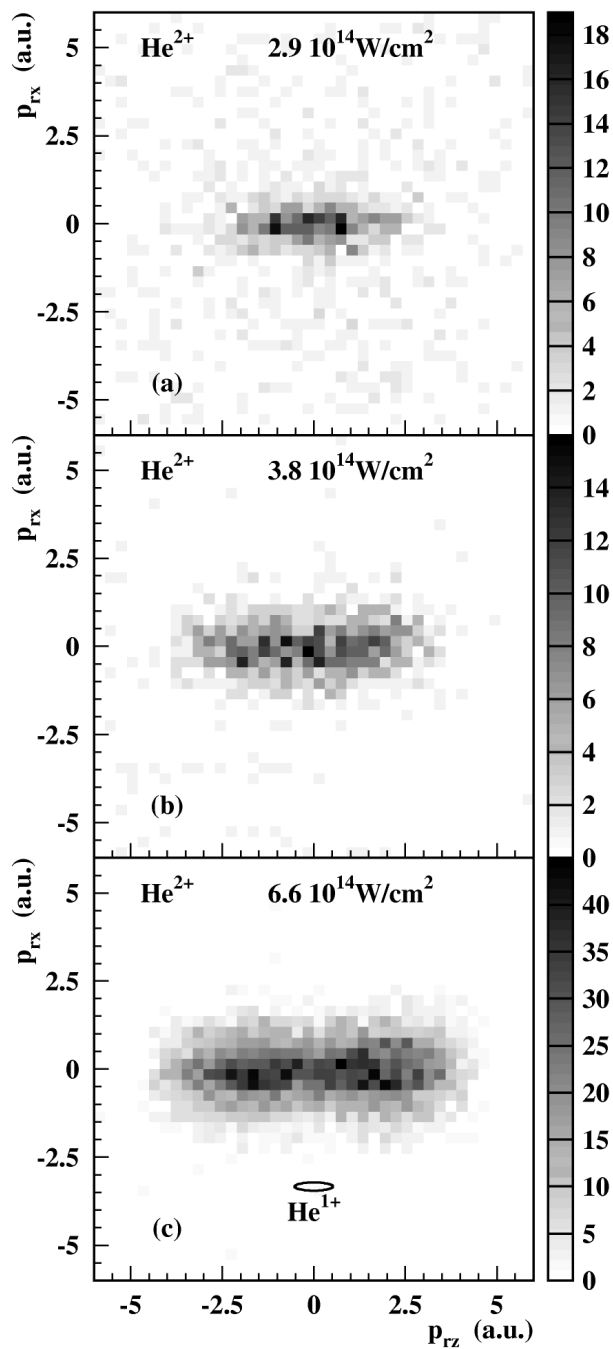


Abbildung 11.1: Gemessene He^{2+} -Impulsverteilungen von Weber et al. [76] für verschiedene Intensitäten und einer Pulslänge von 220 fs bei einer Wellenlänge von 800 nm. Die horizontale Achse p_{rz} gibt den Ionenimpuls in Richtung der Laserpolarisation an, die vertikale Achse p_{rx} in einer Richtung senkrecht dazu. Über die dritte Impulskoordinate wurde summiert. In c) ist zum Vergleich die Impulsverteilung der einfach geladenen Ionen angegeben. Alle Verteilungen sind entlang der Laserpolarisation ausgerichtet. Die He^{2+} Verteilungen besitzen im nichtsequentiellen Bereich verglichen mit der He^+ Verteilung sehr viel größere Impulse.

[122] konsistent mit dem Verschwinden der Knie-Struktur mit zunehmender Elliptizität. Für die Modellierung von Becker und Faisal wurde dies jedoch bislang nicht explizit gezeigt.

Zwar erlaubt die Verwendung von elliptisch bzw. zirkular polarisierten Laserfeldern einen gewissen Test der vorgeschlagenen Mechanismen, aber erst die kürzlich durchgeführten Messungen der Impulsverteilungen der bei der Ionisation entstehenden geladenen Teilchen [76, 77, 78] erlauben, die sehr viel detaillierteren Vorhersagen der verschiedenen Modelle experimentell zu überprüfen. Derartige Experimente werden derzeit von zwei verschiedenen Gruppen durchgeführt. Die Messung der Impulsverteilungen beruht auf der gleichen COLTRIMS-Technik. Zu deren Beschreibung wird auf die Literatur verwiesen [123].

Abb. 11.1 zeigt Ergebnisse der Gruppe aus Frankfurt/Marburg an Helium. Genauso wie von der Freiburg/Berlin-Gruppe, deren erste Ergebnisse für die Impulsverteilungen an Neon in Abb. 13.2 dargestellt sind, wurden von der Gruppe in Frankfurt/Marburg zunächst die Impulsverteilungen der einfach und doppelt geladenen Ionen gemessen. Erst später wurden von beiden Gruppen auch zusätzlich die Impulsverteilungen eines bzw. beider Elektronen gemessen. Erste Ergebnisse sind bereits veröffentlicht [78].

In Kapitel 13 wird eine quantenmechanische Modellierung vorgestellt [124], die sich im wesentlichen an dem von Corkum vorgeschlagenen inelastischen Streumodell orientiert. Sie erlaubt eine einfache Berechnung der Elektronimpulsverteilungen, macht aber keine Aussage über die totale Ionisationsrate. Das Modell stellt eine weitere Verallgemeinerung des in Teil I benutzten KFR-Matrixelements für die Einfachionisation dar. Diese lässt sich, genauso wie dies hier für die Doppelionisation getan wird, durch eine verallgemeinerte Landau-Dykhne Approximation ableiten. Die so gewonnenen Ergebnisse wurden zuerst mit den experimentellen Ionenverteilungen an Neon verglichen. Im Weiteren wird die Intensitätsabhängigkeit der Modellierung für alle bislang experimentell untersuchten Edelgase diskutiert. Es besteht eine erhebliche Diskrepanz zu den Experimenten der Gruppe in Frankfurt/Marburg während die Experimente an Neon gut reproduziert werden.

In Kapitel 14 wird deshalb eine Erweiterung des einfachen Rückstreumechanismus in die Modellierung aufgenommen. Zusätzlich zur sofortigen Ionisation des noch gebundenen Elektrons bei der Rückkehr eines Elektrons wird eine Anregung des gebundenen Elektrons möglich, gefolgt von einer etwas verzögerten Ionisation. Eine erste Abschätzung in nur einer Raumdimension führt auf ähnliche Ergebnisse wie die Experimente und liefert damit möglicherweise den richtigen Mechanismus.

Kapitel 12

Motivation

Im Rahmen einer S-Matrix Formulierung ist zur Berechnung der differentiellen Photoelektronenspektren für mehr als ein Elektron das Matrixelement

$$M_{\mathbf{p}_1, \dots, \mathbf{p}_n} = \lim_{\substack{t \rightarrow \infty \\ t' \rightarrow -\infty}} \langle \psi_{\mathbf{p}_1, \dots, \mathbf{p}_n}(t) | U(t, t') | \phi_{E_0}(t') \rangle \quad (12.1)$$

zu berechnen. Darin bezeichnen die Zustände $\phi_{E_0}(t')$ und $\psi_{\mathbf{p}_1, \dots, \mathbf{p}_n}(t)$ gebundene Lösungen und Streulösungen der Vielteilchen-Schrödinger-Gleichung des atomaren Hamiltonoperators ohne Laserfeld. Die Impulse der ionisierten Elektronen sind mit $\mathbf{p}_1, \dots, \mathbf{p}_n$ bezeichnet. E_0 ist die Bindungsenergie des Grundzustands. Selbst diese, nicht mit dem Laserfeld wechselwirkenden, Zustände sind für mehr als ein Elektron nicht analytisch bestimmbar. Für den Zeitentwicklungsoperator $U(t, t')$, der die Propagation der Elektronen für ein zusätzlich vorhandenes Laserfeld beschreibt, gilt dies ganz besonders. Eine Approximation für starke Felder im Rahmen des KFR-Formalismus wurde von Becker und Faisal entwickelt [74]. Sie führt jedoch auf eine große Anzahl von Termen, deren exakte Auswertung äußerst aufwendig ist.

Im Folgenden wird ein anderer Weg eingeschlagen, der es erlaubt, für verschiedene vorgegebene Mechanismen die Impulsverteilungen der ionisierten Elektronen zu bestimmen. Auf eine Entwicklung des Propagators, wie dies in Kapitel 4 für die Einfachionisation oder von Becker und Faisal durchgeführt wurde, wird dabei verzichtet.

Für die Ionisation nur eines Elektrons beschreibt die KFR-Theorie und deren Verallgemeinerung die Elektronenspektren bereits erstaunlich gut. Die Form des atomaren Potentials ist dabei in erster Linie nicht entscheidend: Sie beeinflusst im wesentlichen die absolute Rate des Ionisationsprozesses. Bereits eine Approximation des Bindungspotentials durch ein Zero-Range-Potential führt auf eine qualitativ vollkommen ausreichende Beschreibung. Dies gilt jedenfalls für den hochenergetischen Teil des Spektrums, der durch am Potential rückgestreute Elektronen gebildet wird¹.

¹Dazu sei auf den in Abb. 4.1 gegebenen Vergleich zwischen verallgemeinerter KFR-Theorie und einer numerischen Simulation verwiesen.

Das KFR-Matrixelement der direkten Ionisation ist im wesentlichen durch eine eindimensionale Integration gegeben,

$$M_{\mathbf{p}} \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt_0 \exp \frac{i}{\hbar} \left[- \int_{t_0}^{\infty} d\tau \epsilon_{\mathbf{p}}(\tau) - \int_{-\infty}^{t_0} d\tau E_0 \right]. \quad (12.2)$$

Sie beschreibt einen *quasiadiabatischen* Übergang des Elektrons zu einer Zeit t_0 aus einem vom Laserfeld ungestörten Bindungszustand mit Energie E_0 in einen durch das Bindungspotenzial unbeeinflussten Volkovzustand mit Driftimpuls \mathbf{p} . Dessen zeitabhängige kinetische Energie ist mit $\epsilon_{\mathbf{p}}(t)$ bezeichnet. Die Zeitskala wird durch die Oszillation des elektrischen Feldes des Lasers vorgegeben. Eine kürzlich sowohl auf ATI wie HHG angewandte voll zeitabhängige semiklassische Beschreibung bestätigt dieses Bild [62]

Das verallgemeinerte KFR-Matrixelement erhält man durch Einführung einer weiteren *Stufe* im Ionisationsprozess: Nachdem das Elektron "ionisiert" wurde und sich getrieben vom Laserfeld frei bewegt, wird zur Zeit t_1 eine Wechselwirkung mit dem atomaren Potenzial berücksichtigt. Dies führt auf eine weitere Zeitintegration über den Streuzeitpunkt $t_1 \geq t_0$. Im Matrixelement wirkt sich dies im wesentlichen nur auf die Wirkung im Exponent des Integranden aus

$$M_{\mathbf{p}} \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_0 \left[\frac{2\pi \hbar m}{i(t_1 - t_0)} \right]^{3/2} \times \\ \times \exp \frac{i}{\hbar} \left[- \int_{t_1}^{\infty} d\tau \epsilon_{\mathbf{p}}(\tau) + S(0, t_1; 0, t_0) - \int_{-\infty}^{t_0} d\tau E_0 \right]. \quad (12.3)$$

Zwischen den Termen $-\int_{-\infty}^{t_0} d\tau E_0$ und $-\int_{t_1}^{\infty} d\tau \epsilon_{\mathbf{p}}(\tau)$ die vom Anfangs- und Endzustand bestimmt sind, ist die klassische Wirkung eines Elektrons im Laserfeld für eine Propagation von $\mathbf{r}_0 = 0$ zum "Ionisationszeitpunkt" t_0 nach $\mathbf{r}_1 = 0$ zum Streuzeitpunkt t_1 eingefügt. Der gesamte Ionisationsprozess wird so durch eine Approximation an die Wirkung modelliert.

Nimmt man für die Doppel- oder Mehrfachionisation einen ähnlichen Ionisationsprozess an, so lässt sich, durch eine geeignete Approximation an die Wirkung, ein analoger Ausdruck für das Matrixelement angeben.

Ein von Corkum [30] vorgeschlagener Mechanismus zur Doppelionisation ist eng an den Mechanismus zur Erzeugung hoher Harmonischer und hochenergetischer rückgestreuter Elektronen angelehnt. Ein zunächst ionisiertes Elektron kann durch eine Rückkehr zum Atom entweder unter Emission eines hohen harmonischen Photons rekombinieren oder elastisch gestreut werden. Durch eine inelastische Streuung am Potenzial besteht die Möglichkeit, ein noch gebundenes Elektron zu ionisieren, falls das zurückkommende Elektron eine ausreichend große kinetische Energie besitzt. Für dieses Szenario wird im folgenden Kapitel 13, nach einer geeigneten Approximation an die Wirkung, ein Matrixelement abgeleitet, das eine differentielle Berechnung der Elektronspektren erlaubt. Andere Szenarien können analog dazu behandelt werden. Eine mögliche Erweiterung wird im darauffolgenden Kapitel 14 diskutiert.

Kapitel 13

Simultane Emission beider Elektronen bei der Rückkehr eines Elektrons

Für eine quantenmechanische Formulierung des von Corkum vorgeschlagenen inelastischen Streuprozesses zur Doppelionisation ergibt sich eine ganz ähnliche Approximation an die Wirkung wie für das verallgemeinerte KFR-Matrixelement (vgl. dazu Abschnitt 4.2 und Kapitel 6).

13.1 Formulierung des Matrixelements

Im ersten Schritt wird aus dem Grundzustand des Atoms ein Elektron zum Zeitpunkt t_0 ionisiert. Gleichzeitig geht das zweite betrachtete Elektronen in den Grundzustand des Ions über. Eine Approximation an die Wirkung ergibt für diese erste Stufe des Ionisationsprozesses

$$- \int_{t_0}^t d\tau [\epsilon_{\mathbf{k}}(\tau) + E_1] - \int^{t_0} d\tau (E_1 + E_0). \quad (13.1)$$

Darin bezeichnet $E_0 + E_1$ die Energie des Grundzustands der betrachteten Elektronen im Atom. E_0 ist die Bindungsenergie des ersten Elektrons und E_1 die Bindungsenergie eines Elektrons im einfach geladenen Ion. Die Größe

$$\epsilon_{\mathbf{k}}(t) = \frac{1}{2m} [\mathbf{k} - e\mathbf{A}(t)]^2 \quad (13.2)$$

ist die zeitabhängige kinetische Energie eines “ionisierten” Elektrons im Laserfeld. Die zur Ionisation notwendige Wechselwirkung wird als Kontaktwechselwirkung approximiert¹. Damit verschwinden alle vom Ort abhängigen Terme in der Wirkung. Durch

¹Betrachtet man wie im ATI-Matrixelement nur ein Elektron, so ist die Wechselwirkung durch die Kopplung des betrachteten Elektrons an das Laserfeld gegeben. Diese lässt sich durch eine partielle Integration auf eine “Wechselwirkung” mit dem Bindungspotenzial umschreiben. Approximiert man das Bindungspotenzial durch ein Zero-Range-Potenzial, ergibt sich ein analoger Term in der Wirkung wie hier angegeben. In Kapitel 4 ist dies ausführlich dargestellt.

das zur Zeit $t_1 > t_0$ zurückkehrende Elektron kann schließlich auch das zweite Elektron ionisiert werden. Bis zur Zeit t_1 befindet sich das noch stark im Ion gebundene Elektron in der Umgebung des Ions. Die nur zur Zeit t_1 berücksichtigte Wechselwirkung der zwei Elektronen in Anwesenheit des Ions wird daher als **Kontaktwechselwirkung** approximiert. Zum Zeitpunkt t_1 ergibt sich damit ein Term

$$- \int_{t_1}^{\infty} d\tau [\epsilon_{\mathbf{p}_1}(\tau) + \epsilon_{\mathbf{p}_2}(\tau)] - \int_{t_1}^{\infty} d\tau [\epsilon_{\mathbf{k}}(\tau) + E_1]. \quad (13.3)$$

in der Wirkung. Für Zeiten $t > t_1$ wird keine weitere Wechselwirkung mehr berücksichtigt. Die Driftimpulse \mathbf{p}_1 und \mathbf{p}_2 der Elektronen bleiben damit unverändert. Damit ergibt sich als Approximation an das Matrixelement

$$M_{\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2} \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_0 \int d^3\mathbf{k} \exp \frac{i}{\hbar} S(t_1, t_0, \mathbf{k}) \quad (13.4)$$

mit

$$S(t_1, t_0, \mathbf{k}) = -\frac{1}{2m} \int_{t_1}^{\infty} d\tau [\mathbf{p}_2 - e\mathbf{A}(\tau)]^2 - \frac{1}{2m} \int_{t_1}^{\infty} d\tau [\mathbf{p}_1 - e\mathbf{A}(\tau)]^2 \\ - E_1 t_1 - \frac{1}{2m} \int_{t_0}^{t_1} d\tau [\mathbf{k} - e\mathbf{A}(\tau)]^2 - E_0 t_0. \quad (13.5)$$

Nach Integration über den Impuls \mathbf{k} des Zwischenzustands des ersten Teilchens ergibt sich

$$M_{\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2} \propto (2\pi\hbar)^{3/2} \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_0 \left(\frac{-im}{t_1 - t_0} \right)^{3/2} \exp iS(t_1, t_0). \quad (13.6)$$

Die Wirkung ergibt sich damit zu

$$S(t_1, t_0) = -\frac{1}{2m} \int_{t_1}^{\infty} d\tau [\mathbf{p}_2 - e\mathbf{A}(\tau)]^2 - \frac{1}{2m} \int_{t_1}^{\infty} d\tau [\mathbf{p}_1 - e\mathbf{A}(\tau)]^2 \\ - E_1 t_1 - \frac{1}{2m} \int_{t_0}^{t_1} d\tau \left\{ \frac{1}{t_1 - t_0} \int_{t_0}^{t_1} d\sigma e\mathbf{A}(\sigma) - e\mathbf{A}(\tau) \right\}^2 - E_0 t_0. \quad (13.7)$$

Lineare Polarisation

Für ein linear polarisiertes Laserfeld, das durch ein Vektorpotenzial $\mathbf{A}(t) = \mathbf{A}_0 \cos(\omega t)$ beschrieben wird, ergibt sich nach Ausführung der Integrationen im Exponenten

$$S(t_1, t_0) = \tilde{S}(\sigma, \tau) = \left[2U_P - E_0 - E_1 + \frac{1}{4m} (\mathbf{P}^2 + \mathbf{p}^2) \right] \frac{\sigma}{\hbar\omega} \\ + \left(\frac{E_0}{\hbar\omega} - \eta \right) \tau + \eta \frac{4 \sin^2 \frac{\tau}{2}}{\tau} + \mathbf{P} \cdot \boldsymbol{\alpha}_0 \sin \sigma + \eta y(\tau) \sin [2\sigma - \phi(\tau)]. \quad (13.8)$$

Dabei wurden die dimensionslose Reisezeit $\tau = \omega(t_1 - t_0)$, die Rückkehrzeit $\sigma = \omega t_1$, sowie der Summenimpuls $\mathbf{P} = \mathbf{p}_2 + \mathbf{p}_1$ und Differenzimpuls $\mathbf{p} = \mathbf{p}_2 - \mathbf{p}_1$ der beiden Elektronen eingeführt. Die klassische Oszillationsamplitude eines Elektrons ist mit $\alpha_0 = -\frac{e\mathbf{A}_0}{m\omega}$ bezeichnet. Die reellen Größen $\phi(\tau)$ und $y(\tau)$ sind durch die Gleichung

$$y(\tau) e^{i\phi(\tau)} = 1 - i e^{i\tau} \left(\frac{4 \sin^2 \frac{\tau}{2}}{\tau} - \sin \tau \right) \quad (13.9)$$

gegeben. Benutzt man die Identität

$$\exp(i a \sin b) = \sum_n J_n(a) e^{inb} \quad (13.10)$$

wird der Integrand zu

$$\begin{aligned} \exp \frac{i}{\hbar} \tilde{S}(\tau, \sigma) &= \sum_{l, \nu} (-1)^\nu \exp i \left\{ \left[2U_P - E_0 - E_1 + \frac{1}{4m} (\mathbf{P}^2 + \mathbf{p}^2) - \nu \hbar \omega \right] \frac{\sigma}{\hbar \omega} \right\} \\ &\times \exp i \left[\left(\frac{E_0}{\hbar \omega} - \eta \right) \tau + \eta \frac{4 \sin^2 \frac{\tau}{2}}{\tau} - l \phi(\tau) \right] J_{\nu+2l}(\mathbf{P} \cdot \alpha_0) J_l[\eta y(\tau)], \quad (13.11) \end{aligned}$$

so dass die Integration über σ ausgeführt werden kann: Es ergibt sich eine Deltafunktion. Sie stellt sicher, dass aus dem Laserfeld Energie nur in Vielfachen von $\hbar\omega$ auf das Atom übertragen wird. Wie in der Above-Threshold Ionisation ist für jedes gebundene Elektron, das ionisiert wird, zusätzlich zur Bindungsenergie die Oszillationsenergie im Laserfeld aufzubringen.

Das Matrixelement wird so zu

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2} &\propto (2\pi\hbar)^{3/2} \hbar \omega \times \\ &\times \sum_{\nu} (-1)^\nu \delta \left[2U_P - E_0 - E_1 + \frac{1}{4m} (\mathbf{P}^2 + \mathbf{p}^2) - \nu \hbar \omega \right] \sum_l J_{\nu+2l}(\mathbf{P} \cdot \alpha_0) \\ &\times \left(\int_0^\infty d\tau \left(\frac{m}{i\tau} \right)^{3/2} \exp i \left(\frac{E_0 \tau}{\hbar \omega} \right) \left\{ \exp i \left[\frac{4 \eta \sin^2 \frac{\tau}{2}}{\tau} - \eta \tau - l \phi(\tau) \right] J_l[\eta y(\tau)] - J_l(\eta) \right\} \right. \\ &\quad \left. + J_l(\eta) \int_0^\infty d\tau \left(\frac{m}{i\tau} \right)^{3/2} \exp i \left(\frac{E_0 \tau}{\hbar \omega} \right) \right). \quad (13.12) \end{aligned}$$

Das Integral

$$\int_0^\infty d\tau \frac{1}{\tau^{3/2}} \exp(-ib\tau) \quad (13.13)$$

ist durch

$$\lim_{r \rightarrow 0} \partial_r r \int_0^\infty d\tau \frac{1}{\tau^{3/2}} \exp i \left(\frac{ar^2}{\tau} - b\tau \right) = -(1+i) \sqrt{2\pi b} \quad (13.14)$$

gegeben. Es entsteht durch eine notwendige Regularisierung der Integration über τ analog zum ATI-Matrixelement in Abschnitt 4.2. Das Matrixelement hängt von der Bindungsenergie E_1 des bis zur Rückkehrzeit t_1 im Ion gebundenen Elektrons nur über die Deltafunktion ab. Der zweite Term ist dem verallgemeinerten KFR-Matrixelement (4.13) für lineare Polarisation ganz ähnlich. Allerdings ist die Funktion $y(\tau)$ etwas anders definiert.

13.2 Vergleich mit experimentellen Ergebnissen

In diesem Abschnitt werden Ergebnisse der Modellierung des letzten Abschnitts gezeigt und mit neuen experimentellen Daten verglichen. Bis vor kurzem lagen keine differentiellen Messungen von Elektron- oder Ionspektren bei der Mehrfachionisation vor. Es wurden ausschließlich totale Ionisationsraten als Funktion der Intensität untersucht. Dabei findet man für alle Edelgase einen Intensitätsbereich, indem die Mehrfachionisation nichtsequentiell verläuft: Die Doppel- oder Mehrfachionisationsraten liegen um viele Größenordnungen über den theoretischen Vorhersagen, die sich aus einem rein sequentiellen Mechanismus ergeben.

Von zwei unterschiedlichen Gruppen in Frankfurt/Marburg [76, 125] und Freiburg/Berlin [77] wurden erstmals die Vektor-Impulsverteilungen der Ionen bei der Doppel- und Mehrfachionisation gemessen. An diesen Experimenten orientiert sich die hier gegebene Darstellung.

Abb. 13.1 zeigt ein Resultat für die Verteilung des Summenimpulses der beiden ionisierten Elektronen bei Neon. Es wurde anhand des Matrixelements Gl. (13.12) berechnet. Es sei nochmals betont, dass die Resultate auf der Annahme eines konkreten Ionisations-Szenarios beruhen. Der hier angenommen Mechanismus sei nochmals kurz skizziert: Zunächst wird ein Elektron durch Wechselwirkung mit dem Laserfeld zu einem Zeitpunkt t_0 ionisiert. Aufgrund der Bewegung im Feld des Lasers kann es zu einem späteren Zeitpunkt t_1 zurück zum Ion gelangen. Dort teilt es seine im Laserfeld aufgenommene kinetische Energie mit einem zweiten noch gebundenen Elektron, das dadurch zur Zeit t_1 ionisiert wird. Dieser Prozess wird i.a. als Rückstreumechanismus bezeichnet. Die zweite Ionisation ist aber auch möglich, wenn die kinetische Energie bei der Rückkehr des ersten Elektrons nicht ausreicht, um das zweite Elektron zu ionisieren. Allein die Wahrscheinlichkeit dafür ist geringer. Die Situation ist ähnlich der ATI oberhalb des klassischen $10U_P$ Cutoffs.

Das Atom geht in die Modellierung nur über die Werte seiner ersten und zweiten Ionisationsenergien ein. Für Abb. 13.1 wird für die Bindungsenergie der beiden Elektronen ($|E_1|$ und $|E_2|$) das erste und zweite Ionisationspotenzial von Ne eingesetzt ($I_P(\text{Ne})=0.79$ a.u. und $I_P(\text{Ne}^+)=1.51$ a.u.). Zur Berechnung wurde zunächst das vollständige differentielle Elektronspektrum berechnet und anschließend über alle Differenzimpulse summiert. Der Dichteplot im Teil a) der Abb. zeigt die Verteilung der Summenimpulse der beiden Elektronen in Richtung der Polarisation des Laserfeldes (P_{\parallel}) und senkrecht dazu (\mathbf{P}_{\perp}) für eine Intensität von $8 \cdot 10^{14}$ W/cm². Die Verteilung ist rotationssymmetrisch um die

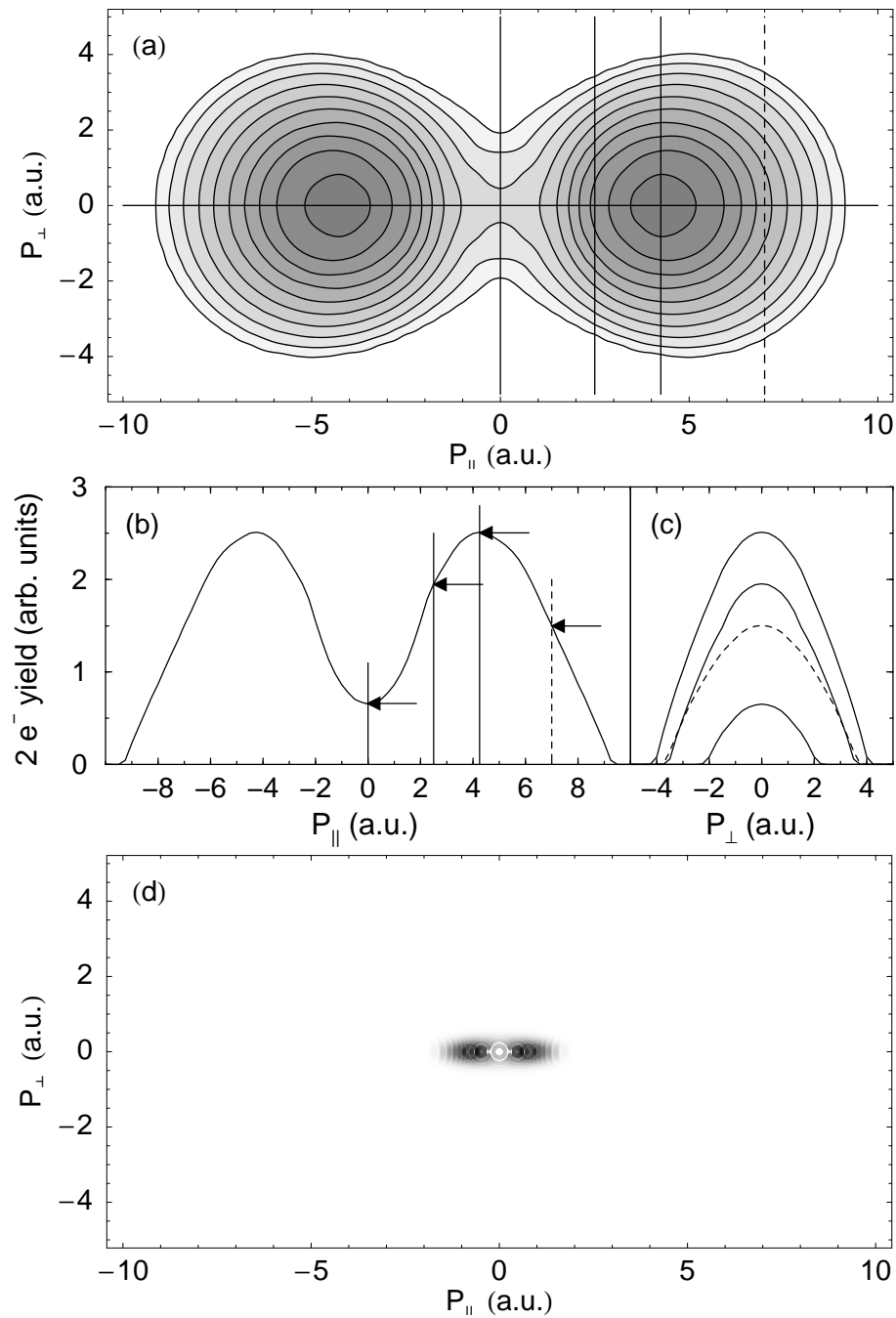


Abbildung 13.1: (a)-(c) Verteilung des Summenimpulses der ionisierten Elektronen nach dem Modell von Abschnitt 13.1 für Neon und für eine Intensität $8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Teil (d) zeigt die Impulsverteilung für eine Einfachionisation, wie sie sich für ein ZRP aus dem KFR-Matrixelement aus Abschnitt 4.1 ergibt. Die Impulse parallel zu Laserpolarisation sind mit P_{\parallel} bezeichnet, senkrecht dazu mit P_{\perp} . In (a) ist ein Dichteplot der Impulsverteilung mit einigen äquidistanten Konturlinien angegeben. Im Teil (b) und (c) sind Schnitte durch die Verteilung entlang $P_{\perp} = 0$ und entlang einiger Werte von P_{\parallel} dargestellt. Die vertikalen Linien in (a) und (b) geben die Schnittlinien an. Für die hier benutzte Frequenz $\omega = 0.057 \text{ a.u.}$ ergibt sich $U_P = 1.75 \text{ a.u.}$

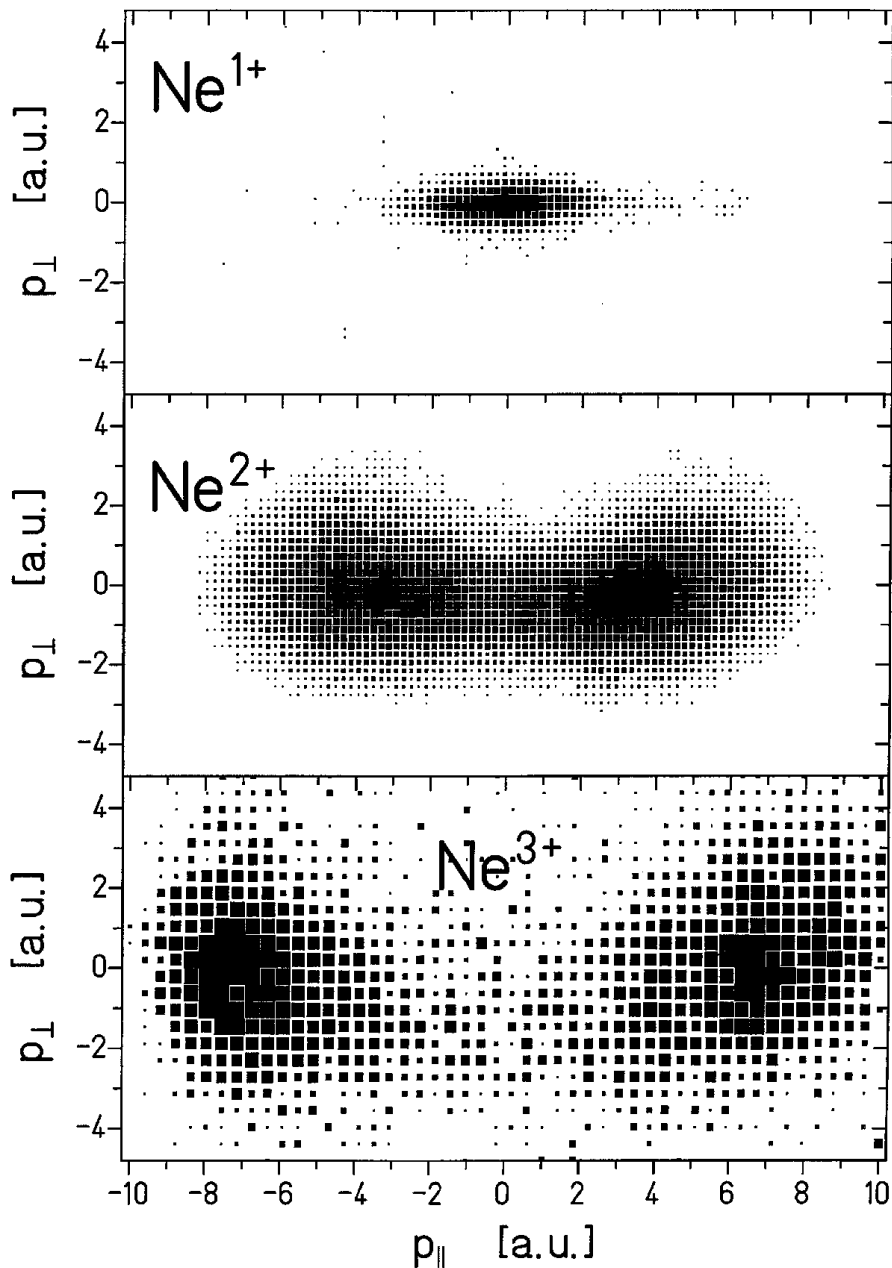


Abbildung 13.2: Experimentelle Impulsverteilungen der Ne^{n+} -Ionen in Richtung (P_{\parallel}) der Laserpolarisation und senkrecht dazu (P_{\perp}) für 30 fs Laserpulse mit einer Spitzenintensität im Laserfokus von $1.3 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ (Ne^{1+} und Ne^{2+}) bzw. $1.5 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ (Ne^{3+}) [77]. Über die dritte, nicht dargestellte kartesische Koordinate ist, um ein besseres Signal-Rausch Verhältnis zu erzielen, summiert.

Polarisationsrichtung \hat{e} des Lasers, so dass sich eine Doppelkeule in Richtung des Feldes ergibt. Die Maxima der um $P_{\parallel} = 0$ symmetrischen Impulsverteilung liegen bei etwa $P_{\parallel} = \pm 4$ a.u. und $\mathbf{P}_{\perp} = 0$. Im Teil b) der Abb. ist das Profil des Dichteplots für $\mathbf{P}_{\perp} = 0$ dargestellt. Schnitte durch die Verteilung für $P_{\parallel} = \text{konstant}$ sind im Teil c) gezeigt. Die vertikalen Linien in a) und b) geben die Position der Schnitte in c) an. Die Verteilung senkrecht zur Polarisationsrichtung des Lasers ist wesentlich schmaler als in Richtung des Feldes. Die Impulsverteilung der Elektronen bei einer Einfachionisation ist in allen Richtungen wesentlich schmaler. In d) ist eine mit dem KFR-Matrixelement aus Abschnitt 4.2 berechnete Impulsverteilung für Neon bei der gleichen Intensität gezeigt.

Die ungefähre Position der Maxima in den Verteilungen wird bereits aus einer einfachen klassischen Betrachtung der Dynamik eines Elektrons im Laserfeld verständlich. Sie orientiert sich am “simple man’s model” (SMM) für die HHG und ATI (siehe Abschnitt 6.2): Dazu wird angenommen, dass die maximale Energie des zurückkehrenden Elektrons gerade ausreicht, um das zweite noch gebundene Elektron zu ionisieren. Im SMM (vergleiche Abschnitt 6.2) ist damit bereits der Rückstreuzeitpunkt festgelegt. Die maximale kinetische Energie $3.17U_P$ wird für eine Reisezeit $\omega(t_1 - t_0) = 4.085$ erreicht. Aus Gl. (6.21) ergibt sich der Rückkehrzeitpunkt $\omega t_1 = 5.97$. Zum Zeitpunkt t_1 starten beide Elektronen mit Geschwindigkeit Null im Laserfeld. Ihr Summenimpuls in Richtung der Polarisation des Laser ist damit ²

$$P_{\parallel} = 2|eA_0 \cos \omega t_1| = 4\sqrt{mU_P} |\cos \omega t_1|. \quad (13.15)$$

Senkrecht dazu ist der Impuls beider Elektronen identisch Null und damit auch ihr Summenimpuls. Näherungsweise kann man davon ausgehen, dass das Elektron gerade beim Nulldurchgang des elektrischen Feld zurückkehrt, so dass $\cos \omega t_1 = \pm 1$ ist. Daraus ergibt sich

$$P_{\parallel} = 4\sqrt{mU_P}; \quad (13.16)$$

mit der exakten Rückkehrzeit des SMM ergibt sich ein Faktor 3.8. Für den Fall von Abb. 13.1 ist der so abgeschätzte Impuls $P_{\parallel} = 5$ a.u. etwas größer als der Impuls $P_{\parallel} \approx 4$ a.u. am Maximum der Verteilung. Für einen anderen Ionisationsmechanismus, bei dem die Elektronen in etwa am Maximum des elektrischen Feldes starten, ist das Vektorpotenzial und damit der Driftimpuls gerade Null. So ergibt sich eine Impulsverteilung um Null, wie für die direkten Elektronen bei der Einfachionisation. Dies gilt gleichermaßen für den in der Literatur diskutierten Shake-Off Mechanismus [6] und die kollektive Tunnelionisation (CTI) [120]. Im sequentiellen Bereich der Doppelionisation sollten die Impulsverteilungen ähnlich wie in der Einfachionisation dicht um $\mathbf{P} = 0$ konzentriert sein. Dies wurde von beiden experimentellen Gruppen nachgewiesen [125, 126].

Aus dem Dichteplot ist ersichtlich, dass die Verteilung auch für $\mathbf{P}_{\perp} \neq 0$ entlang P_{\parallel} zwei ausgeprägte Maxima besitzt, die für zunehmenden Abstände $|\mathbf{P}_{\perp}|$ von der Symmetrieachse zu leicht höheren Werten von P_{\parallel} wandern. Bei $\mathbf{P}_{\perp} \approx 4$ a.u. liebt man z.B. für die

²für ein Vektorpotenzial $\hat{e}A_0 \cos \omega t$ ist der über eine Oszillationsperiode T des Laserfeldes gemittelte kinetische Impuls eines Elektrons mit Geschwindigkeit $\mathbf{v}(t_1)$ zum Startzeitpunkt t_1 durch $\langle m\dot{\mathbf{r}}(t) \rangle_T = -eA_0\hat{e}(\cos \omega t - \cos \omega t_1)_T + m\mathbf{v}(t_1) = eA_0\hat{e} \cos \omega t_1 + m\mathbf{v}(t_1)$ gegeben.

Position der Maxima $P_{\parallel} \approx 5$ a.u. ab. Dies ist wieder mit dem SMM zu verstehen. Bei den verwendeten Parametern ergibt sich die maximale Rückkehrenergie des zuerst ionisierten Elektrons zu $3.17U_P = 5.56$ a.u. Dies ist wesentlich größer als die Ionisationsenergie von $\text{Ne}^+ = 1.51$ a.u. Das Maximum der Verteilung auf der Achse $\mathbf{P}_{\perp} = 0$ liegt unter der SMM-Abschätzung (13.15) von 5 a.u. Ein zunehmender Driftimpuls \mathbf{P}_{\perp} vermindert die Startgeschwindigkeit der Elektronen in Richtung des Laserfeldes, so dass die Annahme verschwindender Startgeschwindigkeit in Richtung des Feldes immer besser gerechtfertigt ist. Aus der Energieerhaltung bei der Rückkehr

$$\frac{\mathbf{P}_{\perp}^2 + \mathbf{p}_{\perp}^2}{4m} + \frac{(p_{1\parallel} - eA(t_1))^2}{2m} + \frac{(p_{2\parallel} - A(t_1))^2}{2m} = E_{\text{back}} - |E_2| \quad (13.17)$$

ergibt sich für $\mathbf{P}_{\perp} = 4$ a.u. $E_{\text{back}} - |E_2| - \mathbf{P}_{\perp}^2/4m \approx 0$ und damit $p_{1\parallel} - eA(t_1) = p_{2\parallel} - eA(t_1) = 0$.

Eine Modellierung der 3-fach Ionisation analog zur hier besprochenen Doppelionisation ist einfach möglich. Unter der Annahme einer simultanen Ionisation von zwei noch gebundenen Elektronen bei der Rückkehr des ersten Elektrons ist in der Approximation der Wirkung die Bindungsenergie E_2 an die Summe der Bindungsenergien des zweiten und dritten Elektrons anzupassen. Zusätzlich ist für $t > t_1$ ein weiterer Term $-\int_{t_1}^{\infty} d\tau \epsilon_{\mathbf{p}_3}(\tau)$ in die Wirkung einzufügen. Eine klassische Abschätzung nach dem SMM für den Summenimpuls führt auf

$$P_{\parallel} = 3\sqrt{4mU_P} |\cos \omega t_1|. \quad (13.18)$$

Der Rückkehrzeitpunkt t_1 ergibt sich genauso wie für die Doppelionisation. In erster Näherung ist also $|\cos \omega t_1| = 1$. Nimmt man für die 3-fache Ionisation in Abb. 13.2 eine Intensität von $9.2 \cdot 10^{14}$ W/cm² an, so ergibt sich $P_{\parallel} = 8.5$ a.u. Die Maxima der gemessenen Verteilung liegen wie bei der Doppelionisation etwas unter der klassischen Abschätzung. Die Summe der zweiten und dritten Ionisationsenergie von Neon ist 3.84 a.u. Die ponderomotorische Energie für die angenommene Intensität beträgt 2 a.u., so dass die maximale Rückkehrenergie $3.17U_P$ des ersten Elektrons noch ausreicht, um zwei weitere Elektronen zu ionisieren. Für die Doppelionisation ist $\Delta E = 3.17U_P - |E_2| \approx 4$ a.u., im Falle der 3-fachen Ionisation dagegen $\Delta E = 3.17U_P - |E_2 + E_3| \approx 2.5$ a.u. Im Folgenden wird sich zeigen, dass für abnehmende Überschussenergie ΔE die Impulsverteilungen stärker um den klassischen Wert konzentriert sind. Dies ist bereits in den dargestellten gemessenen Ne^{3+} -Impulsverteilungen zu erkennen.

In Abb. 13.2 sind gemessene Impulsverteilungen von Neon-Ionen im nichtsequentiellen Intensitätsbereich gezeigt [77]. Im Experiment wurde der Impuls des Ions bestimmt. Da der Impuls der Photonen bei der verwendeten Frequenz $\hbar\omega = 0.057$ a.u. nur etwa $4.16 \cdot 10^{-4}$ a.u. beträgt, ist in guter Näherung der Summenimpuls der Elektronen identisch mit dem negativen Impuls des Ne^{2+} -Ions, so dass die Modellrechnung in Abb. 13.1 und die experimentellen Ergebnisse für die einfach und doppelt geladenen Ionen miteinander verglichen werden können. Die Übereinstimmung ist vor allem in Richtung der

Laserpolarisation sehr gut³. Die Maxima der Verteilungen liegen bei etwa $P_{\parallel} = 4$ a.u. und $P_{\perp} = 0$. Senkrecht dazu fallen die experimentellen Verteilungen schneller ab als die Ergebnisse der Modellrechnung. In dieser wurde von einer Kontaktwechselwirkung bei der Rückkehr ausgegangen. Eine Darstellung im Impulsraum zeigt, dass alle Impulse gleich gewichtet werden. Schon eine geringe Ausdehnung der Wechselwirkung auf einen kleinen Raumbereich um das Ion würde höhere Impulse weniger stark gewichten als niedrige. Dies käme einer Einführung eines Formfaktors gleich. Die Kontaktwechselwirkung überschätzt also die Breite der Verteilungen. Senkrecht zur Laserpolarisation wirkt sich dies, wegen der fehlenden Wechselwirkung mit dem Laserfeld, sehr viel stärker aus als in Richtung des Feldes.

In Abb. 13.3 sind die Verteilungen des Summenimpulses der ionisierten Elektronen in Feldrichtung für Helium, Neon und Argon und verschiedene Intensitäten verglichen. In der Abb. ist jeweils die zur Intensität proportionale ponderomotorische Energie angegeben. Sie nimmt von oben nach unten ab. Bei den beiden höchsten Intensitäten $6 \cdot 10^{14}$ W/cm² bzw. $3.7 \cdot 10^{14}$ W/cm² ist die kinetische Energie bei der Rückkehr $3.17U_P = 113.5$ eV bzw. $3.17U_P = 70.7$ eV deutlich größer als die Bindungsenergie des zweiten Elektrons ($|E_1| = 54.5$ eV, 41 eV und 27.6 eV für Helium, Neon und Argon). Die Maxima liegen wie im vorherigen Beispiel in Abb. 13.3 und den experimentellen Ergebnissen 13.2 etwas unter der klassischen Grenze von $4\sqrt{mU_P}$. Bei einer Intensität von $2 \cdot 10^{14}$ W/cm² ist für Helium und Neon die Rückkehrenergie bereits nicht mehr ausreichend, um das zweite Elektron zu ionisieren. Im Bild unten, bei der niedrigsten Intensität, reicht die Rückkehrenergie für keines der betrachteten Edelgase mehr zur Ionisation aus. Trotzdem findet man eine von Null verschiedene Rate für die Doppelionisation. Das noch gebundene Elektron kann nur durch Tunneln, unterstützt durch das zurückkehrende Elektron, ionisiert werden. Die maximale Rückkehrenergie wird zu einem Zeitpunkt erreicht, in dem das Feld nur etwa 31 % der maximalen Feldstärke erreicht, demzufolge fällt die Rate für die Doppelionisation an der klassischen Schwelle sehr stark ab. Für jedes Element sind in Abb. 13.3 die maximalen Raten in Klammern angegeben. Für Neon z.B. fällt die Rate von $3.4 \cdot 10^{-7}$ und $2.6 \cdot 10^{-8}$ über der Schwelle auf $4.2 \cdot 10^{-11}$ und $1.6 \cdot 10^{-20}$ unterhalb der Schwelle⁴. Das Verhalten ist dem Abfall der Rate im Spektrum der ATI-Elektronen oder der Harmonischen nach dem klassischen Cutoff von $10U_P$ bzw. $E_0 + 3.17U_P$ sehr ähnlich. Gleichzeitig nimmt die Breite der Verteilung für kleinere Überschussenergie ΔE von oben nach unten ab. Die Positionen der Maxima stimmen immer besser mit der klassischen Abschätzung $4\sqrt{mU_P}$ überein, da die Annahmen der Abschätzung immer besser erfüllt sind.

Für große negative Überschussenergie ΔE zeigen sich in den Impulsverteilungen regelmäßige starke Einbrüche. Dies ist durch den diskreten Energietransfer auf das Atom zu verstehen: Für die Impulsverteilungen des Summenimpulses wurde über das diskrete

³Die Modellrechnung ist für eine feste Intensität $8 \cdot 10^{14}$ W/cm² ausgeführt. Dagegen wurde im Experiment die Spitzenintensität im Fokus zunächst mit $1.3 \cdot 10^{15}$ W/cm² abgeschätzt. Ein Fit der Daten mit theoretischen Ergebnissen nach [127] ergibt eine Intensität von $9 \cdot 10^{14}$ W/cm² [128]. Für eine exaktere Simulation müsste man eine Intensitätsmittelung über den Laserfokus und möglicherweise auch über die Pulsdauer von etwa 30 fs durchführen.

⁴Die angegebenen Raten erlauben ausschließlich einen relativen Vergleich

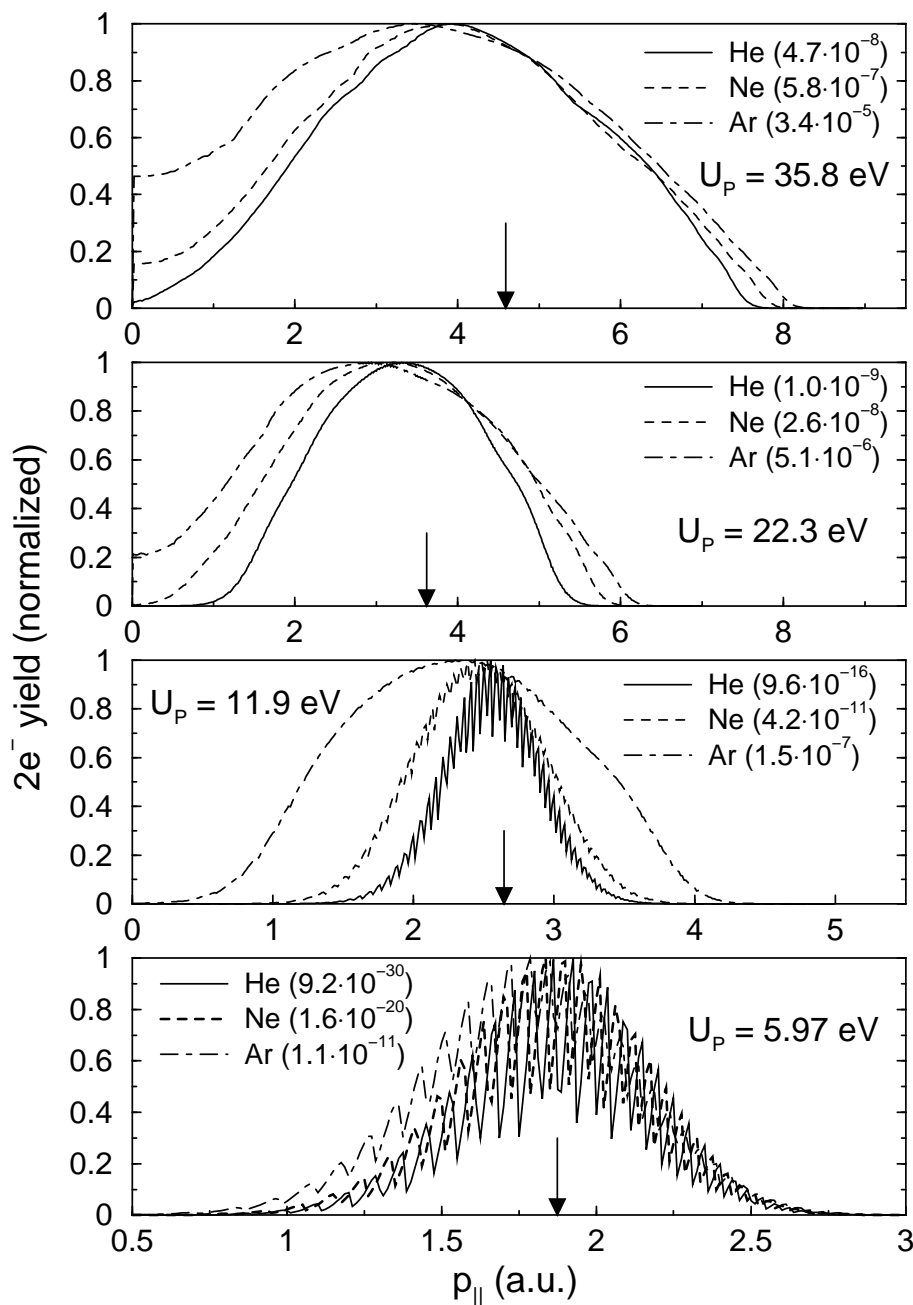


Abbildung 13.3: Verteilungen des Summenimpulses $P_{||}$ parallel zur Laserpolarisation bei $\mathbf{P}_{\perp} = 0$ für He, Ne und Ar. Aufgrund der Symmetrie um $P_{||} = 0$ sind die Verteilungen nur für $P_{||} \geq 0$ gezeigt. Von unten nach oben sind die Intensitäten $1.0, 2.0, 3.7$ und $6 \cdot 10^{14}$ W/cm². Die Pfeile markieren jeweils den Impuls von $3.8\sqrt{mU_p}$, dessen Bedeutung im Text erläutert wird.

Spektrum des Differenzimpulses integriert. Dabei ist die Deltafunktion mit dem Argument

$$\frac{\mathbf{p}^2}{4m} + \frac{\mathbf{P}^2}{4m} + 2U_P + |E_0| + |E_1| = \nu \hbar \omega \quad (13.19)$$

in Gl. (13.12) zu beachten. Sie drückt die Energieerhaltung zwischen Anfangs- und Endzustand nach Absorption von ν Photonen aus. Falls $\mathbf{P}^2/4m + 2U_P + |E_0| + |E_1| = k\hbar\omega$ ein ganzzahliges Vielfaches k der Photonenergie überschreitet, schließt sich der Ionisationskanal für k Photonen⁵. Die minimale Energie im Spektrum der Differenzimpulse springt gleichzeitig von Null auf $\hbar\omega$. Für $\Delta E < 0$ wird die Summe vom Beitrag des kleinsten Differenzimpulses dominiert. Dieser wird bei einem Channel-Closing stark unterdrückt, so dass sich Einbrüche im Summenimpuls zeigen.

Die Ergebnisse der Intensitätsabhängigkeit unter Annahme des einfachen Ionisationsmechanismus nach Kapitel 13 lassen sich kurz zusammenfassen:

Bei einer positiven Überschussenergie $\Delta E = E_{\text{back}} - E_2$ ist in Richtung der Laserpolarisation eine breite Verteilung der Summenimpulse mit zwei deutlichen Maxima zu finden. Für abnehmende Laserintensität konzentriert sich die Verteilung immer stärker um die klassischen Werte $\pm 3.8\sqrt{mU_P}$. Damit verschwindet gleichzeitig die Rate für kleine Summenimpulse vollständig.

In der Literatur ist die bisher einzige experimentelle Untersuchung der Intensitätsabhängigkeit der Summenimpulsverteilungen von der Gruppe in Frankfurt/Marburg für Helium ($2.9 - 6.6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$) [76] und Argon ($2.0 - 21 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$) [125] durchgeführt worden. Im nichtsequentiellen Bereich sind die Impulsverteilungen wesentlich schmaler als in der hier vorgestellten Modellrechnung. Allein für Helium findet sich bei der höchsten untersuchten Intensität von $6.6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ eine leichte Doppelpeakstruktur. Die Maxima liegen zwischen 1 und 2 a.u., nach der Modellrechnung Abb. 13.3 bei einer etwas niedrigeren Intensität $6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ dagegen bei 4 a.u. Die experimentellen Verteilungen sind für diesen Wert bereits auf Null abgefallen. Alle anderen Verteilungen besitzen kein Minimum um $\mathbf{P} = 0$, sie sind lediglich breiter als aus dem sequentiellen Prozess zu erwarten wäre. Die größere Diskrepanz liegt jedoch in der unterschiedlichen Intensitätsabhängigkeit. Im Modell wird die Doppelpeakstruktur für kleine Intensitäten wegen einer kleineren Überschussenergie ΔE ausgeprägter, im Experiment verschwindet sie. Aus Sicht der hier vorgestellten Modellierung des Rückstreumechanismus ist dies schwer zu erklären, deshalb wird in Kapitel 14 ein etwas anderer Mechanismus diskutiert, der zusätzlich bei der Rückkehr eine Anregung des noch gebundenen Elektrons ermöglicht. Es sei jedoch bemerkt, dass bisher unveröffentlichte Experimente an Argon der Freiburg/Berlin Gruppe, eine deutliche Doppelpeakstruktur für Argon bei einer Intensität $3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ finden [129].

Eine Rechnung auf Basis der Vielteilchen S-Matrix Theorie von Becker und Faisal [130] findet für eine Intensität $6.6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ bei Helium eine sehr gute Übereinstimmung mit dem Frankfurt/Marburg Experiment. Die Doppelpeakstruktur in Feldrichtung ist in

⁵dazu sei auf Abschnitt 9.2 über das Channel-Closing bei der Einfachionisation hingewiesen.

der S-Matrix Rechnung etwas stärker ausgeprägt. Senkrecht zur Laserpolarisation ist die Übereinstimmung sehr gut. Allerdings wurde die numerisch aufwendige Rechnung [130] nur für eine Intensität und nur für Helium ausgeführt. Gleichzeitig wird mit dem einzigen Fall einer Doppelpeakstruktur in den Experimenten der Frankfurt/Marburg Gruppe verglichen. Neue, noch nicht veröffentlichte Berechnungen [131], in denen wie bei Becker und Faisal eine Coulombwechselwirkung zwischen den Elektronen zur ‘‘Rückkehrzeit’’ berücksichtigt wird, weisen jedoch darauf hin, dass auch damit die experimentell gefundene Intensitätsabhängigkeit nicht zu erklären ist. Darüberhinaus ergibt ein Vergleich mit dem Neon Experiment der Freiburg/Berlin Gruppe [77] eine wesentlich schlechtere Übereinstimmung als der hier gezeigte Vergleich. Sowohl in [130] und [131] wird von einem Matrixelement

$$M_{\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2} \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_0 \int d^3\mathbf{k} \left\langle \psi_{\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2}^{(V)} \left| H_{ee} \right| \psi_{\mathbf{k}}^{(V)}(t_1) \phi_+(t_1) \right\rangle \times \\ \times \left\langle \psi_{\mathbf{k}}^{(V)}(t_0) \phi_+(t_0) \left| H_I(t_0) \right| \phi_0(t_0) \right\rangle \quad (13.20)$$

ausgegangen. Darin bezeichnet der Endzustand $|\psi_{\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2}^{(V)}\rangle$ einen Produktzustand aus zwei Volkovzuständen mit Impuls \mathbf{p}_1 und \mathbf{p}_2 , der Zwischenzustand $|\psi_{\mathbf{k}}^{(V)}(t)\phi_+(t)\rangle$ ein Produkt aus einem Volkovzustand mit Impuls \mathbf{k} und einem gebundenen Zustand des Ions zur Zeit t_1 und t_0 und schließlich $|\phi_0(t_0)\rangle$ den Zweiteilchen Grundzustand des Modelatoms ohne Laserfeld. Zur Rückkehrzeit t_1 ist einzig die Elektron-Elektron Korrelation $\langle \mathbf{r}_1 | H_{ee} | \mathbf{r}_2 \rangle = e^2/|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|$ berücksichtigt. H_I bezeichnet die Wechselwirkung *eines* Elektrons mit dem Laserfeld⁶. In [130] wird $H_I = -\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{A}(t_0)$ angenommen, in [131] dagegen $H_I = e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t_0)$. In der weiteren Auswertung der Integrationen finden sich ebenso Unterschiede. Die Ergebnisse stimmen jedoch für den von [130] behandelten Fall (He, $6.6 \cdot 10^{14}$ W/cm²) überein. In [131] wird außerdem mit dem Neon Experiment verglichen und eine mögliche Anregung zur Zeit t_1 berücksichtigt. Die Übereinstimmung mit dem Neon Experiment ist sehr viel schlechter als der Vergleich mit dem hier vorgestellten Modell einer Kontaktwechselwirkung.

Voll differentielles Spektrum

Um einen genaueren Einblick in den hier vorgestellten Ionisationsmechanismus zu gewinnen, sollen zum Schluss noch die differentiellen Spektren der einzelnen Elektronen kurz diskutiert werden. Das Matrixelement (13.12) hängt nur über die Deltafunktion

$$\delta(2U_P + |E_0| + |E_1| + \frac{1}{4m}(\mathbf{P}^2 + \mathbf{p}^2) - \nu\omega) \quad (13.21)$$

vom Differenzimpuls der beiden ionisierten Elektronen ab. Für einen gegebenen Summenimpuls \mathbf{P} ist die Verteilung der Differenzimpulse \mathbf{p} damit isotrop. Für die Berechnung

⁶in der Vielteilchen S-Matrix Theorie von Becker und Faisal wird diese Kombination als führender Term in der Entwicklung nach allen in den Wellenfunktionen nicht berücksichtigten Wechselwirkungen bezeichnet [130].

der Summenimpulsverteilung wurde im Vorangegangenen jeweils über das Spektrum des Differenzimpulses summiert. Nun sollen die größten Beiträge zum totalen Ionisationsmatrixelement im \mathbf{P}, \mathbf{p} -Raum identifiziert werden. Dazu wird von einigen Symmetrien Gebrauch gemacht, um den darzustellenden Raum auf eine geringere Zahl von Dimensionen zu reduzieren. Das Matrixelement hängt nur von drei Parametern ab: Vom Betrag des Summenimpulses $|\mathbf{P}|$, vom Winkel zwischen \mathbf{P} und der Polarisation $\hat{\mathbf{e}}$ des Laserfeldes und vom Betrag des Differenzimpulses $|\mathbf{p}|$. Für die größten 10% aller Matrixelemente in diesem Raum ist in Abb. 13.4 der Summenimpuls (Punkte) und der Betrag des Differenzimpulses (Kreise) in der von \mathbf{P} und $\hat{\mathbf{e}}$ aufgespannten Ebene grau dargestellt. Die Summenimpulse liegen rotationssymmetrisch um $p_{\perp} = 0$. Um jeden Summenimpuls auf diesem so gegebenen Ring um die Laserpolarisation ist auf einer Kugeloberfläche mit Radius $|\mathbf{p}|$ das Matrixelement gleich groß, in der von \mathbf{P} und $\hat{\mathbf{e}}$ aufgespannten Ebene also auf einem Kreis. Die jeweiligen Einzelimpulse $\mathbf{p}_1 = (\mathbf{P} + \mathbf{p})/2$ und $\mathbf{p}_2 = (\mathbf{P} - \mathbf{p})/2$ liegen jeweils auf der Kugeloberfläche bzw. dem Kreis genau entgegengesetzt. Sie sind für einen herausgegriffenen Fall schwarz eingezeichnet. Der größte Beitrag bei der Integration über \mathbf{p} kommt wegen der Integration auf einer Kugelschale hauptsächlich von Beiträgen für die $|\mathbf{p}_1| \approx |\mathbf{p}_2|$ ist. Die beiden Elektronen bewegen sich also in etwas unterschiedliche Richtungen, relativ zur Polarisation $\hat{\mathbf{e}}$ des Lasers aber in fast allen dargestellten Fällen in die gleiche Richtung. Dieses Ergebnis wird sehr gut durch eine Messung der Impulsverteilungen der einzelnen Impulse der Elektronen in Richtung der Laserpolarisation bestätigt [78]. Dazu wurde über alle Impulse senkrecht zur Laserpolarisation summiert. Für die kleineren Volumenelemente, bei denen die Impulse in die gleiche Richtung zeigen, ist ihr Betrag sehr unterschiedlich. Die Elektronen entfernen sich also sehr schnell voneinander. Die angenommene Vernachlässigung des gegenseitigen Abstoßung der beiden Elektronen untereinander ist so durchaus gerechtfertigt. Im Großen und Ganzen wird die gegenseitige Abstoßung die Kugelschale um den Summenimpuls \mathbf{P} geringfügig vergrößern.

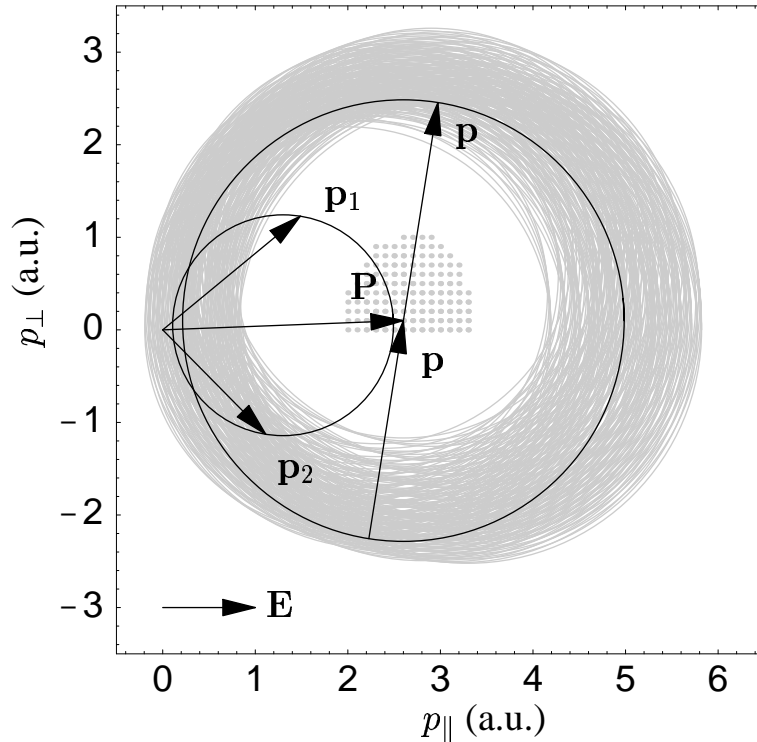


Abbildung 13.4: Mögliche Impulse der beiden ionisierten Elektronen $\mathbf{p}_{1,2}$ parallel und senkrecht zum Feldvektor \mathbf{E} des Laser. Für festen Summenimpuls \mathbf{P} ist die Verteilung der Differenzimpulse \mathbf{p} isotrop. Die möglichen Impulse $\mathbf{p}_{1,2} = \frac{1}{2}(\mathbf{P} \pm \mathbf{p})$ der Elektronen liegen damit auf einer Kugeloberfläche um $\mathbf{P}/2$ mit Radius $|\mathbf{p}|/2$, in der durch \mathbf{E} und \mathbf{P} aufgespannten Ebene also auf einem Kreis. Die Summen- und Differenzimpulse, für die das Matrixelement 90% des maximalen Matrixelements überschreitet, sind durch graue Punkte und Kreise angedeutet. Die Rechnung ist für Argon bei einer Intensität von $3.7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und einer Photonenergie $\hbar\omega = 0.057 \text{ a.u.}$ ausgeführt (vgl. Abb. 13.3 für die Summenimpulsverteilung).

Kapitel 14

Verzögerte Ionisation nach Anregung

14.1 Formulierung des Matrixelements

Im Folgenden wird ein etwas anderer Ionisationsmechanismus in Betracht gezogen, um der Diskrepanz zwischen der Modellrechnung des letzten Abschnitts und den experimentellen Ergebnissen an Helium und Argon nachzugehen. Bis zur Rückkehr des zuerst ionisierten Elektrons zur Zeit t_1 soll der Prozess wie im Szenario von Abschnitt 13 verlaufen. Zum Startzeitpunkt t_0 wird also wieder der vom Laserfeld unbeeinflusste korrelierte gebundene Zweiteilchenzustand durch eine Kontaktwechselwirkung in einen unkorrelierten Zwischenzustand versetzt. Dieser ist als Produkt eines vom Laserfeld unbeeinflussten stark am Ion gebundenen Elektrons und eines vom Ion unbeeinflussten freien Elektrons (Volkovzustand) realisiert. Zur Rückkehrzeit t_1 gelangt genauso wie Kapitel 13 ein Elektron in einen Volkovzustand mit dem vorgegebenen Driftimpuls \mathbf{p}_1 . Das zweite Elektron soll jedoch zunächst in einen angeregten quasigebundenen Zustand des Ions mit Bindungsenergie E_1^* übergehen und erst zu einer Zeit $t_2 \geq t_1$ in einen Volkovzustand mit dem gegebenen Driftimpuls \mathbf{p}_2 gelangen.

Das Matrixelement enthält aufgrund dieser neu eingeführten Stufe im Ionisationsprozess eine zusätzliche Zeitintegration,

$$M_{\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2} \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_0 \int d^3\mathbf{k} \exp \frac{i}{\hbar} S(t_2, t_1, t_0, \mathbf{k}). \quad (14.1)$$

Die Approximation an die Wirkung ist durch

$$\begin{aligned} S(t_2, t_1, t_0, \mathbf{k}) = & -\frac{1}{2m} \int_{t_2}^{\infty} d\tau [\mathbf{p}_2 - e\mathbf{A}(\tau)]^2 - E_1^*(t_2 - t_1) \\ & - \frac{1}{2m} \int_{t_1}^{\infty} d\tau [\mathbf{p}_1 - e\mathbf{A}(\tau)]^2 - E_1 t_1 - \frac{1}{2m} \int_{t_0}^{t_1} d\tau [\mathbf{k} - e\mathbf{A}(\tau)]^2 - E_0 t_0 \end{aligned} \quad (14.2)$$

gegeben. Nach Integration über den kanonischen Impuls \mathbf{k} ergibt sich

$$(2\pi\hbar)^{3/2} \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_0 \left(\frac{-im}{t_1 - t_0} \right)^{3/2} \times \\ \times \exp i \left\{ -\frac{1}{2m} \int_{t_2}^{\infty} d\tau [\mathbf{p}_2 - e\mathbf{A}(\tau)]^2 - E_1^* t_2 (t_2 - t_1) - \frac{1}{2m} \int_{t_1}^{\infty} d\tau [\mathbf{p}_1 - e\mathbf{A}(\tau)]^2 - \right. \\ \left. - E_1 t_1 - \frac{e^2}{2m} \int_{t_0}^{t_1} d\tau \left[\frac{1}{t_1 - t_0} \int_{t_0}^{t_1} d\sigma \mathbf{A}(\sigma) - \mathbf{A}(\tau) \right]^2 - E_0 t_0 \right\}. \quad (14.3)$$

Lineare Polarisation

Für den Fall eines linear polarisierten Laserfeldes, das durch ein Vektorpotenzial $\mathbf{A}(t) = \mathbf{A}_0 \cos(\omega t)$ gegeben sein soll, wird dies weiter ausgewertet. Das Ergebnis ist in Gl. (14.12) angegeben.

Nach einer Transformation der Integrationsvariablen

$$\omega t_2 = \varsigma, \quad \omega(t_2 - t_1) = \sigma, \quad \text{und} \quad \omega(t_1 - t_0) = \tau \quad (14.4)$$

ergibt sich das Matricelement zu

$$\left(\frac{2\pi\hbar}{\omega} \right)^{3/2} \int_{-\infty}^{\infty} d\varsigma \int_0^{\infty} d\sigma \int_0^{\infty} d\tau \left(\frac{m}{i\tau} \right)^{3/2} \exp i \left\{ \left(2U_P + \frac{\mathbf{p}_1^2 + \mathbf{p}_2^2}{2m} - E_0 - E_1 \right) \frac{\varsigma}{\hbar\omega} \right. \\ \left. - \left(U_P + \frac{\mathbf{p}_1^2}{2m} - E_0 - (E_1 - E_1^*) \right) \frac{\sigma}{\hbar\omega} - \left(\eta - \frac{E_0}{\hbar\omega} \right) \tau + \frac{4\eta \sin^2 \frac{\tau}{2}}{\tau} \right. \\ \left. + \boldsymbol{\alpha}_0 \cdot \mathbf{f}(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \sigma) \sin[\varsigma + \phi(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \sigma)] + \eta g(\tau, \sigma) \cos[2\varsigma + \gamma(\tau, \sigma)] \right\}. \quad (14.5)$$

Dabei sind die reellen Funktionen $g(\tau, \sigma)$, $\gamma(\tau, \sigma)$, $\mathbf{f}(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \sigma)$ und $\phi(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \sigma)$ implizit durch

$$\mathbf{p}_2 + e^{i\sigma} \mathbf{p}_1 = e^{-i\phi(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \sigma)} \mathbf{f}(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \sigma) \quad (14.6)$$

$$\frac{1}{2} + \left[\frac{1}{2} + i e^{-i\tau} \left(\frac{4 \sin^2 \frac{\tau}{2}}{\tau} - \sin \tau \right) \right] e^{-2i\sigma} = g(\tau, \sigma) e^{i\gamma(\tau, \sigma)} \quad (14.7)$$

gegeben. Nun wird wie in Kapitel 13 die Identität (13.10) benutzt um die letzten beiden Terme im Exponenten in Besselfunktionen zu entwickeln. Damit ist die Integration über ς ausführbar. Man erhält die gleiche Deltafunktion wie bereits in Kapitel 13. Das

Matricelement wird so zu

$$\begin{aligned} & \frac{(2\pi\hbar)^{5/2}}{\omega^{1/2}} \sum_{\nu, l=-\infty}^{\infty} \delta\left(2U_P + \frac{\mathbf{p}_1^2 + \mathbf{p}_2^2}{2m} - E_0 - E_1 - \nu\omega\right) \int_0^{\infty} d\sigma \int_0^{\infty} d\tau \left(\frac{m}{i\tau}\right)^{3/2} \\ & \exp i \left\{ - \left[U_P + \frac{\mathbf{p}_1^2}{2m} - E_0 - (E_1 - E_1^*) \right] \frac{\sigma}{\hbar\omega} - \left(\eta - \frac{E_0}{\hbar\omega} \right) \tau + \frac{4\eta \sin^2 \frac{\tau}{2}}{\tau} - \right. \\ & \left. - (\nu + 2l)\phi(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \sigma) + l\gamma(\tau, \sigma) \right\} (-1)^\nu J_{\nu+2l}[\boldsymbol{\alpha}_0 \cdot \mathbf{f}(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \sigma)] J_l[\eta g(\tau, \sigma)]. \quad (14.8) \end{aligned}$$

Die Funktionen $g(\tau, \sigma)$ und $\gamma(\tau, \sigma)$ sowie $\mathbf{f}(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \sigma)$ und $\phi(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \sigma)$ sind periodisch in σ mit der Periode 2π . Die Integration über σ kann damit auf eine Integration von 0 bis 2π reduziert werden. Dabei entsteht eine geometrische Reihe, die aufsummiert wird. Das Matricelement wird zu

$$\begin{aligned} & \frac{(2\pi\hbar)^{5/2}}{\omega^{1/2}} \sum_{\nu=-\infty}^{\infty} (-1)^\nu \delta\left(2U_P + \frac{\mathbf{p}_1^2 + \mathbf{p}_2^2}{2m} - E_0 - E_1 - \nu\hbar\omega\right) \times \\ & \times \left\{ 1 - \exp i \frac{2\pi}{\hbar\omega} \left[E_0 + (E_1 - E_1^*) - U_P - \frac{\mathbf{p}_1^2}{2m} \right] \right\}^{-1} \sum_{l=-\infty}^{\infty} \int_0^{2\pi} d\sigma J_{\nu+2l}[\boldsymbol{\alpha}_0 \cdot \mathbf{f}(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \sigma)] \times \\ & \times \exp i \left\{ - \left[U_P + \frac{\mathbf{p}_1^2}{2m} - E_0 - (E_1 - E_1^*) \right] \frac{\sigma}{\hbar\omega} - (\nu + 2l)\phi(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \sigma) \right\} \times \\ & \times \int_0^{\infty} d\tau \left(\frac{im}{\tau}\right)^{3/2} \exp i \left[\left(\frac{E_0}{\hbar\omega} - \eta \right) \tau + \frac{4\eta \sin^2 \frac{\tau}{2}}{\tau} + l\gamma(\tau, \sigma) \right] J_l[\eta g(\tau, \sigma)]. \quad (14.9) \end{aligned}$$

Für eine numerische Berechnung des Integrals über τ ist wie in Kapitel 13 eine Regularisierung für $\tau \rightarrow 0$ notwendig. Für $\tau \ll 1$ ist

$$\begin{aligned} & \exp i \left[\left(\frac{E_0}{\hbar\omega} - \eta \right) \tau + \frac{4\eta \sin^2 \frac{\tau}{2}}{\tau} + l\gamma(\tau, \sigma) \right] J_l[\eta g(\tau, \sigma)] \\ & \approx \exp i \left(\frac{E_0}{\hbar\omega} \tau - l\sigma \right) J_l(\eta \cos \sigma). \quad (14.10) \end{aligned}$$

Verwendet man

$$\int_0^{\infty} \frac{d\tau}{\tau^{3/2}} \exp i \left(\frac{E_0 \tau}{\hbar\omega} \right) = -(1+i) \sqrt{\frac{2\pi|E_0|}{\hbar\omega}}, \quad (14.11)$$

so ist das Matrixelement schließlich auf die numerisch auswertbare Form

$$\begin{aligned}
M_{\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2} = & \frac{(2\pi\hbar)^{5/2}}{\omega^{1/2}} \sum_{\nu=-\infty}^{\infty} (-1)^\nu \delta \left(2U_P + \frac{\mathbf{p}_1^2 + \mathbf{p}_2^2}{2m} - E_0 - E_1 - \nu\hbar\omega \right) \times \\
& \times \left\{ 1 - \exp i \frac{2\pi}{\hbar\omega} \left[E_0 + (E_1 - E_1^*) - U_P - \frac{\mathbf{p}_1^2}{2m} \right] \right\}^{-1} \sum_{l=-\infty}^{\infty} \int_0^{2\pi} d\sigma J_{\nu+2l} [\boldsymbol{\alpha}_0 \cdot \mathbf{f}(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \sigma)] \times \\
& \times \exp i \left\{ - \left[U_P + \frac{\mathbf{p}_1^2}{2m} - E_0 - (E_1 - E_1^*) \right] \frac{\sigma}{\hbar\omega} - (\nu + 2l)\phi(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2, \sigma) \right\} \times \\
& \times \left(\int_0^\infty d\tau \left(\frac{m}{i\tau} \right)^{3/2} \exp i \frac{E_0 \tau}{\hbar\omega} \left\{ \exp i \left[\frac{4\eta \sin^2 \frac{\tau}{2}}{\tau} - \eta\tau + l\gamma(\tau, \sigma) \right] J_l[\eta g(\tau, \sigma)] - \right. \right. \\
& \left. \left. - e^{-il\sigma} J_l(\eta \cos \sigma) \right\} - (1+i) \sqrt{\frac{2\pi|E_0|}{\hbar\omega}} e^{-il\sigma} J_l(\eta \cos \sigma) \right) \quad (14.12)
\end{aligned}$$

gebracht. Der Faktor

$$\left\{ 1 - \exp i \frac{2\pi}{\hbar\omega} \left[E_0 + (E_1 - E_1^*) - U_P - \frac{\mathbf{p}_1^2}{2m} \right] \right\}^{-1} \quad (14.13)$$

divergiert für

$$\left[E_0 - \left(U_P + \frac{\mathbf{p}_1^2}{2m} \right) + (E_1 - E_1^*) \right] = k\hbar\omega \quad (14.14)$$

mit ganzzahligem k . \mathbf{p}_1 bezeichnet den Impuls des zuerst ionisierten Elektrons zur Zeit t_1 . Im Laserfeld besitzt es die Energie $\mathbf{p}_1^2/2m + U_P$. Absorbiert das Atom bis zur Zeit t_1 genau k Photonen, so ist der Übergang des noch gebundenen Elektrons in den angeregten Zustand resonant. Da kurze Zeit später ($t_2 \geq t_1$) auch das noch gebundene Elektron ionisiert wird, besitzt der Zustand E_1^* eine gewisse Breite, die durch einen positiven Imaginärteil von E_1^* eingeführt werden kann.

Das Matrixelement (14.12) wurde unter der Annahme eines komplexeren Ionisationsmechanismus als in Kapitel 13 abgeleitet. Demzufolge muss bei der Rückkehr des ersten Elektrons zur Zeit t_1 das noch gebundene Elektron nicht sofort ionisiert werden, sondern kann zunächst erst angeregt werden, um erst später zur Zeit $t_2 \geq t_1$ zu ionisieren. Im Grenzfall $t_2 = t_1$ ergibt sich der einfachere Ionisationsmechanismus von Kapitel 13. Gl. (14.12) wird für $\sigma = \omega(t_2 - t_1) = 0$ identisch mit dem Ergebnis (13.12). Die mögliche spätere Ionisation des angeregten Elektrons zur Zeit t_2 ist für ein Maximum des Laserfeldes am größten. Die maximale Rückkehrenergie wird kurz vor dem Nulldurchgang des Laserfeldes erreicht ($\omega t_1 = 5.97$). Für nicht ausreichende Rückkehrenergie oder kleine Überschussenergie ΔE ist zur Zeit $\omega t_1 = 5.97$ die höchstmögliche Anregung des gebundenen Elektrons möglich. Wird es anschließend ionisiert, kurz bevor das elektrische Feld wieder ein Maximum erreicht, so ist das Vektorpotenzial bereits niedriger als zur Zeit t_1 und damit auch der Driftimpuls des zuletzt ionisierten Elektrons. Gleichzeitig wird es in

die gleiche Richtung emittiert wie das erste Elektron, da das Vektorpotenzial sein Vorzeichen in diesem Zeitraum nicht ändert. Damit sind kleinere Summenimpulse denkbar. Im folgenden Abschnitt wird das hier abgeleitete Matrixelement in einer Raumdimension ausgewertet. Für hinreichend hohe Anregungsenergie werden Summenimpulse um Null möglich.

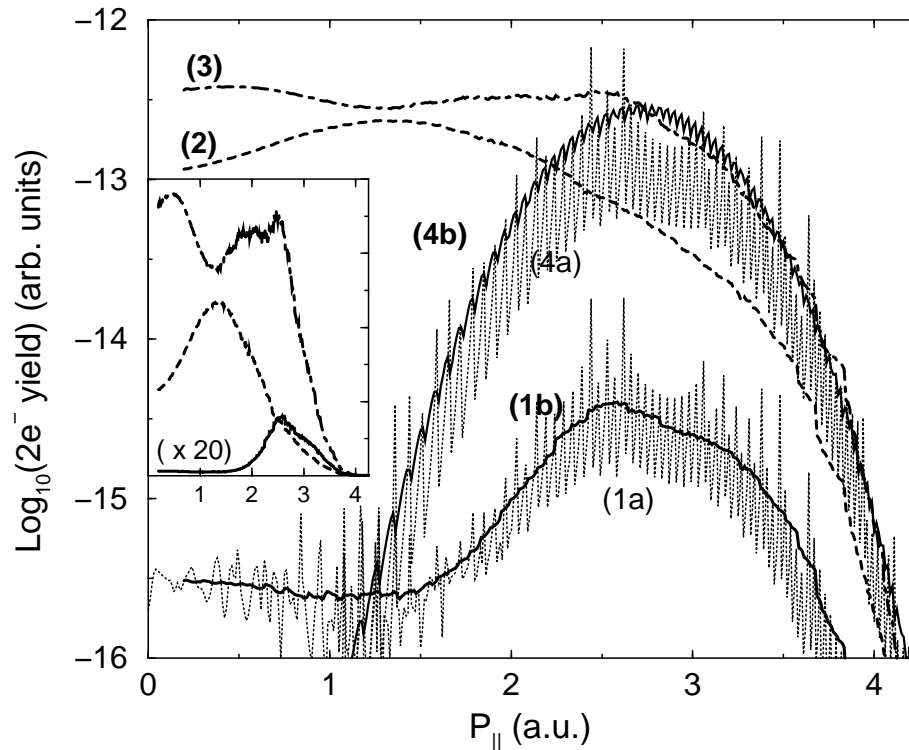


Abbildung 14.1: Verteilung der Summenimpulse bei der Doppelionisation von Helium bei einer Intensität von $2.34 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ auf logarithmischer Skala. Es wurde angenommen, dass das zurückkehrende Elektron das zweite noch gebundene Elektron in einen angeregten Zustand mit Bindungsenergie E_1^* hebt, aus dem es später ionisiert wird. Die Kurven (1) bis (3) entsprechen unterschiedlichen Bindungsenergien des angeregten Zustands $E_1^* = -0.5, -0.22, -0.125 \text{ a.u.}$ Die Berechnung für die Ergebnisse (1)-(3) und (4a) wurden in einer Dimension durchgeführt. Die starken Einbrüche durch Channel-Closings sind in einer Dimension sehr viel ausgeprägter. Die Kurven (1b), (2) und (3) sind deshalb geglättet. Die Kurve (4a) zeigt zum Vergleich die Verteilung bei unmittelbarer Ionisation des noch gebundenen Elektrons. Die Kurve (4b) ist das entsprechende Ergebnis in drei Dimensionen. Der Inset gibt die Verteilungen (1b), (2) und (3) auf linearer Skala wieder.

14.2 Ergebnisse einer eindimensionalen Auswertung

In Abb. 14.1 sind die Ergebnisse einer eindimensionalen Berechnung des Matrixelements (14.12) für Helium bei einer Intensität von $2.34 \cdot 10^{14}$ W/cm² dargestellt. Die Intensität ist etwas geringer als die niedrigste betrachtete Spitzenintensität in [76]. Die maximale Rückkehrenergie $3.17U_P = 44.4$ eV ist bereits niedriger als das Ionisationspotenzial von He⁺ ($I_P(\text{He}^+) = 54.4$ eV). Für diesen Fall erwartet man, dass eine Anregung bei der Rückkehr wichtig wird. Wegen der Symmetrie um $P = 0$ ist die Summenimpulsverteilung nur für $P = p_1 + p_2 \geq 0$ dargestellt. Über das Differenzimpulsspektrum wurde integriert. Die Kurven (1), (2) und (3) zeigen das Ergebnis für die drei niedrigsten Anregungsenergien von He⁺. Die Kurve (4) zeigt zum Vergleich die Impulsverteilung für den Fall ohne Anregung. Die Berechnung in drei Dimensionen (4b) stimmt weitgehend mit dem Ergebnis in nur einer Dimension (4a) überein¹.

Ohne Anregung besitzt die eindimensionale Rechnung (Kurve 4a) ein Maximum bei $P_{\parallel} \approx 2.5$ a.u., die dreidimensionale (Kurve 4b) bei dem aus der klassischen Betrachtung von Abschnitt 13 erwarteten Impuls von $3.8\sqrt{mU_P} = 2.7$ a.u. Auf logarithmischer Skala fällt die Rate um das Maximum annähernd parabelförmig ab. Für Impulse kleiner 1.5 a.u ist die Rate bereits um mehr als zwei Größenordnungen kleiner als am Maximum. Für den niedrigsten angeregten Zustand von He⁺ mit einer Energie von $E_1^* = -0.5$ a.u. (Kurve 1) wird für $P_{\parallel} \lesssim 1.5$ a.u die Verteilung auf logarithmischer Skala flach. Das ausgeprägte Maximum liegt aber weiter bei ca. 2.5 a.u. Für $P_{\parallel} > 1.5$ a.u unterscheiden sich bis auf einen konstanten Faktor das Szenario ohne Anregung und mit Anregung nicht. Dies ist nicht verwunderlich, da für $t_2 - t_0 \rightarrow 0$ der Mechanismus mit Anregung den ohne Anregung enthält. Die relative Gewichtung wird im wesentlichen durch den Imaginärteil der Anregungsenergie E_1^* bestimmt. Für die Ergebnisse von Abb. 14.1 wurde für alle angeregten Zustände ein konstanter Imaginärteil $\text{Im } E_1^* = 5.7 \cdot 10^{-3}$ a.u. angenommen. Für den nächst höheren angeregten Zustand verschiebt sich das Maximum deutlich zu kleineren Impulsen auf 1.4 a.u. Der Anregungsmechanismus spielt jetzt eine gewichtige Rolle. Für den höchsten betrachteten angeregten Zustand (Kurve 3) ist die Verteilung bis zu einem Impuls von 2.5 a.u. weitgehend flach und fällt dann stark ab. Im Inset der Abbildung sind die Kurven (1) bis (3) auf linearer Skala wiedergegeben.

¹In der eindimensionalen Rechnung sind die Channel-Closings sehr viel ausgeprägter als in drei Dimensionen. Dies liegt an dem divergenten Phasenraumfaktor $dp = dE/m\sqrt{2mE}$ bei $E = p^2/2m = 0$ in einer Dimension gegenüber $4\pi m dE\sqrt{2mE}$ in drei Dimensionen.

Kapitel 15

Zusammenfassung

In Teil II wurden mögliche Approximationen der S-Matrix für einen vorgegebenen Mechanismus der nichtsequentiellen Doppelionisation (NSDI) angegeben, die es erlauben, Aussagen über die daraus resultierenden differentiellen Elektranspektren zu machen.

Die Frage nach dem Ionisationsmechanismus bei der NSDI für den Fall von kleinen Photonenergien, die eine direkte Multiphotonionisation ausschließen, wurde in den letzten Jahren kontrovers diskutiert. Dabei zeigte sich, dass allein die Messung von totalen Ionisationsraten als Funktion der Intensität nicht ausreicht, um einen konkreten Mechanismus zu identifizieren. Die vor kurzem möglich gewordene experimentelle Bestimmung von differentiellen Elektron- und Ionspektren macht einen Test der vorgeschlagenen Mechanismen möglich.

Ein von Corkum vorgeschlagener Mechanismus erlaubt eine gemeinsame Beschreibung der Erzeugung hoher Harmonischer (HHG), der Above-Threshold Ionisation (ATI) und der NSDI. Das Modell unterteilt den Ionisationsprozess in drei Stufen: In einem ersten Schritt wird aus dem Atom zunächst ein Elektron durch das Laserfeld ionisiert. Aufgrund des oszillierenden Laserfeldes kann das nun freie mit dem Feld oszillierende Elektron in einem zweiten Schritt wieder zurück zum Ion gelangen. Die kinetische Energie des Elektrons kann zu dem Zeitpunkt, an dem es wieder an der Position des Ions angelangt ist bis zu $3.17U_P$ betragen. Im dritten Schritt kann es mit dem Ion auf verschiedene Weise wechselwirken. Es kann

- durch Emission eines Photons wieder in einen gebundenen Zustand des Atoms übergehen (HHG) oder
- elastisch am Potenzial des Ions gestreut werden und dabei bei einer Rückstreuung eine maximale Driftenergie von $10 U_P$ erreichen (HATI) oder
- durch eine inelastische Streuung ein weiteres noch im Ion gebundenes Elektron ionisieren.

In Kapitel 13 wurde ein einfache quantenmechanische Modellierung dieser dritten Möglichkeit vorgenommen. Dabei wurden alle Wechselwirkungen, also die Ionisation des

ersten Elektrons zu einer Zeit t_0 und die inelastische Streuung zur Zeit $t_1 \geq t_0$ durch Kontaktwechselwirkungen approximiert. Die Zwischenzustände eines freien Elektrons bzw. eines gebundenen Elektrons wurden in Verallgemeinerung der KFR-Approximation entweder als Volkovzustände oder als ungestörte Bindungszustände approximiert. Wie im verallgemeinerten KFR-Matrixelement zur ATI und dem Lewenstein-Modell zur HHG geht damit in die Berechnung des Spektrums im wesentlichen eine Approximation an die Wirkung ein.

Die Modellierung ist bis auf die angenommenen Kontaktwechselwirkungen ähnlich der von Becker und Faisal entwickelten Theorie. Eine Approximation der S-Matrix im Sinne einer Keldysh-Näherung, wie sie z.B. in Kapitel 4 im ersten Teil dieser Arbeit für ein aktives Elektron durchgeführt wurde, ist für mehrere aktive Teilchen sehr viel schwieriger und keineswegs eindeutig. Sie führt auf eine Vielzahl von Termen, die im Prinzip alle gegeneinander abgeschätzt werden müssen.

Nach der Formulierung der Approximation am Anfang von Kapitel 13 wurde ein Vergleich mit den derzeit vorhandenen experimentellen Daten angestellt. Die bisher veröffentlichten Daten beschränken sich hauptsächlich auf die Impulsverteilungen der Ionen. Es findet sich eine sehr gute Übereinstimmung mit Experimenten an Neon bei hoher Intensität. Die kinetische Energie des zurückkehrenden Elektrons reicht dabei aus, um ein Elektron im Grundzustand zu ionisieren. Eine Untersuchung der Intensitätsabhängigkeit ergibt jedoch eine Diskrepanz zu den Messungen an Argon und Helium, die bei etwas niedrigerer Intensität durchgeführt wurden. Die experimentellen Impulsverteilungen der Ionen sind insgesamt viel schmaler als die Ergebnisse der Modellierung. Eine ganz wesentliche Diskrepanz ist jedoch eine unterschiedliche Intensitätsabhängigkeit: In der Modellierung ergibt sich für niedrigere Intensität, und damit kleinere maximale kinetische Energie des zurückkommenden Elektrons, eine immer schärfere Impulsverteilung der Ionen um einen von Null verschiedenen Driftimpuls, der sich klassisch aus der Annahme berechnen lässt, dass das Ion bei verschwindendem elektrischen Feld des Lasers erzeugt wird. In den Experimenten wird für kleinere Intensitäten dagegen sehr schnell auch ein Driftimpuls um Null wahrscheinlich.

Um diese Diskrepanz zu erklären, wurde in Kapitel 14 eine etwas andere Approximation der S-Matrix diskutiert, die vor allem für niedrigere Intensitäten von Bedeutung sein sollte. Ist die kinetische Energie des zurückkommenden Elektrons nicht ausreichend oder gerade eben ausreichend, um ein noch gebundenes Elektron zu ionisieren, so ist eine Anregung des noch gebundenen Elektrons und eine darauf folgende Ionisation am Maximum des Feldes wahrscheinlich. Dieser um eine Anregung modifizierte Mechanismus ermöglicht kleinere Driftenergien des Ions. Am Ende von Kapitel 14 wird für eine eindimensionale Betrachtung die Impulsverteilung der Ionen für verschiedene Anregungsenergien abgeschätzt. Damit wird zumindest ein qualitatives Verständnis der Experimente an Helium möglich. Für eine weitergehende Aussage sind aber sicherlich eine dreidimensionale Auswertung und ein Vergleich mit den Experimenten an Argon notwendig. Neuere bislang unveröffentlichte unabhängig durchgeführte Experimente an Argon der Gruppe in Freiburg/Berlin finden für Argon bei einer vergleichbaren Intensität eine deutliche Doppelpeakstruktur in den Impulsverteilungen der Ionen im Widerspruch zu den etwas früher

durchgeführten Experimenten in Frankfurt/Marburg. Eine Klärung erfordert noch weitere experimentelle wie theoretische Untersuchungen.

Insgesamt liefert die hier angegebene einfache Approximation aber bereits eine zufriedenstellende Erklärung der Spektren. Dazu sei darauf verwiesen, dass sämtliche Vergleiche auf linearer Skala durchgeführt wurden. Dies stellt selbst für die Einfachionisation für exakte numerischen Simulationen eine Herausforderung dar [72]. Die vorgeschlagene Modellierung erlaubt eine Untersuchung verschiedener Szenarien und ist leicht auf den Fall einer 3-fachen Ionisation zu erweitern. Eine Behandlung elliptischer Polarisation ist ebenso ohne Schwierigkeiten möglich. Weiter ist eine Sattelpunktsapproximation wie in Teil I dieser Arbeit ausgeführt denkbar. Damit wäre eine ähnliche einfache und ästhetisch befriedigende Formulierung wie für die ATI erreicht.

Mit freundlicher Genehmigung des Dekans wurden Auszüge dieser Arbeit bereits veröffentlicht [49, 92, 67, 109, 95].

Anhang A

Zero-Range-Potenzial

Ein Zero-Range-Potenzial (ZRP) wird in der gesamten Arbeit als ein Modellpotenzial für ein Atom in einem starken Laserfeld verwendet. Die Eigenschaften eines ZRP ohne Laserfeld sollen hier kurz ohne Ableitung zusammengefasst werden. Für die Ableitung wird auf [132, 133] verwiesen.

Ein ZRP besitzt

- genau einen gebundenen Zustand mit Drehimpuls Null und
- ein Kontinuum, das sich von dem freien Kontinuum nur in den s-Wellen unterscheidet.

Im einfachsten Fall einer Raumdimension ist ein Zero-Range-Potenzial einfach durch eine δ -Funktion gegeben. Fermi [134] führte ein derartiges Potenzial bei der Behandlung der Neutronstreuung an Paraffin zum erstenmal ein. In mehr als einer Dimension ist eine Regularisierung notwendig, um eine korrekte Behandlung der Schrödinger-Gleichung sicherzustellen. Im hier interessanten dreidimensionalen Fall ist das ZRP durch

$$V(r) = \frac{2\pi\hbar^2}{m\kappa} \delta(\mathbf{r}) \frac{\partial}{\partial r} r \quad (\text{A.1})$$

mit $\kappa > 0$ gegeben. Die zeitunabhängige Schrödinger-Gleichung für eine Wellenfunktion $\phi(\mathbf{r})$ lautet damit

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + \frac{2\pi\hbar^2}{m\kappa} \delta(\mathbf{r}) \frac{\partial}{\partial r} r \right] \phi(\mathbf{r}) = E\phi(\mathbf{r}). \quad (\text{A.2})$$

Sie besitzt eine gebundene Lösung

$$\phi(\mathbf{r}) = \sqrt{\frac{\kappa}{2\pi}} \frac{e^{-\kappa r}}{r} \quad (\text{A.3})$$

mit der Bindungsenergie

$$E_0 = -\frac{\hbar^2 \kappa^2}{2m}. \quad (\text{A.4})$$

Streulösungen mit positiver Energie

$$E = \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m} \quad (\text{A.5})$$

sind durch

$$\phi(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + c \int d\mathbf{r}'^3 G_+(\mathbf{r} - \mathbf{r}'; E) V(r') \phi(\mathbf{r}') \quad (\text{A.6})$$

gegeben. $G_+(\mathbf{r} - \mathbf{r}', E)$ bezeichnet darin die retardierte Greensfunktion

$$G_+(\mathbf{r} - \mathbf{r}', E) = \frac{e^{ik|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \quad (\text{A.7})$$

für ein freies Elektron. Das Integral ist wegen der δ -Funktion leicht auszuführen. Die Konstante c ergibt sich durch Einsetzen in die Schrödinger-Gleichung (A.2). Damit ergibt sich

$$\phi(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} - \frac{1}{\kappa + ik} \frac{e^{ikr}}{r} \quad (\text{A.8})$$

als Streulösung.

Anhang B

Sattelpunktmethoden

In diesem Anhang wird zunächst allgemein auf Sattelpunktmethoden zur Auswertung von Integralen eingegangen. Siehe dazu z.B. [135, 136, 93]. Beginnend mit zwei Spezialfällen, der Laplace Methode für rein reelle Integrale und der stationären Phase, die kurz skizziert werden, wird daraufhin der allgemeine Fall eines analytischen Integranden mit komplexen Sattelpunkten untersucht. Es wird für ein eindimensionales Integral gezeigt, dass alle drei Methoden für jeden einzelnen Sattelpunkt formal das gleiche Resultat liefern. Die Methoden unterscheiden sich ausschließlich in der Auswahl der zu berücksichtigenden Sattelpunkte. Die Gültigkeit dieses Ergebnisses auch für mehrere Dimensionen wird im Hauptteil der Arbeit vorausgesetzt und durch einen Vergleich mit einer unabhängigen exakten Auswertung des betreffenden Integrals gerechtfertigt.

Als Beispiel wird die Auswertung des KFR-Matrixelements von Kapitel 5 im zweiten Teil ausführlich besprochen. Im wesentlichen ist dazu eine asymptotische Entwicklung einer verallgemeinerten Besselfunktion (4.22) auszuführen. Für eine allgemeine Behandlung im Falle linearer Polarisation sei auf [137, 138] verwiesen, wo der Fall linearer Polarisation allgemein behandelt ist. Hier wird speziell für die Auswertung des KFR-Matrixelements auch der interessante Fall der elliptischen Polarisation behandelt, bei dem sich zwei Sattelpunkte als Funktion der Elliptizität oder der Driftenergie nahe kommen und wieder voneinander entfernen. Die Sattelpunkte im Falle des verallgemeinerten KFR-Matrixelements in Kapitel 6 verhalten sich an einem klassischen Cutoff ganz ähnlich.

Es sei ein Integral der Form

$$I(\eta) = \int_c dz g(z) e^{\eta s(z)} \quad (\text{B.1})$$

mit analytischen Funktionen $s(z)$ und $g(z)$ und reellem $\eta > 0$ gegeben. Die Funktion $I(\eta)$ soll für große η approximiert werden. Der erste Term einer asymptotischen Entwicklung der Funktion $I(\eta)$ für $\eta \rightarrow \infty$ stellt oft bereits für endliches η eine ausreichende Approximation dar.

Ist $s(z)$ entlang der Integrationskontur \mathcal{C} reell, so kann $I(\eta)$ als

$$\int_a^b dx \tilde{g}(x) \exp[-\eta \tilde{s}(x)] \quad (\text{B.2})$$

mit reellem x und $\tilde{s}(x)$ geschrieben werden. Da $\tilde{s}(x)$ auf $[a, b]$ beschränkt ist, wird für große η der zweite Term des Integranden exponentiell klein. Der Hauptbeitrag in $[a, b]$ wird von Bereichen um ein Minimum von $s(x)$ bei x_s herrühren. Für diese gilt in (a, b)

$$\tilde{s}'(x_s) = 0 \quad \text{und} \quad \tilde{s}''(x_s) > 0 \quad (\text{B.3})$$

oder $x_s = a$ bzw. $x_s = b$. Die Asymptotik wird vom absoluten Minimum bestimmt. Entwickelt man den Exponenten um x_s bis zur zweiten Ordnung und approximiert $g(x)$ in einer Umgebung von x_s durch $g(x_s)$, so ergibt sich ein Gaußsches Integral. Da

$$\exp\left[-\frac{\eta}{2} \tilde{s}''(x_s)(x - x_s)^2\right] \quad (\text{B.4})$$

für große η schnell abfällt lässt sich die Integration auf die gesamte reelle Achse ausdehnen und man erhält

$$I(\eta) \sim g(x_s) \sqrt{\frac{2\pi}{\eta \tilde{s}''(x_s)}} e^{-\eta \tilde{s}(x_s)}. \quad (\text{B.5})$$

Liegt x_s auf einem der Randpunkte, so ist nur der andere Randpunkt auf $\pm\infty$ auszuweiten und es ergibt sich ein zusätzlicher Faktor $1/2$. Die skizzierte Approximation wird auch als **Laplace Methode** bezeichnet.

Ist der Exponent s entlang der Integrationskontur \mathcal{C} rein imaginär, erhält man eine weitere Variante der Sattelpunktsapproximation, die sogenannte Methode der **stationären Phase**. Das zu betrachtete Integral habe die Form

$$\int_a^b dt w(t) e^{i\eta \Phi(t)} \quad (\text{B.6})$$

mit reellem t und reeller Funktion $\Phi(t)$. Ist $\Phi'(t) \neq 0$, so löschen sich aufgrund der starken Oszillationen von $e^{i\eta \Phi(t)}$ für ausreichend großes η die Beiträge innerhalb einer Periode $2\pi/\eta \Phi'(t)$ gegenseitig aus. Für $\Phi'(t) = 0$ wird unabhängig von η die lokale Frequenz der Oszillation Null und man erhält einen Beitrag zum Integral. Wieder $\Phi''(t) \neq 0$ vorausgesetzt, gibt jeder reelle stationäre Punkt zwischen a und b nach Entwicklung um den stationären Punkt einen Beitrag

$$w(t_s) e^{i\eta \Phi(t_s)} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\frac{1}{2}\eta \Phi''(t_s)(t-t_s)^2} \quad (\text{B.7})$$

zum Integral. Der quadratische Term im Exponenten erlaubt die Integrationsgrenzen auf $\pm\infty$ auszudehnen. Man erhält nach Ausführung des Gaußschen Integrals

$$w(t_s) \sqrt{\frac{2\pi}{-i\eta \Phi''(t_s)}} e^{i\eta \Phi(t_s)}. \quad (\text{B.8})$$

Dies ist formal identisch mit dem Ergebnis (B.5) wenn man die Ersetzung $\Phi(t) = i\tilde{s}(t)$ und $w(t) = \tilde{g}(t)$ durchführt. Anders als im Ergebnis (B.5) tragen nun jedoch alle in $[a, b]$ liegenden stationären Punkte bei

$$I(\eta) \sim \sum_{s, t_s \in [a, b]} w(t_s) \sqrt{\frac{2\pi}{-i\eta \Phi''(t_s)}} e^{i\eta \Phi(t_s)}, \quad (\text{B.9})$$

da unabhängig von η

$$|e^{i\eta \Phi(t_s)}| = 1. \quad (\text{B.10})$$

Liegt ein stationärer Punkt am Ende des Integrationsbereiches, so ist ebenso wie im Reellen ein Faktor $1/2$ einzuführen.

Trifft keiner der zuvor angesprochenen Spezialfälle zu, ist also allgemein ein Integral der Form

$$I(\eta) = \int_{\mathcal{C}} dz g(z) e^{\eta s(z)} \quad (\text{B.11})$$

mit analytischen Funktionen $s(z)$ und $g(z)$ und reellem $\eta > 0$ gegeben, so kann eine Approximation durch Sattelpunkte z_s , die durch

$$\frac{d}{dz} s(z) = 0 \quad (\text{B.12})$$

gegeben sind, durch ein geeignete Verformung der Kontur \mathcal{C} abgeleitet werden. Dazu wird angenommen, dass $s(z)$ an den Rändern der Kontur gegen $-\infty$ strebt, so dass kein Beitrag von den Rändern zu erwarten ist. Die Funktion $g(z)$ soll sich schwach veränderlich gegenüber $e^{\eta s(z)}$ verhalten. Ein Verformung der Integrationskontur zwischen deren Endpunkten ändert den Wert des Integrals wegen der Analytizität von $g(z)$ und $s(z)$ nicht.

Bevor gezeigt wird, dass durch Gl. (B.12) tatsächlich ein Sattelpunkt gegeben ist, werden einige Eigenschaften, die aus der Analytizität von $s(z = x + iy) = u(x, y) + iv(x, y)$ folgen, angesprochen. Die Real- und Imaginärteile von $s(z)$, $u(x, y)$ und $v(x, y)$ erfüllen die Cauchy-Riemannschen Differentialgleichungen

$$\frac{\partial u}{\partial x} = \frac{\partial v}{\partial y} \quad \text{und} \quad \frac{\partial u}{\partial y} = -\frac{\partial v}{\partial x}. \quad (\text{B.13})$$

Daraus ergibt sich, dass $u(x, y)$ und $v(x, y)$ Potenzialfunktionen sind, also

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right] u(x, y) = 0 \quad \text{und} \quad \left[\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right] v(x, y) = 0 \quad (\text{B.14})$$

gilt und

$$(\nabla u) \cdot (\nabla v) = 0 \quad (\text{B.15})$$

ist. Letzteres bedeutet, dass Kurven entlang ∇u und ∇v an einem beliebigen Punkt stets orthogonal aufeinander treffen.

Die Sattelpunktgleichung $\frac{d}{dz}s(z) = 0$ ist gleichbedeutend mit $\nabla u = 0$ und $\nabla v = 0$. An den Sattelpunkten z_s besitzen die Funktionen $u(x, y)$ und $v(x, y)$ wegen (B.14) aber kein Extremum sondern einen Sattelpunkt. Durchläuft man einen Sattelpunkt von $u(x, y)$ entlang des steilsten Abfalls von $u(x, y)$, also entlang $\nabla u(x, y)$, so ist, wegen Gl. (B.15) und da ∇v stets orthogonal zu Kurven $v(x, y) = \text{konstant}$ liegt, gleichzeitig $v(x, y) = v(x_s, y_s) = \text{konstant}$. Entlang einer so gewählten Kontur $C_{s, \max}$ oszilliert die Funktion

$$e^{\eta u(x,y) + i\eta v(x,y)} = e^{\eta u(x,y)} e^{i\eta v(x_s, y_s)} \quad (\text{B.16})$$

nicht und fällt gleichzeitig sehr schnell ab. Entlang einer derartigen Kontur wird der Hauptbeitrag zum Integral vom Sattelpunkt z_s bzw. dessen unmittelbarer Umgebung stammen. Eine Auswertung durch eine Entwicklung des Exponenten $s(z)$ um z_s ist damit gerechtfertigt. Die Festlegung der Integrationskontur durch den “steepest descent” gibt der Methode ihren Namen. Die Integrationskontur $C_{s, \max}$ ist jedoch nicht allein durch

$$v(x, y) = v(x_s, y_s) \quad (\text{B.17})$$

gegeben, da dadurch auch gleichzeitig Kurven festgelegt sind, auf denen, entfernt man sich von z_s , $u(x, y)$ ansteigt (“steepest ascent”).

Bislang wurde nur die Wahl einer Integrationskontur $C_{s, \max}$ um Sattelpunkte z_s abgeleitet, derart, dass der Hauptbeitrag zum Integral von einer Umgebung der Sattelpunkte, die durch Gl. (B.12) festgelegt sind bestimmt wird. Eine Approximation der Funktion $s(z)$ bis zur zweiten Ordnung in einer Taylorreihe um z_s

$$s(z) \approx s(z_s) + \frac{s''(z_s)}{2}(z - z_s)^2. \quad (\text{B.18})$$

erlaubt eine analytische Bestimmung des Beitrags um den Sattelpunkt z_s . Der Integrationsweg wird wie beschrieben so gewählt, dass $\text{Im } s(z) = \text{Im } s(z_s)$ und z_s entlang des Pfades ein Maximum besitzt. Entlang des Integrationsweges ist $s(z) - s(z_s)$ reell. Wählt man

$$z - z_s = \alpha e^{-i\phi/2} \quad \text{und} \quad s''(z_s) = -|s''(z_s)| e^{i\phi}, \quad (\text{B.19})$$

so ist dies auch für den approximierten Exponenten gewährleistet. Der dadurch angenäherte Integrationspfad ist nun durch α parametrisiert, gleichzeitig können die Integrationsgrenzen auf $\pm\infty$ ausgedehnt werden, da der Hauptbeitrag zum Integral von der Integration um den Sattelpunkt herrührt. Der Beitrag des Sattelpunktes z_s ist damit durch ein Gaußsches Integral approximiert

$$\pm g(z_s) e^{\eta s(z_s)} e^{-i\phi/2} \int_{-\infty}^{\infty} d\alpha e^{-\frac{1}{2}|s''(z_s)|\alpha}, \quad (\text{B.20})$$

das leicht integriert werden kann. Abhängig davon, ob beim Durchlaufen des Sattelpunktes entlang der gewählten Kontur C α zu- oder abnimmt ergeben sich unterschiedliche Vorzeichen.

Kann die ursprüngliche Integrationskontur \mathcal{C} in eine Komposition \mathcal{C}_{\max} von Konturen $\mathcal{C}_{s,\max}$ innerhalb eines analytischen Gebiets von $s(z)$ und $g(z)$ deformiert werden mit gleichen Randpunkten, also $\partial\mathcal{C}_{\max} = \partial\mathcal{C}$, so wird das ursprüngliche Integral durch

$$I(\eta) \approx \sum_{s \in \mathcal{Z}_{\mathcal{C}}} \pm g(z_s) e^{\eta s(z_s)} \sqrt{\frac{2\pi}{-\eta s''(z_s)}} \quad (\text{B.21})$$

approximiert. Die Summe erstreckt sich über eine Teilmenge $\mathcal{Z}_{\mathcal{C}}$ aller Sattelpunkte, deren Konturen $\mathcal{C}_{s,\max}$ durch Komposition \mathcal{C}_{\max} ergeben. Im allgemeinen tritt so in der Summe nur ein Teil aller Sattelpunkte auf.

Die einzelnen Terme im Ergebnis Gl. (B.21) sind bis auf die Wahl des Vorzeichens formal identisch mit den einzelnen Termen der stationären Phase. Kennt man den Integrationsweg nicht, so kann durch eine geeignete Auswahl zusammen mit einer richtigen Wahl der einzelnen Vorzeichen ebenso eine Approximation erreicht werden. Im KFR-Matrixelement in Kapitel 5 wurde so mit Hilfe des Ergebnisses der stationären Phase und einem physikalischen Argument zur Auswahl der zu berücksichtigenden Sattelpunkte eine Approximation für komplexe Sattelpunkte möglich. Im Folgenden wird durch explizite Konstruktion der Kontur die getroffene Auswahl bestätigt.

Das KFR-Matrixelement

Zur Berechnung des KFR-Matrixelements aus Kapitel 5 ist ein Integral

$$M_{\mathbf{p}} \sim \int_0^T dt e^{i\eta\Phi(t)} \quad (\text{B.22})$$

mit reellem $\Phi(t) = S_{\mathbf{p}}(t) \omega / U_p$ auszuwerten. Es gibt in diesem Fall keine reellen Sattelpunkte. Für ein linear polarisiertes Laserfeld wurden die Sattelpunkte bereits in Gl. (5.11) explizit angegeben. Um einen Integrationspfad über die Sattelpunkte zu konstruieren teilt man den Exponenten $i\Phi(t)$ für $t = t_r + it_i$ in seinen Real- und Imaginärteil auf. Es ergibt sich

$$\begin{aligned} \text{Im } i\Phi(t) &= \omega t_r (1 + E_p/U_P + 2\gamma^2) + \frac{1}{2} \left(\frac{1 - \xi^2}{1 + \xi^2} \right) \sin 2\omega t_r \cosh 2\omega t_i + \\ &+ 2\sqrt{\frac{2E_p}{U_P(1 + \xi^2)}} (\cos \phi \sin \omega t_r - \xi \sin \phi \cos \omega t_r) \cosh \omega t_i \quad (\text{B.23}) \end{aligned}$$

und

$$\begin{aligned} -\text{Re } i\Phi(t) &= \omega t_i (1 + E_p/U_P + 2\gamma^2) + \frac{1}{2} \left(\frac{1 - \xi^2}{1 + \xi^2} \right) \cos 2\omega t_r \sinh 2\omega t_i + \\ &+ 2\sqrt{\frac{2E_p}{U_P(1 + \xi^2)}} (\cos \phi \cos \omega t_r + \xi \sin \phi \sin \omega t_r) \sinh \omega t_i, \quad (\text{B.24}) \end{aligned}$$

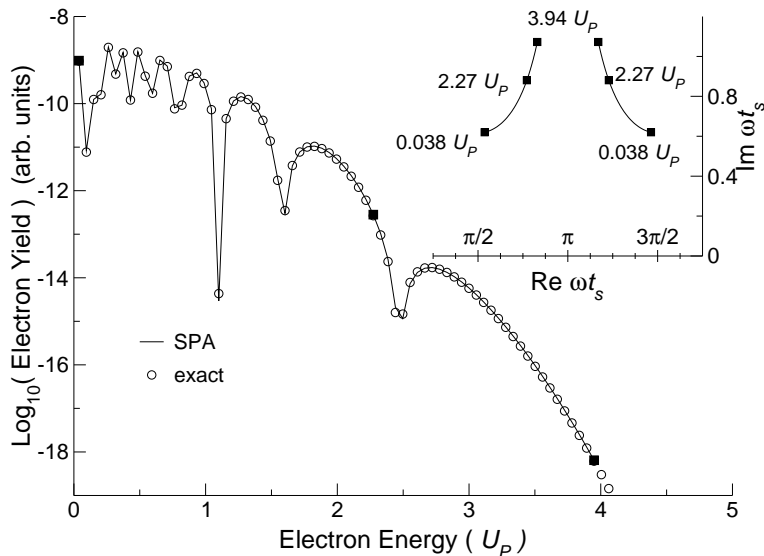


Abbildung B.1: Einhüllende eines ATI-Spektrums (durchgezogene Linie) berechnet aus dem KFR-Matrixelement mittels Sattelpunktsapproximation (SPA). Zum Vergleich ist das exakt ausgewertete Integral (offene Kreise) angegeben. Der Inset gibt den Verlauf der Sattelpunkte mit positivem Imaginärteil für das gezeigte Spektrum wieder. Die Parameter sind wie in Abb. 8.1 gewählt, das Laserfeld ist linear polarisiert ($\xi = 0$). Es ergibt sich $\gamma = 0.654$ und $\eta = 17.9$.

für ein durch das Vektorpotenzial $\mathbf{A}(t) = A_0(\hat{\mathbf{e}}_1 \cos \omega t + \xi \hat{\mathbf{e}}_2 \sin \omega t)$ gegebenes elliptisch polarisiertes Laserfeld. Der vorgegebene Driftimpuls \mathbf{p} ist in die durch die Einheitsvektoren \mathbf{e}_1 und \mathbf{e}_2 aufgespannten Ebene gelegt. ϕ gibt den Winkel zwischen \mathbf{p} und der großen Komponente der Feldellipse \mathbf{e}_1 an. Für ein linear polarisiertes Feld ist der Winkel ϕ identisch mit dem in Abschnitt 5 definierten Winkel zwischen \mathbf{p} und $\hat{\mathbf{e}}_1$. $E_p = \mathbf{p}^2/2m$ bezeichnet die Driftenergie des Elektrons.

Mögliche Konturen \mathcal{C}_i ergeben sich aus $\text{Im } i\Phi(t) = \text{Im } i\Phi(t_{s_i})$ und lassen sich mit Hilfe von Gl. (B.23) explizit als Funktion $t_i(t_r)$ angeben.

Lineare Polarisation

Für ein linear polarisiertes Feld ist in Abb. B.1 zunächst das Spektrum der Photoelektronen für eine Emission in Richtung des Laserfeldes angegeben. Das exakte Ergebnis ist mit der Darstellung des Integrals 4.22 als Summe über Besselfunktionen berechnet. Der Inset zeigt den Verlauf der Sattelpunkte mit positivem Imaginärteil (t_{s_1} und t_{s_2}). Die dazu komplex konjugierten nicht dargestellten Sattelpunkte sind mit t_{s_3} und t_{s_4} bezeichnet. Exemplarisch sind für eine Driftenergie von $2.26 U_p$ in Abb. B.2 die mit dem expliziten Ergebnis $t_i(t_r)$ berechneten Konturen $\text{Im } i\Phi(t) = \text{Im } i\Phi(t_{s_i})$ dargestellt. Für die zueinander komplex konjugierten Sattelpunkte t_{s_1} und t_{s_3} bzw. t_{s_2} und t_{s_4} ist der Realteil der Phase jeweils identisch, so dass nur zwei Konturlinien zu unterscheiden sind. Die

gestrichelten verlaufen durch die Sattelpunkte t_{s1} und t_{s3} , die durchgezogenen durch t_{s2} und t_{s4} . In dem Konturplot ist gleichzeitig der Wert von $\text{Re } i\Phi(t)$ relativ zu $\text{Re } i\Phi(t_s)$ durch Graustufen angedeutet. Eine helle Schattierung bedeutet einen großen Realteil des Exponenten. Somit divergiert der Integrand in den hellen Bereichen, in den dunklen verschwindet er. Die Integration muss also von einem dunklen Bereich über den Sattelpunkt wieder in einen dunklen Bereich führen. Daraus ergibt sich genau ein möglicher Integrationsweg: Er verläuft zunächst von $t = 0$ nach $i\infty$ (\mathcal{C}_a), dann entlang \mathcal{C}_1 über den ersten Sattelpunkt bis $\omega t = \pi + i\infty$, wo der Integrand wieder bei $t = i\infty$ verschwindet, von dort über den zweiten Sattelpunkt nach $\omega t = 2\pi + i\infty$ (\mathcal{C}_2), und schließlich entlang \mathcal{C}_b bis $\omega t = 2\pi$, dem oberen Integrationsende der ursprünglichen Integrationskontur entlang der reellen Achse.

Der Integrand wird entlang der Kontor \mathcal{C}_1 und \mathcal{C}_2 je durch eine Gaußfunktion approximiert. Deren Integration liefert

$$\sum_{i=1,2} \sqrt{\frac{2\pi\hbar}{-iS_{\mathbf{p}}''(t_{si})}} \exp iS_{\mathbf{p}}(t_{si}). \quad (\text{B.25})$$

Die beiden Integrale über \mathcal{C}_a und \mathcal{C}_b heben sich gegenseitig weg, da, wegen der Deltafunktion im KFR-Matrixelement (5.10),

$$1 + \mathbf{p}^2/2mU_P + 2\gamma^2 = n/\eta \quad (\text{B.26})$$

ist. n gibt die ATI-Ordnung an und ist ganzzahlig. Damit sind beide Integranden identisch, und wegen der vertauschten Grenzen addieren sie sich zu Null. Die Sattelpunkte t_{s3} und t_{s4} liegen nicht auf der Integrationskontur und sind deshalb in (B.25) nicht zu berücksichtigen. Der als Beispiel dargestellte Konturplot ändert sich qualitativ nicht für andere Elektronenergien oder eine von der Polarisationsrichtung des Laserfeldes abweichende Beobachtungsrichtung. Für elliptische Polarisation ist dies anders. Für lineare Polarisation stellt die Summe (B.25) das korrekte Ergebnis der Sattelpunkts-Approximation des ursprüngliche Integrals (B.22) dar. Abb. B.1 zeigt, dass die Sattelpunktsapproximation (durchgezogene Kurve) über das ganze Spektrum sehr gut mit dem exakten Ergebnis übereinstimmt.

Elliptische Polarisation

Für ein elliptisch polarisiertes Laserfeld mit Elliptizität ξ wird die Sattelpunktsgleichung (5.5) durch

$$\cos \omega t_s = \frac{\sqrt{1 + \xi^2}}{1 - \xi^2} \left(\sqrt{\frac{E_p}{2U_p}} \pm i \sqrt{\frac{1 - \xi^2}{1 + \xi^2} (\gamma^2(1 + \xi^2) + \xi^2) - \frac{E_p}{2U_p} \xi^2} \right) \quad (\text{B.27})$$

gelöst. Der Driftimpuls \mathbf{p} zeigt in Richtung der großen Komponente \mathbf{e}_1 der Feldellipse ($\phi = 0$).

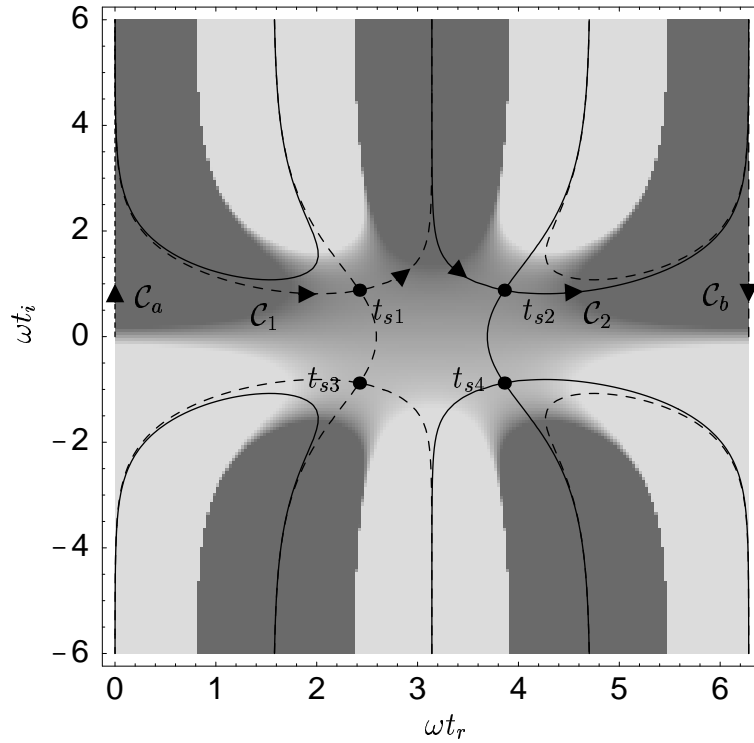


Abbildung B.2: Konturen für konstanten Imaginärteil des Exponenten in (B.22). Die Pfeile markieren die einzig mögliche Integrationskontur. Sie verläuft über beide Sattelpunkte mit positivem Imaginärteil. Die gestrichelte Kurve gibt Konturen mit $\text{Im } i\Phi(t) = \text{Im } i\Phi(t_{s1,s3})$ an, für die durchgezogenen gilt $\text{Im } i\Phi(t) = \text{Im } i\Phi(t_{s2,s4})$. Die Graustufen geben den Realteil des Exponenten wieder. Dunkle Schattierung steht für niedrige Realteile, helle für große Realteile. Die Parameter sind wie in Abb. B.1 gewählt, die Elektronenergie ist $E_p = 2.27 U_p$. Damit ergibt sich $\text{Re } \Phi(t_{s1,2}) = -0.62$, Die Graustufen reichen von $\text{Re } \Phi(t) = -1.62$ bis $\text{Re } \Phi(t) = 0.38$.

Damit sind vier Sattelpunkte gegeben, die durch komplexe Konjugation ineinander übergehen. Für

$$\frac{1 - \xi^2}{1 + \xi^2} [\gamma^2(1 + \xi^2) + \xi^2] - \frac{E_p}{2U_P} \xi^2 > 0 \quad (\text{B.28})$$

haben die beiden Sattelpunkte mit positivem Imaginärteil verschiedene Realteile, aber gleichen Imaginärteil. Ist dagegen

$$\frac{1 - \xi^2}{1 + \xi^2} (\gamma^2(1 + \xi^2) + \xi^2) - \frac{E_p}{2U_P} \xi^2 < 0, \quad (\text{B.29})$$

so ist ihr Realteil identisch mit π/ω , aber die Imaginärteile sind nun verschieden. Damit ist bei fester Elliptizität eine kritische Energie

$$E_{p,\text{crit}} = 2U_p \left[\frac{1 - \xi^2}{1 + \xi^2} + \frac{\gamma^2}{\xi^2} (1 - \xi^2) \right] \quad (\text{B.30})$$

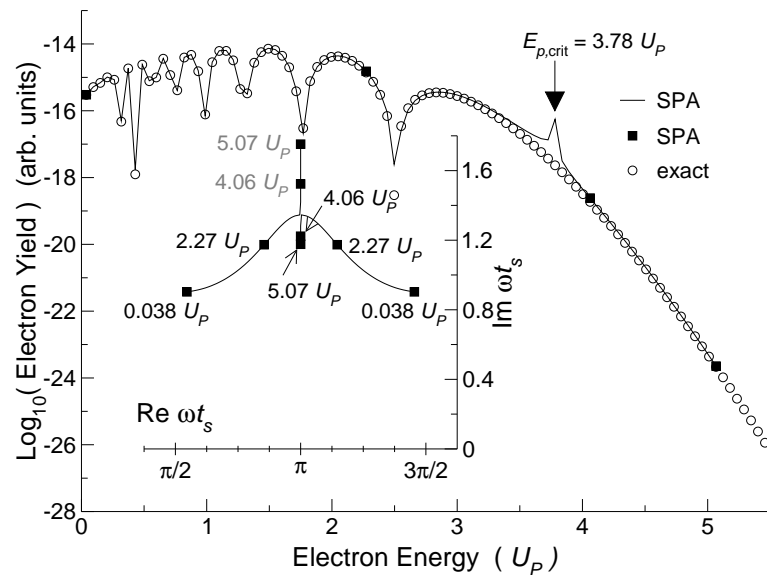


Abbildung B.3: Wie Abb. B.1 für ein elliptisch polarisiertes Laserfeld mit $\xi = 0.5$.

gegeben, bei der sich die relative Lage der Sattelpunkte zueinander qualitativ ändert.

Abb. B.3 zeigt ein berechnetes Spektrum für eine Elliptizität von $\xi = 0.5$. Die kritische Energie ergibt sich in diesem Beispiel zu $E_{p,\text{crit}} = 3.78U_P$. Der Inset zeigt den Verlauf der Sattelpunkte für das dargestellte Spektrum. In Abb. B.4 ist dazu ein Konturplot für eine Elektronenergie von $2.27U_P < E_{p,\text{crit}}$ gezeigt. Die Konturen verlaufen ähnlich wie bei linearer Polarisation. Die einzig mögliche Kontur zwischen $\omega t = 0$ und $\omega t = 2\pi$ verläuft wie bei linearer Polarisation über beide Sattelpunkt mit positivem Imaginärteil. Für eine Driftenergie von $4.06U_P > E_{p,\text{crit}}$ ändert sich der Verlauf der Konturen, wie in Abb. B.4 rechts gezeigt. Die Integration verläuft für Energien größer $E_{p,\text{crit}}$ ausschließlich über den Sattelpunkt t_{s2} mit dem niedrigeren, aber positiven Imaginärteil. Zur Berechnung des Spektrums ist bis zur kritischen Energie über beide Sattelpunkte t_{s1} und t_{s2} summiert. Für Energien größer $E_{p,\text{crit}}$ ist allein der Beitrag des Sattelpunkts t_{s2} berücksichtigt. Bis auf einen kleinen Energiebereich um $E_{p,\text{crit}}$ ist das so mittels Sattelpunktsapproximation berechnete Spektrum (durchgezogene Linien in Abb. B.3) in sehr guter Übereinstimmung mit dem exakt ausgewerteten Integral (Kreise). Um $E_{p,\text{crit}}$ liegen die Sattelpunkte sehr dicht aneinander. Die Entwicklung des Exponenten im Integranden bis zur zweiten Ordnung ist dafür nicht ausreichend. Die am Beginn dieses Anhangs besprochene Sattelpunktsapproximation müsste dafür modifiziert werden. Für höhere Energien wird der Abstand zwischen den Sattelpunkten größer und somit der Einfluss des nicht mehr berücksichtigten Sattelpunkts immer kleiner. Bei $E_p > 4U_P$ ist die Approximation mit nur einem Sattelpunkt bereits gut.

Liegt der Driftimpuls \mathbf{p} nicht in Richtung der großen Komponente der Polarisationsellipse, so ist zur Bestimmung der Sattelpunkte eine Polynom 4. Ordnung in $\cos \omega t$ zu lösen. Dies ist nur mehr numerisch sinnvoll. Wie im diskutierten Fall sind für kleine Energi-

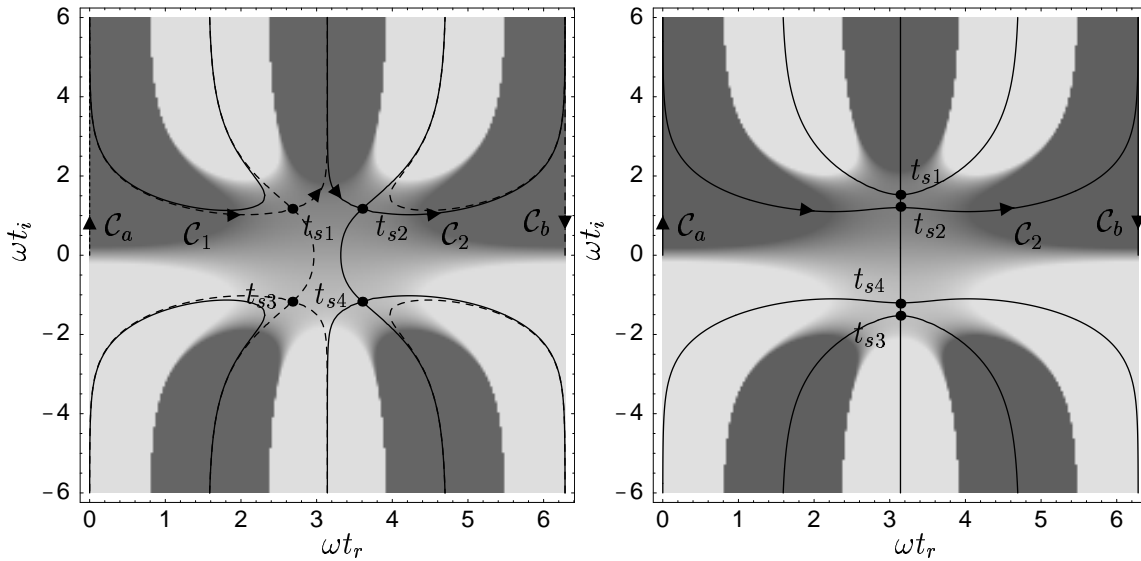


Abbildung B.4: Wie Abb. B.2 für elliptische Polarisierung und einer Elliptizität von $\xi = 0.5$. Die Elektronenergie ist im linken Teil $E_p = 2.27 U_P < E_{p,\text{crit}}$, im rechten $E_p = 4.06 U_P > E_{p,\text{crit}}$.

en zwei Sattelpunkte mit positiven Imaginärteil zu berücksichtigen. Diese liegen nun jedoch nicht mehr symmetrisch um $\omega t_r = \pi$ und besitzen darüberhinaus verschiedene Imaginärteile. Erhöht man die Energie, so wandern die Sattelpunkte zunächst aufeinander zu, weichen sich dann aber hauptsächlich in Richtung der imaginären Achse aus. Eine Bestimmung der Integrationskontur zeigt, dass dabei ab einem kritischen Wert der Energie — dem Cutoff — nur mehr ein Sattelpunkt berücksichtigt werden darf. Das Verhalten ist also ganz ähnlich den in Kapitel 7 und 8 diskutierte Verhalten der Sattelpunkte in mehreren Dimensionen.

Anhang C

Atomare Einheiten

Durch charakteristische Eigenschaften des Wasserstoffatoms werden die atomare Einheiten (a.u.) festgelegt. In cgs Darstellung gilt

$$\hbar = 1, \quad m = 1, \quad e^2 = 1,$$

wobei m die Elektronmasse und e die Ladung des Elektrons bezeichnet. Die Folgenden Beziehungen sind in SI-Darstellung angegeben, sie unterscheiden sich von der cgs-Darstellung nur durch den Term $4\pi\epsilon_0$.

Die atomare **Längeneinheit** ist durch den Bohrschen Radius gegeben

$$a_0 = 4\pi\epsilon_0 \frac{\hbar^2}{me^2} \quad 1 \text{ a.u.} = 0.529177249 \cdot 10^{-10} \text{ m.}$$

Die atomare **Geschwindigkeitseinheit** ist durch die Geschwindigkeit eines Elektrons auf der 1. Bohrschen Bahn gegeben

$$v_0 = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^2}{\hbar} \quad 1 \text{ a.u.} = 2.18769142 \cdot 10^6 \text{ m/s.}$$

Die atomare Einheit der **Zeit** ergibt sich aus der Längen- und Geschwindigkeitseinheit

$$\tau_0 = \frac{a_0}{v_0} = (4\pi\epsilon_0)^2 \frac{\hbar^3}{me^4} \quad 1 \text{ a.u.} = 2.41888433 \cdot 10^{-17} \text{ s.}$$

Die doppelte Bindungsenergie von Wasserstoff ergibt die atomare Einheit der **Energie**

$$2\text{Ry} = \frac{1}{(4\pi\epsilon_0)^2} \frac{me^4}{\hbar^2} \quad 1 \text{ a.u.} = 27.2113962 \text{ eV.}$$

Für die **Frequenz** gilt

$$\omega_0 = \frac{1}{\tau_0} = \frac{1}{(4\pi\epsilon_0)^2} \frac{me^4}{\hbar^3} \quad 1 \text{ a.u.} = 4.13413732 \cdot 10^{16} \text{ 1/s}$$

Daraus ergibt sich mit $\omega = kc$ eine nützliche Umrechnung zwischen der Frequenz in atomaren Einheiten ω_{au} und der Wellenlänge λ

$$\omega_{\text{au}} = \frac{4.556335 \cdot 10^{-8} \text{ m}}{\lambda}$$

Für die **Elektrische Feldstärke** ergibt sich

$$F_0 = \frac{2\text{Ry}}{ea_0} = \frac{1}{(4\pi\epsilon_0)^2} \frac{m^2 e^5}{\hbar^4} \quad 1 \text{ a.u.} = 5.14220826 \cdot 10^{11} \text{ V/m}$$

Unter der **Intensität** ist der mittlere Energiefluss einer elektromagnetischen Welle zu verstehen. Die atomare Einheit ergibt sich aus der atomaren Einheit der Elektrischen Feldstärke.

$$I_{\text{au}} = 4\pi\epsilon_0 \frac{c}{8\pi} F_0^2 \quad 1 \text{ a.u.} = 3.50944758 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$$

Literaturverzeichnis

- [1] A. McPherson, G. Gibson, H. Hara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, and C. K. Rhodes, *J. Opt. Soc. Am. B* **4**, 595 (1987).
- [2] M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompré, G. Mainfray, and C. Manus, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **21**, L31 (1988).
- [3] X. F. Li, A. L'Huillier, M. Ferray, L. A. Lompré, and G. Mainfray, *Phys. Rev. A* **39**, 5751 (1989).
- [4] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, and G. Petite, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1127 (1979).
- [5] A. L'Huillier, L. A. Lompré, G. Mainfray, and C. Manus, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **16**, 1363 (1983).
- [6] D. N. Fittinghoff, P. R. Bolton, B. Chang, and K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2642 (1992).
- [7] J. Wildenauer, *J. Appl. Phys.* **62**, 41 (1987).
- [8] J. Zhou, J. Peatross, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 752 (1996).
- [9] Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2967 (1997).
- [10] T. Brabec and F. Krausz, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545 (2000).
- [11] P. Salières, A. L'Huillier, P. Antoine, and M. Lewenstein, *Adv. At., Mol., Opt. Phys.* **41**, 83 (1999).
- [12] P. Kruit, J. Kimman, H. G. Muller, and M. J. van de Wiel, *Phys. Rev. a* **28**, 248 (1983).
- [13] R. R. Freeman, P. H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher, and M. E. Geusic, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 1092 (1987).
- [14] *Atoms in Intense Laser Fields, Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics*, edited by M. Gavrila (Academic Press, Boston, 1992).

- [15] P. Hansch, M. A. Walker, and L. D. Van Woerkom, *Phys. Rev. A* **57**, R709 (1998).
- [16] V. Schyja and H. Helm, *Phys. Rev. A* **57**, 3692 (1998).
- [17] G. G. Paulus, W. Nicklich, H. Xu, P. Lambropoulos, and H. Walther, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2851 (1994).
- [18] K. J. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro, and K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1599 (1993).
- [19] B. Walker, B. Sheehy, K. C. Kulander, and L. F. DiMauro, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 5031 (1996).
- [20] B. Sheehy, R. Lafon, M. Widmer, B. Walker, and L. F. DiMauro, *Phys. Rev. A* **58**, 3942 (1998).
- [21] G. G. Paulus, W. Nicklich, and H. Walther, *Europhys. Lett.* **27**, 267 (1994).
- [22] B. Walker, B. Sheehy, L. F. DiMauro, P. Agostini, K. J. Schafer, and K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1227 (1994).
- [23] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **91**, 2008 (1986),
Engl. trans. *Sov. Phys.-JETP* **64**, 1191 (1986).
- [24] A. L'Huillier, L. A. Lompré, G. Mainfray, and C. Manus, *Phys. Rev. Lett.* **48**, 1814 (1982).
- [25] A. L'Huillier, L. A. Lompré, G. Mainfray, and C. Manus, *Phys. Rev. A* **27**, 2503 (1983).
- [26] P. Lambropoulos, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2141 (1985).
- [27] P. Lambropoulos and X. Tang, *J. Opt. Soc. Am. B* **4**, 821 (1987).
- [28] D. Charalambidis, P. Lambropoulos, H. Schröder, O. Faucher, H. Xu, M. Wagner, and C. Fotakis, *Phys. Rev. A* **50**, R2822 (1994).
- [29] K. C. Kulander, K. J. Schafer, and L. Krause, in *Super-Intense Laser-Atom Physics*, Vol. 316 of *NATO Advanced Study Institute; Series B: Physics*, edited by B. Piraux, A. L'Huillier, and K. Rzażewski (Plenum, New York, 1993), p. 93.
- [30] P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993).
- [31] H. B. van Linden van den Heuvell and H. G. Muller, in *Studies in Modern Optics No 8, Multiphoton Processes*, edited by S. J. Smith and P. L. Knight (Cambridge University Press, Cambridge, 1988), p. 25.
- [32] T. F. Gallagher, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2304 (1988).

- [33] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and F. Brunel, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1259 (1989).
- [34] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and F. Brunel, in *Atoms in Intense Fields*, edited by M. Gavrila (Academic Press, Boston, 1992), p. 109.
- [35] G. G. Paulus, W. Becker, W. Nicklich, and H. Walther, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **27**, L703 (1994).
- [36] J. Parker, K. T. Taylor, C. W. Clark, and S. Blodgett-Ford, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **29**, L33 (1996).
- [37] K. C. Kulander, K. J. Schafer, and J. L. Krause, in *Atoms in Intense Fields*, edited by M. Gavrila (Academic Press, Boston, 1992), p. 247.
- [38] H. G. Muller, 1999, private Mitteilung.
- [39] H. G. Muller, *Laser Phys.* **9**, 138 (1999).
- [40] M. Protopapas, C. H. Keitel, and P. L. Knight, *Rep. Prog. Phys.* **60**, 389 (1997).
- [41] D. Bauer, *Phys. Rev. A* **56**, 3028 (1997).
- [42] W. C. Liu, J. H. Eberly, S. L. Haan, and R. Grobe, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 520 (1999).
- [43] M. Lein, E. K. U. Gross, and V. Engel, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **33**, 433 (2000).
- [44] L. V. Keldysh, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **47**, 1945 (1964),
Engl. trans. *Sov. Phys.-JETP* **20**, 1307 (1964).
- [45] L. D. Landau, *Quantum Mechanics (Non-relativistic Theory, Course of Theoretical Physics)* (Pergamon, New York, 1964).
- [46] F. H. M. Faisal, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **6**, L98 (1973).
- [47] H. R. Reiss, *Phys. Rev. A* **22**, 1786 (1980).
- [48] W. Becker, A. Lohr, and M. Kleber, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **27**, L325 (1994).
- [49] A. Lohr, M. Kleber, R. Kopold, and W. Becker, *Phys. Rev. A* **55**, R4003 (1997).
- [50] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, and P. Corkum, *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994).
- [51] W. Becker, S. Long, and J. K. McIver, *Phys. Rev. A* **41**, 4112 (1990).
- [52] W. Becker, S. Long, and J. K. McIver, *Phys. Rev. A* **50**, 1540 (1994).
- [53] W. Becker, A. Lohr, M. Kleber, and M. Lewenstein, *Phys. Rev. A* **56**, 645 (1997).

- [54] P. Antoine, B. Piraux, D. B. Milošević, and M. Gajda, *Laser Phys.* **7**, 594 (1997).
- [55] P. Salières, A. L'Huillier, and M. Lewenstein, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3776 (1995).
- [56] P. Antoine, A. L'Huillier, and M. Lewenstein, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1234 (1996).
- [57] I. Mercer, E. Mevel, R. Zerne, A. L'Huillier, P. Antoine, and C.-G. Wahlström, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1731 (1996).
- [58] P. Antoine, D. B. Milošević, A. L'Huillier, M. B. Gaarde, P. Salières, and M. Lewenstein, *Phys. Rev. A* **56**, 4960 (1997).
- [59] R. Kopold, W. Becker, and M. Kleber, *Phys. Rev. A* **58**, 4022 (1998).
- [60] R. Kopold and W. Becker, *Laser Phys.* **9**, 398 (1999).
- [61] M. Lewenstein, K. C. Kulander, K. J. Schafer, and P. H. Bucksbaum, *Phys. Rev. A* **51**, 1495 (1995).
- [62] G. van de Sand and J. M. Rost, *Phys. Rev. A* **62**, 053403 (2000).
- [63] G. van de Sand, Ph.D. thesis, Universität Freiburg, 1999.
- [64] R. P. Feynman, *Rev. Mod. Phys.* **20**, 367 (1948).
- [65] R. P. Feynman and A. R. Hibbs, *Quantum Mechanics and Path Integrals* (McGraw-Hill, New York, 1965).
- [66] P. Antoine, A. L'Huillier, M. Lewenstein, P. Salières, and B. Carré, *Phys. Rev. A* **53**, 1725 (1996).
- [67] R. Kopold, D. B. Milošević, and W. Becker, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3831 (2000).
- [68] G. G. Paulus, F. Zacher, H. Walther, A. Lohr, W. Becker, and M. Kleber, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 484 (1998).
- [69] P. Hansch, M. A. Walker, and L. D. Van Woerkom, *Phys. Rev. A* **55**, R2535 (1997).
- [70] M. P. Hertlein, P. H. Bucksbaum, and H. G. Muller, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **30**, L197 (1997).
- [71] H. G. Muller and F. C. Kooiman, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 1207 (1998).
- [72] M. J. Nandor, M. A. Walker, L. D. Van Woerkom, and H. G. Muller, *Phys. Rev. A* **60**, R1771 (1999).
- [73] H. G. Muller, *Phys. Rev. A* **60**, 1341 (1999).
- [74] A. Becker and F. H. M. Faisal, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **29**, L197 (1996).

- [75] F. H. M. Faisal and A. Becker, in *Multiphoton Processes 1996*, edited by P. Lambropoulos and H. Walther (Institute of Physics Publishing, Bristol, UK, 1997), pp. 118–131.
- [76] T. Weber, M. Weckenbrock, A. Staudte, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, F. Afaneh, G. Urbasch, M. Vollmer, and R. Dörner, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 443 (2000).
- [77] R. Moshhammer, B. Feuerstein, W. Schmitt, A. Dorn, C. D. Schröter, J. Ullrich, H. Rottke, C. Trump, M. Wittmann, G. Korn, K. Hoffmann, and W. Sandner, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 447 (2000).
- [78] T. Weber, H. Giessen, M. Weckenbrock, G. Urbasch, A. Staudte, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, M. Vollmer, and R. Dörner, *Nature* **405**, 658 (2000).
- [79] U. Mohideen, M. H. Sheer, H. W. K. Tom, G. D. Aumiller, O. R. Wood II, R. R. Freeman, and J. Boker, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 509 (1993).
- [80] M. Bellini, C. Lyngå, M. B. Gaarde, T. W. Hänsch, A. L’Huillier, and C.-G. Wahlström, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 297 (1998).
- [81] A. L’Huillier, K. J. Schafer, and K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2200 (1991).
- [82] M. B. Gaarde, F. Salin, E. Constant, P. Balcou, K. J. Schafer, K. C. Kulander, and A. L’Huillier, *Phys. Rev. A* **59**, 1367 (1999).
- [83] P. Balcou, A. S. Dedrichs, M. B. Gaarde, and A. L’Huillier, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **32**, 2971 (1999).
- [84] C. Lyngå, M. B. Gaarde, C. Delfin, M. Bellini, T. W. Hänsch, A. L’Huillier, and C. G. Wahlström, *Phys. Rev. A* **60**, 4823 (1999).
- [85] D. B. Milošević, W. Becker, and R. Kopold, *Phys. Rev. A* **61**, 063403 (2000).
- [86] C. Figueira de Morisson Faria, D. B. Milošević, and G. G. Paulus, *Phys. Rev. A* **61**, 063415 (2000).
- [87] D. B. Milošević, *J. Phys. B: At., Mol. and Opt. Phys.* **33**, 2479 (2000).
- [88] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and M. V. Terent’ev, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **55**, 1393 (1966),
Engl. trans. *Sov. Phys.-JETP* **24**, 207 (1967).
- [89] A. Lohr, Ph.D. thesis, Technische Universität München, 1996.
- [90] W. Becker, J. K. McIver, and K. Wódkiewicz, *Laser Phys.* **2**, 475 (1993).
- [91] E. Cormier and P. Lambropoulos, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **30**, 77 (1997).
- [92] R. Kopold and W. Becker, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **32**, L419 (1999).

- [93] N. Bleistein and R. A. Handelsman, *Asymptotic Expansions of Integrals* (Dover, New York, 1986).
- [94] A. Czirják, R. Kopold, W. Becker, M. Kleber, and W. P. Schleich, *Opt. Commun.* **179**, 29 (2000).
- [95] R. Kopold, W. Becker, and M. Kleber, *Opt. Commun.* **179**, 39 (2000).
- [96] C. Figueira de Morisson Faria, M. Dörr, and W. Sandner, *Phys. Rev. A* **58**, 2990 (1998).
- [97] P. Dietrich, N. H. Burnett, M. Ivanov, and P. B. Corkum, *Phys. Rev. A* **50**, R3585 (1994).
- [98] B. Gottlieb, A. Lohr, W. Becker, and M. Kleber, *Phys. Rev. A* **54**, R1022 (1996).
- [99] C. Bracher, W. Becker, S. A. Gurvitz, M. Kleber, and M. S. Marinov, *Am. J. Phys.* **66**, 38 (1998).
- [100] M. Bashkansky, P. H. Bucksbaum, and D. W. Schumacher, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 274 (1987).
- [101] B. Yang, K. J. Schafer, B. Walker, K. C. Kulander, P. Agostini, and L. F. DiMauro, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 3770 (1993).
- [102] M. J. Nandor, M. A. Walker, and L. D. Van Woerkom, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **31**, 4617 (1998).
- [103] M. Bashkansky, P. H. Bucksbaum, and D. W. Schumacher, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 2458 (1988).
- [104] W. Becker, M. Kleber, A. Lohr, G. G. Paulus, H. Walther, and F. Zacher, *Laser Phys.* **8**, 56 (1998).
- [105] S. P. Goreslavskii and S. V. Popruzhenko, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **110**, 1200 (1996), Engl. trans. *Sov. Phys.-JETP* **83**, 661 (1996).
- [106] S. Basile, F. Trombetta, and G. Ferrante, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2435 (1988).
- [107] P. Krstić and M. H. Mittleman, *Phys. Rev. A* **44**, 5938 (1991).
- [108] A. Jaroń, J. Z. Kamiński, and F. Ehlotzky, *Opt. Commun.* **163**, 115 (1999).
- [109] G. G. Paulus, F. Grasbon, A. Dreischuh, H. Walther, R. Kopold, and W. Becker, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3791 (2000).
- [110] E. P. Wigner, *Phys. Rev.* **73**, 1002 (1948).
- [111] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, in *Quantum Mechanics (Non-relativistic Theory, Course of Theoretical Physics* (Pergamon, New York, 1977), Vol. 3, p. 147.

- [112] C. E. Moore, *Atomic Energy Levels* (Natl. Bur. Stand. (U.S.), U.S. GPO, Washington, DC, 1949), No. 467.
- [113] G. G. Paulus, F. Grasbon, H. Walther, R. Kopold, and W. Becker, Channel-Closing-Induced Resonances in the Above-Threshold Ionization Plateau, *Phys. Rev. Lett.* to be published, 2000.
- [114] F. H. M. Faisal and P. Scanzano, *Phys. Rev. Lett* **68**, 2909 (1992).
- [115] H. G. Muller, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 3158 (1999).
- [116] G. G. Paulus, private Mitteilung.
- [117] A. Becker and F. H. M. Faisal, *Phys. Rev. A* **59**, R1742 (1999).
- [118] A. Becker and F. H. M. Faisal, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **32**, L335 (1999).
- [119] J. B. Watson, A. Sanpera, D. G. Lappas, P. L. Knight, and K. Burnett, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1884 (1997).
- [120] U. Eichmann, M. Dörr, H. Maeda, W. Becker, and W. Sandner, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3550 (2000).
- [121] B. Walker, E. Mevel, B. Yang, P. Berger, J. P. Chambaret, A. Antonetti, L. F. DiMauro, and P. Agostini, *Phys. Rev. A* **48**, R894 (1993).
- [122] J. B. Watson, K. Burnett, and P. L. Knight, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **33**, L103 (2000).
- [123] J. Ullrich, R. Moshhammer, R. Dörner, O. Jagutzki, V. Mergel, H. Schmidt-Böcking, and L. Spielberger, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **30**, 2917 (1997).
- [124] R. Kopold, W. Becker, H. Rottke, and W. Sandner, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3781 (2000).
- [125] T. Weber, M. Weckenbrock, A. Staudte, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, F. Afaneh, G. Urbasch, M. Vollmer, and R. Dörner, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **33**, L127 (2000).
- [126] H. Rottke, private Mitteilung.
- [127] N. B. Delone and V. P. Krainov, *J. Opt. Soc. Am. B* **8**, 1207 (1991).
- [128] H. Rottke, private Mitteilung.
- [129] H. Rottke, private Mitteilung.
- [130] A. Becker and F. H. M. Faisal, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3546 (2000).
- [131] S. V. Popruzhenko and S. P. Goreslavskii, Photoelectron momentum distribution for double ionization in a strong laser field, submitted, 2000.

- [132] Y. N. Demkov and V. N. Ostrovskii, *Zero-Range Potentials and Their Application in Atomic Physics* (Plenum Press, New York, 1988).
- [133] K. Wódkiewicz, *Phys. Rev. A* **42**, 68 (1991).
- [134] E. Fermi, *Ric. Sci.* **7**, 13 (1936).
- [135] J. Mathews and R. L. Walker, *Mathematical Methods of Physics, Addison Wesley World Student Series* (Benjamin, Menlo Park, California, 1973).
- [136] G. Arfken, *Mathematical Methods for Physicists*, 3rd ed. (Academic Press, Boston, 1985).
- [137] C. Leubner and E. M. Strohmaier, *J. Phys. A: Math. Gen.* **14**, 509 (1981).
- [138] C. Leubner, *Phys. Rev. A* **23**, 2877 (1981).

Vielen Dank

Am Ende dieser Arbeit bietet sich mir die Gelegenheit mich bei einer Reihe von Personen zu bedanken mit denen ich in den letzten sehr schönen Jahren Leben und Arbeiten durfte. Rückblickend fallen mir dabei zunächst mein Doktorvater Manfred Kleber und Wilhelm Becker mein Betreuer im fernen Berlin ein. Sie haben durch eine ausgezeichnete Betreuung, nicht endende Motivation und Unterstützung ganz wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen. Vielen Dank.

Abgesehen von vielen aber doch immer zu kurzen Aufenthalten am Physik-Department in Garching entstand diese Arbeit am Max-Born-Institut in Berlin. Für eine sehr wohlwollende Aufnahme eines Süddeutschen möchte ich mich bei allen Mitarbeitern des MBI und insbesondere bei Wolfgang Sandner bedanken. Gleichmaßen bei Georg Sommerer und Carla Figueira de Morisson Faria und natürlich bei Martin Dörr. Bis auf letzteren haben beide das Schiff bereits verlassen. Dazugekommen sind andere ebenso sehr angenehme und wertvolle Kollegen wie Dejan B Milošević und Su Xing Hu, die Humboldt Stipendiaten.

Die Experimentatoren Christoph Trump und Horst Rottke, die insbesondere mit ihren Messungen der Impulsverteilungen bei der Mehrfachionisation den zweiten Teil dieser Arbeit getriggert haben, haben durch wertvolle Diskussionen und Information aus erster Hand ebenso ihren Anteil.

Durch Atilla Czirják und Wolfgang Schleich mit denen ich im Verlaufe meiner Arbeit ebenso zusammenarbeiten durfte habe ich Einblicke in ein Leben im Phasenraum gewonnen.

Dem Mann der Photoelektronspektren, Gerhard G. Paulus am MPQ in Garching bin ich zu besonderem Dank verpflichtet. Seine raffiniert durchgeführten ATI-Experimente haben deutliche Spuren im ersten Teil dieser Arbeit hinterlassen.

Von Christian Bracher und Mustafa Riza erhielt ich wertvolle Tips und Tricks. Mit ihnen diskutierte ich in Garching und anderen Lokalitäten unter Weiß-Blauem Himmel über alle wichtigen Dinge des Lebens. Durch denselebigen hat mich die Deutsche BA durch günstige Flüge zwischen Berlin und München ebenso zu meiner Freundin und Lebensgefährtin Ursi H., die aus beruflichen Gründen (MorphoSys AG) leider in München verweilen musste, immer stets sicher geleitet. Ihr gilt genauso wie meinen Eltern für die fortwährende Unterstützung und Zuneigung großer Dank.

Den DFG-Schwerpunkt für "Zeitabhängige Phänomene und Methoden in Quantensystemen der Physik und Chemie" aus dessen Topf ich meinen Lebensunterhalt beziehen durfte will ich schließlich ebenso erwähnen.