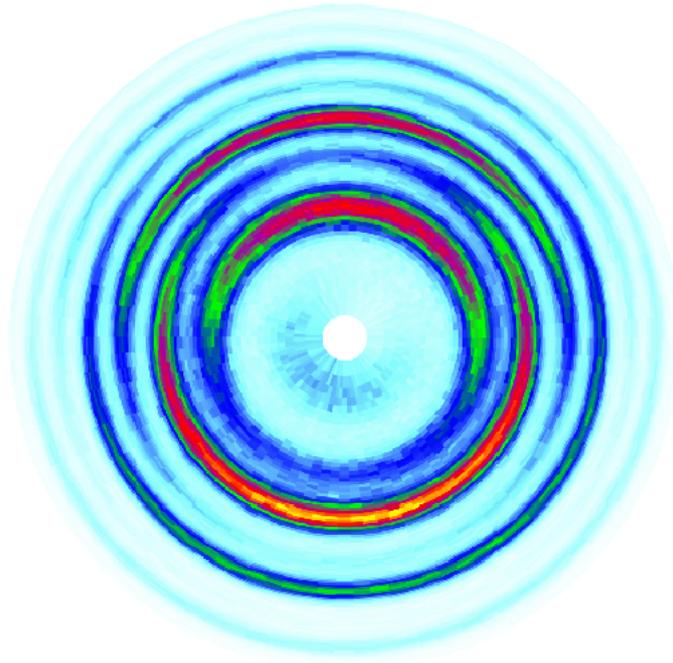


EXPERIMENTELLE UNTERSUCHUNGEN DER  
STARKFELDIONISATION VON ATOMEN UND  
MOLEKÜLEN

Charakterisierung der komplexwertigen elektronischen  
Wellenfunktion



**Dissertation**

zur Erlangung des Doktorgrades der Naturwissenschaften  
vorgelegt beim Fachbereich Physik der  
Johann Wolfgang Goethe-Universität in Frankfurt am Main von

**Daniel Trabert**  
aus Frankfurt am Main

Frankfurt 2022 (D30)

vom Fachbereich Physik der  
Johann Wolfgang Goethe-Universität als Dissertation angenommen.

Dekan:  
Prof. Dr. Harald Appelshäuser

Gutachter:  
Prof. Dr. Reinhard Dörner  
Prof. Dr. Till Jahnke

Datum der Disputation: 19.08.2022

*Nur scheinbar hat ein Ding eine Farbe, nur scheinbar ist es süß oder bitter;  
in Wirklichkeit gibt es nur Atome und leeren Raum.*  
Demokrit

# INHALTSVERZEICHNIS

---

## I EINLEITUNG

1	EINLEITUNG	1
---	------------	---

## II HINTERGRUND

2	IONISATION IN STARKEN LASERFELDERN	5
2.1	Keldysh-Parameter und einfache Modellvorstellungen	6
2.1.1	Above-Threshold-Ionization	6
2.1.2	Tunnelionisation	7
2.1.3	Over-the-Barrier Ionization	9
2.2	Das Zwei-Schritt Modell	10
2.3	Die Attoclock-Technik	12
2.4	ADK-Theorie	15
2.5	Strong Field Approximation	16
2.6	Der Tunnelausgang	19
2.6.1	Modelle des Tunnelausgangs	19
2.6.2	Einfluss auf klassische Trajektorien	22
2.7	Bizirkulare Zwei-Farben-Felder	25
3	MESSUNG VON PHOTOIONISATIONSZEITEN	27
3.1	Wigner- und Photoionisationszeiten	28
3.2	Attosecond-Streaking	32
3.3	RABBITT	34
3.4	Holographic angular streaking of electrons (HASE)	36
3.4.1	Betrachtung im Impulsraum	36
3.4.2	Zusammenhang mit dem Ortsraum	43
3.4.3	Partial Fourier Transform Modell	45

## III EXPERIMENT

4	ÜBERSICHT DES EXPERIMENTELLEN AUFBAUS	49
5	OPTISCHER AUFBAU	51
5.1	Lasersysteme	51
5.2	Interferometrische Zwei-Farben-Aufbauten	52
6	COLTRIMS-REAKTIONSMIKROSKOP	55
6.1	Spektrometer und Detektoren	55
6.2	Signalverarbeitung und Datenaufzeichnung	59
6.3	Vakuumsystem	59
6.4	Kalter Gas-Jet	60
6.5	Atomare Wasserstoffquelle	61
6.5.1	Einbau der atomaren Wasserstoffquelle	66
6.5.2	Tests der atomaren Wasserstoffquelle	66
7	EXPERIMENTELLE PARAMETER	73
8	DATENANALYSE	75
8.1	Rohdaten	75
8.2	Bestimmung der Gyrationperiode $T_B$ des magnetischen Feldes	80
8.3	Bestimmung des $m/q$ -Verhältnisses	81
8.4	Impulsrekonstruktion	82
8.5	Impulskorrekturen	85
8.6	Korrektur der relativen Phase des CoRTC-Feldes	89
8.7	Intensitätskalibration	93

IV ERGEBNISSE

9	NICHT-ADIABATISCHE STARKFELDIONISATION VON ATOMAREM WASSERSTOFF IN EINEM ELLIPTISCH POLARISIERTEN LASERFELD	99
9.1	Das Wasserstoffatom	99
9.2	Bestimmung energieaufgelöster Attoclock-Winkel	100
9.3	Vergleich der experimentellen Daten mit ab initio Theorie	106
9.4	Semiklassische Modellierung	108
9.4.1	Vergleich von CTS- und NACTS-Modell	108
9.4.2	Geltungsbereich von CTS- und NACTS-Modell für unterschiedliche Keldysh-Parameter $\gamma$	111
9.4.3	Möglicher Mechanismus der Startimpulsabhängigkeit von $r_0$	114
10	WINKELAUFGELÖSTE HASE-MESSUNG AM WASSERSTOFFMOLEKÜL	115
10.1	Das Wasserstoffmolekül	115
10.2	Trennung von Interferenz und Einhüllender	116
10.3	Semiklassische Modellierung	123
10.4	PFT-Modell für H <sub>2</sub>	127
10.5	Winkelabhängigkeit der Wignerzeit als Funktion der Energie	132
10.6	Intensitätsscan	136
11	WINKELAUFGELÖSTE HASE-MESSUNG AM ARGONDIMER	141
11.1	Das Argondimer	141
11.2	Cohen-Fano-Interferenz	143
11.3	Aufbruchskanäle und Zwei-Zentren-Interferenz	144
11.4	Trennung von Interferenz und Einhüllender	148
11.5	Bestimmung der Phasengradienten am Tunnelausgang	152
11.6	PFT-Modell für Ar <sub>2</sub>	154

V ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK

12	ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK	161
----	------------------------------	-----

VI ANHANG

A	ATOMARE EINHEITEN	165
B	DISKRETE FOURIER-TRANSFORMATION	167
C	INTENSITÄTSABSCHWÄCHUNG DURCH EINEN DÜNNESCHICHTPOLARISATOR	169
D	ROHDATEN (DS1 & DS3)	171
E	IMPULSKORREKTUREN (DS3)	175
F	IMPULSE IN KARTESISCHER DARSTELLUNG	177
G	PHASENKORREKTUR (DS2A)	181
H	INTENSITÄTSKALIBRATION (DS2)	183
I	AUSWAHL VON ELEKTRONEN AUS DER IONISATION VON ATOMAREM WASSERSTOFF (DS1)	185
J	AUSWAHL VON IONEN AUS DER DISSOZIATION VON Ar <sub>2</sub> (DS3)	187
K	VERGLEICH EINES CORTC- UND EINES CRFC-FELDES (DS3)	189

LITERATUR	191
-----------	-----

PUBLIKATIONEN	206
---------------	-----

BEITRÄGE ZU KONFERENZEN	211
-------------------------	-----

FORSCHUNGSaufENTHALTE 212



Teil I

EINLEITUNG

## EINLEITUNG

Häufig ist das Studium von grundlegenden Eigenschaften der Natur dann besonders aufschlussreich, wenn Systeme unter extremen Bedingungen und auf kürzesten Zeitskalen untersucht werden. Die Lichtintensität, der ein Atom durch einen intensiven Laserpuls mit einer Länge im Femtosekundenbereich<sup>1</sup> ausgesetzt ist, schafft solche extremen Bedingungen. Sie liegt in den in dieser Arbeit diskutierten Fällen im Bereich von  $10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Eine solche Intensität läge bei der Fokussierung der auf die Bundesrepublik Deutschland auftreffenden Sonneneinstrahlung auf die Größe einer Briefmarke vor. Es werden elektrische Feldstärken in der Größenordnung von  $10^{10} \text{ V/m}$  erreicht. Bei derart hohen Feldstärken werden die elektrostatischen Potentiale von Atomen und Molekülen so stark deformiert, dass der quantenmechanische Tunneleffekt auftreten kann und das Atom oder Molekül mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit ein oder mehrere Elektronen verliert. Da dies ein äußerst starkes Laserfeld voraussetzt, wird dieser Prozess als Starkfeldionisation bezeichnet. Bei diesem scheinbar einfachen Prozess sind viele Fragen bis heute nicht abschließend geklärt. Eine dieser Fragen betrifft die Zeitskala: wie lange dauert es, bis das Elektron wirklich freigesetzt ist und hängt dies eventuell von der Richtung ab, in die das Elektron emittiert wird? Ebenso stellt sich die Frage, an welchem Ort das Elektron als freigesetzt betrachtet werden kann.

Um mögliche Antworten auf diese fundamentalen Fragen zu finden, wurde die Komplexität der in dieser Arbeit experimentell untersuchten Systeme schrittweise erhöht. Den Anfang stellt die Untersuchung der Starkfeldionisation am Wasserstoffatom dar, einem System, das nur aus einem Elektron und dem Kern besteht und perfekte sphärische Symmetrie aufweist. Daher stellt sich bei diesem System die Frage einer Richtungsabhängigkeit nicht, stattdessen lässt sich klären, in welchem Abstand vom Kern und mit welcher Geschwindigkeitsverteilung das Elektron freigesetzt wird. Im nächsten Schritt wird die Starkfeldionisation am Wasserstoffmolekül betrachtet. Da dieses lineare Molekül eine ausgezeichnete Achse, zugleich jedoch eine sehr einfache Struktur aufweist, lässt sich an ihm klären, wie der Ort und die Dauer der Elektronenfreisetzung von der Emissionsrichtung relativ zur Molekülachse abhängen. In einem weiteren Schritt wird die Ionisation an zwei schwach aneinander gebundenen Argonatomen, dem Argondimer, untersucht. Dies erlaubt es, den Einfluss einer fundamentalen physikalischen Eigenschaft, der Parität des gebundenen Elektrons, auf die Starkfeldionisation zu beleuchten.

Die Beschreibung der Prozesse auf atomarer und molekularer Größenskala muss durch Wellenfunktionen im Rahmen der Quantenmechanik erfolgen. Daher muss auch das bei der Starkfeldionisation freigesetzte Elektron durch eine Wellenfunktion dargestellt werden, die als elektronische Wellenfunktion bezeichnet werden kann. Die Wellenfunktion stellt ein im Allgemeinen komplexwertiges Objekt dar und wird daher durch ihre Amplitude und Phase charakterisiert<sup>2</sup>. Aus dieser elektronischen Wellenfunktion lassen sich die eingangs gestellten Fragen des „Wo“ und des „Wann“ der Freisetzung des Elektrons beantworten. Die Charakterisie-

<sup>1</sup> Eine Femtosekunde entspricht einer Zeitspanne von  $10^{-15} \text{ s}$

<sup>2</sup> Eine komplexe Zahl  $z = a \exp(i\phi)$  kann durch die Amplitude  $a$  und die Phase  $\phi$  definiert werden, wobei  $i^2 = -1$ .

nung von Amplitude und Phase der elektronischen Wellenfunktion ist im Rahmen dieser Arbeit sowohl im Orts-, wie auch im Impulsraum gelungen.

Der Impuls der bei der Starkfeldionisation freiwerdenden Elektronen stellt die zentrale Beobachtungsgröße für alle im Folgenden diskutierten Experimente dar. Er kann mit der genutzten Experimentiertechnik präzise gemessen werden. Während der Impuls eines einzelnen Elektrons keine aussagekräftigen Informationen enthält, kann aus der Messung vieler Elektronenimpulse ihre statistische Verteilung ermittelt werden. Die Elektronenimpulsverteilung enthält eine Vielzahl an Informationen sowohl über den Prozess der Starkfeldionisation an sich, als auch über das ionisierte Atom oder Molekül. Es wurden unterschiedliche gebundene Systeme und Geometrien von zeitabhängigen Laserfeldern gewählt. Die Ergebnisse für die drei untersuchten Systeme, Wasserstoffatom, Wasserstoffmolekül und Argondimer, sowie ihre theoretische Modellierung und Einordnung sind in den Kapiteln 9, 10 und 11 dargestellt.

Die für die Einordnung der präsentierten Ergebnisse nötigen theoretischen und konzeptionellen Grundlagen werden in den Kapiteln 2 und 3 eingeführt. Daran schließt sich in den Kapiteln 4 bis 6 eine Beschreibung wichtiger Komponenten der verwendeten Experimentalaufbauten an. Hierbei sollen vor allem Besonderheiten und spezifische Eigenschaften näher diskutiert werden. Für Grundlagen wird weitgehend auf Literatur verwiesen. Mit Kapitel 7 schließt sich eine kurze Zusammenstellung der experimentellen Parameter und Einstellungen für die einzelnen Messungen an. Das darauffolgende Kapitel 8 widmet sich den einzelnen Schritten der Datenanalyse. Hierbei wird das Ziel verfolgt, die Abfolge der Auswertungsschritte anhand eines Datensatzes von Anfang bis Ende darzustellen. Es folgen die bereits genannten Kapitel 9, 10 und 11 mit den experimentellen Ergebnissen. Den Abschluss bildet eine kurze Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse gefolgt von einem Ausblick auf offene Fragestellungen, deren Untersuchung das Ziel künftiger experimenteller Arbeiten darstellen kann.

Wenn nicht anders gekennzeichnet, werden durchweg atomare Einheiten (a.u.) verwendet (siehe Anhang A). Für alle vektoriellen Größen  $\vec{a}$  gilt, dass sich das entsprechende skalare Formelzeichen  $a$  als Betrag von  $\vec{a}$  versteht. Fehlerbalken stellen grundsätzlich den statistischen Fehler dar und werden daher nicht für jede Abbildung gesondert definiert. Die Bestimmung des statistischen Fehlers erfolgte für alle abgeleiteten Größen aus der zufälligen Aufteilung aller zu einem Datensatz gehörigen Ereignisse in fünf (Kapitel 9) bzw. drei (Kapitel 10 und 11) Teildatensätze, für die die jeweiligen Auswertungsschritte analog durchgeführt wurden. Aus den einzelnen Teilergebnissen wurden der Mittelwert als Ergebnis und die Standardabweichung als statistischer Fehler bestimmt.

Aufgrund der Einbeziehung publizierter Ergebnisse und ihrer Darstellung kommt es im Verlauf dieser Arbeit stellenweise zu Umdefinitionen von Formelzeichen oder Änderungen des verwendeten Koordinatensystems. Auf diese wird an den entsprechenden Stellen explizit hingewiesen.



Teil II

HINTERGRUND

Die theoretische Interpretation des photoelektrischen Effekts durch *Einstein* im Jahr 1905 [1] kann als Fundament der modernen Auffassung von Licht-Materie-Wechselwirkungen gelten. Bereits im Jahr 1931 diskutierte *Göppert-Mayer* den Fall einer Ionisation durch die nicht-resonante Absorption von zwei Photonen [2]. Die Entwicklung des ersten Lasers durch *Maiman* [3] bereitete den Weg für die Erzeugung von kohärenter elektromagnetischer Strahlung hoher Intensität und großer elektrischer Feldamplituden. Erste Experimente zur Starkfeldionisation folgten kurz darauf. So beobachteten *Meyerand und Haught* [4] bereits 1963 Spannungsdurchschläge in Helium und Argon, die durch fokussierte Laserpulse eines Rubinlasers ausgelöst wurden. Im Jahr 1965 stellte *Keldysh* [5] unter anderem inspiriert von diesen Arbeiten eine umfassende Theorie zur Starkfeldionisation vor.

Die Wechselwirkung eines starken Laserfeldes mit einem Atom wird im nicht-relativistischen Fall durch die zeitabhängige Schrödingergleichung (engl. 'time-dependent Schrödinger equation', TDSE) vollständig beschrieben. Diese lautet dann für ein einzelnes durch die Wellenfunktion  $\psi(\vec{r}, t)$  beschriebenes Elektron:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\vec{r}, t) = H(t) \psi(\vec{r}, t) \quad (2.1)$$

mit dem entsprechenden Hamiltonoperator in der Geschwindigkeitseichung

$$H(t) = \frac{1}{2} \left( \vec{p} + \vec{A}(t) \right)^2 + V(\vec{r}) \quad (2.2)$$

Der Hamiltonoperator setzt sich aus einem die kinetische Energie repräsentierenden Anteil mit dem Impuls  $\vec{p}$  des Elektrons und dem zeitabhängigen Vektorpotential  $\vec{A}(t)$  des Laserfeldes sowie dem atomaren oder molekularen Potential  $V(\vec{r})$  zusammen. Ein direktes Lösen der TDSE kann in allen praktischen Fällen nur numerisch erfolgen. Die entsprechenden Rechnungen zu den in den Kapiteln 9 und 10 vorgestellten und in [6] und [7] publizierten experimentellen Ergebnissen wurden von *Simon Brennecke* durchgeführt.

Während die TDSE eine vollständige Beschreibung der Starkfeldionisation erlaubt, kann anhand des sogenannten Keldysh-Parameters zwischen den beiden in Abschnitt 2.1 beschriebenen anschaulichen Grenzfällen der Multi-Photonen- und der Tunnelionisation unterschieden werden. Auf dem Konzept der Tunnelionisation aufbauend wird in Abschnitt 2.2 ein auf Trajektorien basierendes semiklassisches Modell der Starkfeldionisation vorgestellt und in Abschnitt 2.3 auf die Ionisation in elliptisch polarisierten Laserfeldern angewandt. Motiviert durch das Ziel einer qualitativ richtigen semiklassischen Beschreibung der zugrundeliegenden Prozesse werden die ADK-Theorie (Abschnitt 2.4), die 'Strong field approximation' (Abschnitt 2.5) und unterschiedliche Modelle des Tunnelausgangs (Abschnitt 2.6) dargestellt und diskutiert. Zuletzt werden in Abschnitt 2.7 bizirkulare Zwei-Farbenfelder behandelt, welche die Grundlage der im folgenden Kapitel 3 vorgestellten HASE-Technik ('holographic angular streaking of electrons') bilden.

## 2.1 KELDYSH-PARAMETER UND EINFACHE MODELLVORSTELLUNGEN

Die Wechselwirkung eines starken Laserfeldes mit einem Atom oder Molekül wird vorrangig durch drei physikalische Größen charakterisiert. Dabei handelt es sich um das Ionisationspotential  $I_p$  des Atoms oder Moleküls, die Amplitude  $E_0$  und die Kreisfrequenz  $\omega$  des oszillierenden elektrischen Feldes. Nach der ursprünglichen Interpretation des photoelektrischen Effekts kann es nur dann zur Ionisation kommen, wenn die Photonenenergie  $E_{\text{photon}} = \hbar\omega$  größer als das Ionisationspotential  $I_p$  ist. Das Quadrat von  $E_0$  ist proportional zur Photonendichte und damit auch zur Ionisationsrate. Dies ändert jedoch nichts an dem Kriterium einer minimalen Photonenenergie. Für den Fall, dass  $E_{\text{photon}} < I_p$ , wäre die Ionisation somit ausgeschlossen. Wie *Einstein* bereits 1905 anmerkte, gilt dies jedoch nur für hinreichend schwache elektrische Felder  $E_0$ . Erreichen diese jedoch eine Stärke, die vergleichbar mit der des vom Atomkern ausgehenden elektrostatischen Feldes ist, beziehungsweise wird eine ausreichend hohe Photonendichte erreicht, kann es zur Starkfeldionisation kommen.

Je nachdem, welche Kombination der zentralen Parameter  $I_p$ ,  $E_0$  und  $\omega$  vorliegt, werden verschiedene physikalische Bilder und Näherungen zur Beschreibung des Ionisationsprozesses bemüht. Die Starkfeldionisation stellt einen all diese Grenzfälle einschließenden physikalischen Vorgang dar. Kontinuierliche Änderungen von  $I_p$ ,  $E_0$  und  $\omega$  führen nicht unmittelbar zu qualitativ unterschiedlichen Prozessen. Häufig werden die Multi-Photonen-Ionisation und die Tunnelionisation als Grenzfälle der Starkfeldionisation bezeichnet. Eine Unterscheidung wird anhand des Keldysh-Parameters  $\gamma$  vorgenommen [5]:

$$\gamma = \frac{\omega\sqrt{2I_p}}{E_0} \quad (2.3)$$

Für  $\gamma \gg 1$ , also für den Fall eines schnell oszillierenden Feldes bzw. einer kleinen Amplitude  $E_0$ , wird von der Multi-Photonen-Ionisation gesprochen. Der damit eng verknüpfte Prozess der Über-Schwelle-Ionisation (engl. 'Above-Threshold-Ionization', ATI) wird im folgenden Abschnitt 2.1.1 näher behandelt. Ein Keldysh-Parameter von  $\gamma \ll 1$  hingegen wird mit dem Bild der (adiabatischen) Tunnelionisation assoziiert, welche in Abschnitt 2.1.2 diskutiert wird. Zwischen diesen beiden Grenzfällen kann von nicht-adiabatischer Tunnelionisation gesprochen werden [8, 9]. Einen weiteren Grenzfall der Starkfeldionisation stellt der 'Over-the-Barrier'-Prozess dar, welcher für besonders hohe Feldamplituden  $E_0$  auftreten kann (siehe Abschnitt 2.1.3).

## 2.1.1 Above-Threshold-Ionization

Die Grundlage der hier behandelten 'Above-Threshold-Ionization' bildet die Multi-Photonen-Ionisation. Dahinter steht die physikalische Vorstellung, dass eine ausreichend hohe Photonendichte die simultane Absorption von  $n$  Photonen erlaubt, sodass das Energiekriterium  $n \cdot \hbar\omega > I_p$  erfüllt ist. Diese Variante des Energiekriteriums gilt jedoch nur für verschwindende Feldamplituden  $E_0$ , tatsächlich muss das Kriterium für nicht-verschwindende Werte von  $E_0$  modifiziert werden. Ein Elektron, welches sich frei in einem oszillierenden elektrischen Feld der Kreisfrequenz  $\omega$  und der Feldamplitude  $E_0$  bewegt, besitzt eine mittlere kinetische Energie, die als ponderomotorisches Potential  $U_p$  bezeichnet wird:

$$U_p = \frac{E_0^2}{4\omega^2} \quad (2.4)$$

Da sich das Energieniveau des Kontinuums gegenüber  $I_p$  um das ponderomotorische Potential  $U_p$  erhöht, muss die Bedingung  $n \cdot \hbar\omega > (I_p + U_p)$  erfüllt werden. Aufgrund der Energieerhaltung folgt damit für die kinetische Energie des freigesetzten Elektrons:

$$E_{\text{kin}} = n \cdot \hbar\omega - I_p - U_p \quad (2.5)$$

Zusätzlich zu dem bei diesem Wert erwartbaren Maximum im Elektronenenergiespektrum beobachteten *Agostini et al.* bereits 1979 bei der Ionisation von Xenon die Entstehung eines weiteren Maximums im Elektronenenergiespektrum, welches einen Energieunterschied von  $\hbar\omega$  zum ersten Maximum aufwies [10]. Der zugrundeliegende Prozess wird als 'Above-Threshold-Ionization' (ATI) bezeichnet und beschreibt die Absorption von  $m$  weiteren, zusätzlich zu den  $n$  zur Ionisation nötigen Photonen. Die kinetische Energie  $E_{\text{kin}}$  eines resultierenden Photoelektrons ist dann gegeben durch [11]:

$$E_{\text{kin}} = (n + m) \cdot \hbar\omega - I_p - U_p \quad (2.6)$$

Die periodisch auftretenden Maxima in der Elektronenenergieverteilung werden im Folgenden als ATI-Peaks bezeichnet. Es ist anzumerken, dass die Verschiebung der ATI-Peaks um  $U_p$  für hinreichend lange Laserpulse entfällt, da das Elektron diese Energie beim Verlassen des Fokusvolumens zurückerhält [11]. Die in dieser Arbeit diskutierten Experimente wurden jedoch alle mit Pulslängen von weniger als 100 fs durchgeführt, womit die Verschiebung um  $U_p$  zu kleineren Elektronenenergien erhalten ist und sogar zur Intensitätskalibration eingesetzt wird (siehe Abschnitt 8.7). Das Zustandekommen von ATI-Peaks kann auch in zeitabhängigen und auf Trajektorien basierenden Modellen durch aus der zeitlichen Periodizität des Laserfeldes resultierende 'intercycle'-Interferenz verstanden werden und ist daher mit dem Bild der Tunnelionisation verträglich [12, 13].

### 2.1.2 Tunnelionisation

Für einen Keldysh-Parameter  $\gamma \ll 1$  kann der Ionisationsvorgang als Tunnelprozess in einem statischen Feld beschrieben werden. Die zeitliche Entwicklung des elektrischen Feldvektors  $\vec{E}(t)$  wird dabei vernachlässigt, nur der instantane Betrag  $E$  ist relevant [14]. Dieses starke externe elektrische Feld  $E$  ist in der Lage, das elektrostatische Potential  $V_0$  eines Atoms oder Moleküls so zu deformieren, dass sich aus der Sicht des mit der Energie  $-I_p$  gebundenen Elektrons eine Potentialbarriere endlicher Breite ausbildet. Für den in Abb. 2.1 a dargestellten Fall atomaren Wasserstoffs ergibt sich das resultierende Potential  $V(r_{\parallel}) = V_0 - Er_{\parallel}$  mit  $V_0 = -\frac{1}{|r_{\parallel}|}$  als Funktion der Koordinate  $r_{\parallel}$  antiparallel zur Richtung des elektrischen Feldvektors  $\vec{E}$ . Das Elektron ist mit einem  $I_p$  von 13,6 eV bzw. 0,5 a.u. gebunden. Die blaue Kurve stellt den Fall des ungestörten atomaren Potentials dar. Unterhalb dieser Kurve befindet sich der klassisch verbotene Bereich, die Amplitude der Wellenfunktion des gebundenen Elektrons fällt innerhalb dieses Bereichs exponentiell mit dem Betrag von  $r_{\parallel}$  ab. Ohne äußere Energiezufuhr kann das Elektron die Potentialsenke nicht verlassen.

Die rote, gelbe und violette Kurve stellen jeweils Situationen dar, in denen die Feldstärke ausreicht, das Potential derart zu verformen, dass sich rechts des klassisch verbotenen Bereichs ein energetisch erlaubter Bereich aufbaut, in den das Elektron durch quantenmechanisches Tunneln gelangen kann. Die Stelle, an der dieser Übergang stattfindet, wird häufig als Tunnelausgang mit dazugehörigem Abstand  $r_0$  vom Zentrum des bindenden Potentials bezeichnet. Der entsprechende Ortsvektor  $\vec{r}_0$  ist antiparallel zum elektrischen Feldvektor orientiert. Für die

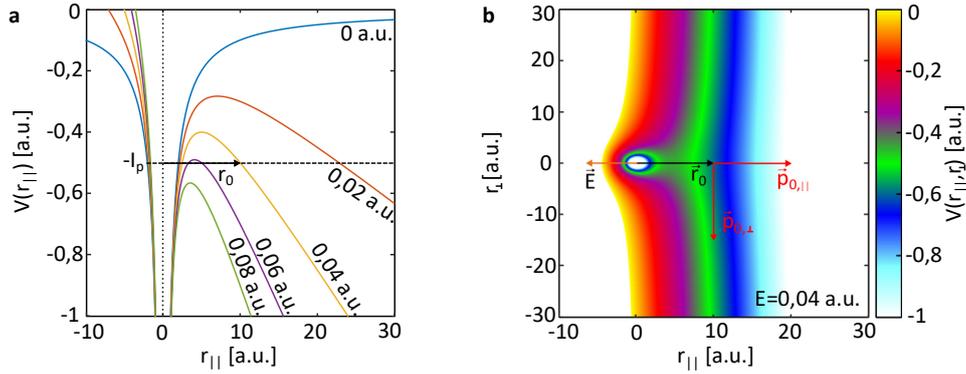


Abbildung 2.1: **a** Das resultierende Potential aus dem elektrostatischen Potential des Atomkerns und unterschiedlichen externen elektrischen Feldstärken  $E$  von 0 a.u. bis 0,08 a.u. Für den betrachteten Fall atomaren Wasserstoffs ( $I_p = 0,5$  a.u.) ergeben sich die jeweiligen Tunnelbarrieren der Länge  $r_0$  oberhalb der bei  $-I_p$  eingezeichneten gestrichelten Linie. Die grüne Kurve stellt einen Fall dar, bei dem es zum 'Over-the-Barrier'-Prozess kommt. **b** Das resultierende Potential aus dem elektrostatischen Potential des Atomkerns und einem externen elektrischen Feld von 0,04 a.u. Die beiden Komponenten des Startimpulses  $\vec{p}_{0,\parallel}$  und  $\vec{p}_{0,\perp}$  sind dargestellt.

Wahrscheinlichkeit des Durchquerens der Potentialbarriere ergibt sich eine exponentielle Abhängigkeit sowohl von  $I_p$  als auch von der elektrischen Feldstärke  $E$  (siehe Abschnitt 2.4). Die grüne Kurve illustriert einen Fall, in dem das elektrische Feld mit 0,08 a.u. so stark ist, dass der klassisch verbotene Bereich unter  $-I_p$  rutscht. Bei diesem 'Over-the-Barrier'-Prozess kann das Elektron das Atom ohne den Tunnelmechanismus verlassen (siehe den folgenden Abschnitt 2.1.3). Abb. 2.1 **b** zeigt das kombinierte Potential aus  $V_0$  und elektrischem Feld entlang und senkrecht zum elektrischen Feldvektor  $\vec{E}$ . Das an der Stelle  $\vec{r}_0$  aus dem Tunnel austretende Elektron kann im Allgemeinen einen sogenannten Startimpuls  $\vec{p}_0$  besitzen. Dieser kann in eine zu  $\vec{r}_0$  parallele Komponente  $\vec{p}_{0,\parallel}$  und eine senkrechte Komponente  $\vec{p}_{0,\perp}$  zerlegt werden, wobei erstere für den adiabatischen Grenzfall verschwindet. Die zu erwartende Verteilung der senkrechten Startimpulse  $\vec{p}_{0,\perp}$  wird in der adiabatischen Näherung durch die sogenannte Ammosov-Delone-Krainov-Theorie beschrieben (siehe Abschnitt 2.4).

Die Bedingung  $\gamma \ll 1$  ist in tatsächlichen Experimenten fast nie erfüllt. Tatsächlich werden häufig Werte im Bereich von  $\gamma \approx 1$  angetroffen. Im Gegensatz zu dem bisher diskutierten Grenzfall adiabatischer Tunnelionisation, kann dies als der Fall nicht-adiabatischer Tunnelionisation aufgefasst werden [8, 9, 15]. Die nun nicht mehr vernachlässigbare zeitliche Entwicklung des elektrischen Feldvektors  $\vec{E}(t)$  hat eine Reihe von Konsequenzen sowohl für den Ort des Tunnelausgangs  $\vec{r}_0$  als auch für die Verteilung der Startimpulse. Insbesondere muss für  $\vec{p}_{0,\perp}$  unterschieden werden, ob die Komponente parallel zur Lichtausbreitungsrichtung oder die in der Polarisationssebene (siehe Abschnitt 2.3) des Lichtes liegende betrachtet wird. Die in Abschnitt 2.5 behandelte 'Strong field approximation' erlaubt es, unter vereinfachten Annahmen analytische Vorhersagen für nicht-adiabatische Bedingungen zu treffen.

2.1.3 *Over-the-Barrier Ionization*

Wird das Atom oder Molekül einem externen elektrischen Feld ausgesetzt, welches stark genug ist, die Potentialbarriere so zu unterdrücken, dass ihr Maximum unter  $-I_p$  absinkt, kann es zur Über-die-Barriere Ionisation (engl. 'Over-the-Barrier ionization', OBI) kommen. Ein solches resultierendes Potential ist durch die grüne Kurve in Abb. 2.1 a dargestellt. Aus dem Nullsetzen der Ableitung von  $V(r_{\parallel})$  nach  $r_{\parallel}$  ergibt sich, dass das Maximum der Potentialbarriere bei  $r_{\parallel} = \frac{1}{\sqrt{E}}$  anzutreffen ist. Aus der Forderung, dass  $V(\frac{1}{\sqrt{E}}) < -I_p$ , folgt die Over-the-Barrier-Bedingung:

$$E_{\text{OBI}} > \frac{I_p^2}{4} \quad (2.7)$$

Für die drei im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Systeme H, H<sub>2</sub> und Ar<sub>2</sub> sind die jeweiligen Feldstärken  $E_{\text{OBI}}$  allesamt deutlich größer als die im Experiment tatsächlich realisierten elektrischen Spitzenfelder.

## 2.2 DAS ZWEI-SCHRITT MODELL

Viele Aspekte der Starkfeldionisation können auch in semiklassischen Bildern anschaulich und z.T. sogar quantitativ zutreffend beschrieben werden. Während das Lösen der TDSE zunächst nur Observablen, wie bspw. die gemessene Elektronenimpulsverteilung reproduziert, erlauben semiklassische Modelle Einblicke in den zeitlichen Ablauf und in Teilmechanismen des Ionisationsprozesses. In solch einer einfachen, semiklassischen Modellvorstellung kann der Prozess der Starkfeldionisation in zwei Schritte unterteilt werden [16–18]:

- Übergang des Elektrons ins Kontinuum am Ort  $\vec{r}_0$ , zum Zeitpunkt  $t_0$  und mit dem Startimpuls  $\vec{p}_0$  durch Tunnelionisation.
- Klassische Propagation im Laserfeld und dem Coulomb-Potential des Mutterions

Der erste Schritt kann im Kontext des adiabatischen Grenzfalls [13] (siehe Abschnitt 2.4) oder unter Berücksichtigung nicht-adiabatischer Korrekturen (siehe Abschnitt 2.5) modelliert werden. So ergeben sich unterschiedliche Vorhersagen für die Ionisationswahrscheinlichkeit  $w$  in Abhängigkeit vom elektrischen Feld  $\vec{E}(t)$  und des Startimpulses  $\vec{p}_0$ .

Der zweite Schritt beruht auf der Annahme, dass das Elektron ab dem Zeitpunkt  $t_0$  als klassisches Teilchen betrachtet werden kann. Es unterliegt dabei den Kräften des zeitabhängigen elektrischen Feldes  $\vec{E}(t)$  und der Coulomb-Wechselwirkung mit dem nun ionisierten Atom oder Molekül, in dem es zuvor gebunden war. Wird die Coulomb-Wechselwirkung mit dem Mutterion vernachlässigt, ergibt sich der Endimpuls  $\vec{p}_{\text{elec}}$  des Elektrons aus:

$$\vec{p}_{\text{elec}} = \vec{p}_0 - \int_{t_0}^{\infty} \vec{E}(t) dt = \vec{p}_0 - \vec{A}(t_0) \quad (2.8)$$

Dies setzt voraus, dass  $\vec{A}(t)$  für  $t \rightarrow \infty$  verschwindet. Innerhalb der in dieser Arbeit betrachteten Dipolnäherung wird dabei das mit dem Lichtfeld verbundene magnetische Feld vernachlässigt und das elektrische Feld als ortsunabhängig angenommen.

Wird nun die Coulomb-Wechselwirkung berücksichtigt, müssen die klassischen Bewegungsgleichungen numerisch gelöst werden, um die Trajektorie des Elektrons im Orts- und Impulsraum zu erhalten. Im Folgenden wird der Ladungszustand des Mutterions als Vielfaches der Elementarladung  $e$  mit  $Z$  bezeichnet. Die Newtonschen Bewegungsgleichungen lauten dann [13]:

$$\ddot{\vec{r}}(t) = -\vec{E}(t) - \frac{Z\vec{r}(t)}{r^3(t)} \quad (2.9)$$

Soll nicht nur der Endimpuls  $\vec{p}_{\text{elec}}$  einer einzelnen Trajektorie bestimmt, sondern eine ganze Elektronenimpulsverteilung reproduziert werden, so bietet es sich an, eine Vielzahl an Trajektorien mit unterschiedlichen Startbedingungen zu berechnen und gemäß den oben diskutierten Ionisationswahrscheinlichkeiten zu gewichten. Das Zwei-Schritt Modell kann dahingehend erweitert werden, dass Interferenzen in der Elektronenimpulsverteilung reproduziert werden können. In dem als 'semiclassical two-step model' (SCTS) bezeichneten Modell wird für jede

zum Zeitpunkt  $t_0^j$  mit der Startgeschwindigkeit  $\vec{v}_0^j = \frac{\vec{p}_0^j}{m_e}$  initialisierte klassische Trajektorie  $j$  eine semiklassische Phase  $\Phi(t_0^j, \vec{v}_0^j)$  berechnet [13]:

$$\Phi(t_0^j, \vec{v}_0^j) = -\vec{v}_0^j \cdot \vec{r}(t_0^j) + I_p t_0^j - \int_{t_0^j}^{\infty} dt \left( \frac{p^2(t)}{2} - \frac{2Z}{r(t)} \right) \quad (2.10)$$

Aus der Phasendifferenz zweier im Endimpulsraum benachbarter Trajektorien kann die Interferenzbedingung bestimmt werden. Werden diese Interferenzen vernachlässigt, geht das SCTS-Modell in das CTS-Modell über [6].

Zur Modellierung der in dieser Arbeit präsentierten experimentellen Ergebnisse wurden unterschiedliche Varianten semiklassischer Modelle bemüht. Diese unterscheiden sich vor allem in den Gewichtungen der Startbedingungen sowie der Berücksichtigung bzw. Vernachlässigung von Interferenzeffekten. Die jeweiligen Besonderheiten werden in den entsprechenden Ergebniskapiteln dargestellt.

## 2.3 DIE ATTOCLOCK-TECHNIK

Unter Vernachlässigung der Pulseinhüllenden kann das zeitabhängige elektrische Feld  $\vec{E}(t)$  eines Laserpulses mit einer einzelnen zentralen Kreisfrequenz  $\omega$  durch die Elliptizität  $\epsilon$  von 0 bis  $\pm 1$  charakterisiert werden. Die beiden Komponenten des Vektors  $\vec{E}(t)$  spannen die sogenannte Polarisationssebene orthogonal zur Ausbreitungsrichtung des Lichtes auf. In dieser vollzieht sich an einem festen Ort die zeitliche Entwicklung von  $\vec{E}(t)$  gemäß:

$$\vec{E}(t) = \begin{pmatrix} E_0 \cos(\omega t) \\ \epsilon E_0 \sin(\omega t) \end{pmatrix} \quad (2.11)$$

Die Extremfälle eines solchen elliptisch polarisierten Lichtfeldes stellen die lineare ( $\epsilon=0$ ) und die zirkulare ( $\epsilon=\pm 1$ ) Polarisation dar. Das Vorzeichen von  $\epsilon$  gibt Auskunft über den Drehsinn (Helizität) des in der Polarisationssebene rotierenden Feldvektors. Lichtfelder mit einer Elliptizität nahe aber kleiner 1 stellen eine übliche Feldgeometrie für sogenannte 'Attoclock'-Experimente dar.

Die Bezeichnung 'Attoclock' [19] (deutsch 'Atto-Uhr') beruht darauf, dass dem elektrischen Feldvektor  $\vec{E}(t)$  ein von der Zeit  $t$  abhängiger Winkel in der Polarisationssebene zugeordnet werden kann. Dies legt die Analogie zu einer Uhr nahe, bei der sich der Winkel des Zeigers in der Ebene des Ziffernblattes ebenfalls zeitabhängig ändert. Für übliche optische Wellenlängen liegen die Schwingungsdauern  $T = \frac{2\pi}{\omega}$  und damit die Zeit, in der der 'Zeiger' einen vollen Umlauf vollführt, im Bereich weniger Femtosekunden. So ergibt sich beispielsweise für die Wellenlänge  $\lambda=800$  nm eine Periodendauer  $T$  von etwa 2,7 fs, was bedeutet, dass eine Winkeländerungen von einem Grad einem Zeitunterschied von etwa 7,4 Attosekunden (as) entspricht.

Im weiteren Sinne umfasst der Begriff der 'Attoclock'-Technik Experimente, deren zentrale Observable in dem Winkelunterschied zwischen der Lage des zum wahrscheinlichsten Ionisationszeitpunkts  $t_1$  gehörenden negativen Vektorpotentials  $-\vec{A}(t_1)$  und der des Maximums der tatsächlich gemessenen Elektronenwinkelverteilung besteht. Durch die exponentielle Abhängigkeit der Ionisationsrate von der Amplitude des elektrischen Feldes finden sich für jeden Schwingungszyklus elliptisch polarisierten Lichtes zwei Zeitpunkte  $t_1$  und  $t_2 = t_1 + \frac{T}{2}$ , an denen die Ionisationsrate maximal ist. Die zu diesen beiden Zeitpunkten  $t_1$  und  $t_2$  gehörenden negativen Vektorpotentiale  $-\vec{A}(t_1)$  und  $-\vec{A}(t_2)$  definieren damit die kleine Halbachse der Ellipse. Entsprechend kann für elliptisch polarisiertes Licht ein Attoclock-Winkel  $\alpha_{\text{off}}$  zwischen jener kleinen Halbachse und den Maxima der zweifach-symmetrischen Fourier-Komponente  $F_2$  (siehe Anhang B) der gemessenen Elektronenwinkelverteilung definiert werden. Die Helizität des Lichtes bestimmt dabei das Vorzeichen von  $\alpha_{\text{off}}$ , sodass eine stärkere Drehung im Drehsinn des Lichtes größeren Werten von  $\alpha_{\text{off}}$  entspricht. Aufgrund der Linearität der Fourier-Transformation ändert sich die Definition von  $\alpha_{\text{off}}$  nicht, wenn nur eine einzelne zum Zeitpunkt  $t_1$  oder  $t_2$  startende Trajektorie betrachtet wird.

Für eine einzelne mit  $\vec{p}_{0,\parallel} = 0$  am Ort  $\vec{r}_0$  initialisierte klassische Trajektorie kann die durch das Potential  $V(\vec{r}) = -1/|r|$  beschriebene Coulomb-Wechselwirkung mit dem Mutterion als entscheidender Beitrag zu  $\alpha_{\text{off}}$  identifiziert werden. Abb. 2.2 a zeigt beispielhaft ein elliptisch polarisiertes Feld  $\vec{E}(t)$  mit einer Elliptizität von  $\epsilon = 0,85$  und das dazugehörige negative Vektorpotential  $-\vec{A}(t)$  für eine zentrale Wellenlänge von  $\lambda=790$  nm und  $E_0=0,05$  a.u. Es wird angenommen, dass ein Elek-

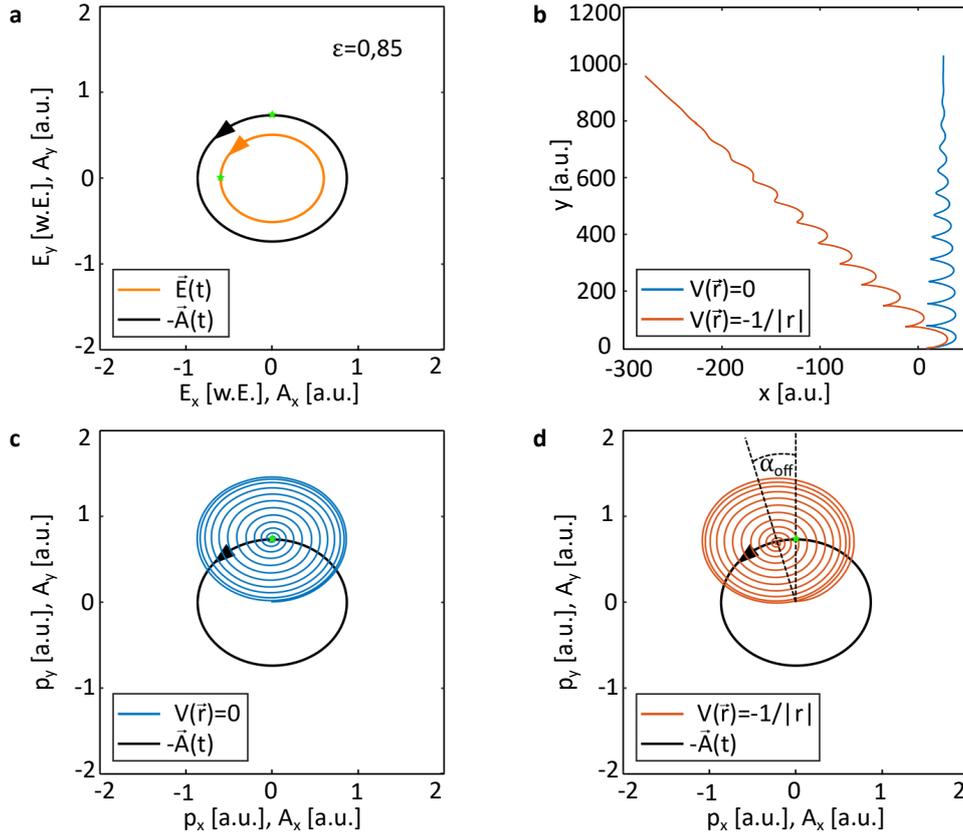


Abbildung 2.2: **a** Das zeitabhängige elektrische Feld  $\vec{E}(t)$  und das dazugehörige negative Vektorpotential  $-\vec{A}(t)$  für  $E_0 = 0,05$  a.u.  $\lambda = 790$  nm und  $\epsilon = 0,85$ . Der grüne Stern markiert den Zeitpunkt  $t_1$ , an dem das Feld maximal ist und das Elektron ins Kontinuum tunnelt. **b** Das zum Zeitpunkt  $t_1$  am Ort  $\vec{r}_0$  parallel zu  $-\vec{E}(t_1)$  getunnelte Elektron wird im Laserfeld beschleunigt. Die blaue (rote) Kurve zeigt die Trajektorie im Ortsraum für den Fall ohne (mit) Coulomb-Wechselwirkung mit dem Mutterion. **c** Die Trajektorie des zum Zeitpunkt  $t_1$  getunnelten Elektrons im Impulsraum. Für  $V(\vec{r}) = 0$  ist der Endimpuls  $-\vec{A}(t_1)$ . **d** Die Trajektorie des zum Zeitpunkt  $t_1$  getunnelten Elektrons im Impulsraum. Für  $V(\vec{r}) = -1/|r|$  spannt der Endimpuls den Winkel  $\alpha_{\text{off}}$  mit  $-\vec{A}(t_1)$  auf.

tron zum Zeitpunkt  $t_1$  maximaler elektrischer Feldstärke ins Kontinuum tunnelt. Die grünen Sterne markieren die zum Zeitpunkt  $t_1$  gehörenden Werte  $\vec{E}(t_1)$  und  $-\vec{A}(t_1)$ . Durch das Lösen der klassischen Bewegungsgleichungen (Gl. 2.9) ergeben sich die in Abb. 2.2 **b** gezeigten Trajektorien. Als Startort wurde hierzu  $\vec{r}_{\text{TIPIS}}$  (siehe Abschnitt 2.6) für  $I_p = 0,5$  a.u. angenommen. Für die zeitliche Einhüllende des Pulses wurde eine  $\sin^2$ -Funktion gewählt, deren halbe Periodendauer 70 fs entspricht. Wird die Coulomb-Wechselwirkung mit dem Mutterion vernachlässigt ( $V(\vec{r}) = 0$ ), ändert sich die Position des Elektrons im Wesentlichen in der zu  $\vec{E}(t_1)$  senkrechten Richtung. Für  $V(\vec{r}) = -1/|r|$  ist hingegen auch eine Bewegung entlang der parallelen Komponente zu beobachten. Abb. 2.2 **c** und **d** illustrieren die beiden Fälle im Impulsraum. In diesem beschreibt das Elektron eine spiralförmige Trajektorie, die mit dem Abklingen des Pulses gegen den Endimpuls konvergiert. Für den in Abb. 2.2 **c** gezeigten Fall unter Vernachlässigung der Coulomb-Wechselwirkung entspricht dieser  $-\vec{A}(t_1)$ . Wird die Coulomb-Wechselwirkung mit dem Mutterion hingegen berücksichtigt (siehe Abb. 2.2 **d**), spannt der Endimpuls des Elektrons

mit  $-\vec{A}(t_1)$  den Winkel  $\alpha_{\text{off}}$  auf.

Ein entsprechender Winkel kann auch für die in HASE-Experimenten verwendeten CoRTC-Felder (siehe Abschnitt 2.7) definiert werden. Hier tritt die einfachsymmetrische Fourier-Komponente  $F_1$  der Elektronenwinkelverteilung an die Stelle von  $F_2$ . Das zum Zeitpunkt des größten elektrischen Feldes gehörende negative Vektorpotential dient wiederum als Referenz. Eine weitere Möglichkeit, 'Attoclock'-Messungen durchzuführen, bestehen in der Verwendung von extrem kurzen Pulsen. Hierbei wird eine zirkulare Polarisation gewählt, die Ionisationsrate wird durch die starke Zeitabhängigkeit der Pulseinhüllenden moduliert. Dieses Prinzip wurde bspw. von *Eckle et al.* angewandt [20]. Diese Klasse von Experimenten soll hier jedoch nicht weiter diskutiert werden.

Im engeren Sinne wird von 'Attoclock'-Experimenten im Kontext der experimentellen Untersuchung von Tunnelzeiten bei der Ionisation in starken Laserfeldern gesprochen (siehe auch Abschnitt 3.1). Die Winkelabweichung des gemessenen Elektronenimpulses von dem trivial oder unter Annahme bestimmter Korrekturen zu erwartenden Wert wird in diesem Falle als tatsächliche Zeitverzögerung durch den Tunnelprozess interpretiert. Historisch baut die 'Attoclock'-Technik damit auf der in Abschnitt 3.2 diskutierten 'Streaking'-Technik auf. Nach ersten Arbeiten von *Eckle et al.* im Jahr 2008 [19, 20] wurden immer wieder Experimente und mögliche Interpretationen im Hinblick auf endliche Tunnelzeiten diskutiert (siehe bspw. [21] für eine aktuelle Übersicht).

## 2.4 ADK-THEORIE

Für Keldysh-Parameter  $\gamma \ll 1$  kann die Starkfeldionisation als adiabatischer Tunnelprozess verstanden werden. Für diesen Fall gaben *Ammosov, Delone und Krainov* 1986 analytische Formeln für die Ionisationsraten beliebiger Atome an [14]. Dabei ist nur der Betrag  $E(t_0)$  des instantanen elektrischen Feldes  $\vec{E}(t_0)$  relevant, während sich die totale Ionisationsrate aus der Integration der Tunnelraten über alle  $t_0$  einer Schwingungsperiode  $T$  ergibt. Der exponentielle Teil der Tunnelrate zu einem beliebigen Zeitpunkt  $t_0$  ist gegeben durch ([14, 22, 23] zitiert nach [13] in Anlehnung an [24]):

$$w_{\text{ADK}}(t_0, v_{0,\perp}) \sim \exp\left(-\frac{2 \cdot (2I_p)^{\frac{3}{2}}}{3E(t_0)}\right) \exp\left(-\frac{\sqrt{2I_p} p_{0,\perp}^2}{E(t_0)}\right) \quad (2.12)$$

Die einzigen eingehenden Parameter sind dabei das Ionisationspotential  $I_p$ , der Betrag des instantanen elektrischen Feldes  $E(t_0)$ , sowie der Betrag der senkrecht zu  $\vec{r}_0$  orientierten Komponente des Startimpulses  $\vec{p}_{0,\perp}$ . Die zu  $\vec{r}_0$  parallele Komponente des Startimpulses ist Null. Abb. 2.3 a zeigt das stark exponentielle Verhalten von  $w_{\text{ADK}}(t_0, 0)$  in Abhängigkeit von  $I_p$  und  $E(t_0)$  für  $p_{0,\perp} = 0$ . Ist der Betrag des elektrischen Feldes  $E(t)$  innerhalb einer Schwingungsperiode nur um wenige Prozent moduliert, ergeben sich bereits Änderungen der Ionisationswahrscheinlichkeit um mehrere Größenordnungen. Links der schwarzen Linie befindet sich der Bereich, in dem Gl. 2.7 erfüllt ist, sodass der Over-the-Barrier-Prozess angenommen werden muss. Abb. 2.3 b zeigt  $w_{\text{ADK}}(t_0, p_{0,\perp})$  in Abhängigkeit von  $E(t_0)$  sowie vom Startimpuls  $p_{0,\perp}$  für das Ionisationspotential atomaren Wasserstoffs  $I_p = 0,5$  a.u. Das Vorzeichen von  $p_{0,\perp}$  ist aufgrund der Symmetrie um  $p_{0,\perp} = 0$  zunächst irrelevant, allerdings soll bereits hier festgelegt werden, dass Werte von  $p_{0,\perp}$ , die zu größeren Beträgen von  $\vec{p}_{\text{elec}}$  führen, ein positives Vorzeichen tragen. Analog zu Gl. (5) in [7] wird definiert:

$$p_{0,\perp} = \begin{cases} |\vec{p}_{0,\perp}|, & \text{wenn } \vec{p}_{0,\perp} \cdot \vec{A}(t_0) < 0 \\ -|\vec{p}_{0,\perp}|, & \text{wenn } \vec{p}_{0,\perp} \cdot \vec{A}(t_0) > 0 \end{cases} \quad (2.13)$$

Wegen der starken Abhängigkeit der absoluten Rate von  $E(t_0)$  wurde eine zeilenweise Normierung auf das Maximum vorgenommen. Mit zunehmender Feldstärke kann eine Verbreiterung der um Null zentrierten Gaußschen Verteilung von  $p_{0,\perp}$  beobachtet werden. Wichtig ist hierbei, dass diese zunächst noch identisch für sowohl in als auch senkrecht zur Polarisationssebene orientierte Startimpulse  $\vec{p}_0$  ist.

Aufgrund ihrer Einfachheit findet die ADK-Theorie Verwendung in semiklassischen trajektorienbasierten Modellen [13] und dient zur Interpretation von Attoclock-Experimenten [20, 25]. Da die Zeitabhängigkeit des elektrischen Feldes vernachlässigt wird, nimmt die Vorhersagekraft mit steigendem  $\gamma$  ab. Eine dahingehende Diskussion findet sich in Kapitel 9.

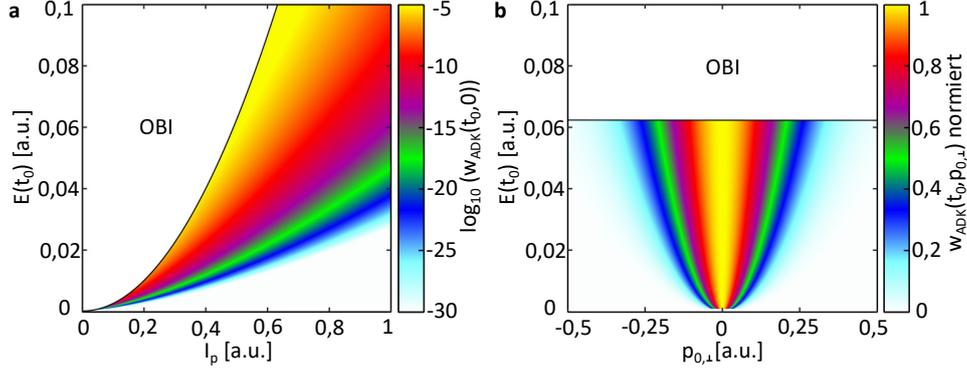


Abbildung 2.3: **a** Exponentieller Anteil der Ionisationswahrscheinlichkeit  $w_{\text{ADK}}(t_0, 0)$  nach Gl. 2.12 für  $\vec{p}_{0,\perp} = 0$  in Abhängigkeit vom Ionisationspotential  $I_p$  und dem Betrag des instantanen elektrischen Feldes  $E(t_0)$ . Links der schwarzen Linie wird die Over-the-Barrier-Bedingung erfüllt. **b** Zeilenweise normierter exponentieller Anteil der Ionisationswahrscheinlichkeit  $w_{\text{ADK}}(t_0, p_{0,\perp})$  nach Gl. 2.12 für das Ionisationspotential  $I_p = 0,5$  a.u. in Abhängigkeit vom senkrechten Startimpuls  $p_{0,\perp}$  und dem Betrag des instantanen elektrischen Feldes  $E(t_0)$ . Oberhalb der schwarzen Linie wird die Over-the-Barrier-Bedingung erfüllt.

## 2.5 STRONG FIELD APPROXIMATION

Die ‘Strong field approximation’ (SFA, deutsch: Starkfeldnäherung) stellt die Möglichkeit dar, eine analytische Beschreibung der Starkfeldionisation für beliebige Werte des Keldysh-Parameters  $\gamma$  zu finden. Über die Jahre wurden dabei verschiedene Varianten entwickelt, ein Überblick findet sich beispielsweise in [26, 27]. Die zentrale Näherung besteht darin, dass der Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung mit dem Mutterion gegenüber dem elektrischen Feld des Lasers vernachlässigt werden kann [15], sodass sich eine dreieckige Potentialbarriere ergibt. Für diesen Fall lässt sich das Übergangs-Matrixelement  $\mathbf{M}_p$  zwischen dem mit  $-I_p$  gebundenen Grundzustand  $|\psi_0\rangle$  und dem Endzustand  $|\psi_{\vec{p}_{\text{elec}}}\rangle$  mit dem Impuls  $\vec{p}_{\text{elec}}$  definieren als (vgl. Gl. 7,9,10 in [28]):

$$\mathbf{M}_{\vec{p}_{\text{elec}}} = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(iS(t)) \langle \vec{p}_{\text{elec}} + \vec{A}(t) | \vec{r} \cdot \vec{E}(t) | \psi_0 \rangle \quad (2.14)$$

wobei  $S(t)$  die zeitabhängige Wirkung bezeichnet:

$$S(t) = I_p t + \frac{1}{2} \int^t dt' (\vec{p}_{\text{elec}} + \vec{A}(t'))^2 \quad (2.15)$$

Die finale Elektronenimpulsverteilung ergibt sich aus dem Betragsquadrat  $|\mathbf{M}_{\vec{p}_{\text{elec}}}|^2$  dieses Übergangs-Matrixelements. Neben der direkten numerischen Integration von Gl. 2.14 ist es auch möglich, Sattelpunkt-Gleichungen zu formulieren (vgl. [29]). Die sich aus der Forderung nach einer stationären Wirkung, also dass  $\frac{\partial S}{\partial t} = 0$ , ergebenden Sattelpunkt-Gleichungen liefern die sogenannten Sattelpunkt-Zeiten  $t_s$ . Der Realteil  $t_0$  der komplexwertigen Größe  $t_s = t_0 + it_i$  gibt an, zu welchem Zeitpunkt ein Elektron ins Kontinuum eintreten muss, um den Endimpuls  $\vec{p}_{\text{elec}}$  zu erreichen [28], womit er die vorige Definition von  $t_0$  erfüllt. Da das negative Vektorpotential  $-\vec{A}(t_0)$  bekannt ist, lässt sich durch Gl. 2.8 der zu diesem Ionisationszeitpunkt gehörende Startimpulsvektor  $\vec{p}_0$  bestimmen. Dieser kann wiederum als Startparameter eines trajektorienbasierten Modells dienen, welches die

Coulomb-Wechselwirkung mit dem Mutterion im Kontinuum berücksichtigt (siehe 2.2). Ein solches Modell ist das in [6] und Kapitel 9 diskutierte nicht-adiabatische klassische Zwei-Schritt-Modell. Für eine beliebige Polarisation des Laserfeldes müssen die zu jedem Punkt im Endimpulsraum gehörenden Sattelpunkt-Zeiten und Startimpulse separat gefunden werden. Im Gegensatz zur adiabatischen ADK-Theorie ist im Allgemeinen  $\vec{p}_{0,\parallel} \neq 0$ , die in der Polarisationssebene liegende Startimpulskomponente  $\vec{p}_{0,\perp}$  muss von der in Lichtausbreitungsrichtung liegenden Komponente  $\vec{p}_{0,k}$  unterschieden werden. Letztere trägt nur zu einer effektiven Erhöhung des Ionisationspotentials gemäß  $I_p^{\text{eff}} = I_p + 0,5 \cdot p_{0,k}^2$  bei.

Im Fall zirkular polarisierten Lichtes mit Amplitude  $E_0$  ist es möglich, einen analytischen Ausdruck für den exponentiellen Beitrag zur Ionisationsrate und für die Verteilung der senkrechten Startimpulskomponente  $p_{0,\perp}$  in der Polarisationssebene zu finden [8, 30]:

$$w_{\text{SFA, zirkular}} \sim \exp \left( -\frac{2I_p^{\text{eff}}}{\omega\gamma_{\text{eff}}^2} \left[ 2qC \cdot \text{acosh}(C) - 2q\sqrt{(C^2 - 1)} \right] \right) \quad (2.16)$$

Hierin werden die Abkürzungen  $q = \omega(E_0/\omega + p_{0,\perp})/E_0$  und  $C = (1 + q^2 + \gamma_{\text{eff}}^2)/(2q)$  genutzt, der effektive Keldysh-Parameter ist über  $\gamma_{\text{eff}} = \omega\sqrt{(2 \cdot I_p^{\text{eff}})/E_0}$  definiert.

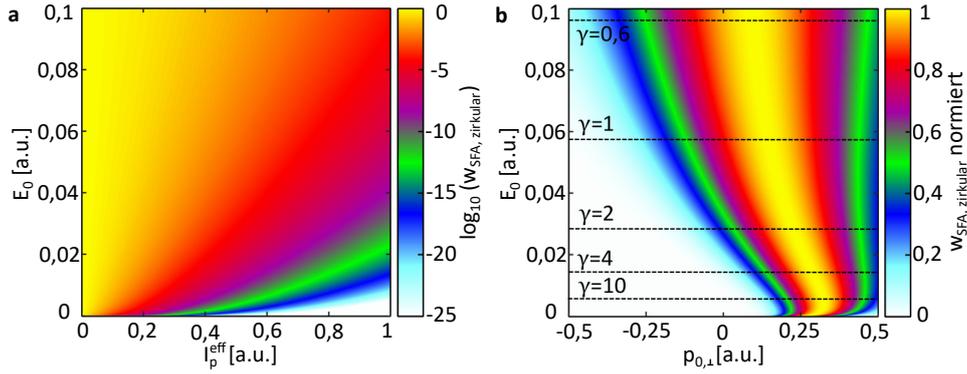


Abbildung 2.4: **a** Exponentieller Anteil der Ionisationswahrscheinlichkeit  $w_{\text{SFA, zirkular}}$  nach Gl. 2.16 für den wahrscheinlichsten Startimpuls  $p_{0,\perp}$  in Abhängigkeit vom effektiven Ionisationspotential  $I_p^{\text{eff}}$  und der Amplitude  $E_0$  des zirkular polarisierten elektrischen Feldes mit einer Wellenlänge von  $\lambda=790$  nm bzw.  $\omega=0,058$  a.u. **b** Zeilenweise normierter exponentieller Anteil der Ionisationswahrscheinlichkeit  $w_{\text{SFA, zirkular}}$  nach Gl. 2.16 für das Ionisationspotential  $I_p^{\text{eff}}=0,5$  a.u. in Abhängigkeit vom senkrechten Startimpuls  $p_{0,\perp}$  und der Amplitude  $E_0$  des zirkular polarisierten elektrischen Feldes.

Die aus Gl. 2.16 berechnete Ionisationswahrscheinlichkeit  $w_{\text{SFA, zirkular}}$  für den wahrscheinlichsten senkrechten Startimpuls  $p_{0,\perp}$  ist in Abb. 2.4 a in Abhängigkeit vom effektiven Ionisationspotential  $I_p^{\text{eff}}$  und der Amplitude  $E_0$  des zirkular polarisierten elektrischen Feldes dargestellt und somit in Analogie zu der Darstellung von  $w_{\text{ADK}}$  in Abb. 2.3 a. Im Gegensatz zu der adiabatische Bedingungen annehmenden ADK-Theorie, ist die Wellenlänge bzw. Kreisfrequenz des Lichts hier nicht mehr irrelevant. Es wurde eine Wellenlänge von  $\lambda = 790$  nm und damit eine Kreisfrequenz von  $\omega = 0,058$  a.u. gewählt. Da das Konzept des Over-the-Barrier Prozesses auf der Absenkung einer Coulomb-Barriere basiert, ist Gl. 2.7 nicht konsistent mit der im Rahmen der SFA getroffenen Annahme einer dreieckigen

Barriere. Daher wird der OBI-Bereich in Abb. 2.4 nicht besonders gekennzeichnet. Es fällt auf, dass die Abnahme der Ionisationswahrscheinlichkeit  $w_{\text{SFA, zirkular}}$  für kleinere Felder  $E_0$  bzw. höhere  $I_p$  deutlich geringer ausfällt, als dies aus der ADK-Theorie zu erwarten wäre. Somit ist der relative Beitrag von Zeitpunkten  $t_0$ , an denen  $E(t_0)$  nicht maximal ist, zur Ionisationswahrscheinlichkeit innerhalb eines Zyklus  $T$  höher als für den adiabatischen Grenzfall vorausgesagt. Abb. 2.4 b zeigt  $w_{\text{SFA, zirkular}}$  für das Ionisationspotential atomaren Wasserstoffs  $I_p=0,5$  a.u. mit  $p_{0,k}=0$  in Abhängigkeit von  $E_0$  und  $p_{0,\perp}$  und damit in Analogie zu Abb. 2.3 b. Exemplarisch wurden für einige elektrische Felder  $E_0$  die entsprechenden Keldysh-Parameter  $\gamma_{\text{eff}} = \gamma$  eingezeichnet. Dabei zeigt sich, dass der wahrscheinlichste Wert des senkrechten Startimpulses  $p_{0,\perp}$  insbesondere für große Keldysh-Parameter stark von Null abweicht. Gemäß der bereits eingeführten Vorzeichenkonvention in Gl. 2.13 bedeutet dies, dass der Endimpuls des Elektrons  $\vec{p}_{\text{elec}}$  für nicht-adiabatischere Bedingungen deutlich größer ausfällt, als dies durch das entsprechende negative Vektorpotential zu erwarten wäre. Sogar für einen Keldysh-Parameter von  $\gamma=0,6$  wird diese Verschiebung des wahrscheinlichsten senkrechten Startimpulses beobachtet. Diese Asymmetrie steht in einem engen Zusammenhang zur Sensitivität der Ionisationsrate in zirkular polarisierten Laserfeldern auf das Vorzeichen der magnetische Quantenzahl  $m$  von  $p$ -Orbitalen [8, 31]. Die bevorzugte Ionisation des Orbitals mit  $m = -1$ , also einer der Helizität des Laserfeldes entgegenlaufenden Phase, erlaubt unter anderem die Erzeugung spinpolarisierter Elektronen [32–34]. Die Verschiebung des wahrscheinlichsten Wertes von  $p_{0,\perp}$  muss außerdem bei der Intensitätskalibration Beachtung finden, da ansonsten eine systematischen Überschätzung der tatsächlich vorliegenden Intensität die Folge wäre (siehe Abschnitt 8.7).

## 2.6 DER TUNNELAUSGANG

Wie bereits in Abschnitt 2.1.2 eingeführt, ist das Konzept der Tunnelionisation mit der Existenz eines Anschlussortes  $\vec{r}_0$  an den klassisch verbotenen Bereich verknüpft. Dieser Ort  $\vec{r}_0$ , der auch als Tunnelausgang bezeichnet werden kann, stellt keine Observable dar, ein direkter experimenteller Zugriff ist nicht möglich. Auch aus der Beschreibung des Ionisationsvorgangs durch ab initio Theorie, wie durch das Lösen der TDSE, lässt sich zunächst keine Aussage zu  $\vec{r}_0$  ableiten. Die Definition eines zu einem bestimmten Endimpuls gehörenden Tunnelausgangs ist nur in einem trajektorienbasierten Modell möglich. Mit der Methode der sogenannten 'back propagation' (Rück-Propagation) kann ein Versuch unternommen werden, Informationen über den Tunnelausgang aus mit ab initio Theorie berechneten Observablen zu erhalten [35–38]. Hierzu wird zunächst eine numerische Lösung der TDSE gefunden. Die so berechnete Wellenfunktion  $\psi(\vec{r}, t) = A(\vec{r}, t)\exp(i\phi(\vec{r}, t))$  wird an allen Stellen  $\vec{r}_D$  auf dem Gitter ausgewertet, um klassische Trajektorien mit dem Impuls  $\vec{k}(\vec{r}_D, t) = \nabla\phi(\vec{r}_D, t)$  und der Gewichtung  $\rho(\vec{r}_D, t) = |A(\vec{r}_D, t)|^2$  zu initialisieren und rückwärts in der Zeit zu propagieren [39]. Dies geschieht so lange, bis ein Abbruchkriterium erreicht wird. Dieses bezieht sich beispielsweise auf die Geschwindigkeit, die Position oder die Energie des Elektrons; eine konsistente Definition ist problematisch. Eine Anwendung der 'back propagation' auf die Ionisation in zirkular polarisierten Laserfeldern durch *Ni et al.* ergab, dass die Forderung nach einem Verschwinden der zum instantanen elektrischen Feld parallelen Impuls- bzw. Geschwindigkeitskomponente ein geeignetes Abbruchkriterium darstellt. Die Autoren begründen diese Schlussfolgerung mit der Vorhersage konsistenter nicht-adiabatischer Startimpulse, einer intuitiven Definition des Tunnelausgangs und einer plausiblen Abschätzung der Ionisationsrate, wohingegen auf dem Ort bzw. der Energie des Elektrons basierende Abbruchkriterien zu inkonsistenten Ergebnissen führen [37].

## 2.6.1 Modelle des Tunnelausgangs

Es existieren verschiedene Modelle, um den Anschlussort an den klassisch verbotenen Bereich für trajektorienbasierte Modelle zu bestimmen. Das wahrscheinlich einfachste Modell geht dabei von dem auch in der SFA angenommenen kurzreichweitigen (engl. 'short range', SR) bindenden Potential aus. Der Ort  $\vec{r}_{0,SR}$ , der aus diesem Modell folgt, hängt nur von dem elektrischen Feld  $\vec{E}(t_0)$  und dem Ionisationspotential  $I_p$  ab:

$$\vec{r}_{0,SR} = -\frac{I_p}{\vec{E}(t_0)} \quad (2.17)$$

Aus dem in Abb. 2.1 a dargestellten Verlauf des kombinierten Potentials aus bindendem Coulomb-Potential und externem elektrischen Feld ist leicht ersichtlich, dass die dabei getroffene Annahme einer dreieckigen Potentialbarriere nicht sonderlich plausibel ist.

Die in Abb. 2.1 a gezeigten eindimensionalen Potentiale stellen jedoch nur eine Vereinfachung des tatsächlichen Problems dar. Eine natürlichere Beschreibungen der Tunnelgeometrie in drei Dimensionen kann unter Verwendung parabolischer

Koordinaten gefunden werden [40]. Der resultierende Tunnelausgang  $\vec{r}_{0,\text{Para}}$  kann näherungsweise durch [41]

$$\vec{r}_{0,\text{Para}} = \frac{I_p + \sqrt{I_p^2 - (4 - \sqrt{8I_p})E(t_0)}}{2E(t_0)^2} \vec{E}(t_0) \quad (2.18)$$

ausgedrückt werden. Mit den Polarisierbarkeiten  $\alpha_N$  des betrachteten Atoms und  $\alpha_I$  des entsprechenden einfach geladenen Ions kann die durch das Laserfeld verursachte Stark-Verschiebung im Ausdruck für das Ionisationspotential  $I_{p,\text{Stark}} = I_p + \frac{1}{2}(\alpha_N - \alpha_I)E(t_0)^2$  berücksichtigt werden. Wird  $I_{p,\text{Stark}}$  im obigen Ausdruck für  $\vec{r}_{0,\text{Para}}$  eingesetzt, kann vom TIPIS-Modell ('tunnel ionization in parabolic coordinates with induced dipole and Stark shift') gesprochen werden [40]. Da die Korrektur des Ionisationspotentials häufig klein ist (siehe Abb. 2.6 c), werden  $\vec{r}_{0,\text{Para}}$  und  $\vec{r}_{0,\text{TIPIS}}$  im weiteren Verlauf synonym verwendet, sofern nicht anders gekennzeichnet. So führen bspw.  $\alpha_N = 18/4$  [42] und  $\alpha_I = 0$  für das Wasserstoffatom bei einem elektrischen Feld von 0,046 a.u. zu einer Änderung des Ionisationspotentials von nur 0,13 eV, sodass die Stark-Verschiebung in [6] vernachlässigt wurde.

Die bisher vorgestellten Modelle zur Beschreibung des Tunnelausgangs sind für adiabatische Bedingungen formuliert, die zeitliche Entwicklung des elektrischen Feldes wird in ihnen nicht berücksichtigt. Somit ist es konsequent, bspw.  $\vec{r}_{0,\text{TIPIS}}$  im Zusammenhang mit adiabatischen Modellen der Ionisationswahrscheinlichkeit, wie der ADK-Theorie anzunehmen. Genauso, wie die Berücksichtigung der zeitlichen Entwicklung des elektrischen Feldes in der SFA signifikante Auswirkungen auf die (startimpulsabhängige) Ionisationswahrscheinlichkeit hat, so ist dies auch für den Tunnelausgang der Fall. Aus den im Rahmen der SFA gefundenen Sattelpunktzeiten  $t_s = t_0 + it_i$  kann der jeweilige Tunnelausgang berechnet werden (Gl. 8 in [37]):

$$\vec{r}_{0,s} = \text{Re} \int_{t_s}^{t_0} (\vec{p}_{\text{elec}} + \vec{A}(t)) dt = \text{Im} \int_0^{t_i} \vec{A}(t_0 + it) dt \quad (2.19)$$

Das Integral beschreibt die komplexwertigen Trajektorie des Elektrons im klassisch verbotenen Bereich. Da  $t_0$  den Zeitpunkt des Auftretens im Kontinuum markiert, erfüllt  $\vec{r}_{0,s}$  die Eigenschaften eines Tunnelausgangs. Unter Annahme eines kleinen Keldysh-Parameters  $\gamma$  kann näherungsweise ein analytischer Ausdruck für den Tunnelausgangsvektor angegeben werden (Gl. 15 in [37]):

$$\vec{r}_{0,\text{SFA}}(\vec{p}_{0,\perp}, \vec{E}(t_0), \dot{\vec{E}}(t_0)) \approx -\frac{\vec{E}(t_0)}{2} \frac{p_{0,\perp}^2 + 2I_p}{E(t_0)^2 - \vec{p}_{0,\perp} \cdot \dot{\vec{E}}(t_0)} \quad (2.20)$$

In diesen Ausdruck geht das Skalarprodukt zwischen der senkrecht zu  $\vec{r}_0$  orientierten Komponente  $\vec{p}_{0,\perp}$  des Startimpulses und der zeitlichen Ableitung des elektrischen Feldes  $\dot{\vec{E}}(t_0)$  zum Zeitpunkt  $t_0$  ein. Die Ableitung kann sowohl analytisch, als auch numerisch bestimmt werden. Das sich ergebende Skalarprodukt beträgt im Fall zirkularer Polarisation mit Amplitude  $E_0$  gerade  $\vec{p}_{0,\perp} \cdot \dot{\vec{E}}(t_0) = -\omega E_0 p_{0,\perp}$  unter Berücksichtigung der in Gl. 2.13 angegebenen Vorzeichenkonvention. Für elliptisch polarisiertes Licht ergibt sich  $\vec{p}_{0,\perp} \cdot \dot{\vec{E}}(t_0) = -\epsilon\omega E_0 p_{0,\perp}$ , falls das Elektron zu einem Zeitpunkt maximalen Felds  $t_0 = t_1$  bzw.  $t_0 = t_2$  (siehe Abschnitt 2.3) ins Kontinuum eintritt.

Ein Vergleich der sich aus den Gl. 2.18 und 2.20 für  $I_p=0,5$  a.u. und  $E(t_0)=0,46$  a.u. ergebenden Tunnelausgänge in Abhängigkeit von  $p_{0,\perp}$  ist auch in Abb. 9.8 in Kapitel 9 gezeigt. Dabei wurde der Zeitpunkt maximalen elektrischen Feldes eines elliptisch polarisierten Lichtfeldes mit  $\epsilon=0,85$  und  $\lambda=390$  nm betrachtet.

Die Abhängigkeit des Tunnelausgangs von der Startimpulskomponente  $\vec{p}_{0,\perp}$  wurde in [38] mit der eingangs beschriebene Methode der 'back propagation' untersucht. Abb. 2.5(a) zeigt die  $r_0$  entsprechende Größe  $\gamma \parallel \mathbf{E}(t_0)$  in Abhängigkeit von der senkrechten Startgeschwindigkeit  $v_{\perp} = \frac{p_{0,\perp}}{m_e}$  für Elektronen, die zum Zeitpunkt maximalen Feldes  $t_0$  eines gegen-rotierenden bizirkularen Zwei-Farben-Feldes (siehe Abschnitt 2.7) mit einem Feldverhältnis  $\frac{E_{0,800\text{nm}}}{E_{0,400\text{nm}}}$  von 2 ins Kontinuum getreten sind. Unter diesen Bedingungen kann das elektrische Feld zum Zeitpunkt  $t_0$  als näherungsweise linear polarisiert angenommen werden. Als Abbruchkriterium wurde das Erreichen des Zeitpunkts  $t_0$  gewählt. Sowohl unter der Annahme eines kurzreichweitigen (blaue Kurve), als auch eines langreichweitigen Potentials in der der 'back propagation' zugrunde liegenden TDSE-Rechnung ergibt sich eine Abhängigkeit des Tunnelausgangs von  $v_{\perp}$ . Diese entspricht qualitativ dem durch Gl. 2.20 beschriebenen und in Abb. 2.6c dargestellten zu  $p_{0,\perp}^2$  proportionalen Kurvenverlauf, durch die lokal lineare Polarisation ergibt sich jedoch keine Verschiebung des Minimums zu größeren Werten von  $v_{\perp}$ . Auch die sich aus dem Vergleich von Gl. 2.17 und 2.18 ergebende Verkleinerung von  $r_0$  unter Annahme eines langreichweitigen Potentials gegenüber dem Fall eines kurzreichweitigen Potentials kann in 2.5(a) beobachtet werden. Ein weiteres, über die bisherigen Betrachtungen hinausgehendes Ergebnis der 'back propagation'-Rechnung ist in 2.5(b) dargestellt. Für ein langreichweitiges Potential wird eine von  $v_{\perp}$  abhängige Verschiebung des Tunnelausgangs senkrecht zu  $\vec{E}(t_0)$  beobachtet (rote Kurve), während der Tunnelausgang für ein kurzreichweitiges Potential exakt antiparallel zu  $\vec{E}(t_0)$  orientiert ist (blaue Kurve). Diese Verschiebung modifiziert die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektron und Mutterion und sollte künftig in semiklassischen Modellen berücksichtigt werden.

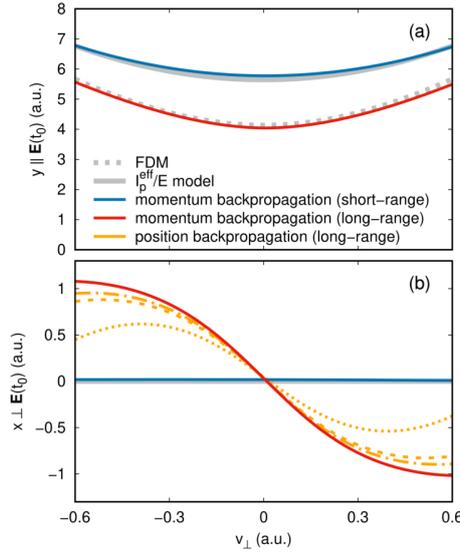


Abbildung 2.5: (a) Mit der Methode der ‘back-propagation’ berechnete Werte von  $y \parallel \vec{E}(t_0)$  in Abhängigkeit von  $v_{\perp}$ . Die blaue (rote) Kurve stellt die Abhängigkeit unter Annahme eines kurzreichweitigen (langreichweitigen) Potentials dar. (b) Verschiebung des Tunnelausgangs senkrecht zu  $\vec{E}(t_0)$  in Abhängigkeit von  $v_{\perp}$  unter Annahme eines kurzreichweitigen (blaue Kurve) bzw. langreichweitigen (rote Kurve) Potentials. Abbildung entnommen aus [38].

### 2.6.2 Einfluss auf klassische Trajektorien

Der Betrag von  $\vec{r}_0$  hat entscheidenden Einfluss auf die Stärke der Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektron und Mutterion nach dem Tunneln. Diese führt, wie bereits in Abschnitt 2.3 beschrieben, zu einer Ablenkung der Trajektorie eines getunnelten Elektrons gegenüber dem Fall, das  $V(\vec{r}) = 0$ . Abb. 2.6 a zeigt exemplarisch sechs Trajektorien im Ortsraum für Werte von  $r_0$  zwischen 5 a.u. und 15 a.u. Das zeitabhängige elektrische Feld entspricht dem in Abb. 2.2 gezeigten, auch der Ionisationszeitpunkt  $t_1$  wurde gleich gewählt. Für kleinere Werte von  $r_0$  wird die Ablenkung zunehmend stärker. Abb. 2.6 b zeigt die Situation im Impulsraum. Die vollständigen Trajektorien werden zwecks Übersichtlichkeit nur für  $r_0=5$  a.u. und  $r_0=15$  a.u. gezeigt, während für alle dazwischen liegenden Werte von  $r_0$  nur der jeweilige Endimpuls  $\vec{p}_{\text{elec}}$  als Kreis gezeigt ist. Der Attoclock-Winkel  $\alpha_{\text{off}}$  nimmt für kleiner Werte von  $r_0$  deutlich zu. Umgekehrt eröffnet dies einen indirekten Zugang zu  $r_0$ , da  $\alpha_{\text{off}}$  eine experimentelle Observable darstellt. Abb. 2.6 c zeigt die berechneten Werte von  $r_{0,\text{SR}}$  (Gl. 2.17),  $r_{0,\text{Para}}$  (Gl. 2.18),  $r_{0,\text{TIPIS}}$  und  $r_{0,\text{SFA}}$  (Gl. 2.20) in Abhängigkeit von  $p_{0,\perp}$  für  $\lambda=790$  nm und  $\lambda=395$  nm bei gleichem  $\epsilon$  und  $E_0$ . Dabei ist nur  $r_{0,\text{SFA}}$  abhängig von  $\lambda$ . Die vertikalen Linien geben den jeweils wahrscheinlichsten Wert von  $p_{0,\perp}$  nach Gl. 2.16 an. Es zeigt sich deutlich, dass  $r_{0,\text{SFA}}$  unter nicht-adiabatischeren Bedingungen eine deutlich stärkere Abhängigkeit von  $p_{0,\perp}$  aufweist. Abb. 2.6 d zeigt die jeweils resultierenden Attoclock-Winkel  $\alpha_{\text{off}}$  in Abhängigkeit vom Radialimpuls  $p_r$ , womit der Betrag von  $\vec{p}_{\text{elec}}$  in der Polarisationssebene bezeichnet wird. Allen Modellen ist gemeinsam, dass sie eine Abnahme von  $\alpha_{\text{off}}$  für größere  $p_r$  vorhersagen. Die Abweichungen zwischen den Modellen bei  $p_r = A(t_1)$  sind für  $\lambda=395$  nm deutlich größer und betragen etwa  $10^\circ$ .

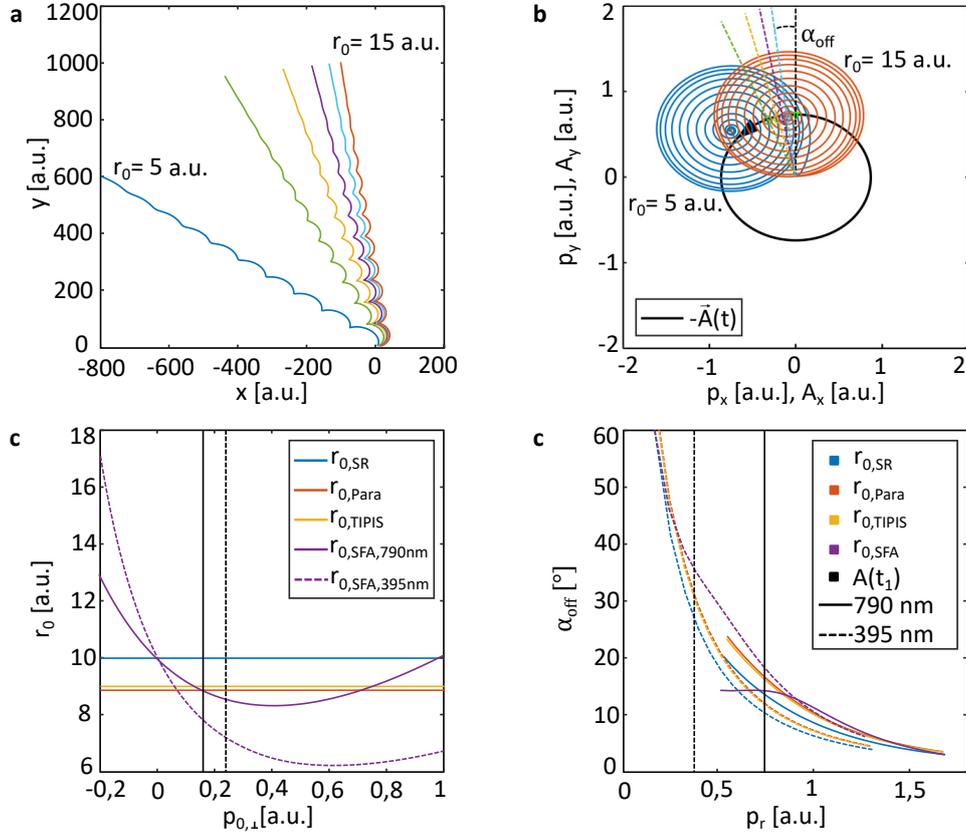


Abbildung 2.6: **a** Das zum Zeitpunkt  $t_1$  am Ort  $\vec{r}_0$  parallel zu  $-\vec{E}(t_1)$  getunnelte Elektron wird in dem in Abb. 2.2 a dargestellten Laserfeld beschleunigt. Die Kurven zeigen die Trajektorien im Ortsraum für Tunnelausgänge von 5 a.u. bis 15 a.u. **b** Die Trajektorie des zum Zeitpunkt  $t_1$  getunnelten Elektrons im Impulsraum für Tunnelausgänge von 5 a.u. und 15 a.u. Für die dazwischen liegenden Werte von  $r_0$  sind die jeweiligen Endimpulse durch farbige Kreise gemäß den Farben aus a eingezeichnet, die entsprechenden Winkel in der Polarisationsebene werden durch die gestrichelten Linien verdeutlicht. **c** Die berechneten Werte von  $r_0$  in Abhängigkeit von  $p_{0,\perp}$  gemäß den Gl. 2.17, 2.18 und 2.20 für ein elliptisch polarisiertes Laserfeld mit  $\epsilon=0,85$ ,  $E_0=0,05$  a.u. und  $\lambda=790$  nm bzw.  $\lambda=395$  nm. **d** Der Attoclock-Winkel  $\alpha_{\text{off}}$  in Abhängigkeit vom Radialimpuls  $p_r$  unter Annahme der in c gezeigten Tunnelausgänge  $r_0$  für  $\lambda=790$  nm (durchgezogene Linien) bzw.  $\lambda=395$  nm (gestrichelte Linien). Die vertikalen Linien zeigen den Betrag  $A(t_1)$  des jeweiligen negativen Vektorpotentials.

Ein Vergleich mit den in Kapitel 9 gezeigten, tatsächlich gemessenen  $\alpha_{\text{off}}$  in Abhängigkeit von  $p_r$  zeigt, dass die alleinige Betrachtung einzelner zum Zeitpunkt maximalen elektrischen Feldes startender Trajektorien unter nicht-adiabatischen Bedingungen keine qualitativ richtige Beschreibung erlaubt (siehe Abschnitt 9.4).

## 2.7 BIZIRKULARE ZWEI-FARBEN-FELDER

Komplexere zeitabhängige Felder  $\vec{E}(t)$  als die bisher diskutierten sind durch die Überlagerung von Licht unterschiedlicher zentraler Wellenlängen möglich. Eine bedeutende Klasse dieser Felder stellen Zwei-Farben (engl. 'two-color', TC)-Felder aus der Überlagerung einer fundamentalen Lichtfrequenz  $\omega$  mit ihrer 2. Harmonischen  $2\omega$  dar. Diese sollen hier in zwei Untergruppen klassifiziert werden:

- Orthogonale lineare Felder (OTC), wobei beide konstituierende Laserpulse eine zueinander orthogonale lineare Polarisation aufweisen.
- Bi-zirkulare Felder (RTC), wobei beide konstituierende Laserpulse eine zirkulare Polarisation aufweisen.

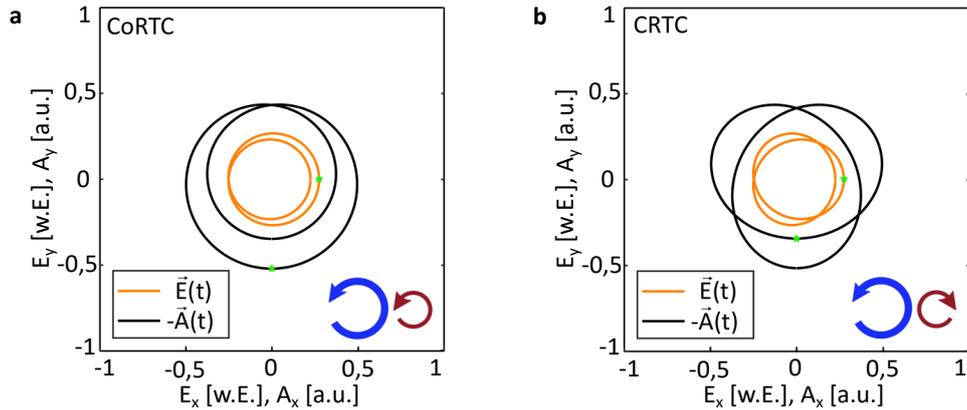


Abbildung 2.7: **a** Zeitabhängiges elektrisches Feld  $\vec{E}(t)$  und negatives Vektorpotential  $-\vec{A}(t)$  eines CoRTC-Feldes aus der Überlagerung eines zirkular polarisierten Feldes mit  $\lambda=790$  nm und  $E_{0,\omega}=0,005$  a.u. und eines zirkular polarisierten Feldes mit  $\lambda=395$  nm und  $E_{0,2\omega}=0,05$  a.u. Die grünen Sterne markieren den Zeitpunkt maximalen Feldes mit entsprechendem negativem Vektorpotential. **b** Zeitabhängiges elektrisches Feld  $\vec{E}(t)$  und negatives Vektorpotential  $-\vec{A}(t)$  eines CRTC-Feldes aus den für a beschriebenen Feldern. Die grünen Sterne markieren einen der drei Zeitpunkte maximalen Feldes mit entsprechendem negativem Vektorpotential.

Eine frühe Motivation zur Untersuchung von TC-Feldern stellte die Erzeugung höherer Harmonischer (engl. 'high-harmonic generation', HHG) mit nicht-linearer Polarisation dar [43, 44]. Die hier nicht näher behandelten OTC-Felder [45] wurden in der Vergangenheit unter anderem zur Untersuchung der Fokussierung von Elektronentrajektorien durch die Coulomb-Wechselwirkung mit dem Mutterion [46] und zum Studium von 'intracycle'-Interferenzen [47] eingesetzt.

Je nach relativer Helizität der beiden zirkular polarisierten Pulse eines RTC-Feldes, wird von co-rotierenden (CoRTC) bzw. gegen (engl. 'counter')-rotierenden (CRTC) Feldern gesprochen. Das zeitabhängige elektrische Feld  $\vec{E}_{\text{CoRTC}}(t)$  aus der Überlagerung zweier gegen den Uhrzeigersinn rotierender Pulse ist mit den Kreisfrequenzen  $\omega$  und  $2\omega$  und den jeweiligen elektrischen Spitzenfeldern  $E_{0,\omega}$  und  $E_{0,2\omega}$  gegeben durch:

$$\vec{E}_{\text{CoRTC}}(t) = \begin{pmatrix} E_{0,\omega}\cos(\omega t) + E_{0,2\omega}\cos(2\omega t + \delta_{\text{rel}}) \\ E_{0,\omega}\sin(\omega t) + E_{0,2\omega}\sin(2\omega t + \delta_{\text{rel}}) \end{pmatrix} \quad (2.21)$$

Dabei bezeichnet  $\delta_{\text{rel}}$  die relative Phase zwischen den beiden Farben. Abb. 2.7 a zeigt ein solches CoRTC-Feld mit  $E_{0,\omega}=0,005$  a.u. und  $E_{0,2\omega}=0,05$  a.u. sowie das entsprechende negative Vektorpotential bei einer fundamentalen Wellenlänge von 790 nm für  $\delta_{\text{rel}}=0$ . Andere Werte von  $\delta_{\text{rel}}$  würden zu einer Rotation der gesamten Feldgeometrie in der Polarisationssebene führen. Dies wird in interferometrischen Zwei-Farben-Aufbauten gezielt durch die Verzögerung einer der beiden Komponenten durch eine 'delay stage' erreicht (siehe Abschnitte 5.2 und 8.6). Im Unterschied zu den bisher betrachteten elliptisch polarisierten Feldern mit ihrer zweifach-symmetrischen Struktur fällt die Einfach-Symmetrie des CoRTC-Feldes auf. Das illustrierte Feldverhältnis  $\frac{E_{0,\omega}}{E_{0,2\omega}}$  liegt in dem Bereich, der für die Anwendung der HASE-Technik genutzt wird. Entsprechend wird auf die Eigenschaften dieser Variante von CoRTC-Felder in Abschnitt 3.4 detailliert eingegangen.

Abb. 2.7 b zeigt exemplarisch ein CRTC-Feld. Es wurde das selbe Feldverhältnis wie in Abb. 2.7 a gewählt, allerdings ist die Helizität der  $\omega$ -Komponente invertiert. Auffällig ist die dreifach-symmetrische Struktur des Feldes. CTRC-Felder werden in dieser Arbeit nicht näher behandelt, haben jedoch interessante Eigenschaften. So können Rückstreuungen des Elektrons am Mutterion zu nicht-sequenzieller Doppelionisation führen [48]. In der Theorie wurde die Möglichkeit betrachtet, Rückstreuungen spinpolarisierter Elektronen zu untersuchen [49]. Aus dem Vergleich eines stark durch die fundamentale Frequenz dominierten CTRC-Feldes mit dem entsprechenden CoTRC-Feld konnte die nicht-adiabatische Verschiebung der wahrscheinlichsten senkrechten Startimpulskomponente (siehe Abschnitt 2.5) experimentell verifiziert werden [50]. In Anhang K werden mit dem SCTS-Modell simulierte charakteristische Interferenzstrukturen in der Elektronenimpulsverteilung aus der Ionisation durch ein CoRTC- und ein CRTC-Feld verglichen.

In diesem Kapitel sollen zunächst die Grundlagen des Konzepts der Wignerzeit dargestellt und auf Problemstellungen bei der Definition einer 'Dauer' des Prozesses der Photoionisation eingegangen werden (siehe Abschnitt 3.1). Der weitere Verlauf widmet sich den experimentellen Techniken zur Messung von Photoionisationszeiten an realen Systemen. Obwohl bereits Mitte des 20. Jahrhunderts die Zeitskalen von elementaren Streuprozessen theoretisch behandelt wurden [51, 52], entzogen sie sich für Jahrzehnte einem direkten experimentellen Zugriff. Durch die Entwicklung der Technik zur Erzeugung kurzer intensiver Laserpulse [53] wurden zunehmend kürzere Zeitskalen experimentell zugänglich. Nach ersten Erfolgen der 'Femtochemie' [54] in den 1980er Jahren, den Ablauf molekularer Prozesse auf der Femtosekundenskala zu studieren, rückte bald die Zeitskala der Elektronendynamik in das Zentrum des Interesses [55]. Eine entscheidende Rolle spielte dabei die Erzeugung von Attosekunden-Pulsen [56] aus der Überlagerung höherer Harmonischer [57]. Es folgte eine Vielzahl experimenteller Arbeiten (siehe z.B. [58] für eine Übersicht), welche sich grob in zwei Kategorien einteilen lassen: 'Streaking'-Experimente (Abschnitt 3.2) und eine als 'Reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transitions' (RABBITT) bezeichnete Technik [59] (Abschnitt 3.3). Beide Verfahren basieren darauf, die Dauer einer Ein-Photon-Ionisation durch die Überlagerung eines langwelligen Lichtfeldes zu messen, was einige Herausforderungen mit sich bringt und signifikanten Einschränkungen unterliegt [60]. Mit der als 'Holographic angular streaking of electrons' (HASE) bezeichneten Technik [61] wird in Abschnitt 3.4 eine der RABBITT-Technik ähnliche Methode eingeführt, die bei der Interpretation der in den Kapiteln 10 und 11 präsentierten Ergebnisse zum Einsatz kam.

## 3.1 WIGNER- UND PHOTOIONISATIONSZEITEN

Die Anwendung des Konzepts der Wignerzeit  $\tau_{\text{Wigner}}$  [51] auf Photoionisationsprozesse ergibt sich daraus, diese als halben Streuvorgang ohne einlaufende Wellenfunktion  $\psi_{\text{ein}}$ , aber mit auslaufender Wellenfunktion  $\psi_{\text{aus}}$  zu betrachten [58]. Streuprozesse definieren sich im Wesentlichen über die durch das streuende Potential  $V(\vec{r})$  bewirkten Phasenschübe auf der Wellenfunktion des gestreuten Teilchens. Dies soll im Folgenden an einem einfachen Beispiel illustriert werden.

Bei konstantem Potential  $V_0 = 0$  kann ein freies Elektron durch seine Energie  $E = E_{\text{kin}}$  und den aus ihr folgenden Impuls  $p_{\text{elec}} = \sqrt{2E}$  charakterisiert werden. In Reichweite eines Potentials  $V(\vec{r})$  teilt sich die Gesamtenergie des Elektrons gemäß  $E = E_{\text{kin}} + V(\vec{r})$  auf, für den Impuls ergibt sich folglich  $p_{\text{elec}} = \sqrt{2(E - V(\vec{r}))}$ . Nach der De-Broglie-Relation  $\lambda_{\text{DB}} = \frac{h}{p}$  führt das Potential  $V(\vec{r})$  damit zu einer Wellenlängenänderung der elektronischen Wellenfunktion. Dies ist in Abb. 3.1 am Beispiel eines eindimensionalen Modellpotentials  $V(x)$  veranschaulicht. Die durchgezogenen Kurven in Abb. 3.1 a zeigen exemplarisch den Realteil von vier mit der Wentzel-Kramers-Brillouin-Näherung der eindimensionalen stationären Schrödingergleichung [62] berechneten Wellenfunktionen mit Gesamtenergien  $E$  von 1 a.u. bis 4 a.u., die durch das in Abb. 3.1 b dargestellte Potential  $V(x)$  propagieren. Die gestrichelten Kurven stellen jeweils den Fall eines konstanten Potentials  $V(x) = V_0 = 0$  und damit eines frei propagierenden Elektrons dar.

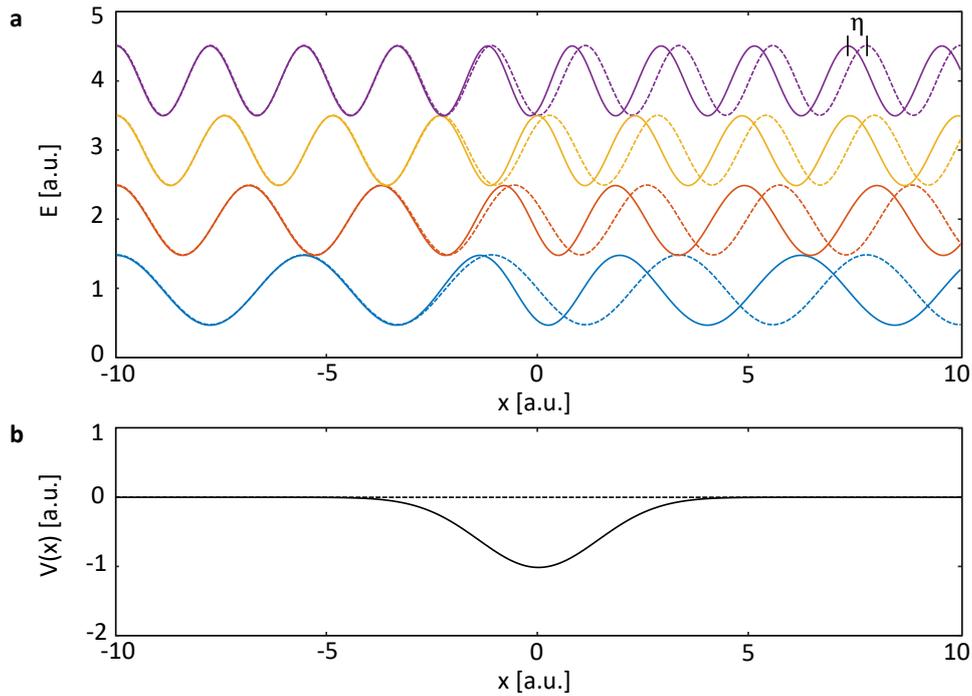


Abbildung 3.1: **a** Realteil der im Rahmen der Wentzel-Kramers-Brillouin-Näherung der eindimensionalen stationären Schrödingergleichung berechneten Wellenfunktionen mit Gesamtenergien  $E$  von 1 a.u. bis 4 a.u. für ein konstantes (gestrichelte Kurven) und für das in **b** dargestellte Potential (durchgezogene Kurven). Der Potentialunterschied hat einen Phasenschub um  $\eta$  zur Folge. Die Kurven in **a** stellen keine periodische Modulation in der Energie dar, stattdessen ist jeweils die Amplitude des Realteils der Wellenfunktion aufgetragen.

Vergleicht man die Wellenfunktionen des freien und des gestreuten Elektrons, so zeigt sich, dass letztere einen relativen Phasenschub  $\eta$  erfahren hat. Dieser Phasenschub konvergiert erst dann zu einem festen Wert, wenn das Potential asymptotisch abklingt. Auf diese Bedingung hat bereits *Wigner* selbst hingewiesen [51]. Aus ihr ergeben sich Probleme bei der Anwendung auf Streuvorgänge an langreichweitigen Coulomb-Potentialen, was weiter unten in diesem Abschnitt diskutiert wird. Während der Phasenschub einer einzelnen ebenen Welle keine physikalische Relevanz besitzt, ergeben sich für die Überlagerung mehrerer solcher Wellen bis hin zu Wellenpaketen messbare Konsequenzen.

Der Originalpublikation [51] von *Wigner* folgend, soll daher im Folgenden die Überlagerung zweier Wellen der Energie  $\hbar(\omega + \omega')$  bzw.  $\hbar(\omega - \omega')$ , mit einem infinitesimalen Kreisfrequenzunterschied von  $2\omega'$  als Minimalbeispiel eines Wellenpakets betrachtet werden. In der Wellenzahl  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  ergibt sich ein entsprechender infinitesimaler Unterschied von  $2k'$ . Es wird ein sphärisch-symmetrisches Streuproblem angenommen, sodass die Ortsabhängigkeit durch den skalaren Radius  $r$  ausgedrückt werden kann. Die einlaufende Wellenfunktion  $\psi_{\text{ein}}$  lautet dann:

$$\psi_{\text{ein}} = \frac{1}{r} (\exp(-i(k + k')r - i(\omega + \omega')t) + \exp(-i(k - k')r - i(\omega - \omega')t)) \quad (3.1)$$

Unter der Annahme, dass die Streuung am Potential einen energieabhängigen Phasenschub von  $\eta + \eta'$  bzw.  $\eta - \eta'$  bewirkt, wird die auslaufende Wellenfunktion  $\psi_{\text{aus}}$  durch

$$\psi_{\text{aus}} = \frac{1}{r} (\exp(-i(k + k')r - i(\omega + \omega')t + 2i(\eta + \eta')) + \exp(-i(k - k')r - i(\omega - \omega')t + 2i(\eta - \eta'))) \quad (3.2)$$

beschrieben. Wird die Bedingung  $2k'r - 2\omega't + 4\eta' = 0$  für konstruktive Interferenz der beiden Wellen angenommen, ergibt sich für den Ort zu einem beliebigen späteren Zeitpunkt  $t$ :

$$r = -2\frac{\eta'}{k'} + \frac{\omega'}{k'}t = -2\frac{d\eta}{dk} + \frac{d\omega}{dk} \quad (3.3)$$

Da  $\frac{\omega'}{k'} = \frac{d\omega}{dk}$  der Geschwindigkeit des Wellenpakets entspricht, hat die Streuung eine Ortsverschiebung um  $-2\frac{d\eta}{dk}$  bewirkt. Diese Ortsverschiebung ist über die Gruppengeschwindigkeit des Wellenpakets mit einer Zeitverzögerung  $\tau_{\text{Wigner,Streu}} = 2\hbar\frac{d\eta}{dE}$  verknüpft [63]. Folglich ergibt sich für einen halben Streuprozess die im weiteren Verlauf dieser Arbeit verwendete Definition der Wignerzeit:

$$\tau_{\text{Wigner}} = \hbar\frac{d\eta}{dE} \quad (3.4)$$

Positive Werte von  $\tau_{\text{Wigner}}$  entsprechen einer Verzögerung im klassischen Sinne und treten bei der Streuung an attraktiven Potentialen, wie dem in Abb. 3.1 b dargestellten Fall, auf. Während der Betrag von  $\tau_{\text{Wigner,Streu}}$  dabei beliebig groß sein kann, sind die bei der Streuung an repulsiven Potentialen auftretende negative Werte von  $\tau_{\text{Wigner,Streu}}$  hingegen durch die Kausalität nach oben beschränkt [51]. Nach einer ersten Interpretation der Energieableitung einer Phasenänderung als Zeitverzögerung durch *Eisenbud* [64] und der soeben vorgestellten Behandlung durch *Wigner* [51], stellt eine 1960 von *Smith* [52] vorgeschlagene 'Verweilzeit' ein verwandtes Konzept zur Wignerzeit dar. Aufgrund der Ähnlichkeit der Konzepte

wird auch häufig von der Eisenbud-Wigner-Smith-Zeit gesprochen.

Abb. 3.2 illustriert die Auswirkungen unterschiedlicher Phasengradienten  $\frac{d\eta}{dE}$  auf ein gaußsches Wellenpaket. Den Referenzfall stellt das in Abb. 3.2 a dargestellte Wellenpaket  $A = \exp\left(-\frac{x^2}{25}\right)$  dar. Es kann durch Fourier-Zerlegung in eine Summe ebener Wellen zerlegt werden. Die jeweiligen räumlichen Frequenzen können mit einer Energie in willkürlichen Einheiten (w.E.) identifiziert werden. Abb. 3.2 b zeigt die vier niederenergetischen Fourier-Komponenten. Die schwarze vertikale Kurve zeigt die Position der jeweiligen Maxima, alle Fourier-Komponenten sind bei  $x=0$  w.E. in Phase und interferieren konstruktiv. Die einzelnen Fourier-Komponenten werden nun exemplarisch gemäß zweier unterschiedlicher angenommener Werte von  $\frac{d\eta}{dE}$  verschoben und in Abb. 3.2 c gezeigt. Die durch die gepunkteten Kurven dargestellte Verschiebung gemäß dem Phasengradienten  $\frac{d\eta}{dE} = \frac{\pi}{4}$  sorgt für eine energieunabhängige Verschiebung der Fourier-Komponenten, sodass sie sich wiederum in einem Zustand perfekter konstruktiver Interferenz befinden. Die Verschiebung gemäß  $\frac{d\eta}{dE} = \frac{\pi}{4\sqrt{E}}$  hingegen resultiert in den gestrichelten Kurven und führt wie zu erwarten zu einer nicht mehr perfekt konstruktiven Überlagerung. Die in Abb. 3.2 d dargestellten aus den einzelnen Fourier-Komponenten zusammengesetzten Wellenpakete unterscheiden sich deutlich voneinander. Ein Phasengradient von  $\frac{d\eta}{dE} = \frac{\pi}{4}$  hat die Form des Wellenpakets erhalten und lediglich eine Verschiebung bewirkt, während die Anwendung von  $\frac{d\eta}{dE} = \frac{\pi}{4\sqrt{E}}$  zu einer deutlichen Deformation geführt hat. Die beiden exemplarisch betrachteten Phasengradienten weisen ein positives Vorzeichen auf, wie es aus der Streuung an attraktiven Potentialen resultiert. Die Verschiebung der Wellenpakete zu kleineren Orten steht dabei im Kontrast zu dem für ein klassisches Teilchen zu erwartenden Verhalten. Die Beschleunigung in einem attraktiven Potential führt zu einer relativen Verschiebung zu größeren Orten. Dies ist durch die vertikalen grünen Linien in Abb. 3.2 a und Abb. 3.2 d illustriert.

Die Wignerzeit ist als äquivalent zu einer Änderung der Gruppengeschwindigkeit bzw. einer Verschiebung des Maximums des Wellenpakets zu betrachten [51, 63]. Diese Interpretation als relative Ortsverschiebung verschiedener Trajektorien zueinander ist im weiteren Verlauf dieser Arbeit bedeutsam (siehe Abschnitt 3.4 und Kapitel 10). Das zuletzt illustrierte Beispiel eines nicht-linearen energieabhängigen Phasenschubs weist auf die Problematik ihrer Anwendung auf Tunnelzeiten hin. Da es sich beim Tunnelprozess eines Wellenpakets durch eine Barriere um einen energieabhängigen Prozess handelt und kein Maximum des Wellenpakets unter der Barriere identifiziert werden kann, wird die Wignerzeit als ungeeignete Größe zur Charakterisierung einer möglichen Tunnelzeit betrachtet [65–68].

Zuletzt soll auf die Möglichkeit einer Erweiterung des Konzepts der Wignerzeit auf den Fall langreichweitiger Streupotentiale eingegangen werden. Dieser ist für die Untersuchung von Photoionisationsvorgängen hoch relevant, da diese in der Regel ein mit einem ganzzahligen Vielfachen  $Z$  der Elementarladung positiv geladenes Ion hervorbringen, in dessen Coulomb-Potential die auslaufende Wellenfunktion  $\psi_{\text{aus}}$  propagiert. Die Wechselwirkung mit dem Coulomb-Potential verursacht einen von  $r$  unabhängigen Phasenschub  $\eta_l^C$ , der als die Entsprechung des zuvor diskutierten Phasenschubs  $\eta$  in einem Coulomb-Potential aufgefasst werden kann [58, 69]:

$$\eta_l^C = \arg [\Gamma(l + 1 - iZ/k)] \quad (3.5)$$

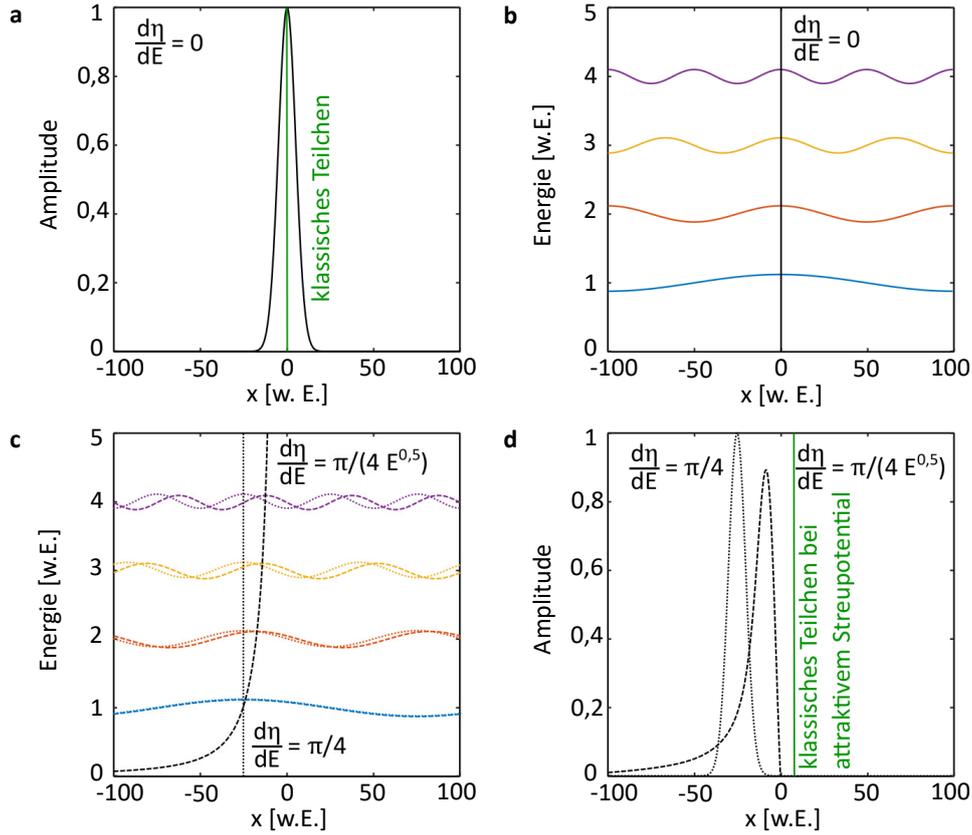


Abbildung 3.2: **a** Ein gaußsches Wellenpaket ist zu einem beliebigen Zeitpunkt zentriert um  $x=0$  w.E. **b** Exemplarische Darstellung der vier niederfrequenten Fourier-Komponenten des in **a** gezeigten Wellenpakets. Sie sind für  $x=0$  w.E. in Phase und interferieren konstruktiv. **c** Ein Phasengradient von  $\frac{d\eta}{dE} = \frac{\pi}{4}$  (gepunktete Kurven) bzw.  $\frac{d\eta}{dE} = \frac{\pi}{4\sqrt{E}}$  (gestrichelte Kurven) führt zu Verschiebungen der Fourier-Komponenten zueinander. **d** Konstante Werte von  $\frac{d\eta}{dE}$  verschieben das Wellenpaket zu kleineren Orten, eine Energieabhängigkeit modifiziert darüber hinaus seine Form. Ein klassisches Teilchen wird hingegen zu größeren Orten verschoben (vertikale grüne Linien), da es eine Beschleunigung erfährt.

Dabei bezeichnet  $l$  den Drehimpuls und  $k$  den Impuls des freien Elektrons,  $\Gamma()$  ist die Eulersche Gammafunktion. Die sich daraus ergebende Wignerzeit kann wiederum über

$$\tau_{\text{Wigner}}^{\text{C}} = \hbar \frac{d\eta_l^{\text{C}}}{dE} \quad (3.6)$$

definiert werden. Aufgrund der unendlichen Reichweite der Coulomb-Wechselwirkung ergibt sich jedoch ein zusätzlicher  $r$ -abhängiger Term [58]:

$$\Delta\tau_{\text{C}} = \frac{Z}{(2E)^{\frac{3}{2}}} \left[ 1 - \ln(2\sqrt{2Er}) \right] \quad (3.7)$$

Die gesamte Zeitverzögerung ergibt sich aus der Summe  $\tau_{\text{Wigner}}^{\text{C}} + \Delta\tau_{\text{C}}$  und stellt keine sinnvolle Größe im Sinne der zuvor definierten Wignerzeit dar. Bereits *Smith* wies auf diesen Sachverhalt und die logarithmisch divergierende Streuphase für Coulomb-Potentiale hin [52]. Eine sinnvollere Definition einer Photoionisationszeit für langreichweitige Potentiale stellt daher der Zeitunterschied zu dem Beitrag  $\tau_{\text{Wigner}}^{\text{C}}$  des reinen Coulomb-Potentials atomaren Wasserstoffs dar [60, 70].

## 3.2 ATTOSECOND-STREAKING

Das Konzept des Attosecond-Streaking basiert auf den Entwicklungen der sogenannten Streak-Kamera in den 1990er Jahren. Das Ziel bestand darin, sub-Picosekunden (ps) Röntgenpulse aus der Wechselwirkung von kurzen Laserpulsen mit Plasma [71] zeitlich zu charakterisieren [72]. Hierzu wurden zunächst Elektronen aus einer Festkörperkathode ausgelöst, durch die Ionisation von Atomen in der Gasphase konnte die Auflösung stark verbessert werden [73]. Das grundlegende Prinzip ist in Abb. 3.3 dargestellt. Ein einzelner, durch die Erzeugung höherer Harmonischer generierter und einige hundert Attosekunden langer Lichtpuls extrem ultravioletter Strahlung (XUV) wird mit einem wenige Schwingungszyklen langen Lichtpuls im optischen oder infraroten Wellenlängenbereich überlagert [74]. Dieser Puls wird als 'Streaking'-Puls bezeichnet, der zeitlich Abstand  $t_D$  und damit die relative Phase zwischen den beiden Pulsen kann aktiv kontrolliert werden. Ein durch ein Photon der XUV-Strahlung freigesetztes Elektron besitzt zunächst eine kinetische Energie von  $E_{\text{kin}} = \hbar\omega_{\text{XUV}} - I_p$ . Je nach Zeitpunkt  $t_0$  der Ionisation ist das negative Vektorpotential  $-\vec{A}(t_0)$  des 'Streaking'-Pulses nicht Null und führt zu einer Energie- und Impulsänderung nach Gl. 2.8. Damit kann ein zeitlicher Abstand  $\Delta t_D$  auf eine Impulsänderung  $\Delta p$  abgebildet werden, was die Auflösung von Zeitskalen unterhalb von  $\approx 100$  as erlaubt [75, 76]. Wird die gemessene Elektronenenergie  $E_{\text{kin}}$  gegen den zeitlichen Abstand  $t_D$  der beiden Pulse aufgetragen, ergibt sich eine sogenannte 'Streaking-Spur', die das negative Vektorpotential des 'Streaking'-Pulses abbildet [77].

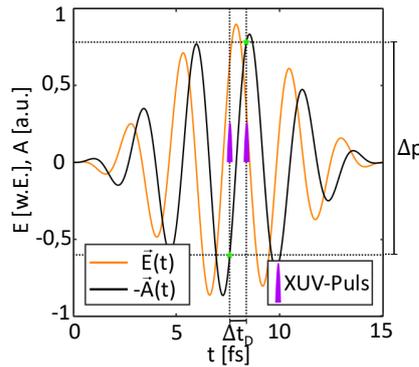


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung des Attosecond-Streaking. Ein durch einen kurzen XUV-Puls freigesetztes Elektron erfährt eine Impulsänderung durch das negative Vektorpotential  $-\vec{A}(t)$  des 'Streaking'-Pulses. Zeitliche Unterschiede  $\Delta t_D$  werden auf einen Impulsunterschied  $\Delta p$  abgebildet.

Werden die 'Streaking-Spuren' zweier unterschiedlicher Ionisationskanäle verglichen, kann unter Umständen ein zeitlicher Versatz  $t_s$  der beiden Spuren beobachtet werden. Naiv könnte  $t_s$  als Unterschied in der Photoionisationszeit  $\Delta\tau_{\text{Wigner}}$  interpretiert werden, da für einen der beiden Kanäle nicht mehr das negative Vektorpotential  $-\vec{A}(t_0)$  sondern  $-\vec{A}(t_0 + \Delta\tau_{\text{Wigner}})$  relevant ist. Eine erste Anwendung des Attosecond-Streaking im Hinblick auf die Messung von Photoionisationszeiten erfolgte 2007 durch *Cavalieri et al.* [78]. Zwischen Elektronen aus dem Leitungsband und Elektronen aus dem  $4f$ -Zustand von Wolfram wurde ein Unterschied von  $\Delta\tau = 100 \pm 60$  as publiziert. 2010 bestimmten *Schulze et al.* den Zeitversatz zwischen einem Photoelektron aus dem  $2s^2$ - und einem aus dem  $2p^6$ -Orbital von Neon auf  $21 \pm 5$  as [79].

Aus dem Vergleich des gemessenen Ergebnisse mit theoretischen Rechnung ergaben sich jedoch z.T. deutliche Abweichungen [80]. Diese sind darauf zurückzuführen, dass die gemessene zeitliche Verschiebung der 'Streaking-Spuren' keinesfalls mit  $\Delta\tau_{\text{Wigner}}$  gleichzusetzen ist. Tatsächlich sind die Phasenschübe, die durch das Feld des 'Streaking'-Pulses und die Coulomb-Wechselwirkung verursacht werden, für einen Großteil des beobachteten Effekts verantwortlich, z.T. weicht sogar das Vorzeichen ab [69]. Außerdem konnte gezeigt werden, dass es bei der in [79] publizierten Messung zur Anregung sogenannter 'shake-up'-Zustände kam [81].

*Saalmann und Rost* legen dar, dass der beobachtete Zeitversatz  $t_s$  nur für kurzreichweitige Potentiale, hohe kinetische Energien des Photoelektrons sowie große Wellenlängen bzw. lange Schwingungsperioden  $T_\omega$  des 'Streaking'-Pulses direkt mit der Wignerzeit identifiziert werden kann [60]. Sie formulieren hierfür die Bedingung  $r_{E_{\text{kin}}} \left( \frac{T_\omega}{4} \right) \gg r_V$ . Eine Elektronentrajektorie der Energie  $E_{\text{kin}}$  muss also innerhalb eines Viertels der Schwingungsperiode  $T_\omega$  die Reichweite  $r_V$  des kurzreichweitigen Potentials verlassen haben. Im weiteren Verlauf gehen *Saalmann und Rost* sowohl auf die Problematik divergierender 'Streaking'-Zeiten  $t_s$ , als auch auf die Divergenz der Wignerzeit an sich für den Fall langreichweitiger Coulomb-Potentiale ein. Sie stellen dar, dass Ansätze, den Unterschied in der Photoionisationszeit zwischen zwei unterschiedlichen Zuständen wie bspw. in [79] zu messen, zwar nicht zu divergierenden Werten führen, aber auch nicht den gesuchten Unterschied in der Wignerzeit ergeben. Der gemessenen Zeitunterschied hängt dagegen sowohl von der kinetischen Energie des Elektrons, als auch von der Wellenlänge des 'Streaking'-Pulses ab und erfüllt somit nicht die Eigenschaften der Wignerzeit. Als erfolgversprechender Ansatz wird die bereits im vorigen Abschnitt vorgestellte Berücksichtigung eines reinen Coulomb-Potentials wie das atomaren Wasserstoffs als Referenz gesehen. Sie demonstrieren, dass damit für hinreichend schwache 'Streaking'-Felder konvergierende und somit physikalisch bedeutsame 'Streaking'-Zeiten extrahiert werden können.

## 3.3 RABBITT

Neben dem Attosecond-Streaking existiert eine weitere etablierte Methode zur Messung von Photoionisationszeiten. Sie basiert auf der Ein-Photon-Ionisation durch einen Kamm von durch die Erzeugung höherer Harmonischer generierten XUV-Pulsen mit Kreisfrequenzen  $\omega_{\text{XUV},n} = n \cdot \omega$  in Abhängigkeit von der ganzzahligen und ungeraden harmonischen Ordnung  $n$ . Die kinetische Energie der resultierenden Photoelektronen ergibt sich gemäß  $E_{\text{kin}} = \hbar\omega_{\text{XUV},n} - I_p$ . Abb. 3.4 a zeigt exemplarisch drei aufeinander folgende Photonenergien  $\hbar\omega_{\text{XUV},n}$ ,  $\hbar\omega_{\text{XUV},n+1}$  und  $\hbar\omega_{\text{XUV},n+2}$  als violette Pfeile, die jeweils zu Maxima in der Elektronenenergieverteilung führen. Das XUV-Licht wird nun mit einem schwachen Fundamentalen-Feld der Kreisfrequenz  $\omega$  und der Periodendauer  $T_\omega$  überlagert. Zusätzlich zu den erwarteten Elektronenenergien aus der Ein-Photon-Ionisation entstehen hierdurch Interferenzen in der Elektronenenergieverteilung, die als Seitenbänder (engl. 'side bands', SB) bezeichnet werden [82]. Ihr Zustandekommen kann als Überlagerung der Absorption und stimulierten Emission einzelner Photonen der Energie  $\hbar\omega$  (in Abb. 3.4 a als rote Pfeile dargestellt) verstanden werden. Wird nun der zeitliche Abstand  $t_D$  und damit die Phase zwischen dem XUV-Licht und der Fundamentalen variiert, wird eine mit der Dauer  $\frac{T_\omega}{2}$  periodische Modulation der Intensität auf den Seitenbändern beobachtet. Sie ist in Abb. 3.4 a schematisch für eine volle Periode  $T_\omega$  dargestellt.

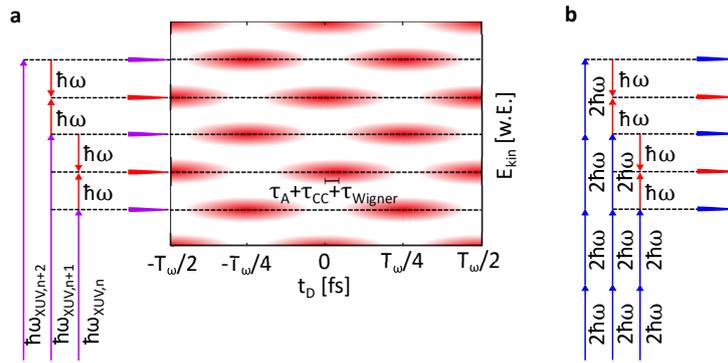


Abbildung 3.4: **a** Schematische Darstellung der RABBITT-Technik. Ein Kamm von höheren Harmonischen (violette Pfeile) wird mit einem schwachen Fundamentalen-Feld überlagert, sodass sich durch Absorption und stimulierte Emission einzelner Photonen der Energie  $\hbar\omega$  (rote Pfeile) in Abhängigkeit von  $t_D$  periodisch modulierte Seitenbänder ausbilden. **b** Schematische Darstellung der Erweiterung der RABBITT-Technik auf das Starkfeldregime durch Zipp *et al.* Zusätzlich zu den ATI-Peaks im Abstand der Photonenergie  $2\hbar\omega$  (blaue Pfeile) führt die Absorption und stimulierte Emission einzelner Photonen der Energie  $\hbar\omega$  (rote Pfeile) wiederum zur Ausbildung von Seitenbändern.

Diese periodische Modulation erlaubt es, die relativen Phasen der elektronischen Wellenfunktionen mit  $E_{\text{kin}} = \hbar\omega_{\text{XUV},n} - I_p$  zueinander zu bestimmen. Dieses Verfahren wird als RABBITT ('Reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transitions') bezeichnet [59]. Die Modulation in Abhängigkeit vom zeitlichen Abstand  $t_D$  der beiden Pulse wird beschrieben durch [82, 83]:

$$S(t_D) = A + B \cos \left[ 2\omega \left( t_D - \tau_A - \tau_{\text{CC}} - \tau_{\text{Wigner}} \right) \right] \quad (3.8)$$

Dabei bezeichnen  $A$  und  $B$  von  $t_D$  unabhängige Konstanten.  $\tau_A$  ist proportional zum Phasenunterschied zwischen den benachbarten höheren Harmonischen,  $\tau_{CC}$  charakterisiert die Phasenänderung durch die Wechselwirkung mit dem Fundamental-Feld und wird daher als 'continuum-continuum'-Beitrag bezeichnet. Auch für RABBITT-Technik wird die Berücksichtigung eines reinen Coulomb-Potentials als Referenz zur Bestimmung physikalisch bedeutsamer Photoionisationszeiten als sinnvoll erachtet [58, 70].

Die RABBITT-Technik wurde bereits auf viele unterschiedliche Systeme angewendet. *Klünder et al.* stellten 2011 eine Messung vor, die den Unterschied zwischen einer Ionisation aus dem  $3s^2$ - und aus dem  $3p^6$ -Orbital von Argon untersuchte [83]. Als Vorteil der simultanen Messung von zwei Ionisationskanälen bei gleichen Bedingungen wurden die sich aufhebenden Beiträge von  $\tau_A$  und  $\tau_{CC}$  herausgestellt. Es folgten vergleichende Messungen der Ein-Photonen-Ionisation an  $N_2O$  und  $H_2O$  [84] sowie für unterschiedliche Endzustände an Nickel [85]. Auch ein experimenteller Vergleich der durch die RABBITT-Technik und das Attosecond-Streaking extrahierten Zeitunterschiede für  $Ne\ 2p$  und  $Ar\ 3p$  wurde untersucht, wobei sich unter Berücksichtigung aller Korrekturen im Wesentlichen ähnliche Ergebnisse ergaben [86]. Mit der Methode der Stereo-Wignerzeit an  $CO$  führten *Vos et al.* 2018 erstmals eine RABBITT-Messung in Abhängigkeit von der Orientierung einer Molekülachse durch [87]. Dabei wurde der Unterschied in der Photoionisationszeit für eine Emission von der Kohlenstoff- bzw. Sauerstoffseite des Moleküls verglichen. Kürzlich folgten experimentelle Arbeiten über den Einfluss von Shape-Resonanzen in  $CO_2$  [88],  $N_2$  [89] und  $NO$  [90].

Eine Erweiterung der RABBITT-Technik auf das Starkfeldregime stellt die Untersuchung von Phasenunterschieden zwischen ATI-Peaks eines  $2\omega$ -Feldes durch die Überlagerung eines schwachen  $\omega$ -Feldes dar. Die beteiligten Photonenenergien sind in Abb. 3.4 b als blaue ( $2\hbar\omega$ ) bzw. rote ( $\hbar\omega$ ) Pfeile dargestellt. Eine entsprechende erste Arbeit von *Zipp et al.* im Jahr 2014 untersuchte dabei die Multi-Photonen-Ionisation von Argon [91]. Ein Phasenunterschied zwischen ATI-Peaks und Seitenbändern von etwa  $\pi$  und eine Abnahme der relativen Abweichungen von diesem Wert für höhere Intensitäten wurde beobachtet. Ein ähnliches Schema zu Photoionisationszeiten an Campher, allerdings mit komplexeren Feldgeometrien stellt die 2017 publizierte Arbeit von *Beaulieu et al.* dar [92].

Aufgrund des endlichen Energieunterschieds zwischen zwei benachbarten Ordnungen höherer Harmonischer erlaubt die RABBITT-Technik nur die näherungsweise Bestimmung der Ableitung der Streuphase über dieses Energieintervall. Einen interessanten neuen Ansatz zur Messung von Photoionisationszeiten stellt eine erstmals von *Rist et al.* angewendete Methode dar, die  $\tau_{Wigner}$  ohne die Überlagerung mit einem Fundamental-Feld aus einer Reihe von nacheinander durchgeführten Messungen mit Synchrotronstrahlung unterschiedlicher Photonenenergie ermittelt [93]. Hierzu werden die jeweiligen Winkelverteilungen der Photoelektronen im Molekülsystem von  $CO$  durch eine winkelabhängige komplexe Zahl charakterisiert, deren Phase bei bekanntem Energieunterschied eine näherungsweise Bestimmung von  $\tau_{Wigner}$  für den Fall einer Ein-Photon-Ionisation ermöglicht.

## 3.4 HOLOGRAPHIC ANGULAR STREAKING OF ELECTRONS (HASE)

Die HASE-Technik stellt eine neue Methode für die Messung von Photoionisationszeiten im Starkfeldregime dar. Es handelt sich um ein auf Trajektorien basierendes Modell zur Beschreibung von Interferenzen in stark durch die  $2\omega$ -Komponente dominierten CoRTC-Feldern (siehe Abschnitt 2.7), wobei es auch auf CRTC-Felder erfolgreich angewandt werden konnte [30]. Die charakteristischen Interferenzstrukturen in solchen CoRTC-Feldern waren bereits zuvor beobachtet und diskutiert worden [94]. Die zugrunde liegende Idee kann als eine Variante der in Abschnitt 3.3 erwähnten Erweiterung des RABBITT-Ansatzes auf das Starkfeldregime [91] gesehen werden. Dieses Schema mit zwei linear polarisierten Farben diskutierten *Feng et al.* 2019 in einem auf Trajektorien basierenden Bild [95]. Die Darstellung des Konzepts der HASE-Technik mitsamt der Abbildungen folgt [61].

## 3.4.1 Betrachtung im Impulsraum

Wie bereits in Abschnitt 2.2 beschrieben, kann der Endimpuls  $\vec{p}_{\text{elec}}$  eines zum Zeitpunkt  $t_0$  getunnelten Elektrons unter Vernachlässigung der Coulomb-Wechselwirkung mit dem Mutterion als Summe des Startimpulses  $\vec{p}_0$  und des negativen Vektorpotentials  $-\vec{A}(t_0)$  ausgedrückt werden (siehe Gl. 2.8). Unter adiabatischen Bedingungen oder für zirkular polarisiertes Licht besitzt  $\vec{p}_0$  dabei nur eine zum Tunnelausgang  $\vec{r}_0$  senkrechte Komponente  $\vec{p}_{0,\perp}$ . Diese Bedingung kann auch im Grenzfall einer sehr schwachen  $\omega$ -Komponente eines CoRTC-Feldes angenommen werden. Abb. 3.5 (a) zeigt ein solches im Uhrzeigersinn rotierendes CoRTC-Feld mit  $E_{0,2\omega}=0,04$  a.u. und  $E_{0,\omega}=0,004$  a.u. sowie das dazugehörige negative Vektorpotential. In diesem Abschnitt wird die Polarisationssebene durch die Koordinaten  $y$  und  $z$  aufgespannt, während sie in Kapitel 2 durch die Koordinaten  $x$  und  $y$  definiert wurde. Die beiden Halb-Zyklen mit Periodendauer  $T_\omega/2$  unterscheiden sich in der Amplitude von  $\vec{E}(t)$  und  $-\vec{A}(t)$ . Im Gegensatz zum Fall zirkularer Polarisation sind das elektrische Feld  $\vec{E}(t_0)$  und das negative Vektorpotential  $-\vec{A}(t_0)$  im Allgemeinen nicht mehr orthogonal zueinander orientiert. Wie bereits in Abschnitt 2.2 erwähnt, wird die Interferenz von Trajektorien betrachtet, die im Rahmen eines kleinen Intervalls einen identischen Endimpuls besitzen. Die folgende Behandlung beschränkt sich auf die Polarisationssebene, sodass der Betrag des Endimpulses  $\vec{p}_{\text{elec}}$  identisch mit dem Radialimpuls  $p_r = \sqrt{p_y^2 + p_z^2}$  ist. Außerdem wird die Coulomb-Wechselwirkung mit dem Mutterion im Folgenden vernachlässigt, ihre Berücksichtigung ändert jedoch nichts an den grundlegenden Vorhersagen des HASE-Modells [61].

Die Geometrie des CoRTC-Feldes führt dazu, dass jeder Punkt im Endimpulsraum von zwei unterschiedlichen Startzeitpunkten  $t_1$  und  $t_2$  aus erreicht werden kann. Einer der beiden Zeitpunkte liegt dabei in dem Halb-Zyklus mit geringerer, der andere in dem Halb-Zyklus mit höherer Feldstärke. Dies führt zu einer Zwei-Pfad-Interferenz zwischen Wellenpaketen, die in den jeweiligen Halb-Zyklen freigesetzt werden. Wie Abb. 3.5 (b) zeigt, sind dafür unterschiedliche senkrechten Startimpulskomponenten  $\vec{p}_{0,\perp}$  (blaue Linien) erforderlich. Die jeweiligen Schnittpunkte und damit Endimpulse  $\vec{p}_{\text{elec}}$  sind durch blaue Punkte markiert. Aufgrund der Abhängigkeit der Ionisationswahrscheinlichkeit vom Betrag von  $\vec{p}_{0,\perp}$  würde ein zu großer Unterschied zwischen den beiden Halb-Zyklen im elektrischen Feld und damit dem negativen Vektorpotential einen Überlapp im Endimpulsraum unwahrscheinlicher machen. Des Weiteren würde der Halb-Zyklus mit größerem elektrischen Feld die Ionisationsrate so stark dominieren, dass die Modulation

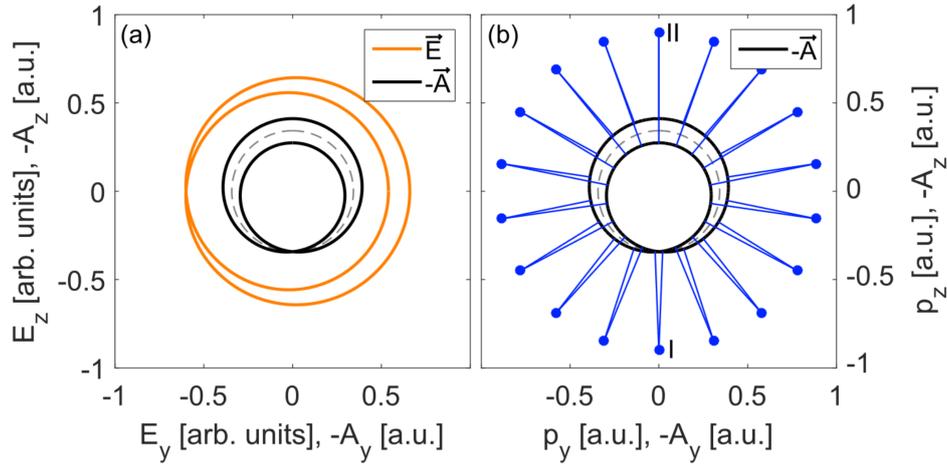


Abbildung 3.5: (a) Das elektrische Feld  $\vec{E}(t)$  und das dazugehörige negative Vektorpotential  $-\vec{A}(t)$  des CoRTC-Feldes. (b) Die blauen Punkte stellen exemplarisch mögliche Endimpulse  $\vec{p}_{elec}$  dar. Jeder Punkt  $\vec{p}_{elec}$  ist durch blaue Linien mit  $-\vec{A}(t_1)$  und  $-\vec{A}(t_2)$  verbunden, welche die hier als  $\vec{p}(i,1)$  und  $\vec{p}(i,2)$  bezeichneten Startimpulse darstellen. Abbildung entnommen aus [61].

durch die Zwei-Pfad-Interferenz letztlich verschwinden würde.

Abb. 3.6 stellt dar, aus welcher Kombinationen von Startzeiten und senkrechten Startimpulsen ein Punkt im Endimpulsraum erreicht werden kann. Hierzu wird ein voller Schwingungszyklus  $T_\omega$  des CoRTC-Feldes zunächst in zwei Halbzyklen  $T_\omega/2$  zerlegt. Diese sind in Abb. 3.6 (a) und (e) farblich hervorgehoben und durch ein ab- bzw. zunehmendes Vektorpotential charakterisiert. Die entsprechenden Startzeitpunkte  $t_1$  und  $t_2$  für jeden Endimpuls sind in Abb. 3.6 (b) bzw. (f) dargestellt und nehmen erwartungsgemäß mit der zeitlichen Entwicklung des als schwarze Linie eingezeichneten negativen Vektorpotentials  $-\vec{A}(t)$  zu. Die Farbskala umfasst dabei die gesamte Periodendauer  $T_\omega$  des fundamentalen Lichtfeldes mit einer Wellenlänge von 780 nm. Abb. 3.6 (c) und (g) zeigen den Betrag des senkrechten Startimpulses  $\vec{p}_{0,\perp}$ , der zum Erreichen des jeweiligen Endimpulses nötig ist. Die entsprechenden Werte werden hier als  $\vec{p}(i,1)$  und  $\vec{p}(i,2)$  bezeichnet, wobei wiederum die Vorzeichenkonvention aus Gl. 2.13 zur Anwendung kommt. Die jeweiligen semiklassischen Phasen  $\phi_1$  und  $\phi_2$  können nach Gl. 2.10 berechnet werden und sind in Abb. 3.6 (d) und (h) dargestellt.

Aus diesen Phasen ergeben sich unter Einbeziehung von zwei vollen Schwingungsperioden  $T_\omega$  des CoRTC-Feldes sowohl 'intracycle'- als auch 'intercycle'-Interferenzen. Abb. 3.7 (a) zeigt die vier beteiligten Halb-Zyklen, Abb. 3.7 (b) das resultierende Interferenzmuster  $|\psi_{simple}|^2$ , die Ionisationswahrscheinlichkeit wird als unabhängig sowohl von  $\vec{E}(t)$ , als auch von  $\vec{p}_{0,\perp}$  angenommen. Dem wird im Experiment durch das Herausnormieren der Einhüllenden der Elektronenimpulsverteilung Rechnung getragen (siehe Abschnitt 10.2). Wie bereits eingeführt, sind 'intercycle'-Interferenzen für die Ausbildung von diskreten Maxima in der Energie bzw. dem Radialimpuls  $p_r$ , den sogenannten ATI-Peaks verantwortlich. Diese treten im Abstand der Photonenenergie  $\hbar\omega$  des jeweiligen Laserfeldes auf. Da das betrachtete CoRTC-Feld sowohl aus Beträgen von  $\omega$  als auch  $2\omega$  besteht, zeigen sich doppelt so viele Maxima im Radialimpuls, als dies für ein reines  $2\omega$ -Feld der Fall wäre. Letzterer Fall ist zum Vergleich in Abb. 3.7 (c) und (d) dargestellt. Es wird die Konvention gewählt, dass Maxima in  $p_r$ , die in einem reinen  $2\omega$ -

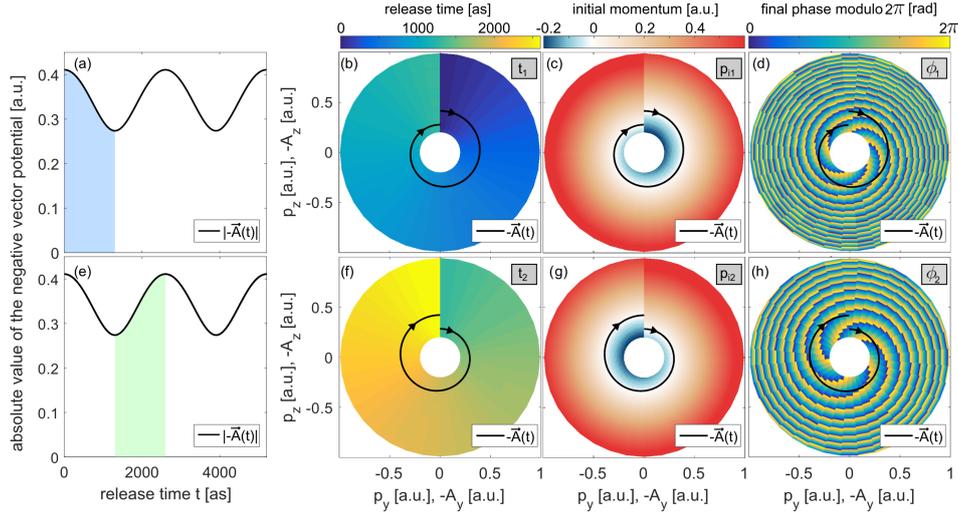


Abbildung 3.6: (a) Der Betrag des negativen Vektorpotentials  $|\vec{A}(t)|$  in Abhängigkeit von der Startzeit. Der erste Halb-Zyklus ( $0 \text{ as} < t \leq T_\omega/2$ ) des CoRTC-Feldes ist farbig hervorgehoben.  $|\vec{A}(t)|$  wird in allen Teilabbildungen als schwarze Linie dargestellt. (b) [(c)] zeigt den Startzeitpunkt [Startimpuls] als Funktion des Endimpulses  $\vec{p}_{\text{elec}}$ . (d) zeigt die semiklassische Phase  $\phi_1$  als Funktion von  $\vec{p}_{\text{elec}}$ . Die Teilabbildungen (e)–(h) zeigen die in (a)–(d) dargestellten Größen für Startzeitpunkte im zweiten Halb-Zyklus ( $T_\omega/2 \leq t \leq T_\omega$ ). Abbildung entnommen aus [61].

Feld beobachtet werden, auch dann weiterhin als ATI-Peaks bezeichnet werden, wenn sich durch Hinzufügen eines  $\omega$  die Anzahl dieser Maxima verdoppelt. Die neu hinzukommenden Maxima werden als Seitenbänder bezeichnet, womit die Definition derjenigen aus Abschnitt 3.3 im Kontext der RABBITT-Technik entspricht. Interessanterweise ist die Intensität beider Klassen von Maxima trotz des betrachteten Feldverhältnisses  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}$  von 0,1 in etwa gleich stark ausgeprägt, dies ist auch bei der RABBITT-Technik der Fall. Das in Abb. 3.7 (b) gezeigte charakteristische Interferenzmuster eines solchen CoRTC Feldes wird im weiteren Verlauf als 'alternating half-ring' (AHR) Struktur bezeichnet [7, 61].

Die HASE-Technik kann genutzt werden, um Phasenunterschiede zwischen Wellenpaketen aus den beiden Halb-Zyklen des CoRTC-Feldes zu bestimmen. Der wesentliche Unterschied zwischen den zu den Zeitpunkten  $t_1$  und  $t_2$  gehörenden Trajektorien besteht in dem zum Erreichen eines jeweiligen Endimpulses nötigen senkrechten Startimpuls  $\vec{p}_{0,\perp}$ . Unter Anwendung der Vorzeichenkonvention aus Gl. 2.13 kann die in Gl. 2.10 gegebene semi-klassische Phase einer Trajektorie durch Addition eines Terms  $\Phi_{\text{off}}(p_{0,\perp}) = \kappa \frac{p_{0,\perp}}{\text{a.u.}}$  mit einer reellen Zahl  $\kappa$  erweitert werden [61]. Die Auswirkungen dieses zusätzlichen Terms für  $\kappa = \pi$  sind in Abb. 3.8 dargestellt. Dabei werden zwei unterschiedliche Szenarien betrachtet. Zum einen wird eine gleiche Wahrscheinlichkeit  $B = 1$  für alle Werte von  $p_{0,\perp}$  (in der Abbildung als  $p_i$  bezeichnet) angenommen. Die entsprechende Amplitude und  $\Phi_{\text{off}}$  sind in Abb. 3.8 (a) gezeigt. Zum anderen wird eine Einhüllende  $B(p_{0,\perp}) = \exp\left(-\frac{(p_{0,\perp} - 0,2 \text{ a.u.})^2}{2\sigma^2}\right)$  mit  $\sigma = 0,2 \text{ a.u.}$  angenommen (siehe Abb. 3.8 (b)). Die jeweils resultierenden Endimpulsverteilungen sind in Abb. 3.8 (c) und (d) dargestellt. Es wird eine Drehung der AHR-Struktur beobachtet, die durch den Winkel  $\alpha$  der einfach-symmetrischen Komponente für jedes einzelne Energiemaximum charakterisiert werden kann (siehe auch Abschnitt 2.3 und Anhang B). Die

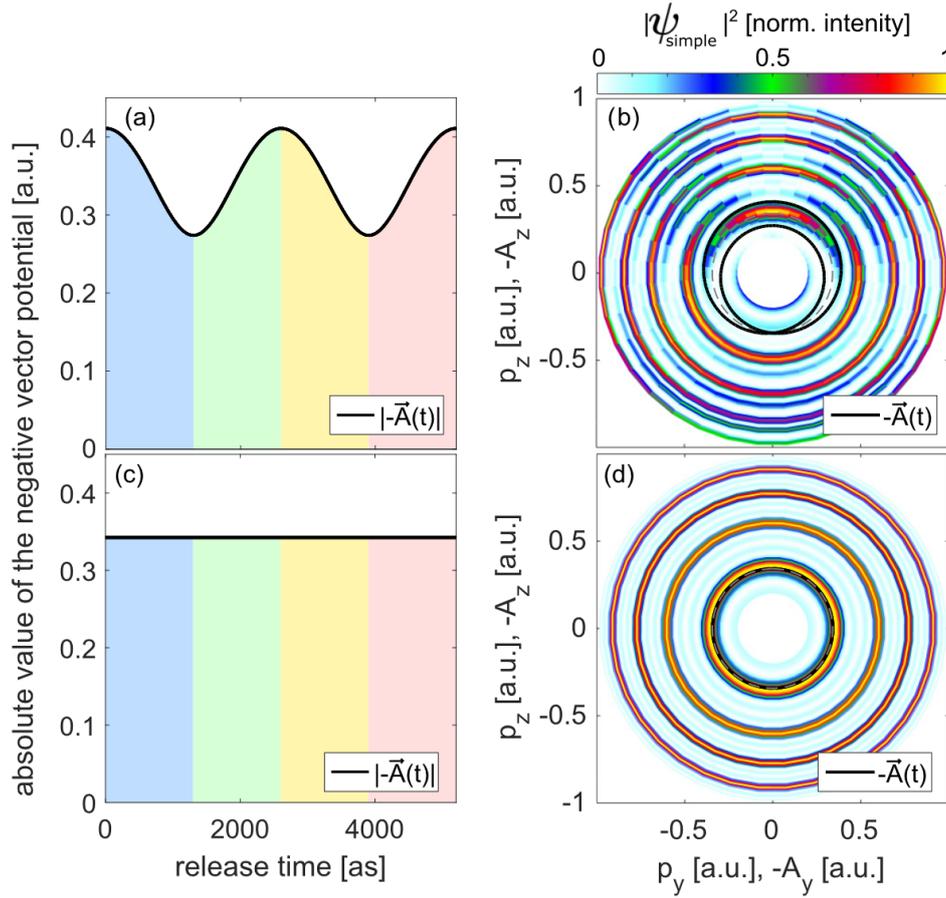


Abbildung 3.7: (a) Der Betrag des negativen Vektorpotentials  $|\vec{A}(t)|$  in Abhängigkeit von der Startzeit für alle vier betrachteten Halb-Zyklen. (b) Die resultierende Elektronenimpulsverteilung  $|\psi_{\text{simple}}|^2$  mit der charakteristischen AHR-Struktur. Die Teilabbildungen (c) und (d) zeigen die in (a) und (b) dargestellten Größen für ein zirkular polarisiertes Lichtfeld mit  $E_{0,390\text{nm}} = 0.04$  a.u. und der Frequenz  $2\omega$ . Abbildung entnommen aus [61].

Steigung  $\kappa$  in  $\Phi_{\text{off}}(p_{0,\perp})$  entspricht näherungsweise der Ableitung  $\Phi'_{\text{off}} = \frac{d\Phi_{\text{off}}}{dp_{0,\perp}}$ . Dieser Phasengradient auf dem senkrechten Startimpuls ist es, der einen Beitrag zur Wignerzeit  $\Delta\tau_{\text{Wigner}}$  darstellt. Abb. 3.8 (e) und (f) zeigen den Zusammenhang zwischen  $\Phi'_{\text{off}}$  und dem Winkel  $\alpha$ . Der triviale Winkelunterschied von  $180^\circ$  zwischen ATI-Peaks und Seitenbändern wurde dabei herausgerechnet. Unabhängig von der Wahl der Einhüllenden  $B(p_{0,\perp})$  ergibt sich ein praktisch linearer Verlauf der Kurven für alle untersuchten Energiemaxima, darunter zwei ATI-Peaks und drei Seitenbänder. Deren jeweiliger Radialimpuls  $p_r$  ist für das betrachtete Beispiel in Abb. 3.8 (e) angegeben. Lediglich das Maximum bei einem Radialimpuls von  $0,77$  a.u. zeigt bei nicht konstanter Einhüllender eine leichte Abweichung von einem linearen Verlauf.

Die Definition eines Phasengradienten  $\Phi'_{\text{off}}$  bezüglich des Startimpulses legt bereits einen Zusammenhang zur Definition der Wignerzeit als Phasengradient bezüglich der Elektronenenergie in Gl. 3.4 nahe. Im Grenzfall eines verschwindenden  $\omega$ -Anteils am CoRTC-Feld sind End- und Startimpuls eindeutig über das negative Vektorpotential verknüpft und der Einfluss des Laserfeldes für zwei Trajektorien kann auf eine Verschiebung im Impulsraum um  $p_{\text{Streak}}$  reduziert werden. Entspre-

chend kann die Änderung der Wignerzeit  $\Delta\tau_{\text{Wigner}}$  durch  $\Phi'_{\text{off}}$  definiert werden (Gl. (11) in [61]):

$$\Delta\tau_{\text{Wigner}} = \frac{1}{p_{\text{elec}}} \Phi'_{\text{off}}(p_{p_{0,\perp}}) = \frac{1}{p_{\text{elec}}} \Phi'_{\text{off}}(p_{\text{elec}} - p_{\text{Streak}}) \quad (3.9)$$

Damit kann auch eine Zuordnung zwischen  $\Delta\tau_{\text{Wigner}}$  und  $\alpha$  gefunden werden. Abb. 3.9 zeigt den entsprechenden Zusammenhang für die beiden zuvor betrachteten Fälle. Dabei zeigt sich im Wesentlichen nur der Einfluss des Faktors  $\frac{1}{p_{\text{elec}}}$ , der auf die Substitution des Impulses durch die Energie zurückzuführen ist. Mit der Observable  $\alpha$  stellt die HASE-Technik einen einfachen und transparenten Zugang zu Änderungen der Wignerzeit, die sich als Phasengradienten auf dem Startimpuls manifestieren, dar.

Für tatsächliche Anwendungen des HASE-Modells auf experimentell gemessene Daten in [7] wurde die Coulomb-Wechselwirkung durch eine vollständige SCTS-Rechnung berücksichtigt. Im letzten Abschnitt von [61] wird ein Vergleich zwischen dem Fall ohne und mit Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung anhand eines Beispiels diskutiert. In Kapitel 10 werden die einzelnen Auswertungsschritte von den experimentellen Observablen zu den in [7] publizierten Änderungen der Wignerzeit dargestellt.

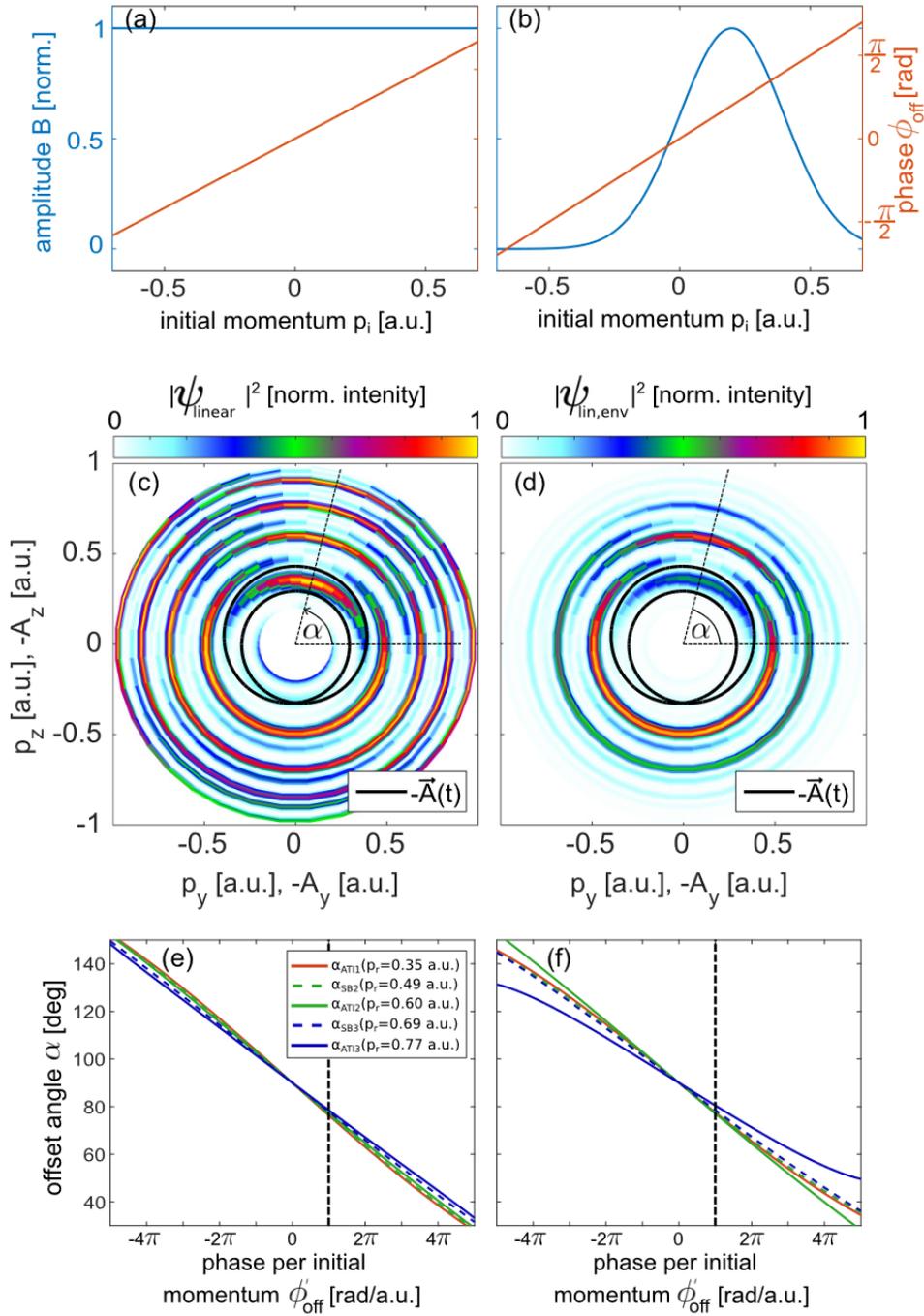


Abbildung 3.8: (a) [(b)] Startimpulsverteilung mit konstanter [nicht-konstanter] Einhüllender  $B(p_i)$  und einer linearen Phase. (c) [(d)] Die aus der in (a) [(b)] gezeigten Startimpulsverteilung resultierende Endimpulsverteilung  $|\psi_{\text{linear}}|^2$  [ $|\psi_{\text{lin,env}}|^2$ ]. (e) [(f)] Die aus der in (c) [(d)] beispielhaft gezeigten Elektronenimpulsverteilung bestimmten Drehwinkel  $\alpha$  in Abhängigkeit vom Phasengradienten  $\Phi'_{\text{off}}$  für drei ATI-Peaks und zwei Seitenbänder. Der triviale Winkelunterschied von  $180^\circ$  zwischen ATI-Peaks und Seitenbändern wurde herausgerechnet. Abbildung entnommen aus [61].

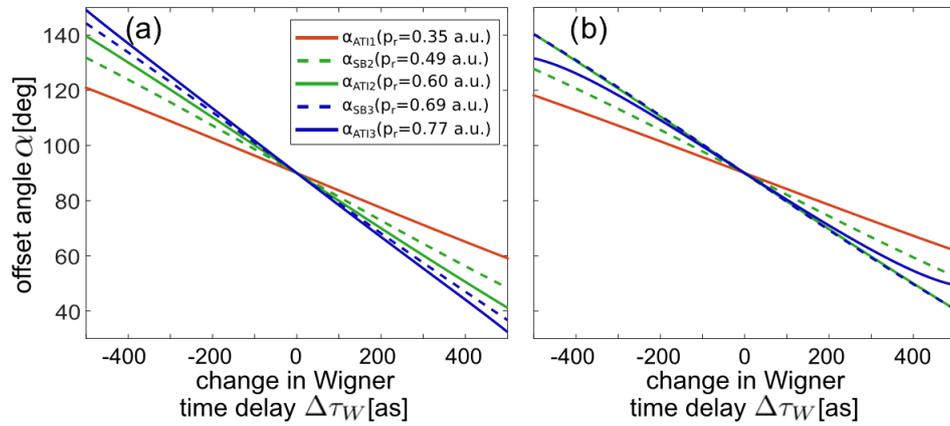


Abbildung 3.9: (a) Zusammenhang zwischen der Änderung der Wignerzeit und dem Drehwinkel  $\alpha$  unter Annahme des gewählten CoRTC-Feldes mit  $E_{0,390\text{nm}} = 0.04$  a.u. and  $E_{0,780\text{nm}} = 0.004$  a.u. für die beiden in Abb. 3.8 dargestellten Fälle. Der triviale Winkelunterschied von  $180^\circ$  zwischen ATI-Peaks und Seitenbändern wurde herausgerechnet. Abbildung entnommen aus [61].

## 3.4.2 Zusammenhang mit dem Ortsraum

In [61] wird eine physikalische Interpretation des Phasengradienten  $\Phi'_{\text{off}}$  vorgestellt. Diese basiert auf den grundlegenden Prinzipien der Fourier-Transformation. Ist die Impulsraum-Wellenfunktion  $\Psi(p_{0,\perp})$  die Fourier-Transformierte einer Ortsraum-Wellenfunktion  $\Psi(x_{0,\perp})$ , so berechnet sich die Fourier-Transformierte  $\bar{\Psi}(p_{0,\perp})$  einer um  $\Delta x$  verschobenen Ortsraum-Wellenfunktion  $\Psi(x_{0,\perp} + \Delta x)$  gemäß (siehe Gl. (6) in [61]):

$$\bar{\Psi}(p_{0,\perp}) = \exp(ip_{0,\perp} \cdot \Delta x) \Psi(p_{0,\perp}) \quad (3.10)$$

Bei Rücktransformation ergibt sich wieder die Verschiebung um  $\Delta x$ . Dieses Verhalten ist in Abb. 3.10 am Beispiel einer gaußförmigen Wellenfunktion  $\bar{\Psi}(p_{0,\perp})$  im Impulsraum mit einem linearen Phasengradienten  $\arg(\bar{\Psi}(p_{0,\perp}))$  dargestellt. Die Fourier-Transformation der in Abb. 3.10 (a) gezeigten Wellenfunktion ergibt die entsprechende Darstellung im Ortsraum  $\bar{\Psi}(x_{0,\perp}) = \Psi(x_{0,\perp} + \Delta x)$ , welche in Abb. 3.10 (b) abgebildet ist. Insbesondere für die spätere Bedeutung für Änderungen der Wignerzeit ist der Zusammenhang zwischen den Vorzeichen bedeutsam, ein positiver Gradient im Impulsraum entspricht einer negativen Verschiebung im Ortsraum.

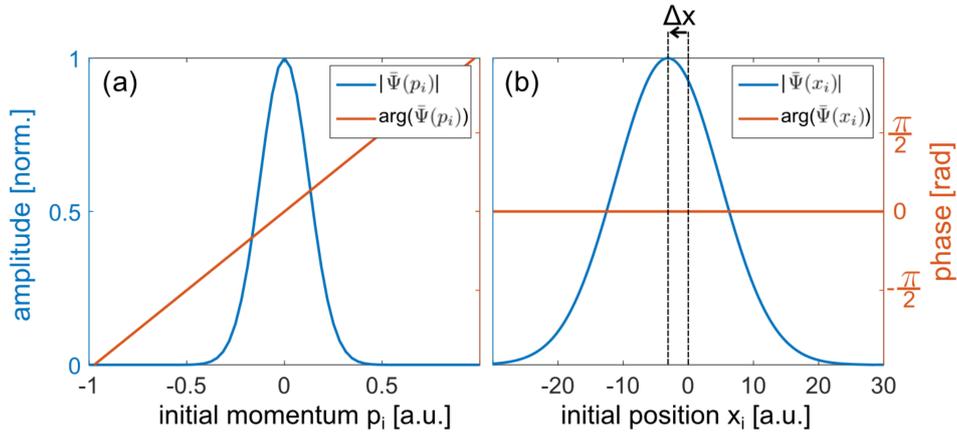


Abbildung 3.10: (a) Betrag und Phase einer Wellenfunktion  $\bar{\Psi}(p_{0,\perp})$  (hier  $\bar{\Psi}(p_i)$ ) im Startimpulsraum. (b) Betrag der Fourier-Transformierten  $\bar{\Psi}(x_{0,\perp})$  (hier  $\bar{\Psi}(x_i)$ ) der in (a) gezeigten Wellenfunktion. Die gestrichelten vertikalen Linien zeigen die zu der Steigung der Phase in (a) proportionale Verschiebung um  $\Delta x$ . Abbildung entnommen aus [61].

Dieser Zusammenhang zwischen Orts- und Impulsraum lässt eine intuitive Interpretation des in Gl. 3.9 gegebenen Ausdrucks für  $\Delta\tau_{\text{Wigner}}$  zu. Werden zwei Trajektorien miteinander verglichen, die sich nur im Startort  $\Delta x$  senkrecht zum Tunnelausgang unterscheiden, erreichen sie letztlich den gleichen Endimpuls  $p_{\text{elec}}$ . Dieser ist für ein zirkular polarisiertes Laserfeld unter Vernachlässigung der Coulomb-Wechselwirkung parallel zu  $x_{0,\perp}$  orientiert. Entsprechend kann ein Zeitunterschied  $\Delta t$  erwartet werden, bis die beiden Trajektorien einen beliebigen Ort erreichen. Davon ausgehend und mit  $\Phi'_{\text{off}} = p_{0,\perp} \cdot \Delta x$  kann Gl. 3.9 wieder erhalten werden [61]:

$$\Delta t = \frac{\Delta x}{p_{\text{elec}}} = \frac{1}{p_{\text{elec}}} \Phi'_{\text{off}}(p_{p_{0,\perp}}) = \frac{1}{p_{\text{elec}}} \Phi'_{\text{off}}(p_{\text{elec}} - p_{\text{Streak}}) \quad (3.11)$$

Unter den entsprechenden Voraussetzungen können Änderungen der Wignerzeit also direkt auf Verschiebungen des Startortes senkrecht zum Tunnelausgang zurückgeführt werden. Der Proportionalitätsfaktor ist dabei trivialerweise  $\frac{1}{p_{\text{elec}}}$ . Die relative Verschiebung zweier Trajektorien im Startort bleibt bis zu einem gedachten Detektor in beliebig großem Abstand erhalten und entspricht dabei dem in Abschnitt 3.1 eingeführten, der Wignerzeit zugrunde liegenden Bild. Diese Erkenntnis legt nahe, dass eine nicht-isotrope Elektronendichte im Ortsraum, wie dies bei molekularen Orbitalen der Fall ist, Änderungen der Wignerzeit zur Folge haben kann. Dieses Szenario kann mit dem 'Partial Fourier Transform'-Modell näher untersucht werden.

## 3.4.3 Partial Fourier Transform Modell

Der Tunnelvorgang kann als Filter der gebundenen Wellenfunktion entlang der senkrecht zum Tunnelausgang orientierten Impulsraumkomponente betrachtet werden [96, 97]. Das freigesetzte Wellenpaket  $\Psi(p_{0,\perp})$  zu Beginn der Propagation im Laserfeld ergibt sich dann aus [97]

$$\Psi(p_{0,\perp}) \propto \langle p_{0,\perp} | \Psi_i \rangle \exp\left(-\frac{\sqrt{I_p} p_{0,\perp}^2}{\sqrt{2E}(t_0)}\right) \quad (3.12)$$

wobei der exponentielle Term  $\exp\left(-\frac{\sqrt{I_p} p_{0,\perp}^2}{\sqrt{2E}(t_0)}\right)$  die Filterfunktion darstellt. Auf dieser Annahme baut das sogenannte Partial Fourier Transform-Modell (PFT-Modell) auf. Eine erste theoretische Anwendung des Modells durch *Murray, Liu* und *Ivanov* auf atomare Systeme stellte die zugrunde liegende Idee dar [98]. Als Motivation werden die Einschränkungen der auf der MO-ADK- [99] und MO-SFA- [100] Theorie basierenden Modelle zur Beschreibung der Starkfeldionisation molekularer Systeme angeführt. Es folgten weitere Publikationen zu Anwendungen des Modells auf die Beschreibung der Starkfeldionisation von  $\text{CO}_2$  [101],  $\text{H}_2$  und  $\text{O}_2$  [102].

Für ein entlang der  $z$ -Richtung orientiertes externes elektrisches Feld wird die ungestörte Ortswellenfunktion  $\Psi(x, y, z)$  des gebundenen Elektrons in der  $xy$ -Ebene partiell Fourier-transformiert. Es ergibt sich eine gemischte Darstellung der Wellenfunktion im Orts- und Impulsraum (Gl. (3) in [98]):

$$\Phi(p_x, p_y, z) = \frac{1}{2\pi} \int dx \int dy e^{-ixp_x - iy p_y} \Psi(x, y, z) \quad (3.13)$$

Die Richtung  $z$  des elektrischen Feldes und die zu ihr senkrechte  $xy$ -Ebene werden als unabhängig betrachtet [98]. Zur Interpretation der in dieser Arbeit diskutierten Ergebnisse wurde das PFT-Modell dazu genutzt, Phasengradienten im Startimpulsraum senkrecht zur Tunnelrichtung vorherzusagen, wobei  $z = z_e = r_0$  angenommen wurde. Sollen wie in [101, 102] absolute winkelabhängige Ionisationsraten berechnet werden, muss das Verhalten der Wellenfunktion entlang von  $z$  näher betrachtet werden. Die Wellenfunktion des ungestörten gebundenen Zustands wird hierzu an einer Stelle  $z_0$  im klassisch verbotenen Bereich an die durch die Wenzel-Kramers-Brillouin-Näherung gefundene Wellenfunktion unter der Barriere angeschlossen [98, 101].

Basierend auf dem im vorigen Abschnitt 3.4.2 diskutierten Zusammenhang zwischen Orts- und Impulsraum wurde das Partial Fourier Transform-Modell (PFT-Modell) in [7] und den Kapiteln 10 und 11 als ein mögliches Szenario für das Zustandekommen von Änderungen des Phasengradienten im Startimpulsraum und den daraus folgenden winkelabhängigen Änderungen der Wignerzeit bei der Ionisation von  $\text{H}_2$  und  $\text{Ar}_2$  untersucht. Der im Hinblick auf die Bestimmung von Phasengradienten im Startimpulsraum relevante Teil der sich aus der Linearkombination atomarer Orbitale (engl. 'linear combination of atomic orbitals', LCAO) ergebenden Wellenfunktion [103] in gemischter Darstellung für das Wasserstoffmolekül  $\text{H}_2$  lautet (Gl. (17) in [102]):

$$\Phi_{\text{H}_2}(p_x, p_y, z_e) \sim \left\{ \begin{array}{l} \exp(-ip_x R \sin\theta_M \cos\phi_M/2 - ip_y R \sin\theta_M \sin\phi_M/2 \cdot \exp(\kappa R \cos\theta_M)) \\ + \exp(ip_x R \sin\theta_M \cos\phi_M/2 + ip_y R \sin\theta_M \sin\phi_M/2 \cdot \exp(-\kappa R \cos\theta_M)) \end{array} \right\}$$

(3.14)

Hierbei bezeichnen  $\theta_M$  und  $\phi_M$  die Winkel des Moleküls zu der  $p_x p_y$ -Ebene,  $R$  bezeichnet den internuklearen Abstand. Für die Interpretation der Messungen an  $\text{Ar}_2$  wurde eine modifizierte Variante des PFT-Modells angewendet (siehe Abschnitt 11.6).



Teil III

EXPERIMENT

In den folgenden Kapiteln 5 und 6 soll zunächst auf die zur Durchführung der in dieser Arbeit diskutierten Messungen nötigen experimentellen Aufbauten eingegangen werden. Abb. 4.1 gibt einen Überblick über die einzelnen Komponenten und ihr Zusammenspiel. Sie soll dabei zugleich einen Ausblick auf die Unterstruktur der jeweiligen Kapitel geben, die Nummerierung der Abschnitte entspricht derjenigen im Inhaltsverzeichnis. Es wird eine Unterteilung in zwei Gruppen von Apparaturen vorgenommen: die in Kapitel 5 beschriebenen optischen Aufbauten zur Erzeugung (siehe Abschnitt 5.1) und Manipulation (siehe Abschnitt 5.2) der verwendeten Laserpulse, sowie das in Kapitel 6 beschriebene COLTRIMS-Reaktionsmikroskop mit seinen Bestandteilen. Die COLTRIMS-Technik erlaubt die koinzidente Messung der Impulse aller aus einem Ionisationsereignis stammender Ionen und Elektronen. Das hierzu verwendete Spektrometer und die Detektoren werden in Abschnitt 6.1, die Weiterverarbeitung der von den Detektoren generierten Signale bis zu ihrer Digitalisierung wird in Abschnitt 6.2 beschrieben. Nach einem kurzen Überblick über den Aufbau des Vakuumsystems in Abschnitt 6.3 und des Systems zur Erzeugung kalter Gas-Jets in Abschnitt 6.4 schließt sich in Abschnitt 6.5 eine ausführlichere Behandlung der Apparatur zur Erzeugung atomaren Wasserstoffs an. Kapitel 7 gibt einen tabellarischen Überblick über die für die einzelnen Datensätze gewählten experimentellen Einstellungen und Rahmenbedingungen. Daran schließt sich Kapitel 8 mit einer Beschreibung und Diskussion der einzelnen Auswertungsschritte und Kalibrationen an.

Für die in den Kapiteln 9 bis 11 vorgestellten Experimente kamen zwei unterschiedliche optische Versuchsaufbauten und COLTRIMS-Reaktionsmikroskope zum Einsatz. In den einzelnen Abschnitten werden diese jeweils durch die Ziffer 1 bzw. 2 unterschieden. Die detaillierteren Beschreibungen konzentrieren sich auf das Reaktionsmikroskop COL1 mit dem dazugehörigen Zwei-Farben-Aufbau ZFA1, da der Autor bei ihnen an umfangreichen Auf- und Umbauarbeiten mitgewirkt hat. Für die Charakteristika von COL2 sei auf [104], für ZFA2 auf [24] verwiesen. Das Augenmerk der Beschreibungen soll vor allem auf den instrumentellen Besonderheiten und den für die jeweiligen Experimente gewählten spezifischen Konfigurationen liegen. Für eingehendere Erörterungen grundlegender Funktionsweisen wird an den entsprechenden Stellen auf die Literatur verwiesen.

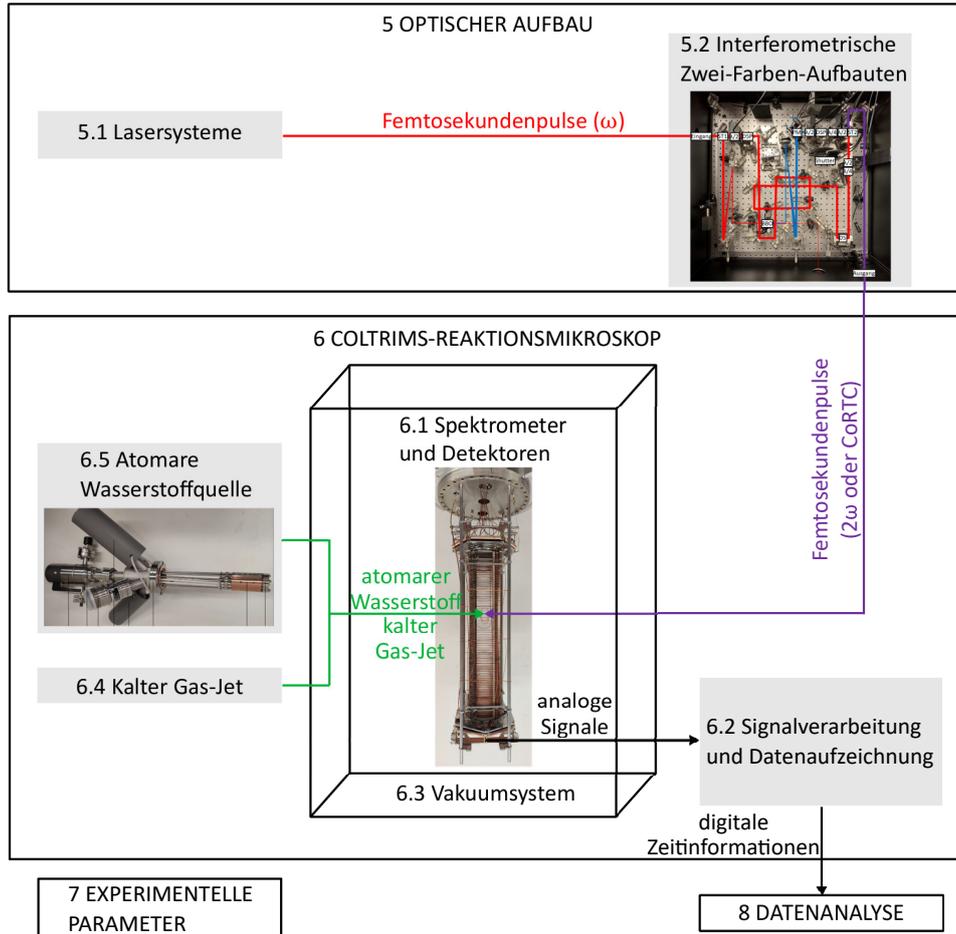


Abbildung 4.1: Übersicht der Komponenten, die zur Durchführung der in dieser Arbeit diskutierten Experimente eingesetzt wurden. Diese schematische Übersicht soll zugleich einen Ausblick auf die Unterstruktur der jeweiligen Kapitel geben, die Nummerierungen der Kapitel und Abschnitte entsprechen denjenigen im Inhaltsverzeichnis.

In Kapitel 2 wurden der Prozess der Starkfeldionisation und die damit verbundenen physikalischen Phänomene eingeführt. Die in den jeweiligen Beispielen und theoretischen Modellen untersuchten Feldstärken und Polarisationszustände wurden als gegeben angenommen. Tatsächlich stellt ihre experimentelle Realisierung jedoch eine anspruchsvolle technologische Herausforderung dar. Die nötigen Teilschritte umfassen:

- die Erzeugung von Femtosekundenpulsen der Frequenz  $\omega$  durch ein Titan-Saphir-Lasersystem.
- die ggf. erwünschte Erzeugung der zweiten Harmonischen  $2\omega$  der fundamentalen Lichtfrequenz  $\omega$  durch Frequenzverdopplung in einem nichtlinearen Medium.
- die reproduzierbare Kontrolle von Polarisation und Intensität.
- die räumliche und phasenstabile zeitliche Überlagerung der fundamentalen Lichtfrequenz  $\omega$  und ihrer zweiten Harmonischen  $2\omega$  (für CoRTC-Felder).
- die Einkopplung der Femtosekundenpulse in das Reaktionsmikroskop und die Fokussierung auf das zu ionisierende Gas

In den beiden Abschnitten 5.1 und 5.2 dieses Kapitels sollen die zur Umsetzung der nötigen Teilschritte genutzten Experimentalaufbauten vorgestellt werden.

### 5.1 LASERSYSTEME

Zur Erzeugung der Laserpulse kamen kommerziell verfügbare Femtosekunden-Lasersysteme vom Typ KMLabs „Wyvern-500“ und KMLabs „Dragon“ zum Einsatz. Beiden ist gemeinsam, dass es sich um mehrstufige Titan-Saphir(Ti:Sa)-Lasersysteme mit „Chirped pulse amplification“ [53] handelt. Die zeitlich aufgeweiteten Eingangspulse eines sogenannten Oszillators werden bei mehreren Durchläufen durch einen mittels eines Helium-Kryostaten gekühlten Ti:Sa-Kristall verstärkt, in welchem durch einen („Dragon“) bzw. zwei („Wyvern-500“) Pump-laser mit einer Wellenlänge von 532 nm eine Besetzungsinversion erzeugt wird. Die passive Modenkopplung wird durch den Kerr-Linsen-Effekt erreicht [105], für die Reduktion der Pulsfrequenz des Oszillators auf die letztlich abgegebene Wiederholrate kommt eine Pockelszelle zum Einsatz. Tabelle 5.1 enthält eine Übersicht der experimentell relevanten Eckdaten der beiden Lasersysteme.

Parameter	Wyvern-500	Dragon
Wiederholrate	100 kHz	8 kHz
zentrale Wellenlänge	790 nm	780 nm
Pulsdauer	~45 fs	~40 fs
theoretische mittlere Leistung	10 W	4 W
praktische mittlere Leistung	6 W	2,8 W

Tabelle 5.1: Übersicht der experimentell relevanten Parameter der beiden zum Einsatz kommenden Ti:Sa-Lasersysteme KMLabs „Wyvern-500“ und KMLabs „Dragon“. Die Informationen sind [24, 104, 106, 107] entnommen.

Die beiden Lasersysteme weisen damit sehr ähnliche Eigenschaften auf. Lediglich die Wiederholraten unterscheidet sich deutlich. Die Wiederholrate des „Wyvern-500“ von 100 kHz ermöglicht für viele Experimente eine höhere Datenrate, während mit dem Lasersystem „Dragon“ eine höhere Intensität im Fokus erreicht werden kann.

## 5.2 INTERFEROMETRISCHE ZWEI-FARBEN-AUFBAUTEN

Für die in dieser Arbeit diskutierten Messungen kamen zwei unterschiedliche interferometrische Zwei-Farben-Aufbauten (ZFA) zum Einsatz. Während einer der beiden Aufbauten unter Mitwirkung des Autors entstand und im Folgenden als ZFA1 bezeichnet werden soll, wurde der Aufbau ZFA2 von *Sebastian Eckart* im Rahmen seiner Promotion konzipiert und realisiert. Aufbau und Eigenschaften von ZFA2 sind in [24] dokumentiert und sollen hier nicht näher betrachtet werden. Die beiden Aufbauten befinden sich in den jeweiligen Laborräumen der Lasersysteme KMLabs „Wyvern-500“ (ZFA1) und KMLabs „Dragon“ (ZFA2).

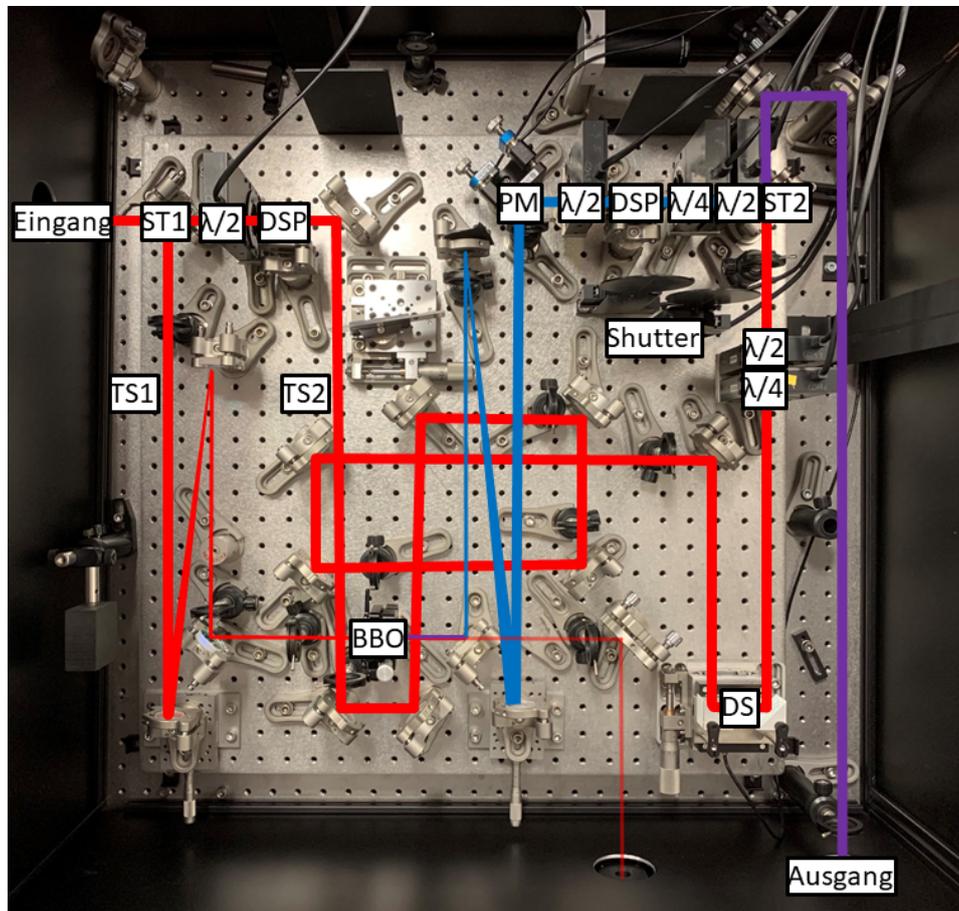


Abbildung 5.1: Der interferometrische Zwei-Farben-Aufbau ZFA1 in vertikaler Draufsicht. Der Strahlverlauf ist durch Linien (rot  $\cong \omega$ , blau  $\cong 2\omega$ , violett  $\cong$  TC-Feld) skizziert. Wichtige optische Elemente sind zur Erläuterung im Haupttext durch schwarz umrandete Textfelder gekennzeichnet. Fotografie von *Max Hofmann*.

Der in Abb. 5.1 gezeigte ZFA1 wurde auf einer separaten optischen Platte (engl. 'breadboard') montiert. Diese wiederum ist auf dem selben optischen Tisch befes-

tigt, auf welchem auch der KMLabs „Wyvern-500“ installiert ist. Als Referenz für eine reproduzierbare Einkoppelung in den ZFA dienen zwei Blenden vor dem Strahleingang. Die exakte Position des Laserstrahls auf den teilweise geschlossenen Blenden kann dabei mit Hilfe fest installierter Kameras beurteilt werden. Zunächst durchläuft das Licht der Kreisfrequenz  $\omega$  mit einer zentralen Wellenlänge von 790 nm in einem Winkel von  $45^\circ$  einen Strahlteiler (ST<sub>1</sub>), welcher den Eingangsstrahl in die beiden Teilstrahlen TS<sub>1</sub> und TS<sub>2</sub> aufteilt. An ST<sub>1</sub> werden 80% der einfallenden Leistung reflektiert (TS<sub>1</sub>), die verbleibenden 20% werden transmittiert (TS<sub>2</sub>).

Der reflektierte Anteil TS<sub>1</sub> ist für die Erzeugung der 2. Harmonischen mit einer Kreisfrequenz von  $2\omega$  bzw. einer zentralen Wellenlänge von 395 nm vorgesehen und durchläuft hierzu zunächst ein Teleskop, welches aus einem Konkav-Spiegel mit einer Brennweite  $f$  von 400 mm und einem darauf folgenden Konvex-Spiegel ( $f=-100$  mm) in einem Abstand von 30 cm aufgebaut ist. Der nun auf  $1/4$  seines ursprünglichen Durchmessers verkleinerte Strahl wird in einem doppelbrechenden  $\beta$ -Barium-Borat-Kristall (BBO) mit einer Dicke von 200  $\mu$ m frequenzverdoppelt. Hinter dem BBO liegt sowohl Licht der 2. Harmonischen bei 395 nm als auch der fundamentalen Wellenlänge von 790 nm vor. Letzteres wird zum größten Teil durch den folgenden dielektrischen Umlenkspiegel transmittiert und in einer Strahlfalle deponiert. Der reflektierte Anteil mit einer Wellenlänge von 395 nm durchläuft wiederum ein Teleskop, welches der Aufweitung des Strahldurchmessers um den Faktor 3 dient. Es besteht aus einem Konvex-Spiegel ( $f=-200$  mm) und einem Konkav-Spiegel ( $f=600$  mm) in einem Abstand von 40 cm zueinander. Der Strahl wird absichtlich bei  $3/4$  des ursprünglichen Durchmessers gehalten, um seine wellenlängenabhängigen Fokussiereigenschaften gemäß gaußscher Strahlenoptik gegenüber dem Strahl mit einer Wellenlänge von 790 nm teilweise zu kompensieren. Der Radius  $w_0$  der Strahltaile eines gaußschen Strahls in Abhängigkeit vom Radius  $w_1$  des kollimierten Strahls berechnet sich gemäß Gl. 2.29 aus [108]

$$w_0 \simeq \frac{\lambda f}{\pi w_1} \quad (5.1)$$

wobei  $\lambda$  die Wellenlänge des Lichts und  $f$  die Brennweite des fokussierenden Elements bezeichnet.

Der nun wieder aufgeweitete Strahl trifft auf einen  $45^\circ$ -Umlenkspiegel (PM), der in einem Spiegelhalter mit zwei linearen Piezo-Aktuatoren vom Typ PiezoMike von *Physik Instrumente* ausgestattet ist. Dies ermöglicht eine präzise und reproduzierbare Kontrolle des räumlichen Überlapps der Fokussvolumina der 2. Harmonischen mit der fundamentalen Wellenlänge im Reaktionsmikroskop. Es folgt ein  $\lambda/2$  Wellenplättchen in einer motorisierten Rotationshalterung PR50CC mit CONEX-CC von *Newport*. Es dient im Zusammenspiel mit einem sich anschließenden Dünnschichtpolarisator (DSP) zur Leistungseinstellung. Bei den im ZFA2 genutzten Neutraldichtefiltern wurden Änderungen der Divergenz beobachtet, die auf eine thermisch bedingte Verformung der Filter zurückgeführt wurden. Während dieses Problem durch die Abfolge aus  $\lambda/2$  Wellenplättchen und Dünnschichtpolarisator ausgeschlossen werden kann, ergeben sich andere Einschränkungen, insbesondere dann, wenn eine starke Abschwächung des transmittierten Lichts erreicht werden soll (siehe Anhang C). Es folgen ein  $\lambda/4$  und ein  $\lambda/2$  Wellenplättchen mit CONEX-CC Steuerung. Diese Kombination ermöglicht die Realisierung von Polarisationszuständen mit  $\epsilon=0\dots\pm 1$  bei beliebiger Orientierung der langen Halbachse der Polarisationsellipse. Darauf folgt die Reflexion des TS<sub>1</sub> an einem weiteren

Strahlteiler (ST2) und der Zwei-Farben-Aufbau wird verlassen.

TS2 durchläuft zunächst eine Abfolge aus  $\lambda/2$  Wellenplättchen und Dünnschichtpolarisator (DSP) zur Leistungseinstellung. Anschließend wird eine Reihe von  $45^\circ$ -Umlenkspiegeln durchlaufen, deren wesentlicher Sinn darin besteht, die Länge des Strahlengangs von TS2 bis auf wenige Millimeter an die Länge des Strahlengangs von TS1 anzugleichen. Die genaue Anpassung und damit der zeitliche Überlapp der Pulse von TS1 und TS2 erfolgt über einen Lineartisch (engl. 'delay stage', DS) mit Piezomotor, der wiederum auf einen manuell einstellbaren Lineartisch montiert ist. Ersterer hat einen Verfahrweg von  $500\ \mu\text{m}$ , während letzterer um  $25\ \text{mm}$  gefahren werden kann. Die auf den Verfahrtschienen montierten Prismen reflektieren den Strahl kollinear. Nach einem  $\lambda/4$  und ein  $\lambda/2$  Wellenplättchen mit CONEX-CC zur Polarisierungseinstellung passiert TS2 den Strahlteiler ST2 und verlässt ebenfalls den Zwei-Farben-Aufbau. Beide Teilstrahlen, TS1 und TS2, können jeweils direkt vor ST2 durch einen automatisierten *Standa* 'beam shutter' unterbrochen werden. Durch die Positionierung dieser 'beam shutter' unmittelbar vor ST2 sorgt eine abwechselndes Öffnen und Schließen der 'shutter' für minimale thermische Änderungen.

Die Steuerung der insgesamt sechs CONEX-CC Rotationshalterungen und des Lineartisches mit Piezomotor erfolgt reproduzierbar durch das Datenaufnahmeprogramm CoboldPC von *RoentDek Handels GmbH* über eine von *Sebastian Eckart* im Rahmen seiner Promotion erstellte Schnittstelle [24].

Nach dem Verlassen des ZFA1 können die generierten Laserpulse einem von drei Versuchsaufbauten in dem benachbarten Labor zugeführt werden. Am Ausgang von ZFA1 und direkt vor dem verwendeten Reaktionsmikroskop COL1 (siehe folgendes Kapitel 6) befindet sich wiederum jeweils eine Blende mit fest installierter Kamera, die eine präzise Beurteilung von Lage und Ausbreitungsrichtung des Laserlichtes erlaubt. Nach dem Durchlaufen des Eintrittsfensters der Vakuumkammer von COL1 trifft das Licht unter einem Winkel von  $0^\circ$  auf einen Fokussierspiegel der Brennweite  $f=60\ \text{mm}$ . Durch seine Montage in eine Manipulatoreinführung 'Steibulator' von *RoentDek Handels GmbH* kann sowohl eine Verschiebung entlang der Lichtausbreitungsrichtung, als auch eine Kippung in den dazu senkrechten Dimensionen im Betrieb des Reaktionsmikroskop realisiert werden. Dies wird genutzt, um eine optimale Positionierung des Laserfokus in der Reaktionszone des Spektrometers zu erreichen.

Aus dem in Gl. 5.1 gegebenen Strahlradius im Fokus und der Rayleighlänge  $z_0$  kann das Fokusvolumen  $2\pi z_0 w_0^2$  abgeschätzt werden.  $z_0$  ergibt sich durch Umstellen von Gl. 2.25 aus [108]:

$$z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (5.2)$$

Für einen Strahl der Wellenlänge  $790\ \text{nm}$  und mit einem kollimierten Durchmesser  $2w_1$  von  $8\ \text{mm}$  führt die Fokussierung durch einen Spiegel mit  $f=60\ \text{mm}$  zu einem Fokusvolumen von etwa  $5000\ \mu\text{m}^3$ . Der Strahldurchmesser  $2w_0$  im Fokus liegt bei etwa  $7,5\ \mu\text{m}$ , die Länge des Fokusvolumens, bzw. die Fokustiefe  $2z_0$  bei etwa  $110\ \mu\text{m}$ . Aus dem Fokusvolumen leiten sich unter anderem die Anforderungen an das Vakuumsystem des Reaktionsmikroskops ab (siehe Abschnitt 6.3), das Verhältnis von Strahldurchmesser im Fokus und Fokustiefe ist für die Reduktion fokaler Mittlung relevant (siehe Abschnitt 6.4). Eine detaillierte Betrachtung der Fokuseometrien aus ZFA2 findet sich in Anhang A.1 in [24].

Die COLTRIMS-Technik ('COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy') [109, 110] erlaubt die koinzidente Messung der dreidimensionalen Impulsvektoren aller aus einem Ionisationsereignis stammender geladener Fragmente. Hierzu werden die geladenen Teilchen in einem Spektrometer durch elektrische und magnetische Felder auf zeit- und ortsauflösende Detektoren beschleunigt (siehe Abschnitt 6.1). Die von den Detektoren generierten Signale werden elektronisch weiterverarbeitet und schließlich digitalisiert (siehe Abschnitt 6.2). Die Messtechnik setzt ein gutes Vakuum voraus, welches durch ein mehrstufiges System von Pumpen unterschiedlicher Art bereitgestellt wird (siehe Abschnitt 6.3). Der Teil der Bezeichnung 'Cold Target' bezieht sich dabei auf die übliche Verwendung eines durch Überschallexpansion ins Vakuum gekühlten Gas-Jets (siehe Abschnitt 6.4) mit einer schmalen thermischen Impulsverteilung. Alternativ oder zusätzlich kann eine als atomare Wasserstoffquelle bezeichneten Apparatur (siehe Abschnitt 6.5) genutzt werden.

Entsprechend zu den beiden verwendeten Lasersystemen und den dazugehörigen optischen Aufbauten ZFA1 und ZFA2 wurden für die beschriebenen Experimente zwei COLTRIMS-Reaktionsmikroskope eingesetzt, die als COL1 und COL2 bezeichnet werden sollen. Der Schwerpunkt dieses Abschnitts soll dabei auf dem Reaktionsmikroskop COL1 liegen, da dieses zahlreiche Umbauten durch den Autor erfahren hat. Für den Zustand vor diesen Umbauten sei auf die Dissertation von *Kevin Henrichs* verwiesen [107]. Die Beschreibung von COL2 soll sich nur auf wenige relevante Eckdaten beschränken. Eine detaillierte Beschreibung findet sich beispielsweise in Kapitel 3 der Dissertation von *Martin Richter* [104].

## 6.1 SPEKTROMETER UND DETEKTOREN

Das Spektrometer und die Detektoren können als das Herzstück eines COLTRIMS-Reaktionsmikroskops bezeichnet werden, da Ersteres die Reaktionszone direkt umgibt und durch Anlegen eines elektrischen Absaugfeldes die Messung der zur Impulsrekonstruktion nötigen Informationen durch die Detektoren ermöglicht. Das für die in den Kapiteln 9 und 11 diskutierten Experimente genutzte Spektrometer wurde durch den Autor und *Nils Anders* konzipiert und aufgebaut.

Um ein homogenes elektrisches Feld im Spektrometer zu realisieren, wird üblicherweise eine Vielzahl von als Spektrometerplatten bezeichneten Elektroden genutzt. Das jeweilige elektrische Potential einer Spektrometerplatte wird durch das Anlegen einer Spannungsdifferenz über einen Abschnitt des Spektrometers und den Spannungsabfall an ohmschen Widerständen definiert. Wie in Abb. 6.1 zu sehen ist, wurden zum Bau des Spektrometers in COL1 86 Platten aus der Bronzelegierung CuSn6 mit einem Innendurchmesser von 80 mm aufeinander gestapelt. Hierbei wurde ein Abstand von jeweils 5 mm zueinander durch auf die acht führenden Keramikstangen aufgefädelt isolierende Keramikröhrchen realisiert. Die einzelnen Elektroden wurden untereinander durch Widerstände von 100 k $\Omega$  verbunden. Auf der Höhe der Reaktionszone sind die Platten so zugeschnitten, dass sowohl der Gas- als auch der Laserstrahl ungestört in die Mitte des Spektrometers gelangen können. Das Spektrometer wird an beiden Enden durch Gitter abgeschlossen, wodurch ein durchgängig homogener Feld-

verlauf erreicht wird. Die jeweiligen Gitterhalter sind durch Kabel kontaktiert, welche an hochspannungsgeeignete elektrische Vakuumdurchführungen angeschlossen sind. An die Gitter schließen sich jeweils etwa 30 mm lange Abschnitte an, die der sogenannten Nachbeschleunigung dienen. Ein hohes elektrisches Feld in diesem Bereich dient zum Erreichen einer guten Nachweiseffizienz ionischer Fragmente durch die verwendeten Mikrokanalplatten [111]. Die Spektrometerplatten in den Abschnitten zur Nachbeschleunigung sind durch Widerstände von  $1\text{ M}\Omega$  verbunden, die jeweils letzten Spektrometerplatten vor den Detektoren sind ebenfalls an elektrische Durchführungen angeschlossen. Zur Realisierung beliebiger Spannungsconfigurationen im Spektrometer (siehe Abschnitt 7) kamen zum Teil parallel zur Durchführung geschaltete Widerstände zur Erde zum Einsatz. Die jeweiligen Beschleunigungstrecken der beiden Spektrometerarme messen  $s_{\text{Beschleunigung,oben}}=170\text{ mm}$  bzw.  $s_{\text{Beschleunigung,unten}}=306\text{ mm}$ .

An die jeweiligen Enden der Nachbeschleunigungstrecken schließen sich die zeit- und ortsauflösenden Detektoren an. Abb. 6.2 a zeigt die Rückseite, Abb. 6.2 b eine schräge Draufsicht auf die Vorderseite des unteren Detektors. Die Detektoren setzen sich dem für COLTRIMS-Reaktionsmikroskope üblichen Aufbau folgend aus einer Abfolge von zwei Mikrokanalplatten (engl. 'microchannel plate', MCP) und einer hexagonalen Delayline-Anode zusammen [112]. In COL1 kommen dabei Mikrokanalplatten mit einem Durchmesser von 80 mm zum Einsatz. Die beiden zu einem Detektor gehörenden Mikrokanalplatten sind so orientiert, dass die zur Oberfläche geneigten Kanäle in entgegengesetzte Richtungen zeigen. Die Vorderseite der vorderen Platte und die Rückseite der hinteren Platte sind jeweils mit elektrischen Durchführungen verbunden. Die in Abb. 6.2 b deutlich zu sehende Aluminiumplatte wird als MCP-Halter bezeichnet und kann ebenfalls von außerhalb des Vakuums elektrisch kontaktiert werden. Zur Hochfrequenzterminierung kommen RC-Glieder zum Einsatz, die Kondensatoren sind in 6.2 b ebenfalls gut zu erkennen.

Abb. 6.2 a zeigt den geschachtelten Aufbau der aus drei Drahtebenen bestehenden Hex-Delayline-Anode. Die innere Ebene wird als  $u$ -, die mittlere als  $v$ - und die äußere als  $w$ -Drahtebene bezeichnet (siehe Abschnitt 8.1). Die einzelnen Ebenen bestehen aus einem Drahtpaar, welches einen Potentialunterschied von 50 V aufweist, sodass die aus der Multikanalplatte austretende Elektronenwolke bevorzugt auf einen der beiden Drähte trifft [112]. Bei drei Drahtebenen ergeben sich somit insgesamt zwölf Signalkabel pro Detektor, deren Signale durch eine Mehrfachdurchführung aus der Vakuumkammer herausgeführt werden.

Das in COL2 verbaute Spektrometer ist in [104] beschrieben. Da der zum Nachweis von Elektronen genutzte Detektor einen MCP-Durchmesser von 120 mm aufweist, wurden Spektrometerplatten mit einem Durchmesser von 130 mm gewählt. Der Ionendetektor weist einen MCP-Durchmesser von 80 mm auf, beide Detektoren verfügen über Hex-Delayline-Anoden. Die jeweiligen Beschleunigungstrecken der beiden Spektrometerarme messen  $s_{\text{Beschleunigung,Elektronen}}=390\text{ mm}$  bzw.  $s_{\text{Beschleunigung,Ionen}}=64,9\text{ mm}$ .

Sowohl COL1 als auch COL2 verfügen über Helmholtzspulenpaare außerhalb der Vakuumkammer, die ein weitgehend homogenes Magnetfeld entlang der Spektrometerachse bereitstellen können (siehe auch Abschnitt 8.2). Dieses dient dazu, auch Elektronen mit einem zur Spektrometerachse senkrechten Impuls nachzuweisen, ohne ein für die Impulsauflösung nachteiliges sehr hohes elektrisches Feld im Spektrometer anzulegen.

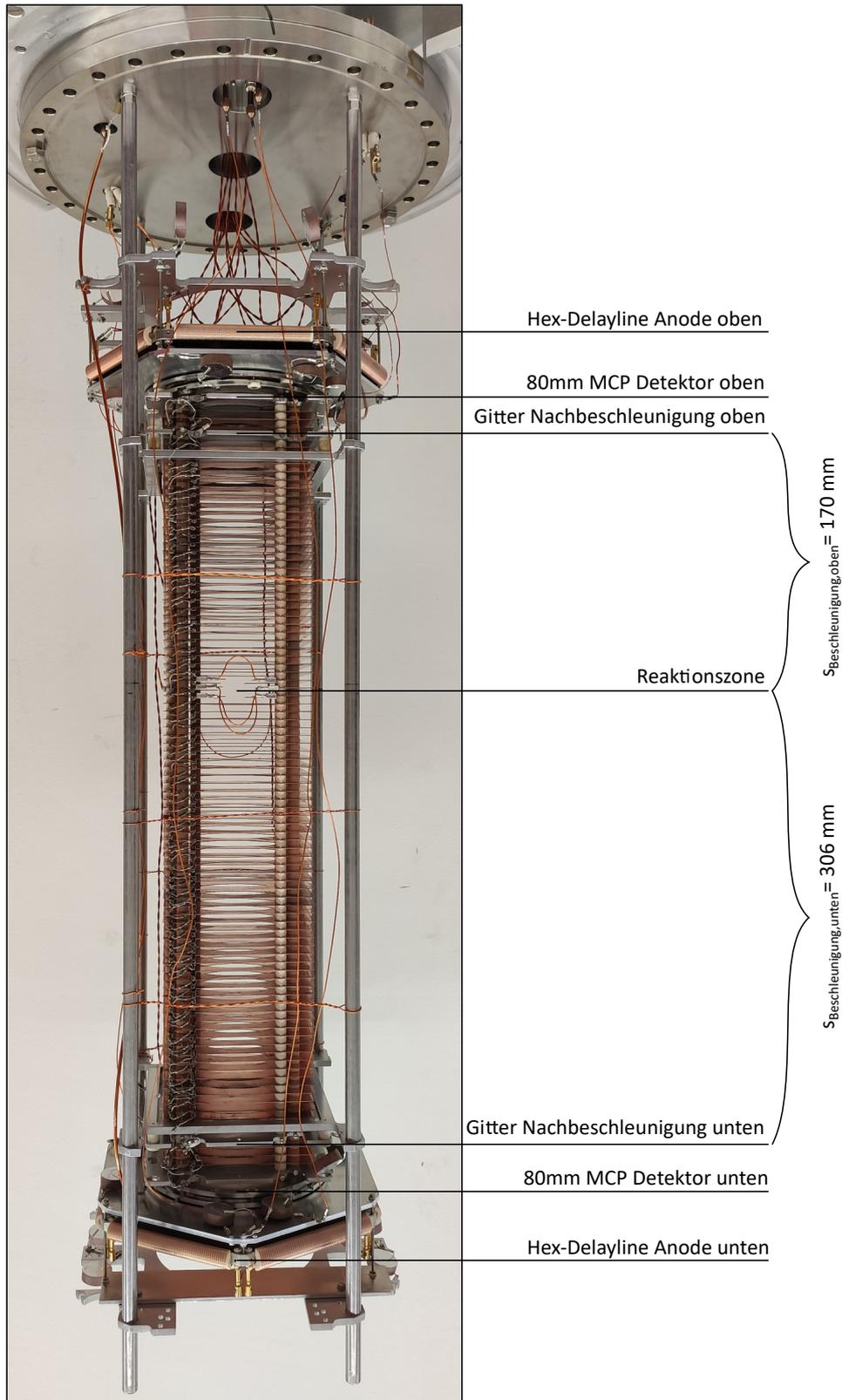


Abbildung 6.1: Photographie des im Reaktionsmikroskop COL1 verwendeten Spektrometers mit den beiden MCP-Delayline-Detektoren. Für die in den Kapiteln 9 und 11 diskutierten Messungen wurde der obere Detektor zur Detektion ionischer Fragmente, der untere zur Elektronendetektion genutzt.

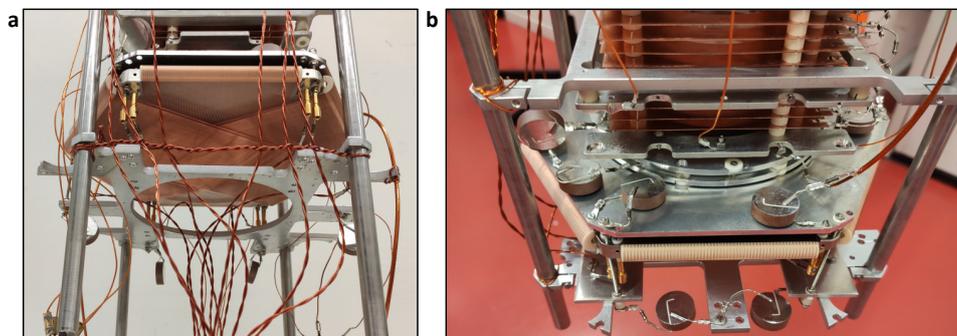


Abbildung 6.2: Photographien der beiden im Reaktionsmikroskop COL<sub>1</sub> verbauten Detektoren (**a** oben, **b** unten). Beide Detektoren bestehen jeweils aus einer Abfolge von zwei Mikrokanalplatten mit einem Durchmesser von 80 mm sowie einer hexagonalen Anordnung von drei Delayline-Anoden. Deutlich sichtbar sind die Kondensatoren der RC-Glieder sowie die verwendeten Twisted-Pair-Kabel zur Übertragung der Signale der Delayline-Anoden.

## 6.2 SIGNALVERARBEITUNG UND DATENAUFZEICHNUNG

Das COLTRIMS-Reaktionsmikroskop liefert sieben Analogsignale pro Detektor. Sie werden kapazitiv ausgekoppelt, wodurch eine Trennung der Hochfrequenzsignale von den an den Detektorkomponenten anliegenden Hochspannungen erreicht wird. Das von der Vorderseite der Mikrokanalplatte stammende Signal ('MCP-Front') wird in der späteren Auswertung zur Berechnung der Flugzeitinformation genutzt. Hierfür wird zusätzlich das Signal einer Photodiode genutzt, welche das durch einem  $45^\circ$ -Umlenkspiegel transmittierte Licht auffängt. Die Signale, welche zunächst Pulshöhen im Bereich von mV aufweisen, werden durch schnelle Verstärker hoher Bandbreite (FAMP6 von *RoentDek Handels GmbH*) zur Weiterverarbeitung durch sogenannte 'Constant fraction discriminators' (CFDs, CFD8c von *RoentDek Handels GmbH*) verstärkt. Diese ermöglichen eine weitgehend Pulshöhen-unabhängige Bestimmung der Ankunftszeit eines Signals. Die Zeitinformation der durch die CFD-Kanäle generierten NIM-Pulse wird durch Time-to-Digital-Converter HPTDSC8-PCI von *cronologic GmbH Co. KG* digitalisiert. Das 'MCP-Front'-Signal des Ionendetektors wurde genutzt, um ein neues Ereignis in dem Datenaufnahmeprogramm CoboldPC zu definieren. Innerhalb eines über eine Konfigurationsdatei bestimmaren Zeitfensters werden alle von dem Time-to-Digital-Converter aufgezeichneten Signale in ein sogenanntes 'list mode file' (lmf) geschrieben. Die in diesem 'list mode file' gespeicherten Daten bilden die Grundlage der weiteren Auswertung (siehe Kapitel 8).

## 6.3 VAKUUMSYSTEM

Die angestrebte Untergrundfreiheit in Koinzidenzexperimenten setzt einen möglichst geringen Restgasdruck in der Wechselwirkungszone voraus. Dies gilt insbesondere dann, wenn der Prozess der Starkfeldionisation untersucht werden soll, da diese durch eine stark nichtlineare Abhängigkeit der Ionisationswahrscheinlichkeit vom Ionisationspotential  $I_p$  charakterisiert ist (siehe auch Abschnitt 2.4). Besitzt das zu untersuchende Atom oder Molekül ein großes  $I_p$ , kommt es häufig zur Sättigung der Ionisationswahrscheinlichkeit für übliche Restgasbestandteile. Dies hat zur Konsequenz, dass das Fokusvolumen des Laserstrahls statistisch möglichst frei von Restgasteilchen sein sollte. Für einen Restgasdruck von  $1 \cdot 10^{-11}$  mbar ergibt sich bei Raumtemperatur aus dem idealen Gasgesetz eine Dichte von 240 Teilchen/mm<sup>3</sup>. Mit dem in Abschnitt 5.2 berechneten Fokusvolumen von etwa 5000  $\mu\text{m}^3$  liegt die Wahrscheinlichkeit, dass sich ein Restgasteilchen im Fokusvolumen befindet, bei etwa 0,1 %.

Um solche Bedingung zu gewährleisten, wird das Spektrometer mit der Wechselwirkungszone in einem gesonderten Rezipienten, der sogenannten Hauptkammer platziert. Diese ist durch differenzielles Pumpen von der 1. Expansionsstufe und 2. Expansionsstufe des Systems zur Erzeugung kalter Gas-Jets ebenso getrennt, wie von dem sogenannten Jetdump und im Falle von COL1 der Expansionsstufe für die Erzeugung atomaren Wasserstoffs (siehe auch folgende Abschnitte 6.4 und 6.5 für die Funktionsweisen der beiden Systeme). Wie alle COLTRIMS-Reaktionsmikroskope besitzt COL1 ein mehrstufiges Vakuumsystem. Dieses kann in das Vorvakuum und das (Ultra-)Hochvakuum der zuvor genannten Rezipienten unterteilt werden. Das Vorvakuum wird von einem HiCube genannten Produkt von *Pfeiffer Vacuum GmbH* bereitgestellt, welches seinerseits ein zweistufiges System aus Membran- und Turbomolekularpumpe darstellt. Das Vorvakuumssystem kann unterteilt werden, sodass im Messbetrieb das Vorvakuum aller Rezipienten außer der Hauptkammer durch eine Scrollpumpe mit vorgelagertem

Rootskompressor realisiert wird. An die (Ultra-)Hochvakuumrezipienten sind Turbomolekularpumpen unterschiedlicher Eigenschaften, wie Saugleistung und Kompressionsverhältnis, entsprechend den jeweiligen Anforderungen montiert. Die Hauptkammer verfügt zusätzlich über eine 'Non Evaporable Getter' (NEG) Pumpe, welche durch eine große Oberfläche insbesondere den Wasserstoffanteil des Restgases binden kann. Eine ebenfalls installierte Titan-Sublimationspumpe sowie eine von außen mit flüssigem Stickstoff befüllbare Kühlfalle wurden für die Durchführung der Experimente nicht genutzt.

Um ein Ausheizen der Apparatur bei hohen Temperaturen zu erlauben, sind alle Vakuumflansche an der Hauptkammer durch Flachdichtungen aus Kupfer gedichtet. Im Bereich des Systems zur Erzeugung kalter Gas-Jets und der atomaren Wasserstoffquelle kommen auch Flachdichtung aus Viton zum Einsatz. Durch zweiwöchiges Ausheizen der Hauptkammer bei 120°C werden Restgasdrücke von  $\sim 1 \cdot 10^{-11}$  mbar erreicht. Dies setzt eine Aktivierung der NEG-Pumpe bei etwa 450°C voraus. Eine tabellarische Aufstellung der Drücke in den einzelnen Rezipienten während der Durchführung der Experimente findet sich in der Übersicht experimenteller Parameter in Kapitel 7.

#### 6.4 KALTER GAS-JET

Der verwendete Versuchsaufbau COL1 besitzt ein zweistufiges System zur Erzeugung kalter Gas-Jets durch Überschall-expansion [113, 114]. Das gewünschte Gas expandiert durch eine Düse mit einem Durchmesser von 30  $\mu\text{m}$  in die 1. Expansionsstufe. Nach wenigen Millimetern lässt ein Skimmer mit einem Öffnungsdurchmesser von 300  $\mu\text{m}$  einen Teil des durch die Überschall-expansion in longitudinaler Richtung auf eine Temperatur von wenigen Kelvin gekühlten Gases in die 2. Expansionsstufe passieren. Nach 27 mm schließt sich eine Blende mit einem Durchmesser von 150  $\mu\text{m}$  an, wodurch der Gasstrahl weiter kollimiert und eine schmalere Transversalimpulsverteilung erzielt wird. Nach weiteren 60 mm wird die Wechselwirkungszone im Spektrometer erreicht. Die aufgeführten Maße sind [107] entnommen. Nach Passieren der Wechselwirkungszone und Verlassen des Bereichs der Spektrometerplatten tritt der Gasstrahl in ein Röhrchen mit einem sich konisch aufweitenden Innendurchmesser ein, erreicht schließlich den sogenannten Jetdump und wird einer Turbomolekularpumpe zugeführt.

COL1 ist mit elektronisch fahrbaren Nano-Positionierern des Herstellers *SmarAct* ausgestattet. Abb. 6.3 zeigt ihre Einbaulage im sogenannten Jethut zwischen dem ersten Skimmer und der darauf folgenden Blende. Sie erlauben es, den Gas-Jet sowohl von zwei Seiten in  $x$ -Richtung (Laserpropagationsrichtung), als auch durch einen Positionierer von unten zu beschneiden. Dies ermöglicht es, die fokale Mittlung, also Beiträge aus Bereichen des Fokus, wie eine geringere Intensität aufweisen, zur Gesamtrate der Ereignisse zu reduzieren.

Das System zur Erzeugung kalter Gas-Jets an Col1 kam bei der Messung von Datensatz DS3 zum Einsatz. Die beiden horizontal montierten Nano-Positionierer wurden dazu genutzt, die fokale Mittlung entlang der Propagationsrichtung des Lasers zu reduzieren. Damit wird die Mittlung über Beiträge zur Gesamtrate der Ereignisse aus Bereichen des Fokus, die eine geringere Intensität aufweisen, bezeichnet. Hierzu wurde zunächst die Ionisationsrate bei nicht beschnittenem Gas-Jet gemessen und durch das Verfahren eines der beiden Nano-Positionierer halbiert. Er wurde nun so weit geöffnet, bis die ursprüngliche Ionisationsrate gerade wieder vorlag, die hierzu nötige Anzahl an Schritten wurde notiert und das

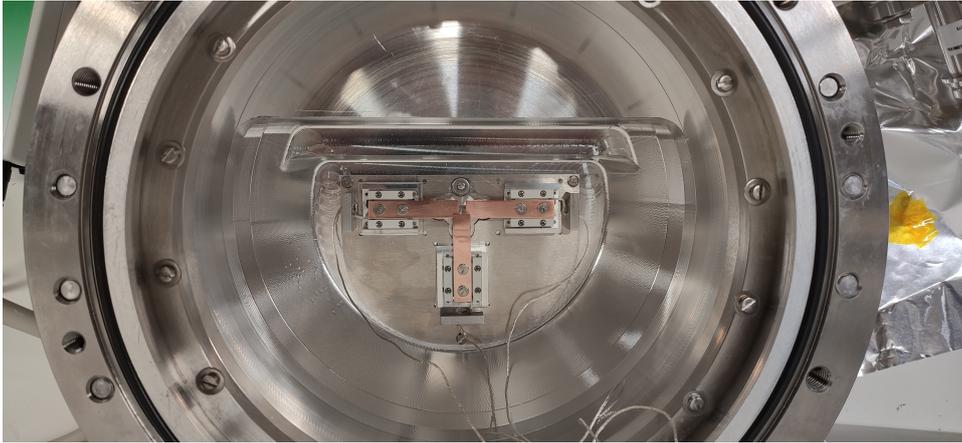


Abbildung 6.3: Photographie der drei *SmarAct* Piezo-Nanopositionierer zur Beschneidung des kalten Gas-Jets. Ansicht aus Sicht der Düse zur Überschall-expansion in Richtung Jetdump.

Vorgehen mit dem zweiten Nano-Positionierer wiederholt. Anschließend wurden beide Positionierer um die halbe Anzahl der zuvor nötigen Schritte verfahren. Der dritte vertikal installierte Nano-Positionierer wurde nicht genutzt und so weit wie möglich geöffnet.

## 6.5 ATOMARE WASSERSTOFFQUELLE

Für die in Kapitel 9 behandelten Messungen wurde eine atomare Wasserstoffquelle vom Modell h-flux des Herstellers *tetra GmbH* genutzt. Ihr Funktionsprinzip basiert darauf, den zunächst nur molekular auftretenden Wasserstoff thermisch zu dissoziieren. Die hierfür erforderlichen Temperaturen von etwa 2000 K werden durch das Heizen einer Wolframkapillare durch Elektronenbombardement erzielt. Hierbei werden von einem Glühdraht (Filament) emittierte Elektronen durch eine Hochspannung  $U_{\text{HV}}$  auf die Wolframkapillare beschleunigt. Abhängig von der Anzahl der pro Sekunde emittierten Elektronen, aus welcher sich der Emissionsstrom  $I_{\text{Emission}}$  ergibt, kann so eine Heizleistung  $P_{\text{Heiz}} = U_{\text{HV}} I_{\text{Emission}}$  generiert werden. Eine solche Quelle wurde erstmals von *Bischler und Bertel* realisiert [115]. Abbildung 6.4 zeigt eine Fotografie der in COL1 verbauten Quelle. Neben den Durchführungen für die Hochspannung zum Heizen der Kapillare und der Zuführung des molekularen Wasserstoffs finden sich die Anschlüsse des Kühlwasserkreislaufs sowie die Möglichkeit, auf die Temperatur an einem Thermopaar zuzugreifen. Die durch das Thermopaar gemessene Temperatur kann jedoch nur als relativer Referenzwert betrachtet werden, da der exakte Zusammenhang mit der Temperatur der Kapillare nicht bekannt ist. Somit gibt es keine Möglichkeit, die tatsächliche Temperatur der Kapillare zu ermitteln. Die Dosierung des Gasflusses erfolgt über ein Leckventil, welches das Einstellen von Leckraten  $P \cdot S_{\text{Pumpe}}$  über mehrere Größenordnungen erlaubt.

Die entscheidenden Kennzahlen einer atomaren Wasserstoffquelle sind der Dissoziationsgrad und der absolute Fluss an atomarem Wasserstoff. *Eibl et al.* geben eine Herleitung zur Abschätzung des Dissoziationsgrades in Abhängigkeit von der Temperatur der Kapillare und dem in ihr herrschenden Druck [116], die hier

kurz dargestellt werden soll. Im Gleichgewicht ergibt sich für die Partialdrücke von  $H_2$  und  $H$  bei gegebenem Druck  $P$  and Dissoziationsgrad  $\delta$  [116]:

$$p_{H_2} = P \frac{1 - \delta}{1 + \delta}, p_H = P \frac{2\delta}{1 + \delta} \quad (6.1)$$

Der Dissoziationsgrad  $\delta$  kann als Funktion der sogenannten Gleichgewichtskonstante  $K_P(T)$  ausgedrückt werden:

$$\delta(P, T) = \sqrt{\frac{K_P(T)}{4P + K_P(T)}} \quad (6.2)$$

Deren Temperaturabhängigkeit wird für den vorliegenden Fall durch die numerische Gleichung

$$\log_{10} K_P(T) = -23700/T + 6,35 \quad (6.3)$$

beschrieben. Weitere Umformungsschritte führen zu einer Gleichung für den temperatur- und druckabhängigen Dissoziationsgrad, die durch folgenden numerischen Ausdruck gelöst wird:

$$\delta(T, P_0, K_P(T)) = \frac{1}{2} \frac{-15\sqrt{2}K_P(T) + \sqrt{G}}{2\sqrt{6}P_0\sqrt{T} + 15K_P(T) + 2\sqrt{3}P_0\sqrt{T}} \quad (6.4)$$

mit

$$G = 1350K_P(T)^2 + 240\sqrt{6}P_0\sqrt{T}K + 360\sqrt{3}P_0\sqrt{T}K_P(T) + 900\sqrt{2}K_P(T)^2 \quad (6.5)$$

Hierbei bezeichnet  $P_0$  den Druck in der Kapillare bei 300 K in bar. Abbildung 6.5 a zeigt den Dissoziationsgrad  $\delta$  als Funktion der Temperatur und des Drucks in der Kapillaren. Es zeigt sich, dass der Dissoziationsgrad sowohl mit steigender Temperatur, als auch mit fallendem Druck größer wird und bis zu 100 % erreicht. Dieses Verhalten erklärt sich zum einen durch die bei höheren Temperaturen verfügbare thermische Energie zum Aufbruch der Molekülbindungen, zum anderen durch die erhöhte Rekombinationswahrscheinlichkeit bei steigendem Druck.

Der relevante Druck in der Kapillare ist zunächst unbekannt, kann jedoch bei bekannter Geometrie der Kapillare über den Druckanstieg in der die atomare Wasserstoffquelle umgebenden Vakuumkammer bestimmt werden. Die Leitfähigkeit  $C_{\text{Kapillare}}$  einer Kapillaren ist gegeben durch [117]:

$$C_{\text{Kapillare}} = 3,81 \sqrt{\frac{T}{M}} \frac{D^3}{L} \quad (6.6)$$

Wobei  $T$  wiederum die Temperatur in Kelvin,  $M$  die molare Masse,  $D$  den Innendurchmesser und  $L$  die Länge der Kapillare bezeichnet. Die Dimensionen der verbauten Kapillare werden mit  $D=0,5$  mm und  $L=5$  mm angegeben, wobei letzteres die Länge des als relevant erachteten Anteils der 50 mm langen Kapillare darstellt [117]. Für atomaren Wasserstoff ergibt dies eine Leitfähigkeit  $C_{\text{Kapillare}}$  von  $42 \text{ cm}^3/\text{s}$ . Wenige Sekunden nach dem Öffnen des Gaszuflusses stellt sich ein Gleichgewicht zwischen der aus der Kammer gepumpten und der durch die Kapillare nachströmenden Gasmenge ein. Für diesen Fall hängt der Druck in der Kapillare  $P_0$  mit dem Kammerdruck  $P_{\text{Kammer}}$  und der Pumpgeschwindigkeit  $S_{\text{Pumpe}}$  über

$$P_0 = \frac{S_{\text{Pumpe}}}{C_{\text{Kapillare}}} P_{\text{Kammer}} \quad (6.7)$$

zusammen. Ist es experimentell möglich, durch Koinzidenz Ereignisse aus der Ionisation von atomarem Wasserstoff im Nachhinein von der Ionisation molekularen Wasserstoffs zu trennen (siehe auch Anhang I), so ist weniger der Dissoziationsgrad, als vielmehr der absolute Fluss an Wasserstoffatomen von Interesse. Dieser kann unter Annahme eines idealen Gases ebenso aus  $P_{\text{Kammer}}$  und  $S_{\text{Pumpe}}$  ermittelt werden, wobei für  $T$  hier die Umgebungstemperatur einzusetzen ist:

$$N_{\text{H}}/t = 2 \frac{P_{\text{Kammer}} S_{\text{Pumpe}}}{k_{\text{B}} T} \delta \quad (6.8)$$

Abbildung 6.5 b zeigt den berechneten Fluss an atomarem Wasserstoff für die in COL1 verbaute Pumpe mit  $S_{\text{Pumpe}} = 300 \text{ l/s}$  in Abhängigkeit von der Temperatur der Kapillare und dem Druck  $P_{\text{Kammer}}$ . Es ist deutlich ersichtlich, dass obwohl  $\delta$  für höhere Drücke stark sinkt, der absolute Fluss an Wasserstoffatomen bei steigendem Druck weiterhin zunimmt. Eine möglichst hohe Temperatur ist in jedem Fall anzustreben, allerdings sind dem zum einen technische Grenzen gesetzt, zum anderen führt eine höhere Heizleistung zu mehr Materialabtrag an den geheizten Komponenten. Die tatsächliche Temperatur der Kapillare ist für die eingesetzte Wasserstoffquelle nicht bekannt. Aus dem in Abb. 6.5 b gezeigten Fluss an atomarem Wasserstoff kann die von dem Abstand zur Wechselwirkungszone abhängige Dichte im Laserfokus abgeschätzt werden.

Unter Annahme eines Öffnungswinkels des aus der atomaren Wasserstoffquelle ausströmenden Gases von  $30^\circ$  [117] kann unter Berücksichtigung des Abstandes zur Wechselwirkungszone von  $l=260 \text{ mm}$  (siehe folgender Unterabschnitt 6.5.1) die Anzahl von Wasserstoffatomen im Fokusbereich abgeschätzt werden. Für die im Experiment realisierten Bedingungen mit einem Kammerdruck von etwa  $5 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$  und einer angenommenen Temperatur der Kapillare von  $2200 \text{ K}$  kann Abb. 6.5 b ein Fluss von etwa  $1 \cdot 10^{16}$  Wasserstoffatomen pro Sekunde entnommen werden. Aus der Fläche des Kugelausschnitts  $2\pi \cdot l^2 \cdot (1 - \cos(15^\circ))$  kann ein Fluss von  $6,9 \cdot 10^{17}$  Wasserstoffatomen pro Sekunde und Quadratmeter bestimmt werden. Für die Anzahl der Wasserstoffatome pro Volumen muss dieser Wert durch die Geschwindigkeit  $v_{\text{H}}$  geteilt werden. Legt man für ihre Abschätzung die wahrscheinlichste Geschwindigkeit  $v = \sqrt{\frac{2k_{\text{B}}T}{m}}$  gemäß der Maxwell-Boltzmann Verteilung zugrunde, wäre ein Wert von etwa  $6000 \text{ m/s}$  zu erwarten. Dies hätte eine Dichte von etwa  $1 \cdot 10^{14}$  Teilchen pro Kubikmeter bzw. einen Druck von  $4,8 \cdot 10^{-9} \text{ mbar}$  zur Folge. Eine Abschätzung der tatsächlichen Geschwindigkeit  $v_{\text{H}}$  aus der Verschiebung des Auftreffortes auf dem Detektor gegenüber der isotropen Verteilung von Ionen aus der Ionisation des Restgases in [118] kam auf einen Wert von  $3600 \text{ m/s}$ . Diese Abschätzung basierte auf der im folgenden Unterabschnitt vorgestellten Testmessung. Eine durch den Autor der vorliegenden Arbeit auf Basis des Datensatzes der Hauptmessung durchgeführte Bestimmung der Geschwindigkeit kommt auf einen Wert von nur  $2100 \text{ m/s}$ , was knapp unter dem für Raumtemperatur erwarteten Wert liegt. Zusammen mit der geringen Rate an Ionisationsereignissen an atomarem Wasserstoff in der Hauptmessung legt dies den Schluss nahe, dass womöglich deutlich niedrigere Temperaturen an der Kapillare erreicht werden, als in der vorigen Abschätzung angenommen wurde.

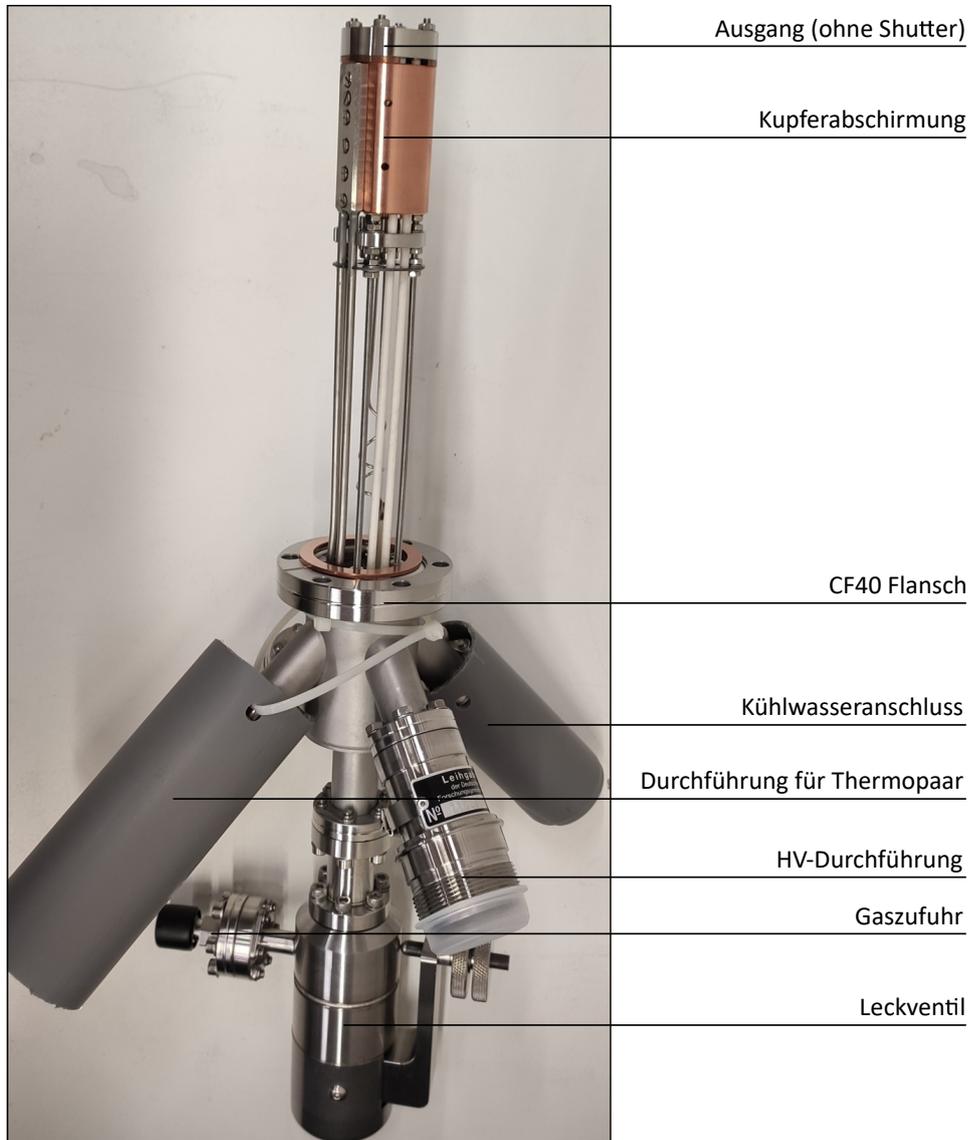


Abbildung 6.4: Photographie der atomaren Wasserstoffquelle h-flux des Herstellers *tetra GmbH*. Die grauen Kunststoffrohre dienen zum mechanischen Schutz der Kontakte zum Auslesen des Thermopaars sowie der Kühlwasseranschlüsse.

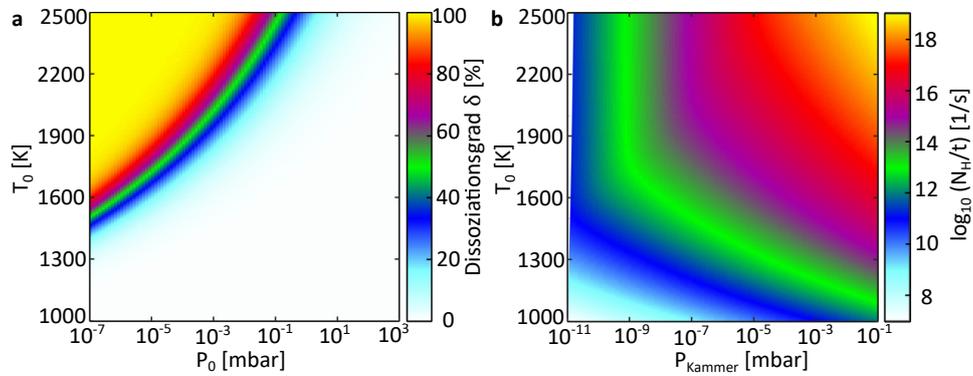


Abbildung 6.5: **a** Berechneter Dissoziationsgrad  $\delta$  als Funktion der Temperatur  $T_0$  und des Druckes  $P_0$  in der Wolframkapillare. Zur Berechnung wurde Gl. 6.4 genutzt. **b** Berechneter absoluter Fluss an atomarem Wasserstoff für die in COL1 verbaute Pumpe mit  $S_{\text{Pumpe}} = 300 \text{ l/s}$  in Abhängigkeit von der Temperatur der Kapillare und dem Druck  $P_{\text{Kammer}}$

## 6.5.1 Einbau der atomaren Wasserstoffquelle

Um eine gute Trennung der atomaren Wasserstoffquelle von dem Ultrahochvakuum der Hauptkammer zu gewährleisten, wurde für den Einbau eine Variante gewählt, welche zweifach differenzielles Pumpen zwischen den beiden Vakuumbereichen gestattet. Ein Einbau im Anschluss an den Jetdump stellte eine geeignete Lösung dar, dieses neue Element auf Höhe der Reaktionszone in das bestehende Reaktionsmikroskop COL1 zu integrieren und gleichzeitig das System zur Erzeugung kalter Gas-Jets zu erhalten. Abb. 6.6 a zeigt eine maßgerechte schematische Ansicht des neu konstruierten Teils des Vakuumsystems zur Aufnahme der atomaren Wasserstoffquelle. Die Dichte der Wasserstoffatome pro Fläche auf einem gedachten Kugelflächenausschnitt nimmt quadratisch mit dem Abstand ab. Daher wurde versucht, im Rahmen des verfügbaren Materials einen möglichst geringen Abstand zwischen der Austrittsöffnung der atomaren Wasserstoffquelle und der Wechselwirkungszone zu realisieren. Dieser beträgt in der gewählten Anordnung 260 mm. Im Anschluss an das Verbindungsstück zum Jetdump wurde ein CF200 Rohr mit zwei CF100 und zwei CF40 Rohrstücken montiert. Das Innere dieses Rohres wurde durch ein eingeklebtes Aluminiumblech in zwei separate Bereiche getrennt, die jeweils über eine Turbomolekularpumpe sowie eine Vakuummessröhre verfügen. In das Trennblech wurde eine Blende eingebaut, deren Aufgabe darin besteht, den Öffnungswinkel des Gasstrahls auf etwa  $1^\circ$  zu beschneiden, um somit einen Großteil des ungenutzten Gasanfalls bereits an dieser Stelle abzupumpen. Abb. 6.6 b zeigt eine Innenansicht des CF200 Rohrstückes aus Sicht der atomaren Wasserstoffquelle in Richtung Wechselwirkungszone.

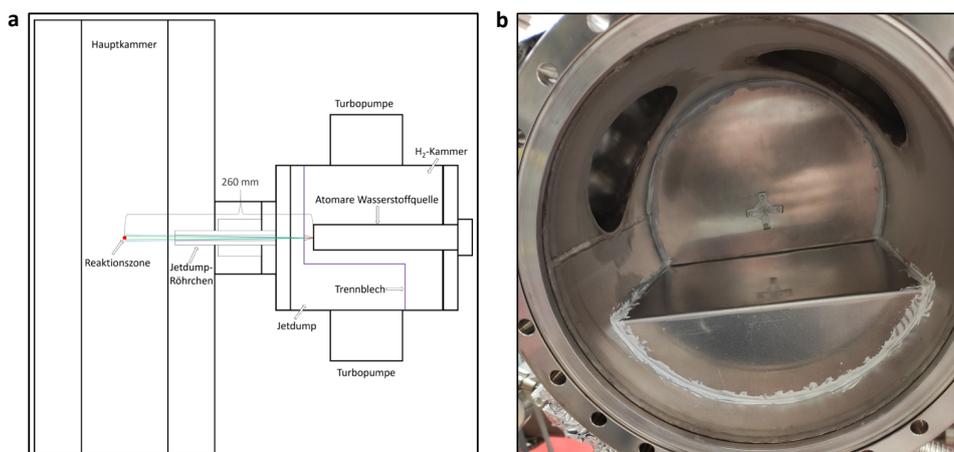


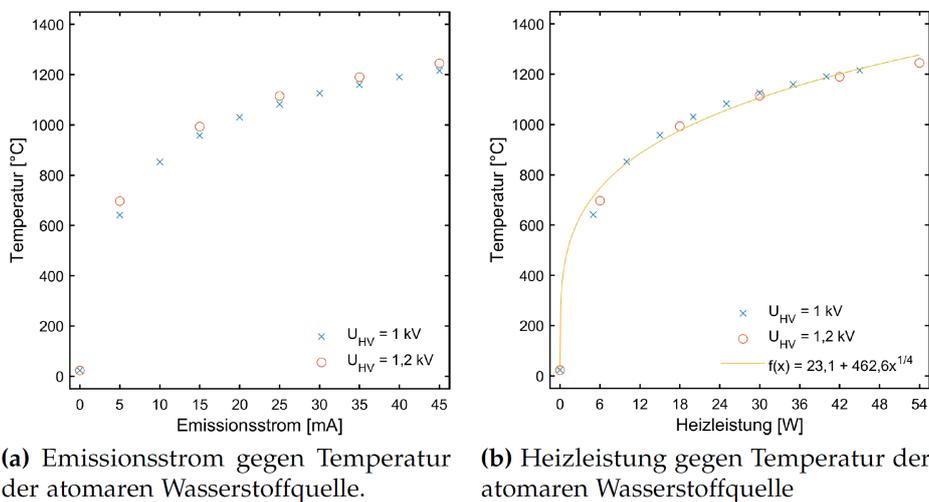
Abbildung 6.6: **a** Maßgerechte schematische Darstellung eines Schnitts durch den Aufbau des Jetdumpsystems mit eingebauter atomarer Wasserstoffquelle. Abbildung entnommen aus [118]. **b** Fotografie des mit *Torr Seal* eingeklebten Aluminiumbleches, welches das Volumen um die atomare Wasserstoffquelle von dem als Jetdump bezeichneten Bereich trennt. Die Blende dient dazu, den Anteil des von der Quelle emittierten Gases abzufangen, welcher die Wechselwirkungszone geometrisch bedingt nicht erreichen kann.

## 6.5.2 Tests der atomaren Wasserstoffquelle

Die in diesem Abschnitt behandelten Tests wurden in Zusammenarbeit mit *Nils Anders* im Rahmen seiner durch den Autor betreuten Masterarbeit durchgeführt [118]. Hier sollen die wesentlichen Ergebnisse präsentiert und diskutiert werden.

Eine detaillierte Darstellung findet sich in Kapitel 4 in [118], aus dem die in diesem Abschnitt gezeigten Bilder entnommen wurden und an welchem sich dieser Abschnitt orientiert.

Zunächst wurde die Abhängigkeit der am Thermopaar gemessenen Temperatur von der aufgewendeten Heizleistung  $P_{\text{Heiz}}$  untersucht. Da sich diese aus dem Produkt der Hochspannung  $U_{\text{HV}}$  und dem Emissionsstrom  $I_{\text{Emission}}$  ergibt, wurden unterschiedliche Kombinationen dieser beiden Größen untersucht. Für eine Hochspannung von  $U_{\text{HV}} = 1,0 \text{ kV}$  bzw.  $U_{\text{HV}} = 1,2 \text{ kV}$  wurde der Emissionsstrom von 0 mA bis 45 mA variiert. Abb. 6.7 (a) zeigt die resultierenden, durch das Thermopaar gemessenen Temperaturen. Da sich die Temperatur eines Körpers im Vakuum aus dem Gleichgewicht von  $P_{\text{Heiz}}$  und der abgestrahlten Leistung  $P_{\text{Strahlung}}$  ergibt, sollte sich in Abhängigkeit von  $P_{\text{Heiz}}$  das Verhalten eines Schwarzkörperstrahlers ergeben. Nach dem Stefan-Boltzmann-Gesetz ist die Leistung  $P_{\text{Strahlung}}$  proportional zur vierten Potenz der Temperatur  $T^4$ . Wird die Temperatur in Abhängigkeit von  $P_{\text{Heiz}}$  dargestellt, zeigt sich eben dieses erwartete Verhalten (siehe Abb. 6.7 (b)).



(a) Emissionsstrom gegen Temperatur der atomaren Wasserstoffquelle.

(b) Heizleistung gegen Temperatur der atomaren Wasserstoffquelle

Abbildung 6.7: Abbildung übernommen aus [118]. Original-Bildunterschrift: „Charakteristika des Aufheizens der Wasserstoffquelle bei  $U_{\text{HV}} = 1 \text{ kV}$  und  $U_{\text{HV}} = 1,2 \text{ kV}$ . (a) Mit steigendem Emissionsstrom steigt die Temperatur anfangs von Raumtemperatur ausgehend stark an, je weiter der Strom erhöht wird, desto stärker flacht der Anstieg ab. Die Temperatur ist bei gleichem Emissionsstrom, aber höherer angelegter Spannung höher. (b) Die Temperatur nimmt mit  $P^{1/4}$  zu. Dies entspricht dem Verlauf eines Schwarzkörperstrahlers.“

In weiteren Tests sollte untersucht werden, wie sich unterschiedliche Parameter auf die Zusammensetzung der von der atomaren Wasserstoffquelle emittierten Gase auswirken. Von größtem Interesse war hierbei insbesondere das Verhältnis von atomarem zu molekularem Wasserstoff. Hierzu wurde die atomare Wasserstoffquelle unter unterschiedlichen Bedingungen betrieben und Laserpulse der Wellenlänge 790 nm dienten zur Ionisation in der Wechselwirkungszone. Die Flugzeit und der Auftreffort auf den Detektor (siehe Abschnitt 8.1) wurden zur Identifikation der unterschiedlichen Ionensorten genutzt. Während die durch ihre Flugzeit eindeutig identifizierbaren  $\text{H}_2^+$ -Ionen trivialerweise auf die Ionisation von molekularem Wasserstoff zurückgeführt werden können, ist die Situation für gemessene  $\text{H}^+$ -Ionen komplizierter. Diese können zum einen aus der Ionisation

des gewünschten atomar vorliegendem Wasserstoffs stammen, zum anderen ist die Ionisation und nachfolgende Dissoziation von molekularem Wasserstoff in ein neutrales Wasserstoffatom und ein  $\text{H}^+$ -Ion eine mögliche Quelle (siehe Anhang I und Kapitel 9). Dieser Aufbruch ist jedoch mit einer Impulsfreisetzung verbunden, während für atomaren Wasserstoff nur eine thermische Impulsverteilung zu erwarten ist. Für das ionisierende Laserlicht wurde eine lineare Polarisation entlang der Achse des Spektrometers gewählt. Dies führt zu dem in Abb. 6.8 (a) gezeigten Aufbruch entlang der Polarisationsachse des Lichtes. Auf eine Berechnung der Impulse wurde an dieser Stelle verzichtet, stattdessen wird eine Komponente des Auftreffortes in Abhängigkeit von der Flugzeit (engl. 'time-of-flight', TOF) betrachtet. Für die in Abb. 6.8 (a) gezeigte Verteilung wurde zwar Wasserstoffgas eingeleitet, die Kapillare der Wasserstoffquelle jedoch nicht geheizt. Somit kann von der Abwesenheit atomaren Wasserstoffs ausgegangen werden. Zwei Aufbruchskanäle mit unterschiedlicher Impulsfreisetzung werden beobachtet. Abb. 6.8 (b) zeigt die unter gleichen Bedingungen registrierten  $\text{H}_2^+$ -Ionen. Die Asymmetrie entlang der  $y$ -Richtung ist auf die gerichtete Bewegung des Gasstrahls in eine Vorzugsrichtung zurückzuführen und wurde in [118] zur Bestimmung der Ausbreitungsgeschwindigkeit des Gasstrahls genutzt. Abb. 6.8 (c) ist analog zu (a), allerdings für  $P_{\text{Heiz}}=54\text{ W}$ . Bei einer Flugzeit von etwa 2000 ns zeigt sich ein neues Maximum, welches auf  $\text{H}^+$ -Ionen aus der Ionisation von atomarem Wasserstoff zurückgeführt werden kann. Dieses kann sehr gut von den aus den Aufbruchskanälen stammenden Maxima separiert werden. Die in Abb. 6.8 (d) gezeigte Verteilung der  $\text{H}_2^+$ -Ionen bei  $P_{\text{Heiz}}=54\text{ W}$  zeigt keine qualitativen Unterschiede zu (b). Wird die Kapillare der Wasserstoffquelle mit  $P_{\text{Heiz}}=54\text{ W}$  geheizt, jedoch kein Wasserstoffgas eingeleitet, ergeben sich jeweils die in Abb. 6.8 (e) und (f) Verteilungen von  $\text{H}^+$ - und  $\text{H}_2^+$ -Ionen. Anhand der in Abb. 6.8 gezeigten Verteilungen konnten nun Flugzeitintervalle zur eindeutigen Identifikation der jeweiligen Ionensorten bestimmt werden. Dies wurde analog für die aus der Ionisation von Wasser stammenden  $\text{H}_2\text{O}^+$ -Ionen durchgeführt. Hierdurch war es nun möglich, den Einfluss unterschiedlicher Heizleistungen auf die Zusammensetzung der gemessenen Ionen zu untersuchen.

Abb. 6.9 (a) zeigt die pro 10 s Aufnahmezeit registrierte Gesamtzahl an Ionen für sechs verschiedene Werte von  $P_{\text{Heiz}}$ . Die entsprechenden Zahlen an  $\text{H}^+$ -,  $\text{H}_2^+$ - und  $\text{H}_2\text{O}^+$ -Ionen sind in den Teilabbildungen (b)-(d) dargestellt. In allen bis auf den letzten Zeitabschnitt wird Wasserstoff in die Quelle eingeleitet, die jeweiligen Heizleistungen können der Bildunterschrift entnommen werden. Während die Gesamtzahl an registrierten Ionen mit steigender Heizleistung deutlich steigt, gilt dies nicht für die drei spezifisch betrachteten Ionensorten. Auffällig und wenig verwunderlich ist die starke Abnahme an registrierten  $\text{H}^+$ - und  $\text{H}_2^+$ -Ionen bei gestoppter Gaseinleitung.

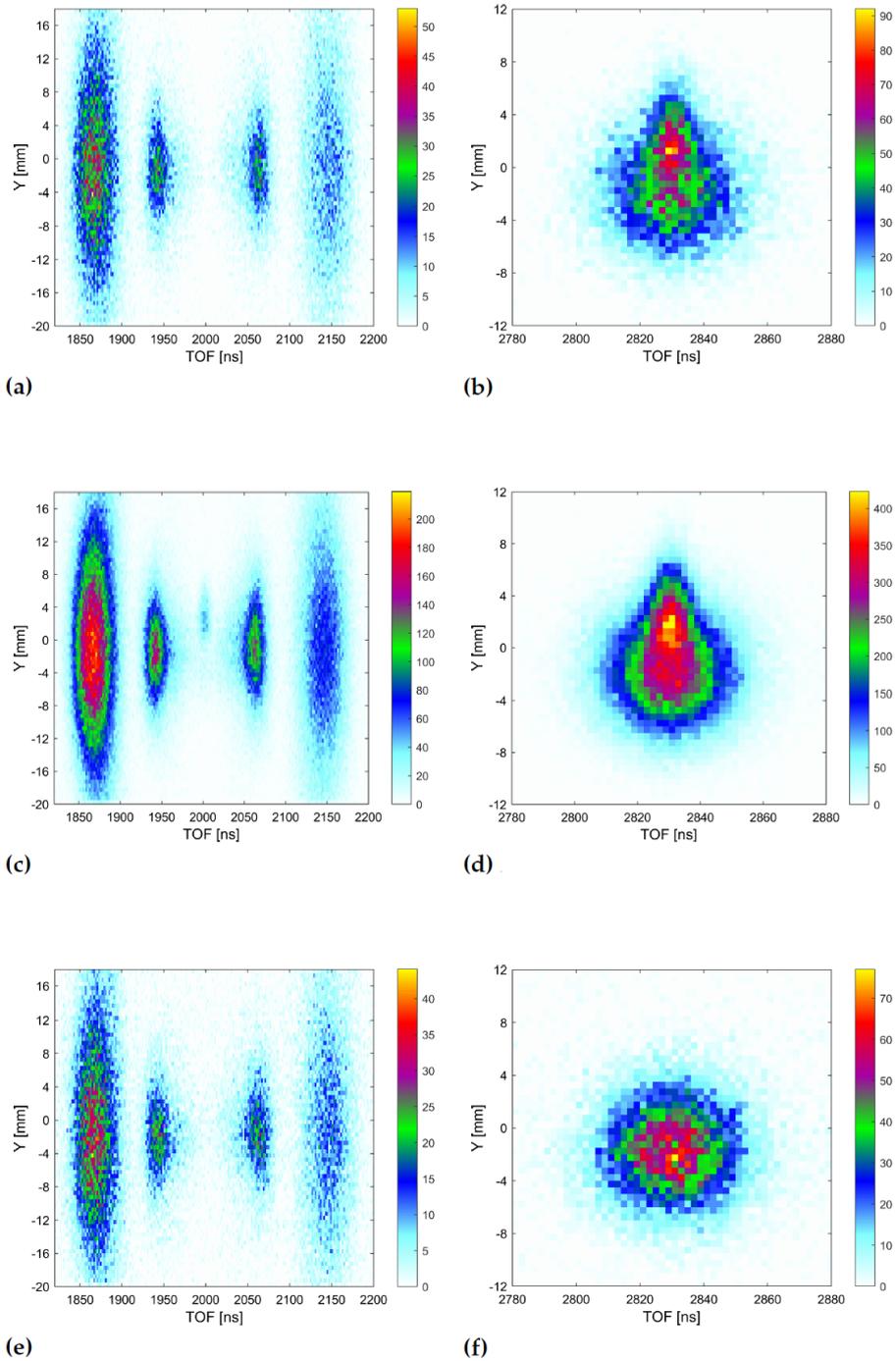
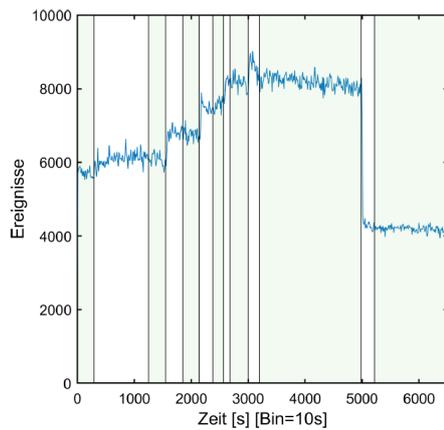
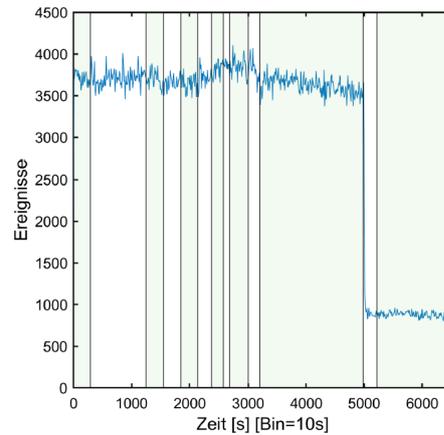


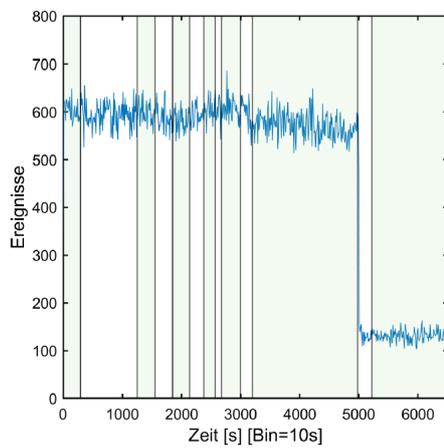
Abbildung 6.8: Abbildung modifiziert übernommen aus [118]. Angepasste Bildunterschrift in Anlehnung an die Original-Bildunterschrift: Flugzeit gegen Ortskomponente  $y$ . Dimension  $x$  ist um  $\pm 10$  mm beschnitten worden. Links sind jeweils die Flugzeiten von  $H^+$ -Ionen zu sehen. Deutlich fällt hier der Aufbruch von molekularem Wasserstoff auf. **(a)** und **(b)** Gasfluss durch nicht geheizte Quelle. **(c)** und **(d)** Gasfluss durch geheizte Quelle. **(e)** und **(f)** Ohne Gasfluss durch geheizte Quelle. Mit dem Aktivieren des Heizelements ist ein weiterer Peak in **(c)** zu erkennen: atomarer Wasserstoff. Rechts ist jeweils die Flugzeit von  $H_2^+$ -Ionen aufgetragen. In **(b)** und **(d)** ist deutlich der Jetoffset, also die Flugrichtung des Gasstrahls, zu erkennen. Sowohl dieser als auch der atomare Wasserstoffpeak verschwinden durch Unterbrechen des Gasflusses **(f)**. Die in **(f)** detektierten Ionen stammen aus der Ionisation des Restgases.



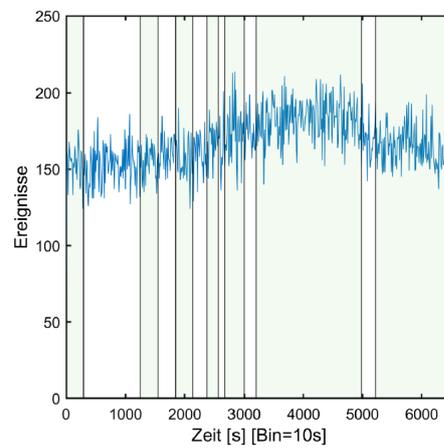
(a) Aufnahme rate aller gemessener Ionen



(b) Aufnahme rate aller  $H^+$ -Ionen, beschnitten in TOF



(c) Aufnahme rate aller  $H_2^+$ -Ionen, beschnitten in TOF



(d) Aufnahme rate aller  $H_2O^+$ -Ionen, beschnitten in TOF

Abbildung 6.9: Abbildung übernommen aus [118]. Original-Bildunterschrift: „Aufnahmeraten verschiedener Ionen bei unterschiedlichen Heizleistungen der atomaren Wasserstoffquelle. Ein Bin entspricht einer Aufnahmezeit von 10 s. Die grün markierten Bereiche entsprechen den Leistungen der atomaren Wasserstoffquelle von 0 W, 6 W, 18 W, 30 W, 42 W und 54 W mit Gasfluss, nachdem sich die Temperatur stabilisiert hat. Im letzten Abschnitt ist der Gasfluss abgedreht bei einer Heizleistung von 54 W. Während sich die Raten von  $H^+$ -,  $H_2^+$ - und  $H_2O^+$ -Ionen kaum verändern, sind dennoch starke Ratenanstiege mit jeder Leistungssteigerung in der Gesamtrate zu erkennen. Mit dem Unterbrechen des Gasflusses sinkt die Rate der Wasserstoffionen erheblich. Mit steigender Leistung steigt der Anteil an Wasser leicht an. Dies liegt an Wassermolekülen, welche in der atomaren Wasserstoffquelle durch die hohen Temperaturen verdampfen und somit in die Kammer entweichen konnten. In Abbildung 4.5 werden zudem die Aufnahmeraten von atomarem Wasserstoff gezeigt.“

Durch gezieltes Ausschneiden des in Abb. 6.8 (c) zu sehenden und auf die Ionisation von atomarem Wasserstoff zurückzuführenden Maximums in der Verteilung der  $H^+$ -Ionen, können auch diese Raten in Abhängigkeit von  $P_{\text{Heiz}}$  untersucht werden. Hierzu wurde zum einen nur das entsprechende Intervall in der Flugzeit, zum anderen wurden zusätzlich die beiden Komponenten des Auftreffortes eingeschränkt. In einer zu Abb. 6.9 völlig analogen Darstellung ergeben sich daraus die in Abb. 6.10 gezeigten Raten. Die Einschränkung in allen drei Dimensionen (Abb. 6.10 (b)) reduziert die gemessenen Raten gegenüber der nur in der Flugzeit eingeschränkten Auswahl um etwa 50 %. Die dadurch erreichte weitgehende Untergrundfreiheit bei der Einschränkung in drei Dimensionen wird dadurch ersichtlich, dass nur für  $P_{\text{Heiz}} = 0$  praktisch keine Ereignisse mehr registriert werden, wie dies auch zu erwarten wäre.

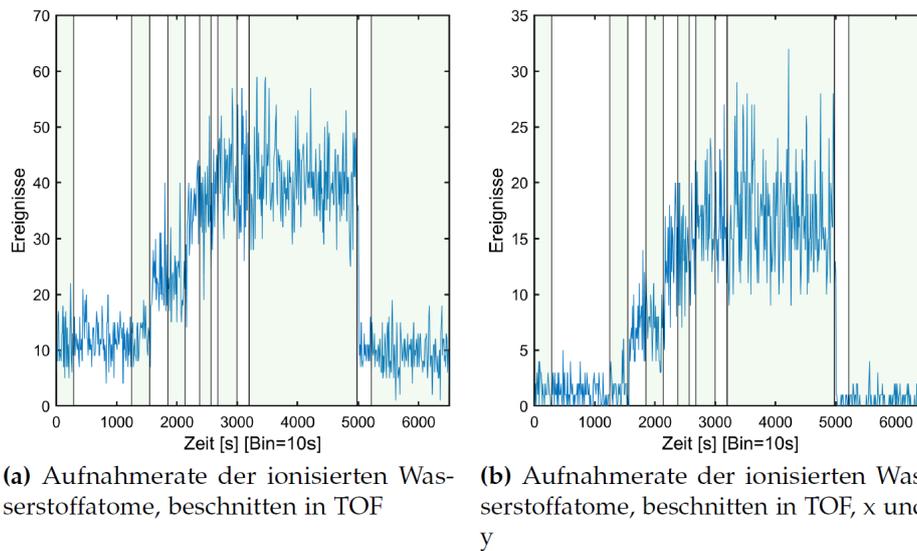
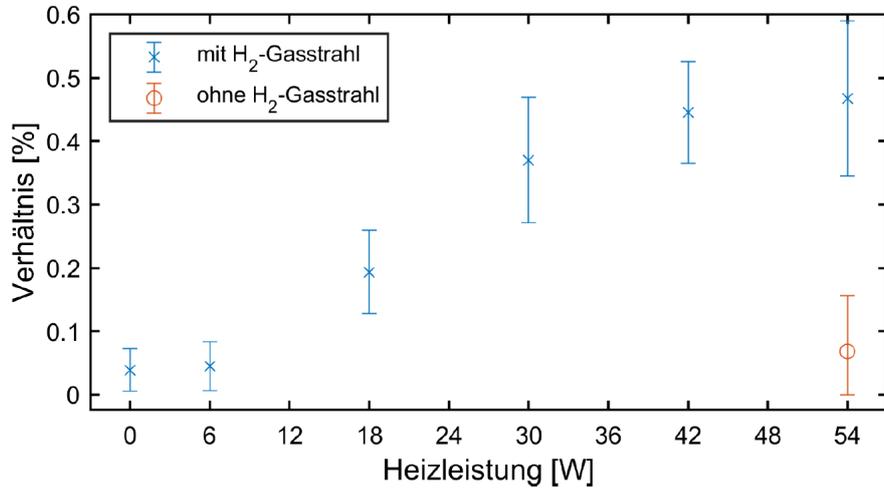
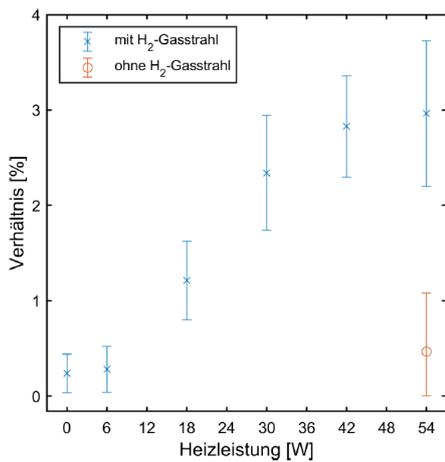


Abbildung 6.10: Abbildung übernommen aus [118]. Original-Bildunterschrift: „Die Rate von atomarem Wasserstoff steigt mit größerer Heizleistung. Dies zeigt, dass bei höheren Temperaturen ein höherer Dissoziationsgrad erreicht werden kann. Wie in (b) zu sehen ist, kann atomarer Wasserstoff fast untergrundfrei herausgeschnitten werden. Dies ist auch sehr wichtig, da die maximale mittlere Rate bei nur etwa 1,7 Hz lag.“

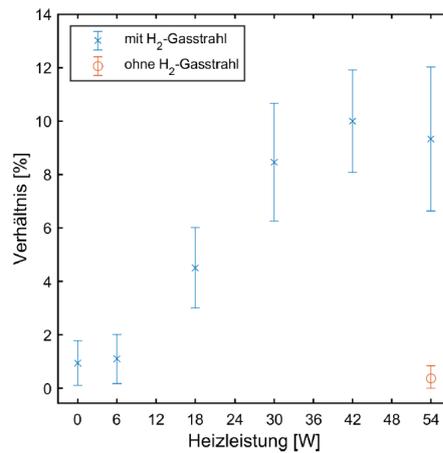
In Abb. 6.11 werden die in 6.10 (b) gezeigten Raten aus der Ionisation von atomarem Wasserstoff als prozentualer Anteil der in Abb. 6.9 (b)-(d) gezeigten Raten dargestellt. Es zeigt sich, dass eine Erhöhung der Heizleistung  $P_{\text{Heiz}}$  durchweg den Anteil atomaren Wasserstoffs an der Gaszusammensetzung erhöht. Daher wurde für das in Kapitel 9 beschriebene Experiment die entsprechende maximale Leistung gewählt.



(a) Verhältnis von atomaren  $H^+$ - zu allen gemessenen  $H^+$ -Ionen in Abhängigkeit der Heizleistung



(b) Verhältnis von atomaren  $H^+$ - zu  $H_2^+$ -Ionen in Abhängigkeit der Heizleistung



(c) Verhältnis von atomaren  $H^+$ - zu  $H_2O^+$ -Ionen in Abhängigkeit der Heizleistung

Abbildung 6.11: Abbildung übernommen aus [118]. Original-Bildunterschrift: „Mit steigender Heizleistung ist erneut der höhere Dissoziationsgrad zu erkennen. Das Verhältnis von atomaren Wasserstoff steigt mit der Temperatur.“

Die folgende Übersicht fasst die für die einzelnen in dieser Arbeit präsentierten Experimente verwendeten Einstellungen und Parameter in kompakter Weise zusammen. Für eine bessere Übersichtlichkeit werden die jeweiligen Datensätze dabei und im weiteren Verlauf mit Abkürzungen bezeichnet. Dies sind:

- DS<sub>1</sub>: Nicht-adiabatische Starkfeldionisation von atomarem Wasserstoff in einem elliptisch polarisierten Laserfeld (Ergebniskapitel 9)
- DS<sub>2A</sub>: Winkelaufgelöste HASE-Messung am Wasserstoffmolekül (Ergebniskapitel 10)
- DS<sub>2B</sub>: Winkelaufgelöste HASE-Messung am Wasserstoffmolekül mit Intensitätsscan (Ergebniskapitel 10, Abschnitt 10.6)
- DS<sub>3</sub>: Winkelaufgelöste HASE-Messung am Argondimer (Ergebniskapitel 11)

In der nachfolgenden Tabelle 7.1 werden die üblichen Formelzeichen  $U$  und  $I$  für elektrische Spannungen und Ströme genutzt, die Laserleistung wird mit  $P$  bezeichnet. Ist die Summe der in ein Element bzw. aus einem Element fließenden elektrischen Ströme ungleich Null, ist dies auf die Verwendung von parallelgeschalteten Widerständen zur Erde zurückzuführen. Diese sind für einige Spannungs-konfigurationen nötig, da die verwendeten Hochspannungsnetzteile nur Strom- und Spannungs-kombinationen gleicher Polarität gestatten. Da die verwendeten Ultrahochvakuum-Messzellen sowohl Elektronen als auch Ionen emittieren, sind sie in den jeweiligen Hauptkammern während jeder Messung ausgeschaltet, die Angaben beziehen sich auf den jeweils vor dem Experiment vorliegenden Wert.

Die atomare Wasserstoffquelle wurde für die Messung des Datensatzes DS<sub>1</sub> bei einer Temperatur am Thermopaar von 1262° C betrieben. Hierzu wurde eine Hochspannung  $U_{HV}$  von 1200 V angelegt, der Emissionsstrom lag bei 46 mA. Der Strom zum Heizen des Filaments war auf 7,2 A beschränkt.

Parameter	DS <sub>1</sub>	DS <sub>2</sub> A& B	DS <sub>3</sub>
Reaktionsmikroskop	COL <sub>1</sub>	COL <sub>2</sub>	COL <sub>1</sub>
Zwei-Farben-Aufbau	ZFA <sub>1</sub>	ZFA <sub>2</sub>	ZFA <sub>1</sub>
<i>P</i> Fundamentale $\omega$ [mW]	-	0,5 (A) 0,26-2,85 (B)	2,5
<i>P</i> 2. Harmonische $2\omega$ [mW]	450 und 620	56	144
Gasquelle	h-flux	kalter Gas-Jet	kalter Gas-Jet
Vordruck [bar absolut]	1,1	1,5	2,1
Vorvakuum Expansion [mbar]	$5,2 \cdot 10^{-2}$	$4,2 \cdot 10^{-1}$	$8,8 \cdot 10^{-2}$
Vorvakuum Kammer [mbar]	$6,5 \cdot 10^{-2}$	$2,0 \cdot 10^{-3}$	$6,5 \cdot 10^{-4}$
Expansion 1 [mbar]	$1,4 \cdot 10^{-6}$	unbekannt	$2,4 \cdot 10^{-3}$
Expansion 2 [mbar]	$2,5 \cdot 10^{-8}$	unbekannt	defekt
Hauptkammer [mbar]	$1,4 \cdot 10^{-11}$	$1,3 \cdot 10^{-10}$	$1,2 \cdot 10^{-11}$
Jetdump [mbar]	$9,7 \cdot 10^{-8}$	unbekannt	$1,8 \cdot 10^{-9}$
Expansion h-flux [mbar]	$5,2 \cdot 10^{-6}$	-	$3,8 \cdot 10^{-9}$
Helmholtzspulenpaar <i>I</i> [A]	743	-	743
Helmholtzspulenpaar <i>U</i> [V]	8,35	0,5	8,37
Elektronendetektor Front <i>U</i> [V]	-64	-31	-65
Elektronendetektor HV-In <i>U</i> [V]	+2234	+2636	+2134
Elektronendetektor Front <i>I</i> [μA]	-117	-199	-111
Elektronendetektor HV-In <i>I</i> [μA]	+118	+199	+111
Ionendetektor Front <i>U</i> [V]	-1685	-2397	-2903
Ionendetektor HV-In <i>U</i> [V]	+567	+48	-651
Ionendetektor Front <i>I</i> [μA]	-117	-36	-117
Ionendetektor HV-In <i>I</i> [μA]	+116	+37	-697
Spektrometer Elektronen <i>U</i> [V]	-5,2 (Z-Diode)	unbekannt	-5,2 (Z-Diode)
Spektrometer Ionen <i>U</i> [V]	-1292	-502	-1300
Nachbeschleunigung Elektronen <i>U</i> [V]	-55	-	-52
Nachbeschleunigung Ionen <i>U</i> [V]	-1501	-	-2581
Spektrometer Elektronen <i>I</i> [μA]	-	unbekannt	-
Spektrometer Ionen <i>I</i> [μA]	-95	unbekannt	-470
Nachbeschleunigung Elektronen <i>I</i> [μA]	-12	-	-12
Nachbeschleunigung Ionen <i>I</i> [μA]	-52	-	-325
Ungefähre Messzeit [Stunden]	183	16 (A), 24 (B)	144

Tabelle 7.1: Übersicht der experimentellen Parameter, die bei der Messung der Datensätze DS<sub>1</sub>, DS<sub>2</sub>A& B, sowie DS<sub>3</sub> vorlagen.

In diesem Kapitel soll in Abschnitt 8.1 zunächst auf die aufgezeichneten Rohdaten des COLTRIMS-Reaktionsmikroskops eingegangen werden. Diese bestehen im Wesentlichen aus der Flugzeit und dem zweidimensionalen Auftreffort jedes gemessenen Teilchens auf einen der beiden Detektoren und werden aus den Zeitinformationen der jeweiligen TDC-Kanäle rekonstruiert. Nach der möglichst genauen Kalibration der magnetischen (Abschnitt 8.2) und elektrischen Felder (Abschnitt 8.3) im Spektrometer behandelt Abschnitt 8.4 daraufhin die Berechnung der dreidimensionalen Impulsvektoren der registrierten Teilchen aus diesen Informationen. Es schließt sich die Diskussion von Korrekturen der rekonstruierten Impulse im Hinblick auf Inhomogenitäten in der Impulsabbildung des Spektrometers (Abschnitt 8.5) sowie auf die Phasenlage zwischen der  $2\omega$ - und der  $\omega$ -Komponente des CoRTC-Feldes (Abschnitt 8.6) an. Dabei soll der Datensatz DS2A exemplarisch betrachtet werden, um die einzelnen Auswertungsschritte darzustellen. Die jeweils entsprechenden Abbildungen und Zwischenergebnisse für die anderen Datensätze finden sich in den Kapiteln D bis G des Anhangs. Zuletzt werden in Abschnitt 8.7 die verwendeten Methoden zur Bestimmung der absoluten Intensität des Laserfeldes im Fokus anhand von DS3 vorgestellt (bzw. Kapitel H im Anhang).

## 8.1 ROHDATEN

Die vom Datenaufnahmeprogramm CoboldPC geschriebenen Dateien im Format 'list mode file' (lmf) enthalten im Wesentlichen die von dem TDC aufgezeichneten Signalankunftszeiten. Des Weiteren finden sich zusätzlich aufgezeichnete Informationen, wie etwa die Stellung der motorisierten optischen Halterungen, die in der späteren Analyse eine Auswahl einzelner Einstellungen des Lichtfeldes erlauben. Der erste Schritt zur Rekonstruktion der aus der untersuchten Reaktion stammenden Impulse besteht darin, aus den in der lmf-Datei gespeicherten TDC-Zeiten Informationen über die Auftrefforte der Elektronen und Ionen auf den Detektoren und die jeweiligen Flugzeiten  $t_{\text{Flugzeit}}$  zu bestimmen. Dies geschah in der vorliegenden Arbeit durch das Programm lmf2root<sup>3</sup>. Die Bestimmung der Flugzeit ist vergleichsweise simpel und erfolgt durch Subtraktion der Zeit  $t_{\text{MCP}}$  des MCP-Signals und der Zeit  $t_{\text{Diode}}$  des Signals, das der Laserpuls auf der Photodiode ausgelöst hat:

$$t_{\text{Flugzeit}} = t_{\text{MCP}} - t_{\text{Photodiode}} - t_{0,\text{konstant}} \quad (8.1)$$

Der Parameter  $t_{0,\text{konstant}}$  stellt für jeden Detektor eine Konstante dar und beinhaltet alle relativen Laufzeitunterschiede zwischen  $t_{\text{MCP}}$  und  $t_{\text{Diode}}$ . Diese sind beispielsweise auf unterschiedliche Kabellängen innerhalb und außerhalb der Vakuumkammer, sowie abweichende Verarbeitungszeiten in der Elektronik zurückzuführen. Die Bestimmung von  $t_{0,\text{konstant}}$  erfolgt für Elektronen üblicherweise unter Ausnutzung der Gyrationbewegung in dem extern angelegten Magnetfeld (siehe Abschnitt 8.2). Für Ionen bietet es sich an, aus der Skalierung der Flugzeit bei gegebenen Masse-zu-Ladungs-Verhältnissen ( $\frac{m}{q}$ ) eine Kombination

<sup>3</sup> Till Jahnke, jahnke@atom.uni-frankfurt.de IKF, Universität Frankfurt

aus Beschleunigungsfeld und  $t_{0,\text{konstant}}$  iterativ zu bestimmen (siehe Abschnitt 8.3).

Die Rekonstruktion der Auftrefforte basiert unter Idealbedingungen auf insgesamt sechs Zeitsignalen. Jede der drei Drahtebenen der hexagonalen Delayline-Anode liefert zwei Signale, die mit  $x_{1,2}$ ,  $y_{1,2}$  und  $z_{1,2}$  bezeichnet werden. Dies sind die jeweiligen Signallaufzeiten von der Stelle, an der die Elektronenwolke aus dem MCP die Drahtebene getroffen hat, bis zum Eingang des TDC-Kanals. Die Summe aus  $x_1$  und  $x_2$  (bzw.  $y_1$ ,  $y_2$  und  $z_1$ ,  $z_2$ ) stellt dabei eine Konstante dar und wird als Zeitsumme bezeichnet. Sie weist in der Regel eine geringfügige Ortsabhängigkeit auf, die in der Auswertung korrigiert werden kann. Die Zeitsumme ermöglicht es zu beurteilen, ob zwei gemessene Laufzeiten auf einer Drahtebene tatsächlich von dem selben Auftreffort stammen. Die einzelnen Drahtebenen definieren die Koordinaten  $u$ ,  $v$  und  $w$  und sind jeweils in einem Winkel von  $60^\circ$  zueinander orientiert. Entlang dieser Koordinaten ergibt sich der Auftreffort aus [112]:

$$\begin{aligned} u &= (x_1 - x_2) \cdot v_u \\ v &= (y_1 - y_2) \cdot v_v \\ w &= (z_1 - z_2) \cdot v_w + w_0 \end{aligned} \tag{8.2}$$

Die Faktoren  $v_u$ ,  $v_v$  und  $v_w$  bezeichnen die Signalausbreitungsgeschwindigkeiten auf der jeweiligen Drahtebene ('layer') und liegen in der Regel bei einigen hundert  $\mu\text{m}/\text{ns}$ . Wichtig ist hierbei, dass die Messung des Auftreffortes durch eine Drahtebene in der zu den Drähten senkrechten Komponente erfolgt. Da zwei Drahtebenen für die Bestimmung eines Auftreffortes in zwei Dimensionen ausreichend sind, liefern die drei Drahtebenen redundante Informationen.  $w_0$  bringt das Zentrum der dritten Drahtebene in Übereinstimmung mit dem aus den beiden anderen Drahtebenen bestimmten Auftreffort. Tabelle 8.1 zeigt für alle Datensätze die zur Rekonstruktion des Ortes auf dem Elektronen- ('Electron\_det') bzw. Ionendetektor ('Ion\_det') nötigen Parameter 'conversion factor for u-layer' ( $v_u$ ), 'conversion factor for v-layer' ( $v_v$ ) und 'conversion factor for w-layer' ( $v_w$ ) in  $\text{mm}/\text{ns}$ , sowie die Verschiebung entlang der Koordinate  $w$  ('position offset w-layer') in  $\text{ns}^2$ . Die Signalausbreitungsgeschwindigkeit  $v_u$  wird so gewählt, dass der rekonstruierte Detektordurchmesser dem Durchmesser der jeweiligen Mikrokanalplatten entspricht. Relative dazu werden daraufhin die Signalausbreitungsgeschwindigkeiten  $v_v$  und  $v_w$ , sowie die Verschiebung  $w_0$  in einem iterativen Prozess durch `lmf2root` bestimmt. Die absolute Skalierung des Detektordurchmessers überträgt sich direkt auf die Skalierung der dazugehörigen rekonstruierten Impulse (siehe Abschnitt 8.4), wobei diese nachträglich weiteren Korrekturen unterzogen werden können (siehe Abschnitt 8.5). Die Drahtebene  $v$  des Ionendetektors von COL1 lieferte während der Messungen keine verwertbaren Signale und wurde daher nicht in die Rekonstruktion der Auftrefforte einbezogen.

Sind Zeitsignale von allen drei Drahtebenen verfügbar, kann der Auftreffort  $(X,Y)$  auf den Detektor aus den drei möglichen paarweisen Kombinationen der

<sup>2</sup> In [112] wurde  $w_0$  im Auftreffort addiert, beide Varianten sind jedoch über den Proportionalitätsfaktor  $v_w$  äquivalent.

Parameter	DS1	DS2A& B	DS3
Electron_det conversion factor for u-layer [mm/ns]	0,5	0,31	0,5
Electron_det conversion factor for v-layer [mm/ns]	0,48275	0,2965	0,48275
Electron_det conversion factor for w-layer [mm/ns]	0,488	0,30475	0,48875
Electron_det position offset w-layer [ns]	-0,15	1,6	0,1
Ion_det conversion factor for u-layer [mm/ns]	0,33	0,35	0,33
Ion_det conversion factor for v-layer [mm/ns]	-	0,323	-
Ion_det conversion factor for w-layer [mm/ns]	0,33	0,31275	0,33
Ion_det position offset w-layer [ns]	0	1,975	0

Tabelle 8.1: Übersicht der Parameter zur Rekonstruktion des Auftreffortes aus den gemessenen Laufzeitunterschieden auf den drei Drahtebenen des Elektronen- ('Electron\_det') und Ionendetektors ('Ion\_det'). Die Drahtebene  $v$  des Ionendetektors von COL1 lieferte während der Messungen keine verwertbaren Signale.

Drahtebenen bestimmt werden. Wird die Konvention gewählt, dass die Koordinate  $u$  entlang  $X$  ausgerichtet ist, so ergeben sich [112]:

$$\begin{aligned}
 X_{uv} &= u \\
 Y_{uv} &= \frac{1}{\sqrt{3}} \cdot (u - 2v) \\
 X_{uw} &= u \\
 Y_{uw} &= -\frac{1}{\sqrt{3}} \cdot (u + 2w) \\
 X_{vw} &= (v - w) \\
 Y_{vw} &= -\frac{1}{\sqrt{3}} \cdot (v + w)
 \end{aligned} \tag{8.3}$$

Tatsächlich ermöglicht es `lmf2root`, unterschiedlichste Kombinationen von verfügbaren Signalen für die Rekonstruktion des Auftreffortes zu nutzen. Der hierzu genutzte Algorithmus wurde von *Achim Czasch* entwickelt. Für jedes nachgewiesene Teilchen erhält man so den Auftreffort  $(X, Y)$ . Füllt man diese für viele Ereignisse in ein zweidimensionales Histogramm so erhält man die in Abb. 8.1 gezeigten "Detektorbilder". Sie sind am Beispiel von DS2A für den Elektronendetektor (a) und den Ionendetektor (b) dargestellt.

Es gilt zu beachten, dass die hier gezeigten Koordinaten  $X$  und  $Y$  die zunächst nicht weiter verarbeitete Ortsinformation darstellen und noch nicht der Koordinatenkonvention für das Laborsystem  $x$ ,  $y$  und  $z$  entsprechen. Die Weiterverarbeitung durch Drehungen und Verschiebungen der Koordinaten als Vorbereitung zur Impulsrekonstruktion wird in Abschnitt 8.4 beschrieben. Abb. 8.3 a zeigt jeweils eine Komponente des Auftreffortes auf den Elektronendetektor gegen die unkorrigierte Flugzeit  $t_{\text{MCP}} - t_{\text{Photodiode}}$  für die in DS2A enthaltenen Ereignisse. Die unkorrigierte Flugzeit ist dargestellt, da die Konstante  $t_{0, \text{konstant}}$  in diesem Schritt der Auswertung noch nicht bestimmt ist. Der charakteristische und im folgenden Abschnitt 8.2 eingehend diskutierte Einfluss des externen Magnetfeldes auf die Trajektorien der Elektronen ist deutlich erkennbar. Abb. 8.3 b zeigt in analoger Darstellung die selben Informationen auf dem Ionendetektor. Es kann eine Reihe von Ionenspezies aufgrund ihres Masse-zu-Ladung-Verhältnisses identifiziert werden (siehe auch Abschnitt 8.3). Der Aufbruch der Wasserstoffmoleküle in ein

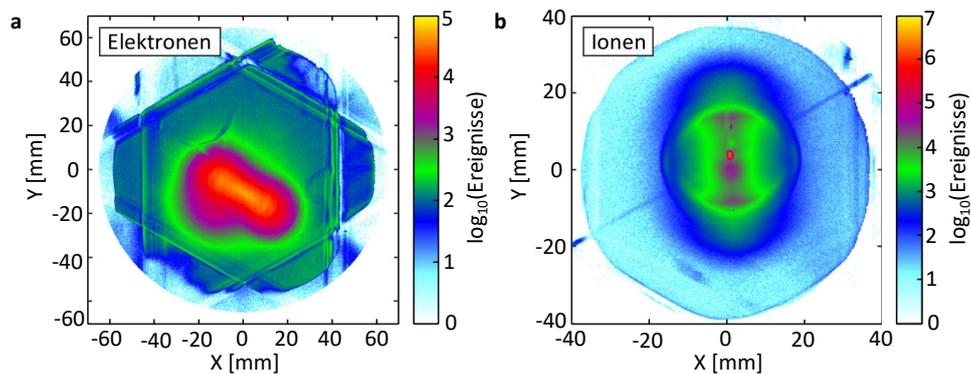


Abbildung 8.1: Unverarbeitete rekonstruierte Detektorbilder des Datensatzes DS2A (siehe Kapitel 10) im Reaktionsmikroskop COL2 für Elektronen (a) und Ionen (b).

geladenes  $\text{H}^+$ -Ion und ein neutrales Fragment ist bereits in dieser Darstellung deutlich ersichtlich. Die unkorrigierten Flugzeiten und Auftrefforte der gemessenen Elektronen und Ionen aus den Datensätzen DS1 und DS3 werden analog zu Abb. 8.1 und Abb. 8.3 in Anhang D gezeigt.

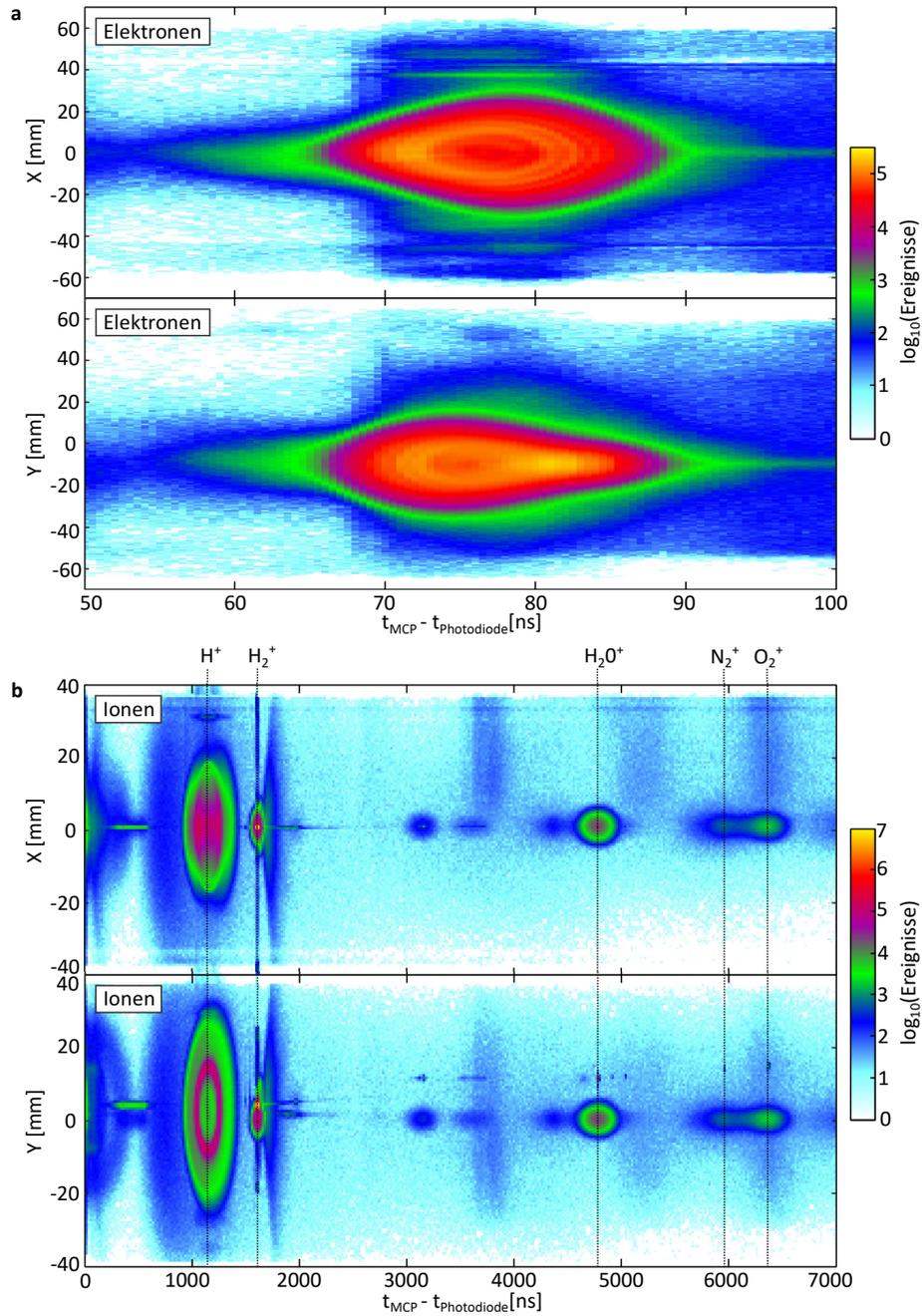


Abbildung 8.3: **a** Auftreffort der Elektronen auf dem Detektor gegen die unkorrigierte Flugzeit  $t_{\text{MCP}} - t_{\text{Photodiode}}$ . **b** Auftreffort der Ionen auf dem Detektor gegen die unkorrigierte Flugzeit  $t_{\text{MCP}} - t_{\text{Photodiode}}$ . Anhand ihres Masse-zu-Ladungsverhältnisses können neben  $\text{H}_2^+$  und  $\text{H}^+$  Ionen auch übliche Restgasbestandteile identifiziert werden.

8.2 BESTIMMUNG DER GYRATIONSPERIODE  $T_B$  DES MAGNETISCHEN FELDES

Das durch das Helmholtzspulenpaar entlang der Spektrometerachse  $z$  erzeugte Magnetfeld  $\vec{B}$  übt eine Lorentzkraft  $\vec{F}_{\text{Lorentz}}$  auf die im elektrischen Spektrometerfeld beschleunigten Teilchen aus, wobei  $q$  die Ladung und  $\vec{v}$  den Geschwindigkeitsvektor des Teilchens bezeichnet:

$$\vec{F}_{\text{Lorentz}} = q \left( \vec{v} \times \vec{B} \right) \quad (8.4)$$

Diese Kraft zwingt die Teilchen auf eine Kreisbahn in der zum Magnetfeld  $\vec{B}$  senkrechten  $XY$ -Ebene. Der Radius  $r_B$ , auch als Lamor-Radius bezeichnet, ist dabei neben der Stärke der magnetischen Flussdichte abhängig von der Masse, Ladung und der zu  $\vec{B}$  senkrechten Geschwindigkeitskomponente  $v_{\perp}$  des betrachteten Teilchens:

$$r_B = \frac{m \cdot v_{\perp}}{|q|B} \quad (8.5)$$

Das Magnetfeld wird in der Regel so gewählt, dass  $r_B$  für Elektronen mit ihrer Masse von 1 a.u. kleiner als der Innendurchmesser der Spektrometerplatten bleibt, selbst wenn die gesamte aus der Reaktion stammende Startgeschwindigkeit entlang der Komponente  $v_{\perp}$  orientiert ist. Bei diesen Einstellungen nimmt  $r_B$  für Ionen sehr große Werte an, sodass die durch das Magnetfeld verursachte Kreisbewegung insbesondere für schwere Ionen vernachlässigt werden kann. Die Zeit  $T_B$ , in der ein Teilchen eine vollständige Kreisbahn in der Ebene senkrecht zu  $\vec{B}$  durchläuft, ist nur von der magnetischen Flussdichte  $B$ , sowie der Masse  $m$  und Ladung  $q$  des Teilchens abhängig:

$$T_B = \frac{2\pi \cdot m}{q \cdot B} \quad (8.6)$$

Nach dem Durchlaufen einer vollen Periode  $T_B$  erreichen alle Trajektorien wieder ihren Ursprungsort in der  $XY$ -Ebene. Diese Struktur von im Ortsraum periodisch zusammenlaufenden Trajektorien wird als Knoten bezeichnet. Die Impulsauflösung in der  $XY$ -Ebene wird bei Annäherung an einen Knoten immer schlechter, bis sie schließlich im Knoten selbst vollständig verloren geht. Da sowohl  $r_B$ , als auch  $T_B$  für größere Werte von  $B$  kleiner werden, ergibt sich die Herausforderung für die Wahl eines geeigneten Magnetfeldes im Experiment aus der Abwägung unterschiedlicher Aspekte. Zum einen ist eine gute Ausleuchtung des Detektors für den maximal zu messenden Impuls wünschenswert. Gleichzeitig sollte die aus der  $p_z$ -Komponente des zu messenden Impulses resultierende Flugzeitverteilung möglichst mittig zwischen zwei aufeinanderfolgenden Knoten liegen (siehe auch Abb. 8.3 a), um eine gute Impulsauflösung in der  $XY$ -Ebene zu gewährleisten.

Die zeitlich periodische Abfolge von Knotenstrukturen ermöglicht eine gute *in situ* Kalibration sowohl der magnetischen Flussdichte  $B$  im Spektrometer, als auch der Zeit  $t_{0,\text{konstant}}$  des Elektronendetektors. Dies wird hier an der Kalibration für DS2 dargestellt. Argonatome wurden bei eingestelltem Magnetfeld durch den Laser ionisiert und die Spektrometerspannung variiert. Eine solche Kalibrationsmessung wird auch als 'wigglerun' bezeichnet. Abb. 8.5 zeigt die sich ergebende Knotenstruktur, wenn die  $X$ -Komponente des unkorrigierten Auftreffortes gegen die unkorrigierte Flugzeit  $t_{\text{MCP}} - t_{\text{Photodiode}}$  aufgetragen wird. Die  $X$ -Komponente wurde gewählt, weil sie aufgrund der Lage der Polarisationssebene des Laserlichtes

eine größere Aufweitung im Ort zeigt. Die Variation der Spektrometerspannung sorgt für eine gute Ausleuchtung von mindestens zwei Knoten.

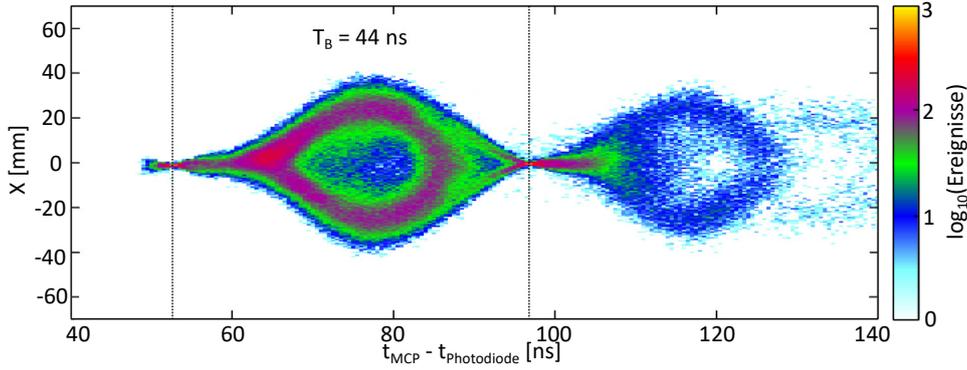


Abbildung 8.5: X-Komponente des unkorrigierten Auftreffortes der Elektronen auf dem Detektor gegen die unkorrigierte Flugzeit  $t_{\text{MCP}} - t_{\text{Photodiode}}$ . Der zeitliche Abstand  $T_B$  der Knoten wurde auf 44 ns bestimmt. Die Elektronen stammen aus der Ionisation von Argon, die Einstellungen entsprechen den für DS2 gewählten.

Durch die Bestimmung ihres zeitlichen Abstands  $T_B$  auf 44 ns ergibt sich über Gl. 8.6 unmittelbar eine magnetische Flussdichte von 8,12 Gauß (Gs) bzw.  $8,12 \cdot 10^{-4}$  Tesla (T). Aus dem nun bekannten Wert von  $T_B$  und der zeitlichen Lage des ersten Knotens kann die Konstante  $t_{0,\text{konstant}}$  des Elektronendetektors bestimmt werden. Hierzu wird genutzt, dass zum Zeitpunkt der Ionisation bei einer Flugzeit von 0 ns die Bedingung eines Knotens erfüllt ist, sodass der erste sichtbare Knoten eine volle Periodendauer später zu erwarten wäre. Aus der Abweichung von dieser Erwartung lässt sich  $t_{0,\text{konstant}}$  auf 12,41 ns bestimmen. Die Bestimmung von  $B$  auf 14,21 Gs für DS1 ist in Abschnitt 5.1.1 von [118] dargestellt, die Einstellungen wurden für DS3 übernommen.

### 8.3 BESTIMMUNG DES M/Q-VERHÄLTNISES

Das Magnetfeld und die Konstante  $t_{0,\text{konstant}}$  des Elektronendetektors können gut mit der im vorigen Abschnitt 8.2 beschriebenen Methode ermittelt werden. Zur Bestimmung der elektrischen Feldstärke im Spektrometer und der Konstante  $t_{0,\text{konstant}}$  des Ionendetektors wurden die Flugzeiten von Ionen mit unterschiedlicher Masse untersucht. Aus den Gesetzen einer gleichmäßig beschleunigten Bewegung in einem elektrischen Feld folgt, dass die Flugzeit beim Vergleich unterschiedlicher Ionensorten proportional zur Wurzel des Masse-zu-Ladungsverhältnisses  $m/q$  skaliert:

$$t_{\text{Flugzeit,Ion}} \sim \sqrt{\frac{m}{q}} \quad (8.7)$$

Die in DS2 gemessenen unkorrigierten Flugzeiten  $t_{\text{MCP}} - t_{\text{Photodiode}}$  der  $\text{H}_2^+$ -,  $\text{H}_2\text{O}^+$ -,  $\text{N}_2^+$ - und  $\text{O}_2^+$ -Ionen (siehe auch Abb. 8.3 b) wurden gegen die Wurzel ihres Masse-zu-Ladungsverhältnisses aufgetragen. Es ergibt sich der in Abb. 8.6 dargestellte Zusammenhang. Die an die gezeigten Datenpunkte angepasste Gerade schneidet die Flugzeit-Achse bei 18,33 ns. Dieser Wert entspricht der gesuchten Konstante  $t_{0,\text{konstant}}$  des Ionendetektors. Dies basiert auf der Annahme, dass ein Ion mit einem verschwindenden Masse-zu-Ladungsverhältnis auch eine verschwin-

dende Flugzeit aufweisen müsste.

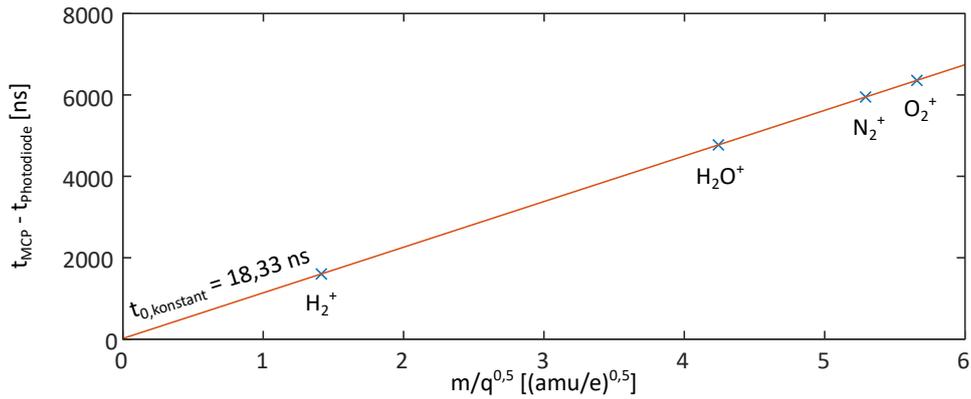


Abbildung 8.6: Unkorrigierte Flugzeiten  $t_{\text{MCP}} - t_{\text{Photodiode}}$  der  $\text{H}_2^+$ -,  $\text{H}_2\text{O}^+$ -,  $\text{N}_2^+$ - und  $\text{O}_2^+$ -Ionen gegen die Wurzel ihres Masse-zu-Ladungsverhältnisses (blaue Kreuze). Der Schnittpunkt der angepassten Gerade (rote Linie) mit der Flugzeitachse liegt bei 18,33 ns und definiert  $t_{0,\text{konstant}}$ .

Die Flugzeit der Ionen ist äußerst sensitiv auf die Stärke des elektrischen Spektrometerfeldes  $E_{\text{Spek}}$ . Dieses kann unter Annahme einer gleichmäßig beschleunigten Bewegung über eine bekannte Strecke  $s$  aus der Ionenflugzeit berechnet werden:

$$E_{\text{Spek}} = \frac{2s \cdot m}{e \cdot t_{\text{Flugzeit}}^2} \quad (8.8)$$

In dem in COL2 verwendeten Spektrometer werden die Ionen über seine Strecke von  $s = 65,8 \text{ mm}$  beschleunigt. Daraus ergibt sich ein elektrisches Feld von  $10,87 \text{ V/cm}$ . Dieser Wert wurde direkt als Parameter für die Impulsrekonstruktion übernommen (siehe Tabelle 8.2). Der Wert für  $t_{0,\text{konstant}}$  wurde letztlich geringfügig um weniger als 2 ns geändert, um eine um  $p_z = 0 \text{ a.u.}$  zentrierte Verteilung der betrachteten  $\text{H}^+$ -Ionenimpulse zu erreichen. Neben der hier dargestellten manuellen Methode zur Bestimmung von  $t_{0,\text{konstant}}$  und  $E_{\text{Spek}}$  ist auch die Nutzung des 'ipa\_ion\_tof\_tool' der IPA (siehe nächster Abschnitt) möglich und wurde bei der Auswertung aller Datensätze vorgenommen.

#### 8.4 IMPULSREKONSTRUKTION

Mit den bekannten Maßen des Spektrometers und den zuvor ermittelten Feldstärken der magnetischen und elektrischen Felder können nun die ursprünglichen Impulsvektoren der Elektronen und Ionen aus den Flugzeiten und Auftrefforten auf den Detektoren rekonstruiert werden. Die Rekonstruktion der Impulse erfolgt durch die 'COLTRIMS Analysis Helper Library' (ColAHell) von *Till Jahnke* und *Joshua Williams* als Bestandteil von *lmf2root*. Die Parameter, die in die Impulsrekonstruktion durch die ColAHell eingehen, sind für alle in dieser Arbeit behandelten Datensätze in Tabelle 8.2 aufgeführt. Anhand dieser Tabelle soll die Bedeutung der jeweiligen Parameter und ihre Auswirkung auf die rekonstruierten Impulse erläutert werden.

Die Berechnung der Impulse erfolgt durch Umstellen der klassischen Bewegungsgleichungen, die die Flugbahn des gemessenen Teilchens im Spektrometer beschreiben. Dabei besteht ein Unterschied in der Berechnungsweise abhängig davon, ob die entlang der Spektrometerachse liegende Komponente  $p_z$ , oder die beiden

in der Detektorebene liegenden Komponenten  $p_x$  und  $p_y$  des Impulses betrachtet werden. Letztere lassen sich insbesondere für Ionen, deren Flugbahnen kaum durch das angelegte Magnetfeld beeinflusst werden, sehr einfach bestimmen. Da die Detektorebene senkrecht zu dem beschleunigenden elektrischen Feld orientiert ist, kann eine gemessene Ortsänderung  $\Delta x$  ( $\Delta y$ ) auf eine gleichförmige Bewegung zurückgeführt werden, der jeweilige Impuls folgt aus:

$$\begin{aligned} p_{x,\text{Ion}} &= m \frac{\Delta x}{t_{\text{Flugzeit}}} \\ p_{y,\text{Ion}} &= m \frac{\Delta y}{t_{\text{Flugzeit}}} \end{aligned} \quad (8.9)$$

Für Elektronen müssen die Drehung und der Lamor-Radius in Abhängigkeit von der jeweiligen Flugzeit berücksichtigt werden. Die Gleichungen für die Rekonstruktion des Elektronenimpulses aus der Zykloidenbewegung im Spektrometer finden sich beispielsweise in [119]:

$$\begin{aligned} p_{x,\text{Elektron}} &= m_e \frac{-a \cdot \Delta x - b \Delta \cdot y}{a^2 + b^2} \\ p_{y,\text{Elektron}} &= m_e \frac{b \cdot \Delta x - a \Delta \cdot y}{a^2 + b^2} \end{aligned} \quad (8.10)$$

Dabei sind  $a = \frac{1 - \cos(\omega_B t_{\text{Flugzeit}})}{\omega_B}$  und  $b = \frac{\sin(\omega_B t_{\text{Flugzeit}})}{\omega_B}$ , die Zyklotronfrequenz  $\omega_B$  ist über  $\omega_B = \frac{2\pi}{T_B}$  definiert. Für die Rekonstruktion der Komponenten  $p_x$  und  $p_y$  sind die Eigenschaften der Detektoren 'Electron\_det' und 'Ion\_det' bedeutsam. Die aus der in Abschnitt 8.1 beschriebenen Methode bestimmten Auftrefforte auf den Detektor ( $X, Y$ ) werden nun weiter verarbeitet. 'Size' legt die Größe der aktiven MCP-Fläche fest und definiert zusammen mit 'Stretch total' die absolute Skalierung der Impulse in der Detektorebene. Mögliche Drehungen der Detektoren werden mit 'Rotate' so angepasst, dass die Konvention positiver  $x$ -Richtung entlang der Lichtpropagation und positiver  $y$ -Richtung entlang der Ausbreitungsrichtung des kalten Gas-Jets erfüllt wird. 'Shift X' und 'Shift Y' legen den Punkt auf dem Detektor fest, an dem ein Teilchen mit  $p_x = p_y = 0$  landen würde. Durch sie wird der Referenzpunkt zur Bestimmung der zuvor erwähnten Ortsänderungen  $\Delta x$  und  $\Delta y$  festgelegt. 'ProcessingOrder' legt hierbei fest, ob zuerst 'Rotate' und dann 'Shift X' und 'Shift Y' angewendet werden sollen ('RS'), oder ob das Gegenteil der Fall sein soll ('SR'). 'Shift T' entspricht der in den beiden vorherigen Abschnitten 8.2 und 8.3 behandelten Zeitkonstante  $-t_{0,\text{konstant}}$  des jeweiligen Detektors. Für die Rekonstruktion der Elektronenimpulse sind des Weiteren die Parameter zum angelegten Magnetfeld ('Bfield') relevant. Neben der Stärke ('Strength'), die nach Gl. 8.6 auch über die Gyrationperiode in der Einheit ('Units') ns angegeben werden kann, ist der Drehsinn der resultierenden Zykloidenbahn ('Direction') relevant. Diese kann eine Drehung im Uhrzeigersinn ('Clockwise') oder entgegengesetzt ('Counterclockwise') aufweisen. Für die Rekonstruktion des Ionenimpulses können außerdem Informationen zu Geschwindigkeit ('Velocity') und Richtung ('Angle') des kalten Gasstrahls ('Jet') gegeben werden. Dies wurde für DS3 in der Einheit ('Unit') mm/ns gemacht. Die Ausbreitungsgeschwindigkeit des Gasstrahls führt zu einer Verschiebung des Referenzpunkts zur Bestimmung der Ortsänderungen  $\Delta x$  und  $\Delta y$  in Abhängigkeit von der Flugzeit, welche durch Angabe der 'Jet'-Parameter korrigiert werden können.

Die Rekonstruktion der  $p_z$ -Komponente des Teilchenimpulses für eine Feldregion der Länge  $s$  und einer elektrischen Feldstärke  $E_{\text{Spek}}$  kann einfach berechnet werden [119]:

$$p_z = m \left( \frac{s}{t_{\text{Flugzeit}}} - \frac{q \cdot E_{\text{Spek}}}{2m} t_{\text{Flugzeit}} \right) \quad (8.11)$$

In `lmf2root` erfolgt sie für bis zu drei unterschiedliche Feldregionen beliebiger Länge iterativ unter Nutzung eines Newton-Verfahrens durch eine Funktion von *Joshua Williams*. Bedeutsam hierfür sind die Eigenschaften der Elektronenseite ('`Electron_arm`') und der Ionenseite ('`Ion_arm`') des Spektrometers, sowie wiederum  $t_{0,\text{konstant}}$  ('`Shift T`'). Jeder Abschnitt der jeweiligen Spektrometerseite wird über seine Länge ('`L_mm`') und das anliegende elektrische Feld ('`E_Vpcm`') definiert. In der vorliegenden Arbeit wurden maximal zwei Feldbereiche pro Spektrometerseite definiert. Damit sollen die verhältnismäßig langen Nachbeschleunigungsstrecken im Spektrometer von COL1 (siehe Abschnitt 6.1) berücksichtigt werden.

Mit den zuvor aufgeführten Parametern sind alle zur Rekonstruktion der Impulse prinzipiell nötigen Informationen gegeben. Der letzte Abschnitt enthält Parameter, die angeben, wie die bereits rekonstruierten Impulse komponentenweise (bspw. 'Z') oder global ('`Total`') zu stauchen oder zu verschieben sind. Dies wurde nur in DS1 auf die Elektronenimpulse ('`Electron_momenta`') angewendet. Im Rahmen der Auswertung wurden weitere Korrekturen auf die rekonstruierten Impulse angewendet, die im folgenden Abschnitt 8.5 dargestellt werden.

Die zunächst als bekannt angenommenen Parameter stellen die Startwerte eines iterativen Prozesses dar, in dem einzelne Parameter leicht variiert werden, um die Auswirkungen der Änderung auf die rekonstruierten Impulsverteilungen zu untersuchen. Unter Annahme bekannter Symmetrien kann jede dieser Variationen auf ihre Plausibilität geprüft werden. Diese Prozedur wird unter Benutzung der 'Interactive Parameter Adjustment' (IPA) Funktion von `lmf2root` durchgeführt. Die Neuberechnung der Impulse erfolgt für eine ausgewählte Ereigniszahl besonders zügig, was eine schnelle Iteration ermöglicht. Die Parameter können ohne Änderungen in der Konfigurationsdatei der ColAHeLL variiert werden.

Parameter	DS <sub>1</sub>	DS <sub>2</sub> A& B	DS <sub>3</sub>
Electron_det Size	80	120	80
Electron_det Rotate	0	26,5	0
Electron_det ProcessingOrder	SR	SR	SR
Electron_det Shift X	-0,43	0,2	-0,43
Electron_det Shift Y	0,98	10,32	0,58
Electron_det Shift T	-21,395	-12,41	-21,38
Electron_det Stretch total	0,99	0,975	0,99
Ion_det Size	80	80	80
Ion_det Rotate	-86	0	-90
Ion_det ProcessingOrder	RS	RS	RS
Ion_det Shift X	0,26	-1,1	3,48
Ion_det Shift Y	0,95	-2,7	-0,23
Ion_det Shift T	-26	-16,54	-25,6
Ion_det Stretch total	1	1,09	0,95
Bfield Strength	25,17	43,55	25,17
Bfield Unit	ns	ns	ns
Bfield Direction	Counterclockwise	Clockwise	Counterclockwise
Jet Velocity	-	-	0,00056
Jet Angle	-	-	0
Jet Unit	-	-	mmpns
Electron_arm 1 L_mm	306,39	390	306,39
Electron_arm 1 E_Vpcm	26,76	10,87	26,76
Electron_arm 2 L_mm	35,1	-	35,1
Electron_arm 2 E_Vpcm	-16,86	-	-16,86
Ion_arm 1 L_mm	170,2	65,8	170,2
Ion_arm 1 E_Vpcm	26,76	10,87	26,76
Ion_arm 2 L_mm	34,7	-	35,1
Ion_arm 2 E_Vpcm	112,29	-	538,29
Electron_momenta Z	1,007	1	1
Electron_momenta Total	1,0571	1	1

Tabelle 8.2: Übersicht der Parameter zur Rekonstruktion der Impulse von Elektronen und Ionen für die in dieser Arbeit behandelten Datensätze. Die Namen der Parameter entsprechen denen, die der ColAHeL durch eine Konfigurationsdatei übergeben werden.

## 8.5 IMPULSKORREKTUREN

Die im vorangegangenen Abschnitt 8.4 dargestellte Rekonstruktion der Impulse geht von perfekt homogenen elektrischen und magnetischen Feldern aus. Diese Annahmen sind in der Realität nur zum Teil erfüllt, da es beispielsweise durch die geschlitzten Platten um das Interaktionsvolumen zu Feldeingriffen kommen kann. Es ist jedoch möglich, die Impulsabbildung darüber hinaus durch das Einbeziehen von zusätzlichen Informationen zu verbessern. Hier spielen Symmetrien und Erhaltungsgrößen eine entscheidende Rolle. So stellen ATI-Ringe in der

Polarisationsebene per Definition isotrope Objekte dar. Durch die bekannte Photonenenergie kann sogar die absolute Skalierung der Impulse kalibriert werden. Für die Untersuchung von Ionisationsprozessen in CoRTC-Feldern ist eine eindeutige Trennung von ATI-Peaks und Seitenbändern essenziell. Der Radialimpuls darf dabei keine Abhängigkeit vom Winkel im Laborsystem zeigen, da es sonst durch die Phasenkorrektur (siehe Abschnitt 8.6) zu einer Vermischung der jeweiligen Winkelverteilungen kommen kann. Dies hätte aufgrund der relativen Phasenlage von ATI- und Seitenbandpeaks einen Kontrastverlust der einfach-symmetrischen Komponente der Elektronenwinkelverteilungen zur Folge, welche die zentrale Observable der HASE-Technik darstellt.

Die aus den vorausgegangenen Kalibrierungsschritten resultierenden Elektronenimpulse in der Polarisationsebene werden zunächst in Zylinderkoordinaten aufgetragen (siehe Abb. 8.8 a). Der vierte erkennbare Peak in der  $p_r$ -Verteilung wurde zur winkelabhängigen Skalierung des Radialimpulses ausgewählt. Die exakten Peakpositionen für jeden Wert von  $\phi$  wurden durch das Anfitten von Gaußkurven bestimmt. Die relativen Anweichungen von der mittleren Position über alle Werte von  $\phi$  stellen den Skalierungsfaktor dar und sind als blaue Kreuze in Abb. 8.8 b dargestellt. Es werden Abweichungen von  $\pm 2,5\%$  beobachtet. Ein Polynom neunten Grades (rote Linie) wurde genutzt, um eine winkelabhängige Korrektur der Impulse durchzuführen. Hierzu wurde zunächst der Winkel  $\phi$  für jeden Elektronenimpuls bestimmt und die  $p_r$ -Komponente durch den entsprechenden Skalierungsfaktor geteilt. Abb. 8.8 c zeigt die Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationsebene nach Anwendung der Korrektur. Ein erneutes Anfitten von Gaußkurven zeigt, dass die relativen Abweichungen auf  $\pm 0,5\%$  reduziert werden konnten.

Ein weiteres Kriterium für die Güte der Impulsrekonstruktion stellt die Abbildung der in der Energie äquidistanten ATI- und Seitenbandstrukturen dar. Insbesondere eine *in situ* Kalibration der Laserintensität, wie in Abschnitt 8.7 beschrieben, und ein Vergleich absoluter Energiewerte setzt eine korrekte Skalierung der gemessenen Elektronenenergie voraus. Hierzu wird die nach Anwendung der soeben beschriebenen Korrektur erhaltene Elektronenenergieverteilung näher untersucht. Abb. 8.9 a zeigt die gemessene Verteilung als blaue Linie. Sie kann als Produkt der äquidistanten Energiemodulation und einer Einhüllenden, die nicht perfekte destruktive Interferenz zwischen den einzelnen Maxima als Untergrund aufgefasst werden. Dieser wird zunächst durch die Subtraktion einer zwischen den Minima der gemessenen Energieverteilung interpolierenden Kurve entfernt. Das Ergebnis ist als rote Kurve dargestellt. Aus diesem kann nun die Einhüllende aus den niederfrequenten Fourier-Komponenten extrahiert werden. Sie ist als gelbe Kurve dargestellt. Die Division der Elektronenenergieverteilung ohne Untergrund durch die Einhüllende ergibt die violette Kurve. Diese stellt im Wesentlichen die äquidistante Energieverteilung ohne Untergrund und Einhüllende dar. Damit werden die Positionen der Maxima nicht mehr durch die Steigung der Flanken der Einhüllenden beeinflusst. Durch Anfitten von Gaußkurven können nun die Positionen der einzelnen Maxima bestimmt werden. Da die aus Gl. 2.5 zu erwartenden absoluten Positionen der Maxima zunächst unbekannt sind, und eine Kenntnis des pondermotorischen Potentials voraussetzen, wird nur die Steigung  $\hbar\omega$  betrachtet, die es mit der Anzahl der absorbierten Photonen zu multiplizieren gilt. Die absolute Position ist beliebig und wird so gewählt, dass die gemittelten relativen Abweichungen minimal werden. Abb. 8.9 b zeigt die relativen Abweichungen von gemessener zu erwarteter Position für eine Photonenenergie  $\hbar\omega$  von 1,6 eV. Für die ersten drei betrachteten Maxima werden praktisch keine Änderungen

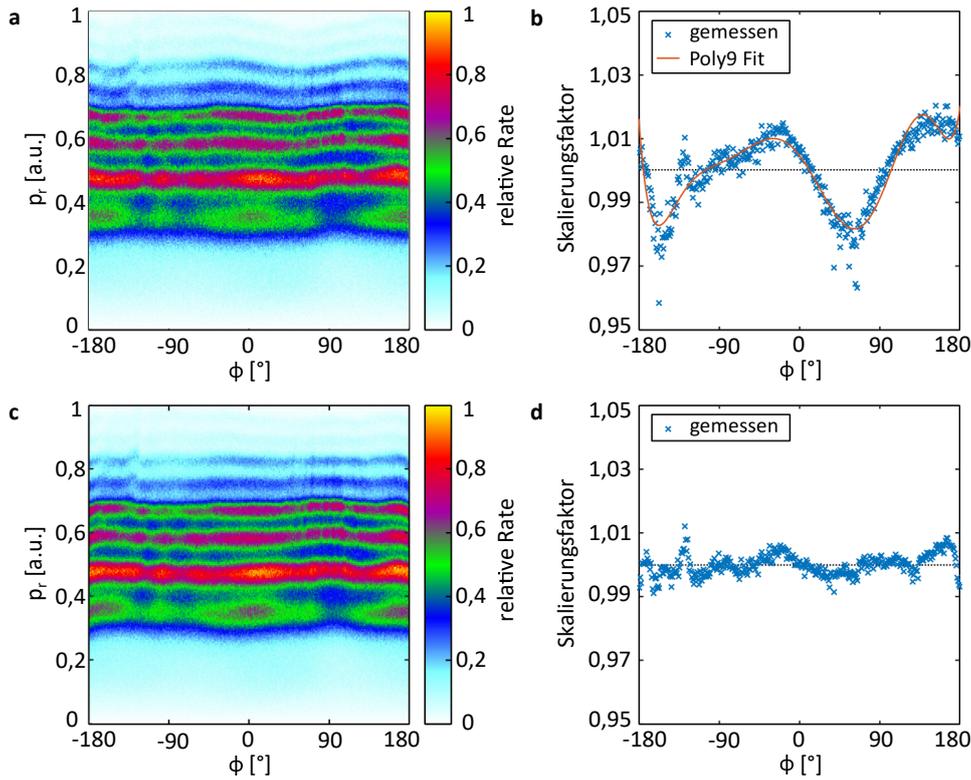


Abbildung 8.8: Korrektur der Elektronenimpulse aus DS2A in der Polarisations Ebene. **a** Unkorrigierte Elektronenimpulsverteilung projiziert auf die Polarisations Ebene in Zylinderkoordinaten. **b** Relative Abweichung vom mittleren Wert für  $p_r$  über alle Winkel  $\phi$  integriert (blaue Kreuze). Die rote Linie stellt das zur Korrektur genutzte Polynom neunten Grades dar. **c** Korrigierte Elektronenimpulsverteilung projiziert auf die Polarisations Ebene in Zylinderkoordinaten. **d** Relative Abweichung vom mittleren Wert von  $p_r$  über alle Winkel  $\phi$  integriert nach Anwendung der beschriebenen Korrektur.

der Abweichungen beobachtet, sodass von einer nahezu perfekten Skalierung der Elektronenenergie ausgegangen werden kann. Die zu den Abbildungen 8.8 und 8.9 analogen Darstellungen für DS3 finden sich in Anhang E.

Nach Anwendung der eingangs beschriebenen Korrekturen des Radialimpulses in der Polarisations Ebene und der Überprüfung der absoluten Skalierung der Energie- und damit Impulsabbildung anhand der Photonenenergie kann die Rekonstruktion der Impulse von Elektronen und Ionen im Laborsystem als abgeschlossen angesehen werden. Abb. 8.10 zeigt die beiden in der Polarisations Ebene liegenden kartesischen Komponenten  $p_y$  und  $p_z$  des Impulses von Elektronen (a) und  $H^+$ -Ionen (b). Die übrigen Kombinationen der kartesischen Komponenten aller final rekonstruierter Impulse sowie die entsprechenden Darstellungen für die Datensätze DS1 und DS3 finden sich in Anhang F.

Die so erhaltenen Impulsverteilungen in der Polarisations Ebene wurden für DS2 und DS3 einem weiteren Auswertungsschritt unterzogen, dessen Ziel in der Korrektur der von der relativen Phase der Komponenten des CoRTC-Feldes hervorgerufenen Drehung besteht. Dieser Prozess wird im folgenden Abschnitt 8.6 dargestellt.

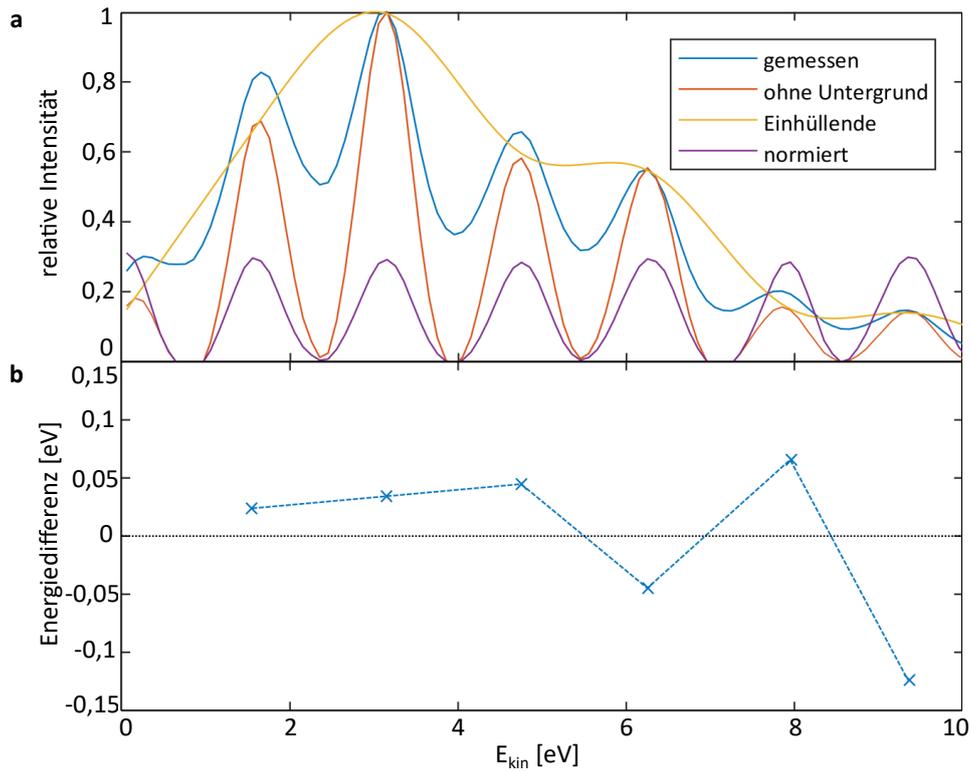


Abbildung 8.9: **a** Die gemessene Elektronenenergieverteilung (blaue Kurve) kann nach Abzug des Untergrunds (rote Kurve) in eine Einhüllende (gelbe Kurve) und ein Interferenzmuster (violette Kurve) zerlegt werden. **b** Relative Abweichung der Position der Maxima der violetten Kurve in **a** von der aus der Photonenergie von 1,6 eV zu erwartenden Position.

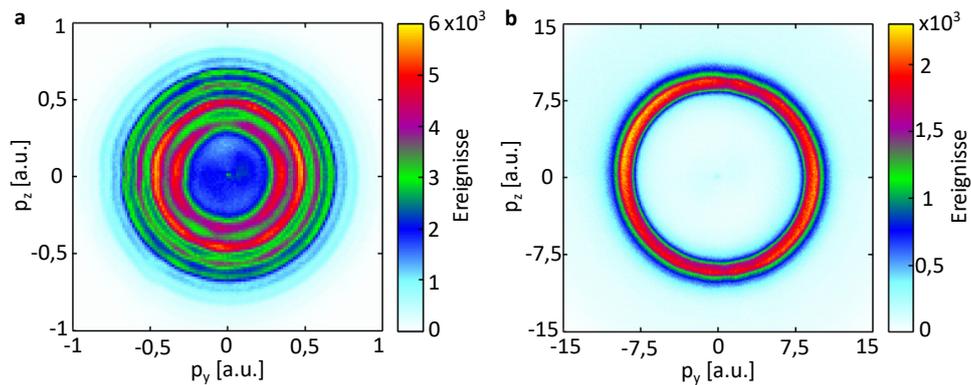


Abbildung 8.10: **a** Vollständig rekonstruierte Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene. **b** Vollständig rekonstruierte Impulsverteilung der  $\text{H}^+$ -Ionen in der Polarisationssebene.

## 8.6 KORREKTUR DER RELATIVEN PHASE DES CoRTC-FELDES

Während die Impulse von Elektronen und Ionen in der Polarisationssebene der CoRTC-Felder aus DS<sub>2</sub> und DS<sub>3</sub> bisher im Laborsystem betrachtet wurden, soll nun ein idealisiertes Laborsystem mit einer festen, jedoch unbekanntem absoluten Lage des jeweiligen CoRTC-Feldes definiert werden. Dieses neue Bezugssystem wird im Folgenden als 'Lichtsystem' bezeichnet und für die in den Kapiteln 10 und 11 dargestellten weiteren Auswertungen genutzt. Die Definition dieses 'Lichtsystems' ist nötig, da Änderungen der relativen Phase zwischen den beiden Teilstrahlen im interferometrischen Zwei-Farben-Aufbau (ZFA) zu einer Rotation des CoRTC-Feldes und damit der Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene führen. Diese Phasenänderungen lassen sich auf zwei Beiträge zurückführen:

- kontrollierte Phasenänderungen durch Fahren der 'delay stage' im ZFA
- unkontrollierte Phasenänderungen durch mechanische und thermische Instabilitäten

Ein aktives Drehen der Elektronenimpulsverteilung durch Fahren der 'delay stage' erlaubt es, das Lichtsystem vom Laborsystem dahingehen zu entkoppeln, dass sich mögliche Fehler bei der Impulsabbildung in gleicher Weise auf alle Bereiche der gemessenen Elektronenimpulsverteilung auswirken. Dies reduziert systematische Fehler, die auf Feldeingriffe in das Spektrometer oder lokale Detektorineffizienzen zurückzuführen wären. Die zu erwartende Drehung  $\zeta$  des CoRTC-Feldes und damit der Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene wird durch folgenden analytischen Ausdruck in Abhängigkeit der Wellenlänge  $\lambda$  der fundamentalen Komponente  $\omega$  und der von der 'delay stage' gefahrenen Strecke  $\Delta s$  beschrieben:

$$\zeta = \left( \frac{4 \cdot \Delta s}{\lambda} \right) \text{ mod } 2\pi \quad (8.12)$$

In der Analyse kann auf die jeweiligen Positionen der 'delay stage' und damit  $\Delta s$  zugegriffen werden, sodass kontrollierte Phasenänderungen sehr leicht in der Datenanalyse korrigiert werden können. Dieser Auswertungsschritt ist in Abb. 8.12 anhand von Datensatz DS<sub>2A</sub> dargestellt. In Abb. 8.12 a ist die Elektronenwinkelverteilung des ersten Seitenbandes (0,45 a.u. <  $p_r$  < 0,52 a.u.) gegen den Parameter 'eventnumber' aufgetragen. Dieser entspricht einer Nummerierung der gemessenen Ereignisse gemäß ihrer zeitlichen Abfolge. Das streifenförmige Muster ist auf das aktive Fahren der 'delay stage' in Schritten von  $\Delta s = 20$  nm zurückzuführen, was einer jeweiligen Drehung des CoRTC-Feldes um etwa 36° entspricht. Abb. 8.12 b zeigt die Elektronenwinkelverteilung nach Korrektur dieser Drehungen unter Anwendung von Gleichung 8.12. Während die zuvor sichtbaren Streifen erwartungsgemäß verschwunden sind, zeigt sich noch immer eine Abhängigkeit der Elektronenwinkelverteilung von dem Parameter 'eventnumber'. Offenbar führen die unkontrollierten Phasenänderungen durch mechanische und thermische Instabilitäten im interferometrischen Aufbau zu einer Drehung des CoRTC-Feldes in der Polarisationssebene von insgesamt etwa 360° über den Zeitraum der Messung von 16 Stunden. Das Aufsummieren aller Ereignisse würde zu einem weitgehenden Verschwinden der mit dem HASE-Modell zu untersuchenden Einfach-Symmetrie der Elektronenwinkelverteilungen führen.

Um auch unkontrollierte Phasenänderungen in der Analyse zu korrigieren, bietet sich daher ein phänomenologischer Ansatz an, bei dem die Drehung der Elektronenimpulsverteilung in Abhängigkeit vom Parameter 'eventnumber' bestimmt

und anschließend in der Datenanalyse korrigiert wird. Hierzu wird die Phase der einfach-symmetrischen Fourier-Komponente der Winkelverteilung für jede Zeile in Abb. 8.12 a extrahiert. Anschließend wird die Winkelverteilung jeder Zeile um den entsprechenden Wert verschoben. Das Ergebnis ist in Abb. 8.12 c gezeigt. Das Maximum liegt nun unabhängig von der 'eventnumber' bei einem  $\phi$  von  $\pm 180^\circ$ . Dieses Vorgehen setzt voraus, dass sich die ungewollten Phasenverschiebungen langsam genug ändern, um ausreichende Statistik für die Bestimmung der Drehwinkel zu sammeln. Diese Bedingung war in den hier vorgestellten Experimenten durchweg erfüllt. Abb. 8.13 zeigt die so gedrehten Impulse in kartesischer Darstellung. Da die Elektronen- und Ionenimpulsen gleichermaßen korrigiert werden, sind relative Winkel invariant. Die zu den Abbildungen 8.12 und 8.13 analogen Darstellungen für DS3 finden sich in Anhang G.

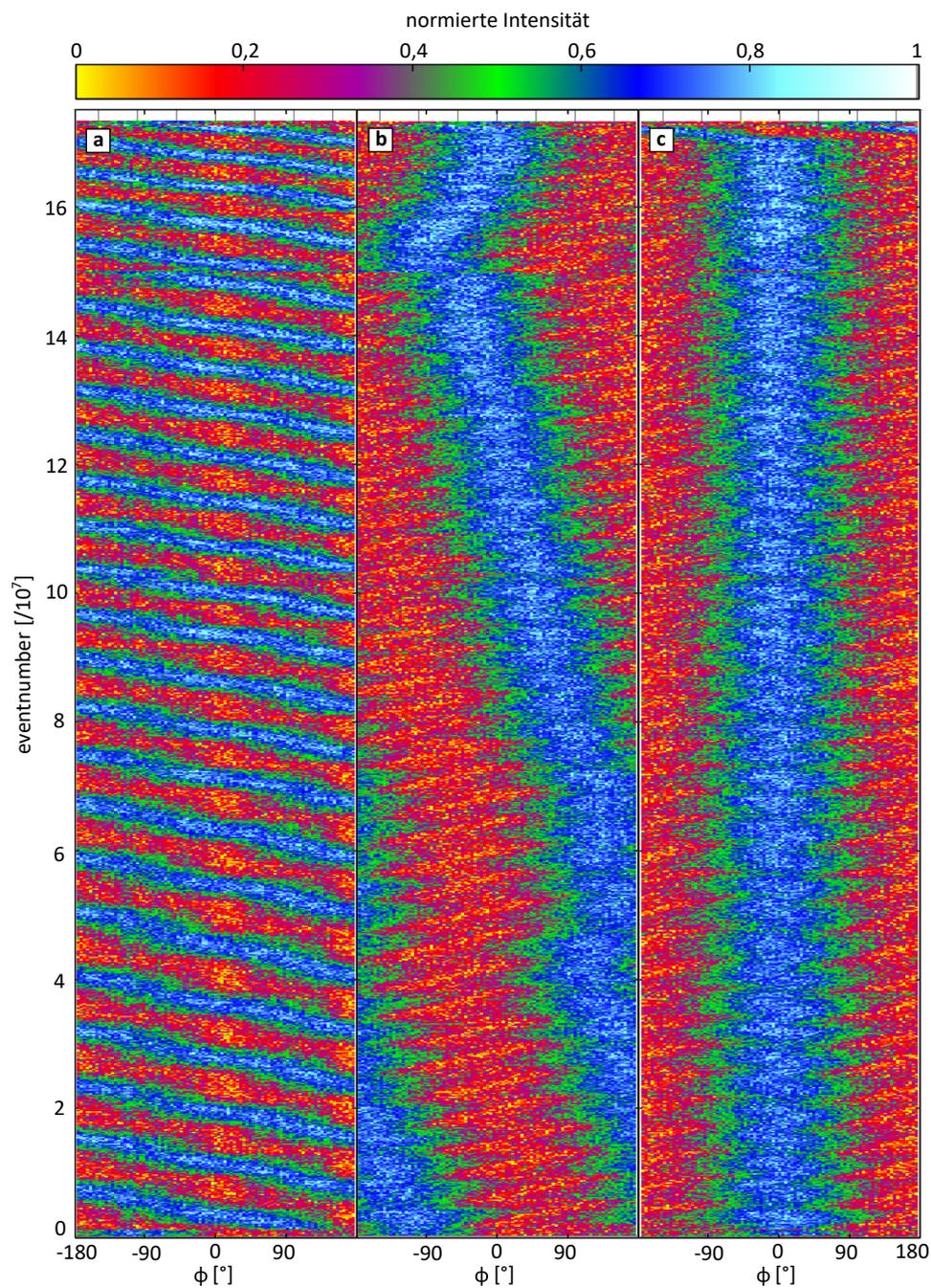


Abbildung 8.12: Zeilenweise normierte Winkelverteilung der Elektronen in der Polarisationssebene für das erste Seitenband ( $0,45 \text{ a.u.} < p_r < 0,52 \text{ a.u.}$ ) aus DS<sub>2</sub>A in Abhängigkeit vom Parameter 'eventnumber'. **a** Unkorrigierte Verteilung. **b** Mit bekannter Position der 'delay stage' analytisch korrigierte Verteilung. **c** Durch Bestimmung der einfach-symmetrischen Fourier-Komponente korrigierte Verteilung.

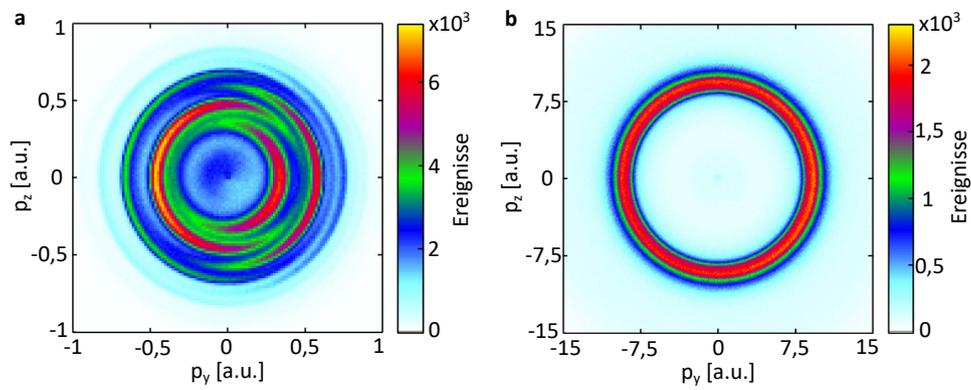


Abbildung 8.13: **a** Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene im 'Lichtsystem'. Die charakteristische AHR-Struktur ist sichtbar geworden. **b** Entsprechende Impulsverteilung der  $H^+$ -Ionen in der Polarisationssebene.

## 8.7 INTENSITÄTSKALIBRATION

Die Intensität  $I$  stellt neben der Wellenlänge  $\lambda$  und der Elliptizität  $\epsilon$  eine zentrale Größe zur Charakterisierung eines starken Laserfeldes dar. Aus ihr ergibt sich bei bekanntem  $\epsilon$  der Betrag des zeitabhängigen elektrischen Feldes  $\vec{E}(t)$ . Die Intensität wird üblicherweise in  $\text{W}/\text{cm}^2$  angegeben. Der Zusammenhang zur Schwingungsamplitude  $E_0$  lautet für linear polarisiertes Licht:

$$I = \frac{1}{2} \epsilon_0 c |E_0|^2 \quad (8.13)$$

Für den hier im Folgenden betrachteten Fall zirkularer Polarisation entfällt der Faktor  $\frac{1}{2}$ . Die möglichst genaue Kenntnis der Intensität und insbesondere der elektrischen Feldstärken ist für die Interpretation und Modellierung experimenteller Ergebnisse von großer Bedeutung. Die Intensität kann auf unterschiedliche Weise ermittelt werden. Ein möglicher Weg besteht darin, sie unter Annahme der idealen Fokusgeometrie gaußscher Strahlen aus der direkt messbaren Leistung des kollimierten Strahls zu berechnen. Diese Methode zur Bestimmung der Intensität unterliegt jedoch einer Reihe von Einschränkungen. Je nach Strahlqualität weicht die tatsächliche Fokusgeometrie von der eines idealen Gaußstrahls mehr oder weniger stark ab. Diese Eigenschaft wird durch die Größe  $M^2$  eines Strahls charakterisiert und kann prinzipiell gemessen werden. Deutlich schwieriger ist es, die Pulslänge und zeitliche Einhüllende des Pulses in korrekter Weise zu kalibrieren, um die für die Ionisation relevanten Spitzenfelder im Zentrum des Pulses zu ermitteln. Einflüsse des Eintrittsfensters in die Vakuumkammer auf Polarisation und Pulslänge können bestenfalls abgeschätzt werden.

Aus den aufgeführten Gründen erweist sich eine Kalibration der Intensität *in situ*, also in der Reaktionszone selbst, als überlegen gegenüber Abschätzungen aus der Fokusgeometrie. Eine direkte, rein experimentelle Möglichkeit stellt die durch das ponderomotorische Potential  $U_p$  (siehe Gl. 2.4) verursachte Verschiebung der Positionen der ATI-Peaks nach Gl. 2.6 dar. Voraussetzung hierfür sind sichtbare ATI-Srukturen, wie sie tendenziell bei größeren Werten von  $\gamma$  auftreten. Liegt das ponderomotorische Potential in der Größenordnung der Photonenenergie, ergibt sich selbst bei bekanntem Ionisationspotential  $I_p$  eine mögliche Uneindeutigkeit hinsichtlich der Anzahl  $(n + m)$  absorbierter Photonen. Daher ist es vorteilhafter, Elektronenenergieverteilungen für unterschiedliche Laserleistungen  $P$  und damit zunächst unbekannte Intensitäten zu messen und die relative Verschiebung der Peakpositionen in Abhängigkeit von der eingestellten Leistung zu untersuchen.

Dieses Vorgehen soll im Folgenden anhand des Datensatzes DS<sub>3</sub>, des in Kapitel 11 diskutierten Experiments, dargestellt werden. Abb. 8.14 a und b zeigt die Elektronenimpulsverteilungen in der Polarisationssebene für die Ionisation von Argon durch zirkular polarisiertes Licht bei einer Laserleistung von 125 mW bzw. 195 mW. Die gestrichelten Kreise verdeutlichen die Verschiebung der ATI-Ringe zu kleineren Radialimpulsen bei höheren Laserleistungen. Aus den drei in Abb. 8.14 c gezeigten Energieverteilungen für gemessene Laserleistungen  $P$  von 125 mW, 144 mW und 195 mW wurde die Position des ersten ATI-Peaks bei etwa 2 eV durch Gauß-Fits bestimmt. Wie in Abb. 8.14 d ersichtlich, besteht ein linearer Zusammenhang zwischen der Position des ATI-Peaks und  $P$ , was gemäß Gl. 2.6 zu erwarten ist. Die Anpassung einer Geraden ergibt eine charakteristische Steigung  $U_p/P$  von  $0,0060 \pm 0,0012$  eV/mW. Diese Größe ermöglicht die Verknüpfung der direkt gemessenen Leistung des kollimierten Strahls mit dem ponderomotorischen Potential und damit der Intensität, der die Atome im Laserfokus ausgesetzt sind. Damit ergibt sich für die Intensität der 395 nm Komponente des für DS<sub>3</sub> verwendeten

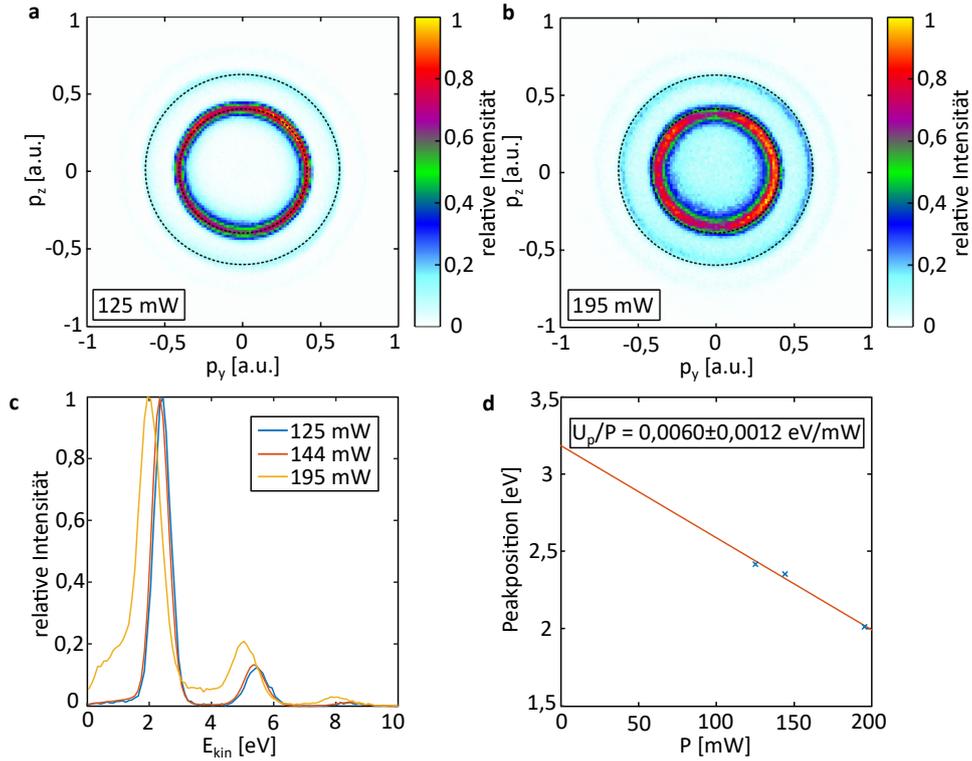


Abbildung 8.14: **a** Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene für die Ionisation von Argon durch zirkular polarisiertes Licht mit einer Wellenlänge von 395 nm und einer Laserleistung von 125 mW unter den experimentellen Bedingungen aus DS3. **b** Elektronenimpulsverteilung analog zu **a** für eine Laserleistung von 195 mW. **c** Elektronenenergieverteilung für eine Laserleistung von 125 mW, 144 mW und 195 mW. **d** Position des ersten ATI-Peaks für die drei gemessenen Laserleistungen.

CoRTC-Feldes eine Intensität von  $(5,9 \pm 1,2) \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  bei der für die Messung eingestellten Leistung von 144 mW. Die Unsicherheit des kalibrierten Wertes von etwa 20% ergibt sich aus dem 67%-Konfidenzintervall der charakteristischen Steigung  $U_p/P$ . Die Amplitude  $E_{0,395\text{nm}}$  des zirkular polarisierten Lichtes liegt gemäß Gl. 8.13 bei  $0,029 \pm 0,003 \text{ a.u.}$

Für die Bestimmung der Intensität der fundamentalen Komponente des CoRTC-Feldes mit 790 nm musste ein anderes Vorgehen gewählt werden, da die in Abb. 8.15 a gezeigte Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene für die Referenzmessung bei einer Laserleistung von 315 mW keine sichtbaren ATI-Strukturen aufweist. Stattdessen zeigt sich eine gaußförmige Radialimpulsverteilung (siehe Abb. 8.15 c für eine Darstellung in Polarkoordinaten). Unter adiabatischen Bedingungen würde das Maximum der Verteilung von  $p_r$  mit der Amplitude des negativen Vektorpotentials  $-\vec{A}(t_0)$  für jeden Startzeitpunkt  $t_0$  übereinstimmen. Bei einem wahrscheinlichsten Radialimpuls von 0,69 a.u. würde dies einer Amplitude  $E_{0,790\text{nm}}$  des zirkular polarisierten Lichtes von 0,0398 a.u. und einer Intensität von  $1,11 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  entsprechen. Wie in Abschnitt 2.5 dargestellt, trägt der Startimpuls  $\vec{p}_{0,\perp}$  bei moderaten Feldstärken jedoch nicht vernachlässigbar zum Endimpuls  $\vec{p}_{\text{elec}}$  bei. Daher führt die Annahme, dass  $\vec{p}_{\text{elec}} = -\vec{A}$  außer im (experimentell nie erfüllten) adiabatischen Grenzfall zu einer Überschätzung der tatsächlichen Intensität. Des Weiteren muss die Abbremsung des Elektrons durch die Coulomb-Wechselwirkung mit dem Ion berücksichtigt werden. Daher

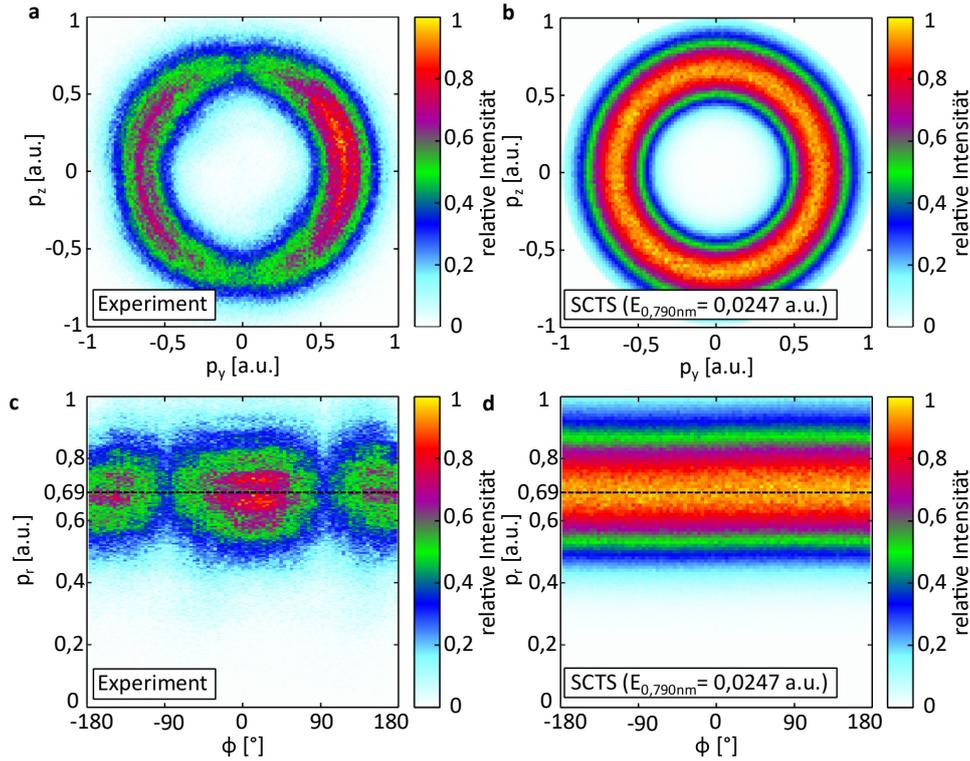


Abbildung 8.15: **a** Gemessene Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationsebene für die Ionisation von Argon durch zirkular polarisiertes Licht mit einer Wellenlänge von 790 nm und einer Laserleistung von 125 mW unter den experimentellen Bedingungen für DS<sub>3</sub>. **b** Durch eine SCTS Rechnung simulierte Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationsebene für die Ionisation von Argon durch zirkular polarisiertes Licht mit einer Wellenlänge von 790 nm und einem angenommenen Feld von  $E_{0,790\text{nm}} = 0,0247$  a.u. **c** Gemessene Elektronenimpulsverteilung aus **a** in Polarkoordinaten. Das Maximum der Radialimpulsverteilung liegt bei 0,69 a.u. **d** Simulierte Elektronenimpulsverteilung aus **b** in Polarkoordinaten. Das Maximum der Radialimpulsverteilung bei 0,69 a.u. stimmt mit dem gemessenen Wert überein.

erfolgt die Intensitätskalibration für Licht mit einer Wellenlänge von 790 nm durch den Vergleich der gemessenen Elektronenverteilung in Abb. 8.15 c mit dem Ergebnis einer SCTS-Rechnung unter Berücksichtigung von Gl. 2.16 für die Wahl der Startimpulse. Die Abb. 8.15 b und d zeigen die resultierende Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationsebene für ein angenommenes  $E_{0,790\text{nm}}$  von 0,0247 a.u. Aus der exzellenten Übereinstimmung der Simulationsergebnisse mit dem experimentell ermittelten Radialimpuls von 0,69 a.u. kann auf eine Intensität von  $4,28 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  bei  $P = 315 \text{ mW}$  geschlossen werden. Dieser Wert weicht deutlich von den  $1,11 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , die sich unter der Annahme  $\vec{p}_{\text{elec}} = -\vec{A}$  ergeben, ab. Das für DS<sub>3</sub> eingestellte CoRTC Feld weist somit eine Intensität der Fundamentalen von  $(3,4 \pm 0,7) \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$  bei  $P = 2,5 \text{ mW}$  auf. Die Unsicherheit ergibt sich aus einem angenommenen Fehler bei der Leistungsmessung von etwa 20%, da die hierzu verwendete Apparatur eigentlich für größere Leistungen ausgelegt ist. Das sich aus der Intensität ergebende elektrische Feld  $E_0$  liegt bei  $0,0022 \pm 0,0002$  a.u., was zu einem Feldverhältnis  $E_{0,790\text{nm}}/E_{0,395\text{nm}}$  von 0,76 führt.

Die Intensitätskalibration für die Datensätze DS<sub>1</sub> und DS<sub>3</sub> wurde auf gleiche Weise durchgeführt. Erstere ist in Abschnitt 5.1.3 aus [118] dokumentiert. Eine Darstellung der Intensitätskalibration für DS<sub>3</sub> findet sich in Anhang H. Die resultierenden Intensitäten für alle Datensätze und nominellen zentralen Wellenlängen  $\lambda$  gemäß Tabelle 5.1 sind in Tabelle 8.3 zusammengefasst. Außerdem ist angegeben, ob die Kalibration anhand der Verschiebung der ATI-Peaks um  $U_p$  ('ATI-Peaks') oder durch den Vergleich mit einer SCTS-Rechnung ('SCTS') durchgeführt wurde. Die angegebenen Konfidenzintervalle beziehen nur die Unsicherheit der Steigung  $U_p/P$  bzw. die geschätzten Fehler bei der Leistungsmessung ein.

Eine weitere Möglichkeit zur Bestimmung der Intensität besteht in dem Vergleich der gemessenen Elektronenimpulsverteilungen mit Lösungen der TDSE. Diese Variante wurde letztlich für die in Kapitel 9 diskutierten Messungen an atomarem Wasserstoff gewählt. Es gilt dabei zu beachten, dass die *in situ* Intensitätskalibration nicht unabhängig vom Ionisationspotential  $I_p$  des zur Kalibration verwendeten Gases ist, da bei größerem  $I_p$  höhere Feldstärken zur Ionisation nötig sind. Somit tragen die zeitlichen und räumlichen Bereiche des Laserfokus mit geringeren Feldern weniger zur Gesamtionisationsrate bei, als dies bei geringerem  $I_p$  der Fall wäre. Eine weitere Einflussgröße ist die räumliche Ausdehnung des Gasstrahls in der Reaktionszone. Während diese bei der Verwendung eines kalten Gasstrahls aus Überschalllexpansion durch verfahrbare Schlitze gezielt reduziert werden kann (siehe Abschnitt 6.4), stellt der warme Gasstrahl aus der atomaren Wasserstoffquelle in Relation zum Laserfokus ein praktisch unendlich ausgedehntes Volumen dar (siehe Abschnitt 6.5.1). Dieser Unterschied beeinflusst den Beitrag von Randregionen des Laserfokus mit geringerer Feldstärke zur Gesamtionisationsrate.

Datensatz	$\lambda$ [nm]	Intensität [W/cm <sup>2</sup> ]	Methode
DS <sub>1</sub>	395	$(5,2 \pm 0,75) \cdot 10^{13}$ bzw. $(7,16 \pm 1,04) \cdot 10^{13}$	ATI-Peaks
DS <sub>2A</sub>	390	$(9,2 \pm 0,4) \cdot 10^{13}$	ATI-Peaks
DS <sub>2A</sub>	780	$(5,5 \pm 1,1) \cdot 10^{11}$	SCTS
DS <sub>2B</sub>	390	$(9,2 \pm 0,4) \cdot 10^{13}$	ATI-Peaks
DS <sub>2B</sub>	780	$(2,9 \pm 0,6) \cdot 10^{11}$ bis $(3,1 \pm 0,6) \cdot 10^{12}$	SCTS
DS <sub>3</sub>	395	$(5,9 \pm 1,2) \cdot 10^{13}$	ATI-Peaks
DS <sub>3</sub>	790	$(3,4 \pm 0,7) \cdot 10^{11}$	SCTS

Tabelle 8.3: Übersicht der kalibrierten Intensitäten in den betrachteten Datensätzen. Es werden die jeweiligen nominellen zentralen Wellenlängen  $\lambda$  nach Tabelle 5.1 sowie die genutzte Methode angegeben.



Teil IV

ERGEBNISSE

## NICHT-ADIABATISCHE STARKFELDIONISATION VON ATOMAREM WASSERSTOFF IN EINEM ELLIPTISCH POLARISIERTEN LASERFELD

Die in diesem Kapitel dargestellten Ergebnisse basieren größtenteils auf einer Publikation des Autors in der Zeitschrift *Physical Review Letters* [6]. Die Experimente und die Auswertung wurden in Zusammenarbeit mit *Nils Anders* im Rahmen einer durch den Autor betreuten Masterarbeit [118] durchgeführt. Die hier vorgestellten experimentellen Ergebnisse finden sich auch in Kapitel 5.2 in [118].

Während die technischen Aspekte zur Erzeugung atomaren Wasserstoffs und die Ergebnisse erster Tests der Quelle h-flux in Abschnitt 6.5 diskutiert wurden, soll dieses Kapitel die Ergebnisse eines ersten tatsächlichen Experiments an atomarem Wasserstoff in der Frankfurter Arbeitsgruppe Atomphysik behandeln. Untersucht wurde die Starkfeldionisation atomaren Wasserstoffs in einem elliptisch polarisierten Lichtfeld der Wellenlänge 390 nm. Die energieaufgelöste Bestimmung der Attoclock-Winkel (siehe Abschnitt 2.3) führte zu zunächst überraschenden Resultaten, die im Widerspruch zu den Vorhersagen verbreiteter semiklassischer Modelle von Startimpulsverteilung und Position des Tunnelausgangs stehen. Modifikationen dieser Modelle und ihre Auswirkungen auf die experimentellen Observablen bilden den Abschluss dieses Kapitels.

### 9.1 DAS WASSERSTOFFATOM

Das Wasserstoffatom stellt als Zweikörper-Problem bestehend aus einem Elektron und einem Proton das einfachste atomare System dar. Damit war es ein geeignetes System, die Vorhersagen der jungen Quantenmechanik zu prüfen. Bereits 1913 wendete *Niels Bohr* Quantisierungsbedingungen auf ein klassisches Atommodell an [120], wodurch spektroskopische Beobachtungen zu den Energieniveaus erklärt werden konnten. Im heutigen Sinne quantenmechanische Behandlungen des Wasserstoffproblems folgten 1926 durch *Wolfgang Pauli* [121] und *Erwin Schrödinger* [122] im Rahmen der Matrizen- bzw. Wellenmechanik. Die Elektronenorbitale des Wasserstoffatoms können durch die Hauptquantenzahl  $n$ , die Drehimpulsquantenzahl  $l$  und die magnetische Quantenzahl  $m$  vollständig charakterisiert werden. Den Grundzustand bildet das  $1s$ -Orbital, welches durch die Quantenzahlen  $n = 1$ ,  $l = m = 0$  gekennzeichnet ist und nur eine radiale Ortsabhängigkeit aufweist [123]:

$$\psi_{1s}(r) = \frac{1}{\sqrt{\pi}a_0^{\frac{3}{2}}} \exp\left(-\frac{r}{a_0}\right) \quad (9.1)$$

Das Ionisationspotential  $I_p$  entspricht der Hälfte der Hartree-Energie  $E_h$  bzw. 13,6 eV. Das bindende Potential ist durch das reine Coulomb-Potential des Protons vollständig beschrieben, Wechselwirkungen mit weiteren gebundenen Elektronen müssen nicht berücksichtigt werden. Mit der vollständig analytisch beschreibbaren Potentialform wird das Wasserstoffatom als ideales Referenzsystem zur sinnvollen Definition von auf langreichweitige Potentiale zurückzuführenden Wignerzeiten gesehen (siehe Abschnitt 3.1).

Die Möglichkeit einer näherungsfreien Beschreibung lässt es auch als ideales System für das Studium unterschiedlicher Aspekte der Starkfeldionisation erscheinen. *Sainadh et al.* wendeten erstmals die Attoclock-Technik auf den Prozess der Starkfeldionisation von atomarem Wasserstoff an. Aus einem Vergleich der experimentell gemessenen Attoclock-Winkel mit Lösungen der TDSE für ein kurzreichweitiges und ein Coulomb-Potential wurde eine obere Schranke von 1,8 as für eine Tunnelzeit in einem Ein-Elektron-System gefunden [124]. Wie in den meisten Attoclock-Experimenten wurde die Elektronenimpulsverteilung entlang der radialen Komponenten  $p_r$  integriert und  $\alpha_{\text{off}}$  aus der resultierenden Winkelverteilung bestimmt. Im Gegensatz dazu wurde in dem in [6] publizierten und im folgen Abschnitt diskutierten Experiment der energieaufgelöste Attoclock-Winkel  $\alpha_{\text{off}}(E_{\text{kin}})$  betrachtet und analysiert. *Wang et al.* hatten diese Observable unabhängig für die Ionisation von Xenon diskutiert [125].

## 9.2 BESTIMMUNG ENERGIEAUFGELÖSTER ATTOCLOCK-WINKEL

In Anhang I wird die Unterscheidung von Ereignissen aus der Ionisation von atomarem und molekularem Wasserstoff beschrieben. In einem nächsten Schritt wurden die Impulsverteilungen von Elektronen, die aus der Ionisation von atomarem Wasserstoff stammen, weiter untersucht. Die Betrachtung beschränkt sich dabei auf die Impulskomponenten  $p_y$  und  $p_z$  in der Polarisations Ebene des Lichtes, die senkrechte Komponente  $p_x$  wurde für Beträge von maximal 0,5 a.u. ausprojiziert. Für die Messung wurde eine Elliptizität von  $\epsilon = 0,85$  gewählt, die Drehung des zeitabhängigen elektrischen Feldes  $\vec{E}(t)$  erfolgt im Uhrzeigersinn (zu kleineren Werten von  $\phi = \text{atan2}(p_z, p_y)$ ). Zwei unterschiedliche Laserleistungen (450 mW und 620 mW) wurden eingestellt und abwechselnd für jeweils 5 Minuten gemessen. Abb. 9.1 zeigt die Elektronenimpulsverteilungen projiziert auf die Polarisations Ebene in Polarkoordinaten für 450 mW (a) und 620 mW (b) Laserleistung. Es sind vier ATI-Peaks ersichtlich, deren Intensität mit steigendem  $p_r$  deutlich abnimmt. In einem weiteren Auswertungsschritt wurden die die Ereignisse für jeden der vier ATI-Peaks in einem Intervall von  $p_r$  (siehe farbige Kästen) zu eindimensionalen Winkelverteilungen aufsummiert. Diese sind für die beiden gewählten Laserleistungen in Abb. 9.1 c und d in den jeweiligen Farben dargestellt. Es ist bereits hier ist eine Verschiebung der Winkelverteilung in Abhängigkeit von  $p_r$  ersichtlich.

Ein großer Teil der registrierten Elektronen wurde in Koinzidenz mit einem  $\text{H}_2^+$ -Ion gemessen. Hieraus bietet sich die Möglichkeit eines Vergleiches energieaufgelöster Attoclock-Drehwinkel für unterschiedliche Ionisationspotentiale  $I_p$  unter ansonsten gleichen Bedingungen. Auf eine detaillierte Interpretation der Abweichungen wird aufgrund weiterer Einflussfaktoren auf die Elektronenwinkelverteilungen aus der Ionisation molekularer Systeme jedoch verzichtet (siehe Abschnitt 10.2). Abb. 9.2 zeigt eine analoge Darstellung zu Abb. 9.1 für Elektronen, die in Koinzidenz mit einem  $\text{H}_2^+$ -Ion gemessen wurden. Auch hier sind vier ATI-Peaks erkennbar, die ebenfalls für größere Werte von  $p_r$  eine Zunahme des Winkels im Drehsinn des elliptisch polarisierten Lichtes zeigen.

Die in Abb. 9.1 und 9.2 gezeigten eindimensionalen Winkelverteilungen wurden Fourier-transformiert und die Winkelpositionen  $\Phi$  der Maxima der zweifachsymmetrischen Fourier-Komponente  $F_2$  bestimmt (siehe Anhang B). Die resultierenden Werte von  $\Phi$  sind in Abb. 9.3 a gegen  $p_r$  aufgetragen. Der jeweilige Wert von  $p_r$  für jeden ATI-Peak wurde durch einen Gauß-Fit ermittelt. Die Winkel  $\Phi$  zeigen Änderungen von etwa  $40^\circ$  über den betrachteten Bereich von  $p_r$ . Die Elektronen, die in Koinzidenz mit einem  $\text{H}_2^+$ -Ion gemessen wurden, weisen bei

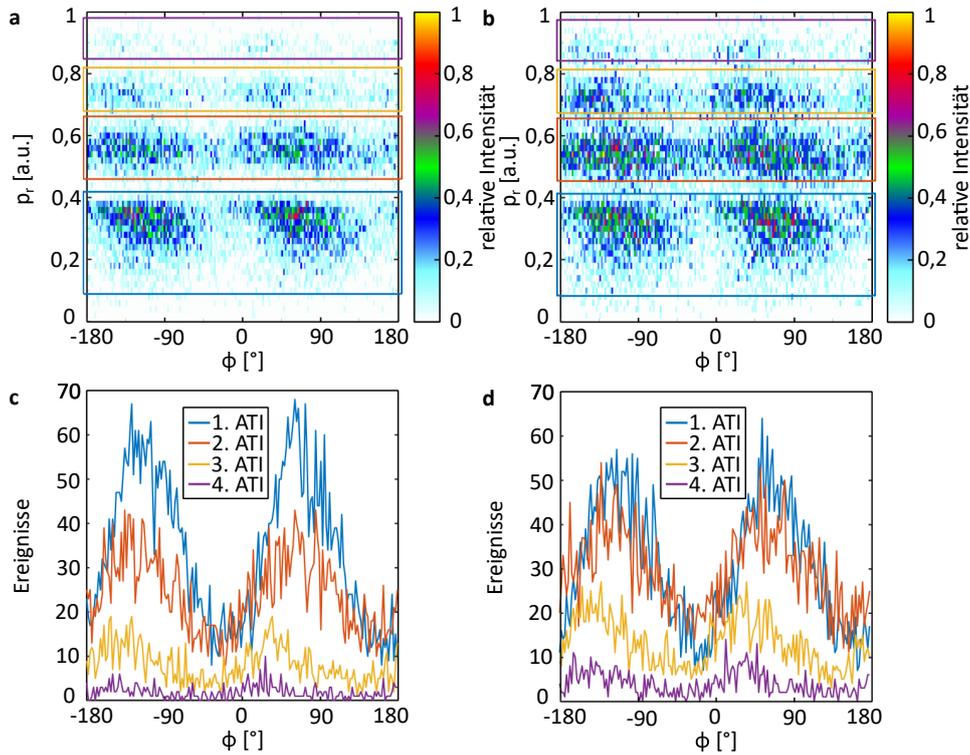


Abbildung 9.1: Gemessene Impulsverteilung von Elektronen, die aus der Ionisation von atomarem Wasserstoff stammen, projiziert auf die Polarisationssebene für eine Laserleistung von 450 mW (a) und 620 mW (b). c und d Eindimensionale Projektionen der Winkelverteilung für jeden ATI-Peak (Die jeweiligen Abschnitte sind durch die farbigen Kästen in a und b dargestellt). Aus diesen Projektionen wurden die Winkel  $\Phi$  extrahiert. Siehe auch: Abbildung 5.13 in [118]

ähnlichem  $p_r$  durchweg einen um etwa  $20^\circ$  größeren Wert für  $\Phi$  auf, die Positionen der Datenpunkte auf der  $p_r$ -Achse sind entsprechend dem Unterschied in  $I_p$  wie nach Gl. 2.6 zu erwarten verschoben. Es gilt zu beachten, dass die Änderungen von  $\Phi$  zwischen den einzelnen ATI-Peaks unabhängig von der absoluten Definition von  $\Phi=0^\circ$  sind.

Der Winkel  $\Phi$  stellt einen gemessenen Winkel im Laborsystem dar. Das physikalisch aussagekräftigere Bezugssystem für die Ionisation in einem elliptisch polarisierten Lichtfeld ist jedoch durch die Lage der Halbachsen der Ellipse definiert. Wie in Abschnitt 2.3 ausgeführt, stellt  $\alpha_{\text{off}}$  den Winkelunterschied zwischen  $\Phi$  und der Lage der kleinen Halbachse des negativen Vektorpotentials  $-\vec{A}(t)$  dar.

Die absolute Lage der Halbachsen der Ellipse kann auf unterschiedliche Arten bestimmt werden. Für die vorliegende Arbeit wurde die Emissionsrichtung von  $H^+$ -Ionen aus der Reaktion  $H_2 \rightarrow H + H^+ + e^-$  genutzt. Hieraus ergeben sich die in Abb. 9.3 b dargestellten Winkel  $\alpha_{\text{off}}$ . Eine weitere Möglichkeit besteht darin, die Lage der großen Halbachse direkt vor dem Eintritt in die Messapparatur durch eine Abfolge aus Polarisator und Leistungsmessgerät mit entsprechender Kalibration zueinander zu bestimmen [20]. Auch diese Methode wurde für die Messung an atomarem Wasserstoff angewandt, die jeweiligen Ergebnisse werden im Folgenden dargestellt und diskutiert.

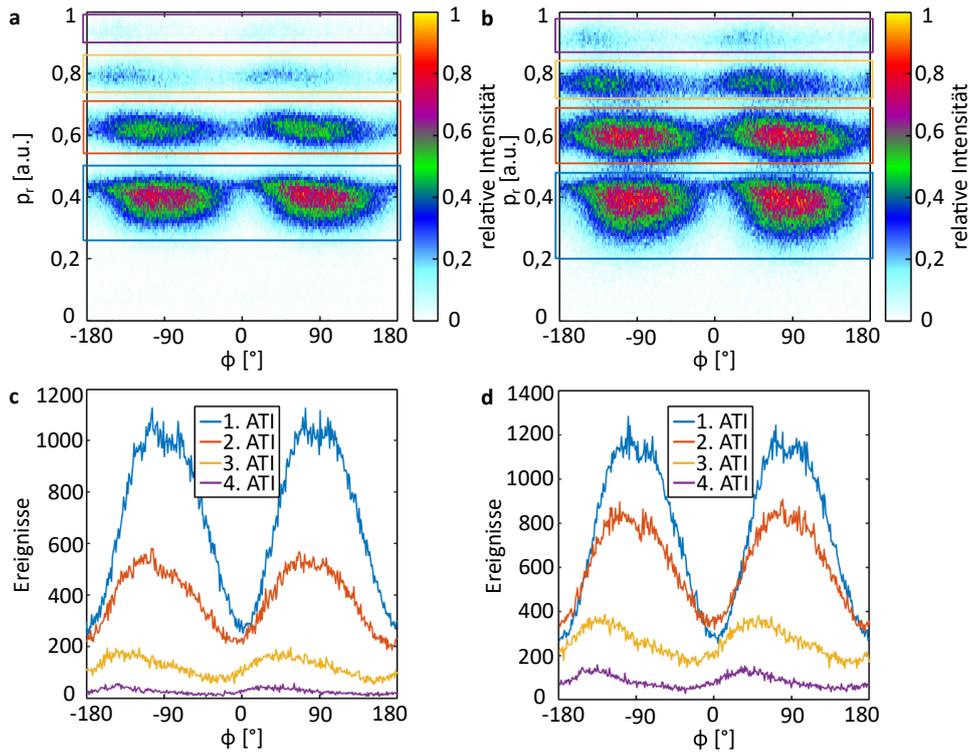


Abbildung 9.2: Gemessene Impulsverteilung von Elektronen, die in Koinzidenz mit  $\text{H}_2^+$  Ionen detektiert wurden, projiziert auf die Polarisations Ebene für eine Laserleistung von 450 mW (a) und 620 mW (b). c und d Eindimensionale Projektionen der Winkelverteilung für jeden ATI-Peak (Die jeweiligen Abschnitte sind durch die farbigen Kästen in a und b dargestellt). Aus diesen Projektionen wurden die Winkel  $\Phi$  extrahiert. Siehe auch: Abbildung 5.14 in [118]

Der für die Bestimmung der Halbachsen der Ellipse genutzte Aufbruch  $\text{H}_2 \rightarrow \text{H} + \text{H}^+ + e^-$  vollzieht sich in zwei Schritten (siehe auch 10.1). Durch die Ionisation des Wasserstoffmoleküls entsteht zunächst ein  $\text{H}_2^+$ -Ion im  $1s\sigma_g$ -Zustand [126]. Der internukleare Abstand wächst, bis eine Kopplung an den dissoziierenden  $2p\sigma_u$ -Zustand durch ein einzelnes Photon des ionisierenden Laserpulses resonant wird (siehe bspw. FIG. 1 in [126]). Über diesen erfolgt dann die Dissoziation des  $\text{H}_2^+$ -Ions in ein neutrales Wasserstoffatom und ein  $\text{H}^+$ -Ion entlang der Molekülachse. Letzteres folgt aus der 'axial recoil approximation' [127, 128] und wird beispielsweise auch in [7] genutzt. Die Wahrscheinlichkeit für diese Kopplung hängt direkt von der Stärke des elektrischen Feldes ab, sodass die Maxima in der Winkelverteilung der resultierenden  $\text{H}^+$ -Ionen die große Halbachse der Polarisationsellipse abbilden.

Abb. 9.4 zeigt die Impulsverteilung von  $\text{H}^+$ -Ionen in der Polarisations Ebene für die Ionisation durch linear (a) bzw. elliptisch (b) polarisiertes Licht. Der soeben beschriebene Dissoziationsvorgang führt zu einem Radialimpuls von etwa 9 a.u. Die roten Kästen kennzeichnen die entsprechend weiter berücksichtigten Ionen. Ferner findet sich ein weiterer Aufbruchskanal mit höheren Radialimpulsen. Bei diesem handelt es sich um die Reaktion  $\text{H}_2 \rightarrow 2\text{H}^+ + 2e^-$ , also der Erzeugung von zwei  $\text{H}^+$ -Ionen, deren elektrostatische Abstoßung zu einer sogenannten Coulomb-Explosion führt [129]. Die Erzeugung zweier ionischer Fragmente führt zu der in Abb. 9.4 b zu erkennenden "Kante". Diese ist darauf zurückzuführen, dass nur das zuerst innerhalb des zeitlichen Aufnahme Fensters (siehe Abschnitt 6.2) regis-

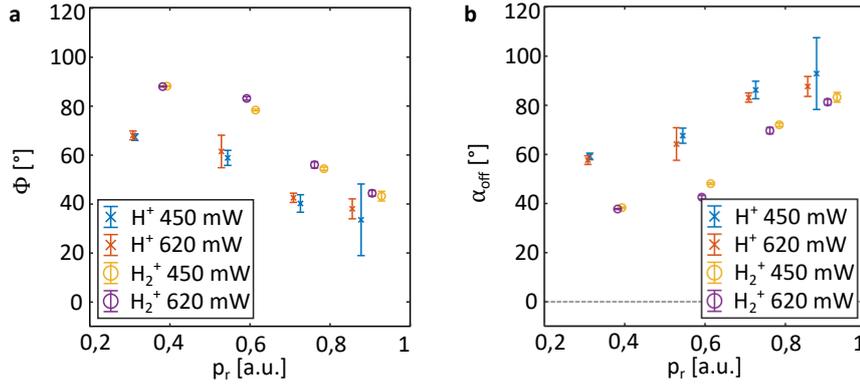


Abbildung 9.3: **a** Gemessener Winkel  $\Phi$  der zweifach-symmetrischen Fourier-Komponente  $F_2$  für die in Abbildung 9.1 c, d und Abbildung 9.2 c, d gezeigten Winkelverteilungen. **b** Die Anwendung der Korrekturwinkel  $\Delta\Phi_{\text{Detektor}}$  und  $\Phi_{H^+ \text{-Ionen}}$  liefert die Attoclock-Winkel  $\alpha_{\text{off}}$  für die beiden gemessenen Laserleistungen und die betrachteten Koinzidenzen.

trierte Teilchen berücksichtigt wird. Während dieser Aufbruchskanal für linear polarisiertes Licht dominiert, ist seine Wahrscheinlichkeit für den Fall elliptisch polarisierten Lichts deutlich reduziert.

Zur quantitativen Analyse wurden die in Abb. 9.4 a und b markierten Ionenimpulse auf die  $\phi$ -Achse projiziert. Abb. 9.4 c(d) zeigt die resultierende eindimensionale Winkelverteilung und die extrahierte zweifach-symmetrische Komponente  $F_2$  für den Fall linearer (elliptischer) Polarisation. Die aus diesen eindimensionalen Verteilungen extrahierten Winkel liegen bei  $\Phi_{H^+, \text{linear}} = 13,24^\circ$  und  $\Phi_{H^+, \text{elliptisch}} = -148,92^\circ$  für 450 mW bzw.  $\Phi_{H^+, \text{elliptisch}} = -149,68^\circ$  für 620 mW. Während der jeweilige Wert von  $\Phi_{H^+, \text{elliptisch}}$  prinzipiell zur Berechnung von  $\alpha_{\text{off}}$  ausreichen würde, kann noch eine weitere Korrektur berücksichtigt werden. Hierbei handelt es sich um die mögliche Drehung in der Polarisationsebene zwischen dem Koordinatensystem des Ionen- und dem des Elektronendetektors. Hierzu wurde die Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationsebene für linear polarisiertes Licht untersucht. Abb. 9.4 e zeigt die entsprechende Winkelverteilung und die zweifach-symmetrische Komponente  $F_2$ . Hieraus wurde der Winkel  $\Phi_{e-, \text{linear}} = 18,01^\circ$  bestimmt, was einer Abweichung von etwa  $3^\circ$  zwischen dem System des Ionen- und dem des Elektronendetektors entspricht. Damit ergibt sich für den Attoclock-Winkel  $\alpha_{\text{off}}$ :

$$\alpha_{\text{off}} = -\Phi + \Phi_{e-, \text{linear}} - \Phi_{H^+, \text{linear}} + \Phi_{H^+, \text{elliptisch}} \quad (9.2)$$

Hierbei wurden die Vorzeichen so gewählt, dass  $\alpha_{\text{off}}$  einen positiven Wert annimmt, obwohl die Helizität des Lichtes ursprünglich im Uhrzeigersinn und damit zu kleineren Werten von  $\phi$  drehend gewählt wurde. Die sich ergebenden Werte von  $\alpha_{\text{off}}$  sind in Abb. 9.3 b dargestellt und sind damit konsistent mit den in [6] publizierten Werten.

Abb. 9.4 f zeigt die gemessene Laserleistung in mW für unterschiedliche Winkelorientierungen eines Polarisators für den Fall linearer und elliptischer Polarisation, sowie die extrahierten zweifach-symmetrischen Komponenten  $F_2$ . Die entsprechenden Winkel  $\Phi_{\text{Pol}, \text{linear}} = -88,69^\circ$  und  $\Phi_{\text{Pol}, \text{elliptisch}} = -61,28^\circ$  können mit  $\Phi_{e-, \text{linear}}$  in das System des Elektronendetektors gedreht werden. Die so ermittelte Orientierung der Polarisationsellipse weicht um etwa  $10^\circ$  von der aus der Win-

kelverteilung der  $H^+$ -Ionen bestimmten ab (siehe auch Abb. 5.12 in [118]). Die Elliptizität kann aus der Wurzel des Verhältnisses von minimaler zu maximaler Leistung ermittelt werden und liegt bei  $\epsilon = 0,79$  (siehe Abschnitt 9.3 zum Zustandekommen des publizierten Wertes von  $\epsilon = 0,85$ ). Ein Nachteil der Methode könnte in der Linearität des Leistungsmessgerätes, welches alle Komponenten des eingestrahlten Lichtes zeitunabhängig misst, liegen. Für den zu untersuchenden Ionisationsprozess sind hingegen nur die Felder hoher Intensität im Zentrum des Pulses relevant, andere Beiträge sind exponentiell unterdrückt. Ein weiteres Problem liegt darin, dass das Laserlicht auf eine Leistung von etwa 100 mW abgeschwächt werden musste, um den Polarisator nicht zu beschädigen. Da die Leistungsregulierung in dem verwendeten optischen Aufbau ZFA<sub>1</sub> durch eine Abfolge von  $\lambda/2$ -Wellenplättchen und Dünnschichtpolarisator erfolgt, kann dessen endliches Kontrastverhältnis von etwa 1:1000 in Bezug auf die transmittierte Leistung abhängig vom Grad der Abschwächung zu Änderungen der Polarisation führen (siehe Anhang C).

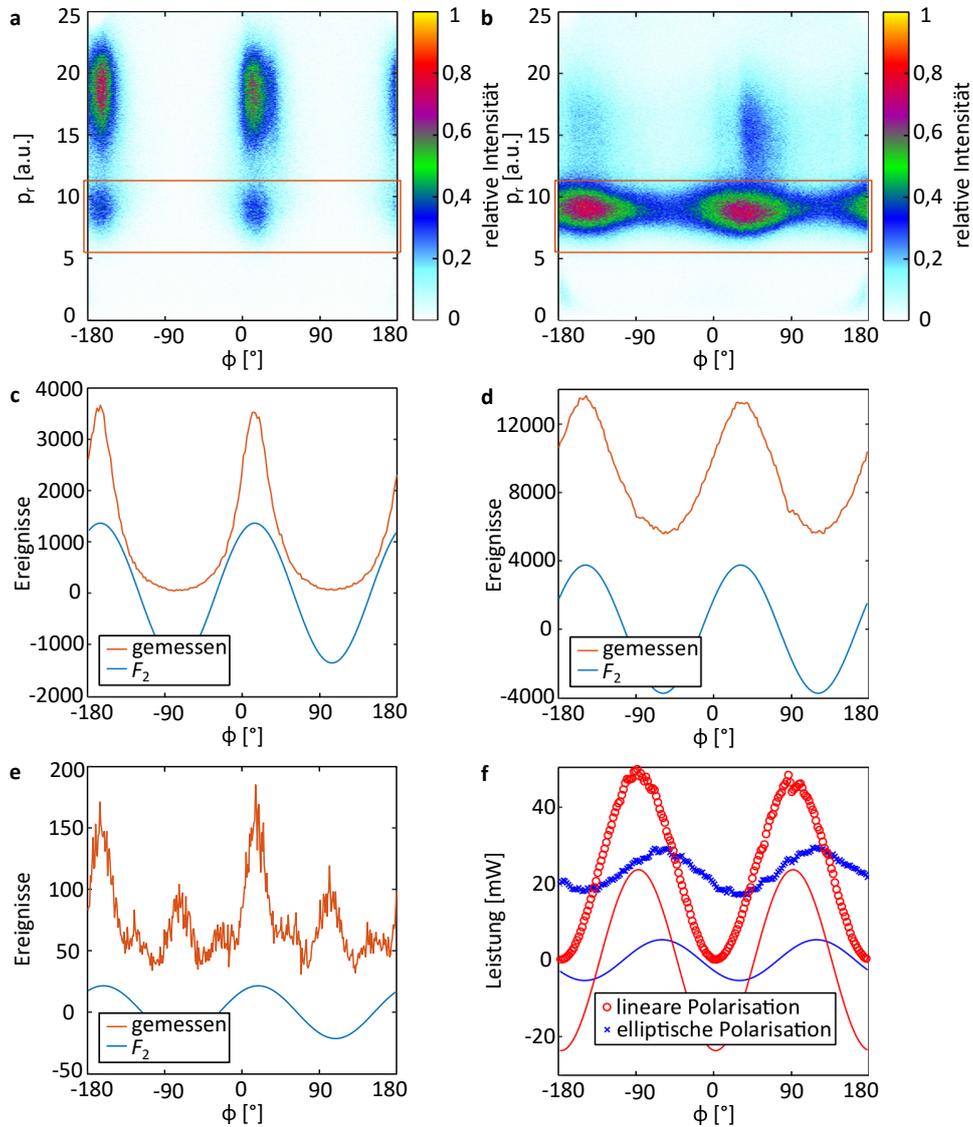


Abbildung 9.4: Bestimmung der Korrekturwinkel zur Ermittlung der Lage der langen Halbachse der elliptischen Polarisation. (Siehe auch: Abbildung 5.9 und 5.10 in [118]) **a** Gemessene Impulsverteilung von  $H^+$ -Ionen projiziert auf die Polarisationssebene für linear polarisiertes Licht. **b** Gemessene Impulsverteilung von  $H^+$ -Ionen projiziert auf die Polarisationssebene für elliptisch polarisiertes Licht. **c(d)** Aus **a(b)** projizierte Winkelverteilung der  $H^+$ -Ionen, die aus der Reaktion  $H_2 \rightarrow H + H^+ + e^-$  stammen. **e** Eindimensionale Winkelverteilung von Elektronen für linear polarisiertes Licht. **f** Gemessene Leistung in Abhängigkeit von der Winkelposition des Polarisators für linear und elliptisch polarisiertes Licht.

## 9.3 VERGLEICH DER EXPERIMENTELLEN DATEN MIT AB INITIO THEORIE

Die bei einer Laserleistung von 450 mW gemessenen experimentellen Elektronenimpulsverteilungen wurden mit Lösungen der zeitabhängigen Schrödingergleichung (TDSE) für verschiedene Intensitäten, zentrale Wellenlängen, Elliptizitäten und Pulslängen verglichen. Alle Rechnungen wurden von *Simon Brennecke* durchgeführt. Dabei zeigte sich die beste Übereinstimmung für die folgenden Parameter [6]:

- Zentrale Wellenlänge:  $\lambda = 390$  nm
- Elliptizität:  $\epsilon = 0,85$
- Spitzenintensität:  $I_{\max} = 1,4 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> (lange Halbachse  $E_{\max} = 0,046$  a.u.)
- mittlere Intensität im Fokus:  $I_{\text{mittel}} = 9 \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> (lange Halbachse  $E_{\text{mittel}} = 0,037$  a.u.)
- Pulslänge: 20 optische Zyklen,  $\sin^2$ -Einhüllende

Die Abweichungen von den z.T. unabhängig experimentell ermittelten Parametern sollen im Folgenden kurz diskutiert werden.

Aus der nominellen fundamentalen Wellenlänge des Lasersystems Wyvern von 790 nm wäre eine Wellenlänge von  $\lambda = 395$  nm erwartbar gewesen. Vorige Messungen des Spektrum außerhalb der Experimentierkammer haben jedoch Werte von etwa 392 nm gezeigt, was einen Wert von  $\lambda = 390$  nm plausibel erscheinen lässt. Die Elliptizität war durch einen Polarisator auf  $\epsilon = 0,79$  bestimmt worden, während der Vergleich mit der TDSE einen tatsächlichen Wert von  $\epsilon = 0,85$  nahelegt. Allerdings ist eine Abweichung dieser Größenordnung durch die Methodik zu erwarten, wobei sowohl die Linearität der Leistungsmessung als auch die Leistungsabschwächung durch ein  $\lambda/2$ -Wellenplättchen mit Dünnschichtpolarisator (siehe Anhang C) berücksichtigt werden müssen.

Die einer gemessenen Leistung von 450 mW entsprechende Intensität wurde experimentell auf  $(5,2 \pm 0,75) \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> bestimmt (siehe Abschnitt 5.1.3 in [118]). Ein Vergleich mit Lösungen der TDSE legt hingegen eine mittlere zur Ionisation beitragende Intensität von  $I_{\text{mittel}} = 9 \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> nahe, was unter Anwendung der fokalen Mittelung aus [130] einer Spitzenintensität von  $I_{\max} = 1,4 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> entspricht. Abb. 9.5 a zeigt die sich aus der Lösung der TDSE ergebenden Beiträge der jeweiligen Intensitäten zu der fokal gemittelten Radialimpulsverteilung mit vier erkennbaren ATI-Peaks. Die zu erwartende Verschiebung der Peakpositionen durch das zur Intensität proportionale ponderomotorische Potential ist deutlich sichtbar. Es zeigt sich, dass geringe Intensitäten vor allem zu niedrigen ATI-Ordnungen beitragen, während der vierte ATI-Peak bspw. erst ab einer Intensität von etwa  $0,7 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> nennenswert populiert wird. Abb. 9.5 b stellt die aus der Lösung der TDSE bestimmte fokal gemittelte Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene in Polarkoordinaten nach zeilenweiser Normierung dar. Die eingezeichneten schwarzen Symbole zeigen die Kombinationen aus wahrscheinlichstem Radialimpuls  $p_r$  und  $\alpha_{\text{off}}$  für jeden ATI-Peak bei Intensitäten zwischen  $0,4 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> und  $1,2 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Dabei entspricht '+' einer Intensität von  $0,4 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, '■' einer Intensität von  $1,2 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Neben der bereits zuvor diskutierten Verschiebung zu kleineren Radialimpulsen für höhere Intensitäten, weist auch  $\alpha_{\text{off}}$  eine deutliche Intensitätsabhängigkeit insbesondere für die ersten beiden ATI-Peaks auf. Die fokale Mittelung führt damit zu einer Strukturierung der Korrelation zwischen  $p_r$  und  $\alpha_{\text{off}}$  innerhalb eines ATI-Peaks. Ein Vergleich mit FIG. 2(a) aus [6] zeigt, dass auch die experimentellen Daten eine entsprechende Abhängigkeit aufweisen.

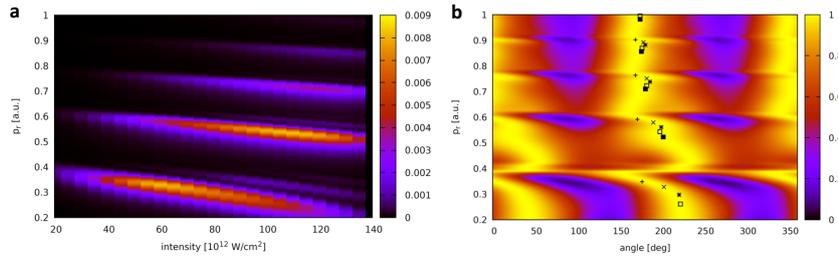


Abbildung 9.5: **a** Aus der Lösung der TDSE bestimmte Radialimpulsverteilung der Elektronen in Abhängigkeit von der Intensität des elliptischen polarisierten Lichts. **b** Aus der Lösung der TDSE bestimmte und zeilenweise normierte Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene für eine Spitzenintensität  $I_{\max} = 1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  unter Berücksichtigung der fokalen Mittelung. Die jeweiligen Kombinationen aus  $p_r$  und  $\alpha_{\text{off}}$  sind für Intensitäten zwischen  $0,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  und  $1,2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  eingezeichnet. Abbildungen erstellt von *Simon Brennecke*.

Neben der fokalen Mittelung wurde auch eine Mittelung der relativen Phase zwischen Lichtschwingung und zeitlicher Einhüllender des Pulses ('carrier-envelope', CE) vorgenommen. Die Abhängigkeit von der in der TDSE angenommenen Pulslänge wurde ebenfalls für 10-, 20- und 30-Zyklen lange Pulse untersucht. Da sowohl die Verteilung der kinetischen Energie der Elektronen als auch die Attoclock-Winkel  $\alpha_{\text{off}}$  keine signifikanten Abweichungen für die unterschiedlichen Pulslängen zeigten, wurde die ursprünglich angenommene Länge von 20 Zyklen beibehalten, obwohl eine experimentelle Abschätzung eine Länge von etwa 50 fs nahelegt, was ca. 40 Zyklen entspricht.

Wie der Vergleich von Abb. 9.6 **a** und **b** deutlich macht, zeigt die aus der Lösung der TDSE berechnete Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene eine hohe Übereinstimmung mit der gemessenen Verteilung. Entgegen der in dieser Arbeit gewählten Konvention wird die Polarisationssebene hier durch die Koordinaten  $xy$  aufgespannt. Die in **a** gezeigten Daten entsprechen der in Abb. 9.1 **a** gezeigten Verteilung, allerdings unter Anwendung der im vorigen Abschnitt 9.2 diskutierten Winkelkorrekturen. Dieser Konvention entsprechend, zeigen die schematischen Ellipsen sowohl die Orientierung der großen Halbachse, als auch die Helizität. Die in Abb. 9.6 **c** gezeigten Energieverteilungen weisen ebenfalls einen hohen Grad an Übereinstimmung auf. Ein quantitativer Vergleich der Attoclock-Winkel  $\alpha_{\text{off}}$  aus dem Experiment und der Lösung der TDSE ist in Abb. 9.8 **a** dargestellt. Die exzellente Übereinstimmung zeigt, wie genau die im vorigen Abschnitt dargestellte Methode zur Bestimmung von  $\alpha_{\text{off}}$  aus  $\Phi$  ist. Zugleich ist damit der Ansatz zu verwerfen, die Lage der Halbachsen der Ellipse durch die Messung der durch einen drehenden Polarisator transmittierten Leistung zu bestimmen. Die von nun an als äquivalent zu betrachtenden Ergebnisse des Experiments und der Lösung der TDSE werden im folgenden Abschnitt mit unterschiedlichen semiklassischen und trajektorienbasierten Zwei-Schritt-Modellen verglichen.

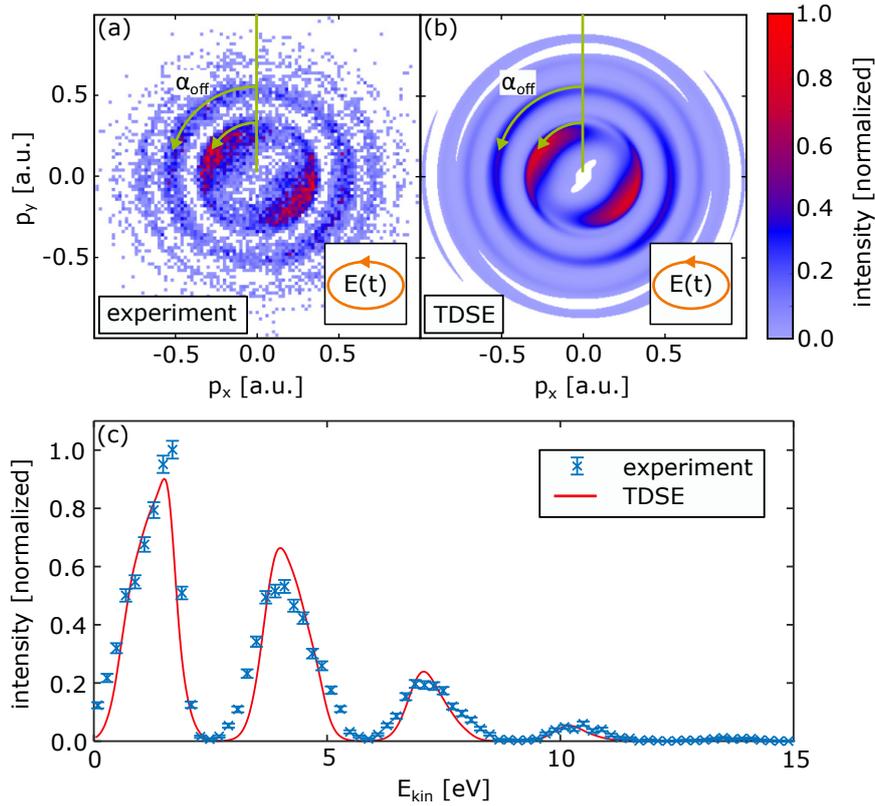


Abbildung 9.6: (a) Gemessene Elektronenimpulsverteilung projiziert auf die Polarisationssebene in kartesischer Darstellung. Das Maximum ist auf 1 normiert. Der Drehsinn des Lichtes und die Orientierung der Polarisationsellipse sind schematisch eingezeichnet. (b) Elektronenimpulsverteilung aus der fokal gemittelten Lösung der TDSE. Das Maximum ist auf 0,8 normiert. Der Attoclock-Winkel  $\alpha_{\text{off}}$  ist eingezeichnet. (c) Vergleich der Elektronenenergieverteilung aus Experiment (blaue Kreuze) und TDSE (rote Kurve). Abbildung entnommen aus [6].

## 9.4 SEMIKLASSISCHE MODELLIERUNG

### 9.4.1 Vergleich von CTS- und NACTS-Modell

Die semiklassische Modellierung von Attoclock-Experimenten erfolgt in der Regel im Rahmen von adiabatischen Zwei-Schritt Modellen [20, 25, 40, 131]. Für die Berechnung der feld- und startimpulsabhängigen Raten wird dabei häufig die ADK-Rate (Gl. 2.12) genutzt. Als Anschlussort für die klassischen Trajektorien an den klassisch verbotenen Bereich wird der durch das TIPIS-Modell beschriebene Tunnelausgang  $\vec{r}_{\text{TIPIS}}$  (entspricht  $\vec{r}_{0,\text{Para}}$  aus Gl. 2.18) angenommen. Ein solches Modell wird im Folgenden als CTS-Modell ('classical two-step', klassisches Zwei-Schritt-Modell) bezeichnet. Es entspricht dem in Abschnitt 2.2 eingeführten SCTS-Modell [13] unter Vernachlässigung von Interferenzen. Für alle semiklassischen Rechnungen wurden die im vorigen Abschnitt aufgeführten, aus dem Vergleich zwischen Experiment und Lösung der TDSE ermittelten Parameter angewendet. Auf eine fokale Mittelung wurde verzichtet und stattdessen die Intensität  $I_{\text{mittel}} = 9 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  angenommen. Es ergibt sich der in Abb. 9.8 a durch eine grüne Kurve gezeigte Verlauf von  $\alpha_{\text{off}}$  in Abhängigkeit von  $p_r$ . Dieser weicht sowohl quantitativ als auch qualitativ stark von den gemessenen Datenpunkten ab.

Da der Keldysh-Parameter von  $\gamma = 3$  das Experiment in den Bereich nicht-adiabatischer Tunnelionisation einordnet, wurde ein weiteres semiklassisches Modell eingeführt, das nicht-adiabatisch korrigierte Anfangsbedingungen nutzt. Dieses sogenannte NACTS-Modell ('non-adiabatic classical two-step', nicht-adiabatisches klassisches Zwei-Schritt-Modell) basiert sowohl auf feld- und startimpulsabhängigen Raten und Anschlussorten an den klassisch verbotenen Bereich aus der SFA (siehe Abschnitt 2.5) für die klassische Propagation. Damit entspricht es dem in [132] genutzten Modell unter Vernachlässigung von Interferenzen. Einen physikalisch wesentlichen Unterschied zu den dem CTS-Modell zugrunde liegenden Anfangsbedingungen der klassischen Trajektorien stellt die nicht verschwindende zu  $\vec{r}_0$  parallele Komponente  $p_{0,\parallel}$  des Startimpulses dar. Außerdem ist der Betrag  $r_0$  wiederum eine Funktion der senkrechten Startimpulskomponente  $p_{0,\perp}$ . Die violette Kurve in Abb. 9.8 a zeigt die durch das NACTS-Modell vorhergesagte Abhängigkeit von  $\alpha_{\text{off}}$  als Funktion von  $p_r$ . Die qualitative Übereinstimmung mit den gemessenen Werten ist wesentlich besser, insbesondere wird die Tendenz zu größeren Werten von  $\alpha_{\text{off}}$  für größere Radialimpulse  $p_r$  nun korrekt wiedergegeben. Im weiteren Verlauf sollen die wesentlichen Unterschiede zwischen den im CTS- und NACTS-Modell getroffenen Annahmen und ihre Auswirkungen näher diskutiert werden.

Abb. 9.8 b zeigt den Betrag des Startortes  $r_0$  als Funktion der senkrechten Startimpulskomponente  $p_{0,\perp}$  (in den folgenden aus [6] entnommenen Abbildungen als  $p_{\perp}$  bezeichnet). Zur Berechnung wurden Gl. 2.18 und 2.20 genutzt und ein elektrisches Feld von 0,046 a.u. und eine Elliptizität von 0,85 angenommen. Die grüne Kurve zeigt den im CTS-Modell angenommenen Startort aus dem TIPIS-Modell. Dieser zeigt keinerlei Abhängigkeit vom senkrechten Startimpuls  $p_{0,\perp}$ . Im Gegensatz dazu ist der Verlauf der auf den Vorhersagen der SFA beruhenden violetten Kurve von einer zunächst starken Verringerung von  $r_0$  mit steigendem  $p_{0,\perp}$  geprägt. Für größere senkrechte Startimpulse wird die Erhöhung des effektiven Ionisationspotentials in Gl. 2.20 dominant und der Betrag  $r_0$  wächst wieder. Abb. 9.8 c skizziert eine mögliche anschauliche Erklärung für die Abhängigkeit von  $r_{\text{SFA}}$  von  $p_{0,\perp}$ : die Anregung eines virtuellen Zwischenniveaus durch Aufnahme von einem oder mehreren Photonen mit darauf folgendem Tunnelschritt. Durch die Form der Barriere setzt dieser Pfad (violette Pfeile) das Elektron bei einem kleineren Wert von  $r_0$  frei, als dies ohne vorige Anregung der Fall ist (grüner Pfeil). Auf diese mögliche Interpretation wird in Abschnitt 9.4.3 näher eingegangen.

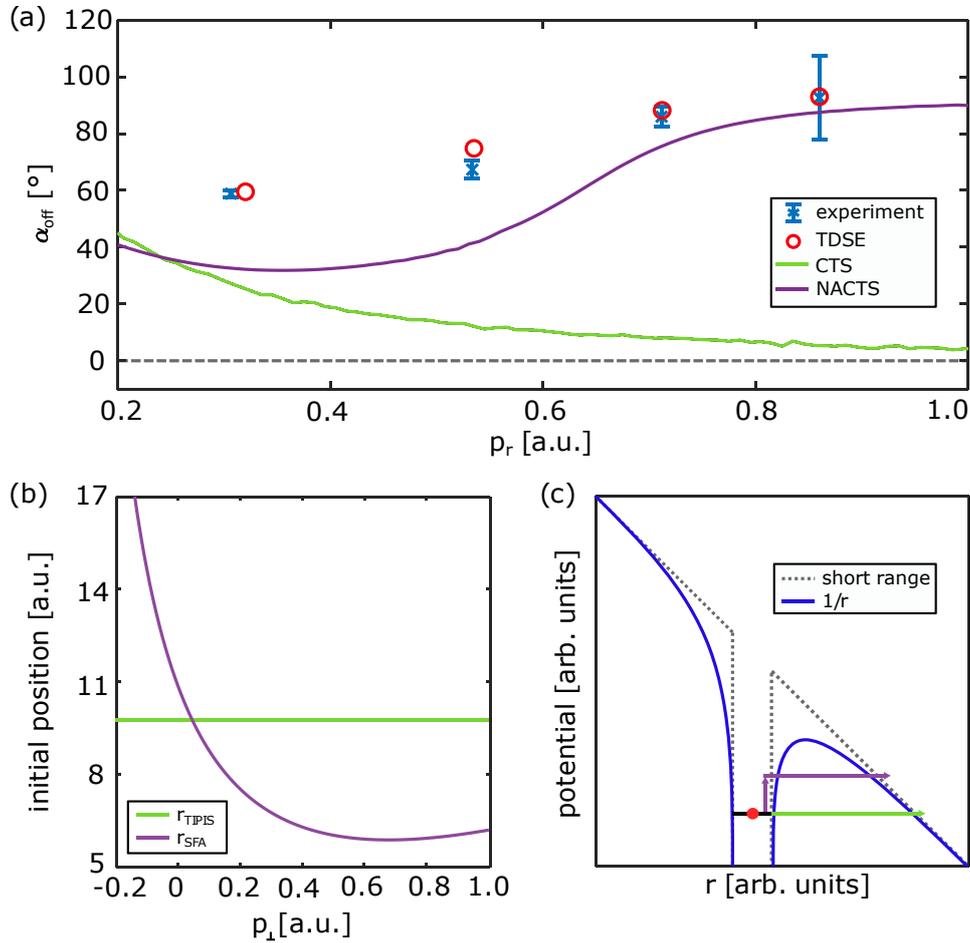


Abbildung 9.7:

Abbildung 9.8: (a) Der Attoclock-Winkel  $\alpha_{\text{off}}$  als Funktion des Radialimpulses  $p_r$  für Experiment, TDSE, CTS- und NACTS-Modell. Die gestrichelte Linie entspricht dem unter Vernachlässigung der Coulomb-Wechselwirkung zu erwartenden Wert. Der Betrag des zum Feldmaximum gehörenden negativen Vektorpotentials ist 0,33 a.u. (b) Vergleich des aus dem TIPIS-Modell resultierenden Tunnelausgangs  $\vec{r}_{\text{TIPIS}}$  und dem von der SFA vorhergesagten Tunnelausgang  $\vec{r}_{\text{SFA}}$  als Funktion von  $p_{0,\perp}$ . Der wahrscheinlichste Startimpuls  $p_{0,\perp}$  liegt gemäß SFA bei 0,15 a.u. (c) Schematische Darstellung einer möglichen mikroskopischen Ursache für die Startimpulsabhängigkeit von  $\vec{r}_{\text{SFA}}$ . Abbildung entnommen aus [7].

### 9.4.2 Geltungsbereich von CTS- und NACTS-Modell für unterschiedliche Keldysh-Parameter $\gamma$

Während sich das NACTS-Modell für die Beschreibung der experimentellen Daten gegenüber dem CTS-Modell als deutlich überlegen herausgestellt hat, soll in einem weiteren Schritt untersucht werden, welche Abweichungen zwischen den Modellen für Keldysh-Parameter  $\gamma < 3$  zu erwarten sind. Außerdem soll versucht werden, den Einfluss der nicht-adiabatischen Korrekturen zur Position des Startortes von dem der nicht-adiabatischen Startimpulse zu unterscheiden. Hierzu wurde eine Variante des NACTS-Modells untersucht, die  $r_{\text{TIPIS}}$  anstatt der Startorte aus der SFA annimmt. Die Startimpulse wurden unverändert aus der SFA übernommen. Ausgehend von der exzellenten Übereinstimmung der Ergebnisse der TDSE mit den experimentellen Daten wurden weitere TDSE Rechnungen für 780 nm und 1170 nm durchgeführt und als absolute Referenz für die trajektorienbasierten Modelle genutzt. Für die Rechnungen wurde auf eine fokale Mittelung verzichtet, eine Mittelung der CE-Phase wurde jedoch vorgenommen.

Abb. 9.9 zeigt die Ergebnisse des CTS-, NACTS- mit  $r_{\text{TIPIS}}$  und des vollständigen NACTS-Modells im direkten Vergleich zu den jeweiligen TDSE Rechnungen. Es wurden insgesamt vier unterschiedliche Wellenlängen und dazugehörige Keldysh-Parameter untersucht, die in vier Zeilen angeordnet sind: 390 nm ( $\gamma=3$ ), 780 nm ( $\gamma=1,5$ ), 1170 nm ( $\gamma=1$ ) und 2340 nm ( $\gamma=0,5$ ). Für Letztere wurde keine TDSE Rechnung durchgeführt. Der Betrag des jeweiligen zur Ionisation am Feldmaximum gehörenden negativen Vektorpotentials ist als horizontale gestrichelte Linie eingezeichnet, der Fall eines Attoclock-Winkels von  $\alpha_{\text{off}} = 0^\circ$  wird durch die vertikalen gepunkteten Linien dargestellt. Eine vergleichbare Darstellung der Ergebnisse aus Experiment, TDSE, CTS- und NACTS-Modell für  $\gamma=3$  findet sich in FIG.2 in [6].

Eine quantitativ besser zu beurteilende Darstellung der in Abb. 9.9 gezeigten Ergebnisse wurde für Abb. 9.10 gewählt. Der Attoclock-Winkel  $\alpha_{\text{off}}$  ist in Abhängigkeit vom Radialimpuls  $p_r$  dargestellt. Die jeweiligen Beträge der zur Ionisation am Feldmaximum gehörenden negativen Vektorpotentiale sind als vertikale gepunktete Linien eingezeichnet. Für eine Wellenlänge von 390 nm zeigen sich die größten Abweichungen der semiklassischen Modelle untereinander. Neben der bereits diskutierten schlechten Übereinstimmung des CTS-Modells mit den Ergebnissen der TDSE Rechnung zeigt sich vor allem die Bedeutung der nicht-adiabatischen Korrekturen zum Startort. Während sowohl das volle NACTS-Modell als auch das NACTS-Modell mit  $r_{\text{TIPIS}}$  eine gute Übereinstimmung für den Drehwinkel des vierten ATI-Peaks zeigen, so ist Letzteres bei der Vorhersage der übrigen Drehwinkel deutlich unterlegen. Dies unterstreicht die Wichtigkeit des in Abschnitt 9.4.3 weiter diskutierten Effekts einer startimpulsabhängigen Änderung des Tunnelausgangs. Bei 780 nm lassen sich auch noch Unterschiede in Abhängigkeit von der Wahl des Startortes finden, während die Vorhersagen des vollen NACTS-Modells und des NACTS-Modells mit  $r_{\text{TIPIS}}$  für 1170 nm und 2340 nm praktisch identisch sind. Es ist zu vermuten, dass die entsprechenden Unterschiede in der Coulomb-Wechselwirkung mit dem Mutterion auf Grund der hohen Driftimpulse von 0,99 a.u. bzw. 1,98 a.u. vernachlässigbar werden. Die quantitative Übereinstimmung des NACTS-Modells mit der TDSE ist für 1170 nm bereits sehr gut. Ein Vergleich bei 2340 nm ist wegen der fehlenden TDSE Daten leider nicht möglich, allerdings ist aus der Tendenz zu kleineren Keldysh-Parametern hin von einer nahezu perfekten Übereinstimmung auszugehen. Der vom CTS-Modell vorhergesagte Kurvenverlauf von  $\alpha_{\text{off}}$  in Abhängigkeit von  $p_r$  zeigt hingegen ein durchweg qualitativ anderes Verhalten als die Ergebnisse der TDSE und der

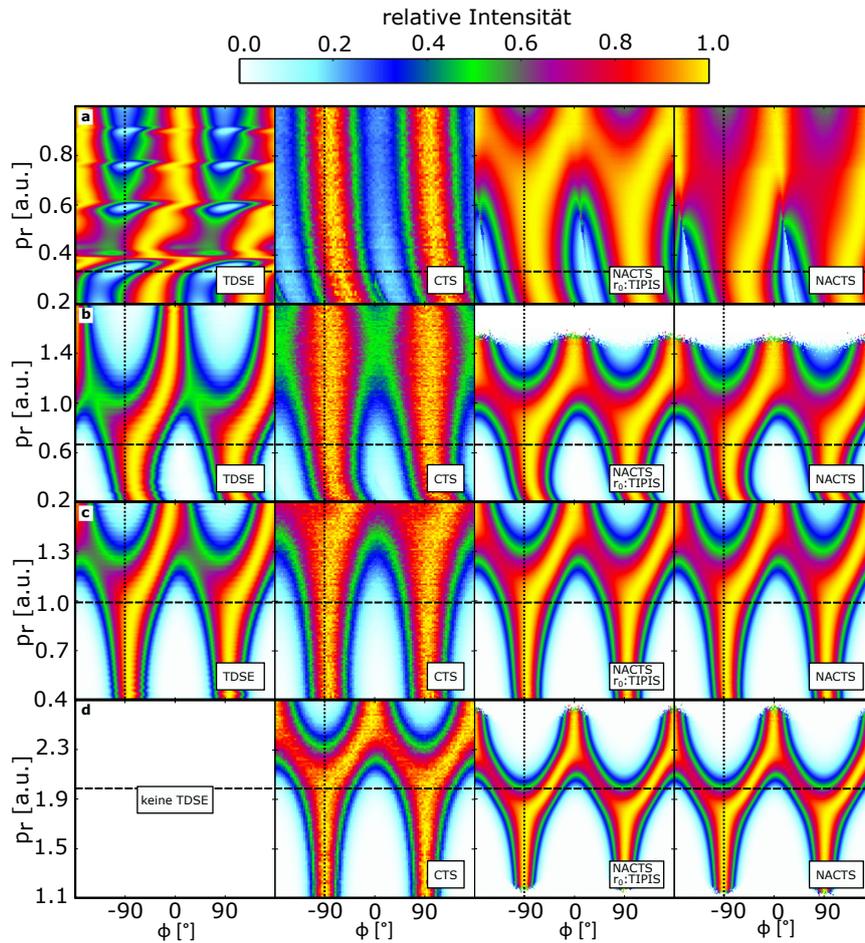


Abbildung 9.9: Vergleich der berechneten Elektronen-Impulsverteilungen in Polarkoordinaten für die Ionisation bei unterschiedlichen Wellenlängen  $\lambda$  und entsprechenden Werten von  $\gamma$ . Gezeigt werden die Ergebnisse einer Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung (TDSE) ohne fokale Mittelung, mit Mittelung über verschiedene CE-Phasen, Ergebnisse des CTS-, NACTS- und NACTS-Modells mit  $r_0$  aus dem TIPIS Modell für  $9 \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>. **a**  $\lambda=390$  nm ( $\gamma=3$ ), **b**  $\lambda=780$  nm ( $\gamma=1,5$ ), **c**  $\lambda=1170$  nm ( $\gamma=1$ ), **d**  $\lambda=2340$  nm ( $\gamma=0,5$ ). Teilabbildung a enthält die in FIG.2 und Fig. S<sub>1</sub> aus [6] gezeigten Daten.

beiden Varianten des NACTS-Modells. Selbst für 2340 nm werden noch große Unterschiede beobachtet. Die starke Tendenz zu größeren Werten von  $\alpha_{\text{off}}$  für große Radialimpulse  $p_r$  ist im Wesentlichen der Geometrie des elliptisch polarisierten Lichts geschuldet. Während das im einfachsten Fall den Endimpuls der Elektronen beschreibende negative Vektorpotential eine elliptische Form besitzt, stellen die ATI-Ringe Interferenzen bei einem jeweils festen Wert von  $p_r$  dar. Daher kann bei anderen Feldgeometrien, wie dem im folgenden Kapitel 10 diskutierten CoRTC-Feld von einer besseren Vorhersagekraft von Modellen mit z.T. adiabatischen Annahmen ausgegangen werden.

Die vorangegangenen Ausführungen bedeutet allerdings nicht, dass das CTS-Modell für  $\gamma < 1$  schlechte Vorhersagen hinsichtlich des Drehwinkels der entlang von  $p_r$  integrierten Elektronenverteilung liefert. Da dieser die bisher übliche Observable von Attoclock-Experimenten darstellt [20, 40, 124], kann das CTS-Modell hier wertvolle Informationen liefern. Werden nur nicht-adiabatische Korrekturen des

Startimpulses, nicht aber des Tunnelausgangs berücksichtigt, ergeben sich für entlang von  $p_r$  integrierte Drehwinkel zum Teil dem CTS-Modell unterlegene Vorhersagen [68, 133, 134]. Andererseits werden seine Grenzen durch die hier diskutierten Beobachtungen nur allzu deutlich.

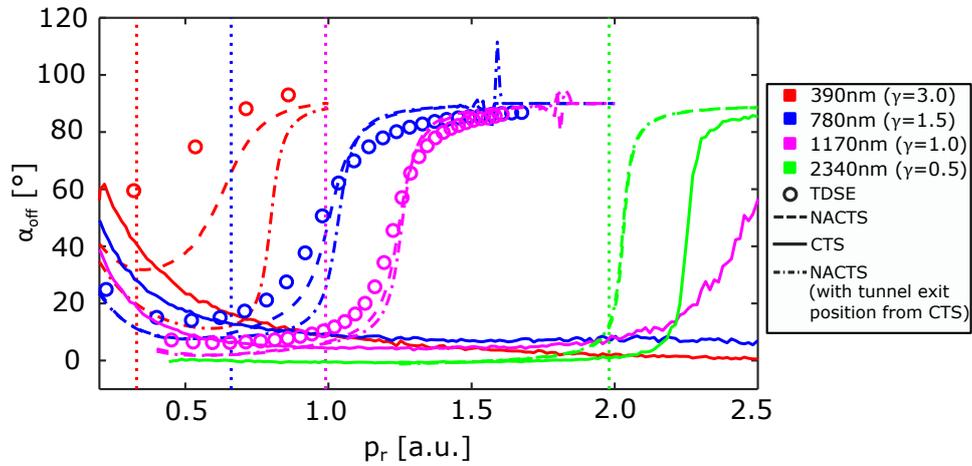


Abbildung 9.10: Aus den in Abb. 9.9 gezeigten Verteilungen bestimmte Attoclock-Winkel  $\alpha_{\text{off}}$  aus der Lösung der TDSE (Kreise), dem NACTS-Modell (gestrichelte Kurven), dem CTS-Modell (durchgezogene Kurven) und dem NACTS-Modell mit  $r_{\text{TIPIS}}$  (strichpunktierte Kurven) als Funktion des Radialimpulses  $p_r$  für unterschiedliche Wellenlängen und Keldysh-Parameter. Die jeweiligen Beträge der zur Ionisation am Feldmaximum gehörenden negativen Vektorpotentiale sind als vertikale gepunktete Linien eingezeichnet. Abbildung entnommen aus [7].

9.4.3 Möglicher Mechanismus der Startimpulsabhängigkeit von  $r_0$ 

Der Vergleich der semiklassischen Modelle untereinander hinsichtlich ihrer Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen legt die Bedeutung nicht-adiabatischer Startimpulsverteilungen und eines von der senkrechten Startimpulskomponente  $p_{0,\perp}$  abhängigen Startortes  $r_0$  nahe. Während sich diese Größen für ein kurzreichweitiges Potential aus der SFA auf natürliche Weise ergeben (siehe Abschnitte 2.5 und 2.6.1), so kann es dennoch von Interesse sein, sich mit möglichen mikroskopischen Mechanismen der nicht-adiabatischen Tunnelionisation zu beschäftigen. Dies gilt insbesondere, wenn statt des in der SFA angenommen kurzreichweitigen Potentials die tatsächliche Coulombwechselwirkung unter der Barriere berücksichtigt wird [134].

Ein solches physikalisches Bild stellt die Aufnahme von Energie während des Tunnelprozesses [134] beziehungsweise der dazu eng verwandte Mechanismus der Absorption virtueller Photonen unter Barriere [135] dar. In beiden Fällen kann von einer diagonalen Trajektorie durch den klassisch verbotenen Bereich in Ort und Energie gesprochen werden, während ein adiabatischer Tunnelprozess einer rein horizontalen Durchquerung der Tunnelbarriere entspräche. Die Konsequenzen für eine Barriere mit einem in der SFA angenommenen kurzreichweitigen Potential (gepunktete Linie) und mit einem langreichweitigen Coulombpotential (blaue Kurve) sind in Abb. 9.8 c skizziert. Hier ist der Fall adiabatischen Tunnelns als horizontaler grüner Pfeil dargestellt. Die violetten Pfeile stellen hingegen die Aufnahme eines Photons mit darauffolgendem Tunneln durch die nun sowohl in der Höhe als auch der Breite reduzierten Tunnelbarriere dar. Auch die Verkürzung von  $r_0$  ist deutlich ersichtlich, und ist für den Fall eines Coulomb-Potentials stärker ausgeprägt, was sich mit den Vorhersagen in [134] deckt. Dies stellt eine mögliche Erklärung der Diskrepanz zwischen den gemessenen und den aus dem NACTS-Modell berechneten Werten von  $\alpha_{\text{off}}$  für niedrige Radialimpulse dar. Eine verstärkte Coulomb-Drehung durch kürzere Abstände zum Mutterion könnte insbesondere für geringe Radialimpulse relevant sein. Zugleich erhöht sich mit der Energieaufnahme unter der Barriere auch der senkrechte Startimpuls  $p_{0,\perp}$ , das Maximum der Startimpulsverteilung kann für  $\gamma \sim 1$  mit  $\epsilon\gamma\sqrt{2I_p}/6$  abgeschätzt werden, für Coulomb-Potentiale ist der Wert kleiner als für kurzreichweitige Potentiale [134]. Die Beschreibung der Energieaufnahme unter der Barriere als virtuelle Photonenabsorption stellt hier eine besonders elegante Erklärung dar. Die Bevölkerung virtueller Zustände durch die Aufnahme von  $n$  Photonen führt im Falle zirkularer Polarisation zu einer 'off-shell'-Wellenfunktion mit den Quantenzahlen  $l = m = n$  [135], was eine Folge der Drehimpulserhaltung ist. Da ein Drehimpuls  $\vec{L} = \vec{r} \times \vec{p}$  sowohl von dem Ortsvektor als auch von der zu ihm orthogonalen Impulskomponente abhängig ist, ergibt sich übertragen auf die Situation am Tunnelausgang eine Koppelung von  $r_0$  und  $p_{0,\perp}$ . Dieser Zusammenhang wurde in Abschnitt 8.5. von [24] illustriert und näher untersucht.

Eine theoretische Arbeit von Ni *et al.* bestimmte mit der Methode der 'back propagation' (siehe Abschnitt 2.6) sowohl die Energie des Elektrons am Tunnelausgang, als auch den Erwartungswert der Tunnelausgangsposition  $\langle r_0 \rangle$  [36]. Letzterer zeigte dann eine gute Übereinstimmung mit den Vorhersagen von Modellen wie  $r_{0,\text{TIPIS}}$ , wenn in diesen anstatt des reinen Ionisationspotentials auch die unter der Barriere aufgenommene Energie berücksichtigt wurde (siehe FIG. 9 (a) [36]). Damit konnte der zuvor diskutierte Zusammenhang zwischen Tunnelausgangsposition und nicht-adiabatischer Energieaufnahme unter der Barriere extern verifiziert werden.

## WINKELAUFGELÖSTE HASE-MESSUNG AM WASSERSTOFFMOLEKÜL

Die in diesem Kapitel dargestellten Ergebnisse basieren im Wesentlichen auf einer Publikation des Autors in der Zeitschrift *Nature Communications* [7]. In dem zugrunde liegenden Experiment wurde die Starkfeldionisation von molekularem Wasserstoff  $H_2$  durch ein im Uhrzeigersinn drehendes CoRTC-Feld untersucht. Dieses setzte sich aus einem  $2\omega$ -Feld mit  $E_{0,390\text{nm}}=0,037$  a.u. und einem  $\omega$ -Feld mit  $E_{0,780\text{nm}}=0,028$  a.u. zusammen. Das HASE-Modell (siehe Abschnitt 3.4) wurde angewandt, um Änderungen der Wignerzeit in Abhängigkeit vom Emissionswinkel des Elektrons relativ zur Molekülachse zu bestimmen. Die gemessenen Werte konnten unter Anwendung des PFT-Modells (siehe Abschnitt 3.4.3) auf die Struktur des Molekülorbitals zurückgeführt, und durch eine numerische Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung und durch SFA-Rechnungen extern verifiziert werden.

An dieser Stelle sollen die einzelnen Auswertungsschritte in einem höheren Detailgrad dargestellt und diskutiert werden, als dies in der Kürze der Originalpublikation möglich war. Zusätzlich wird auf die Observable des dort nicht betrachteten Attoclock-Winkels eingegangen. Schließlich werden die Ergebnisse einer bisher unveröffentlichten Messung gezeigt, deren Ziel es war, den Anteil der fundamentalen  $\omega$  mit einer Wellenlänge von 780 nm an dem CoRTC-Feld systematisch zu variieren und die Auswirkungen auf die experimentellen Observablen zu untersuchen.

Als Vorarbeit zu dem Experiment an  $H_2$  wurde im Rahmen einer durch den Autor betreuten Bachelorarbeit [136] untersucht, ob Tetraflourmethan ( $CF_4$ ) ein geeignetes Untersuchungsobjekt für die HASE-Technik darstellen könnte. Interessant erschienen in dieser Hinsicht sowohl die Symmetrie des Moleküls, als auch die Dominanz der dissoziierenden Zustände  $X^2T_1$  und  $A^2T_2$ . Diese machen durch den Aufbruch  $CF_4 \rightarrow CF_3^+ + F$  die Bestimmung der Lage des Moleküls unter Annahme der 'axial recoil approximation' [127, 128] möglich. Das Molekül wurde in einem  $2\omega$ -Feld mit einer zentralen Wellenlänge von 395 nm einfach-ionisiert und die resultierenden Elektronen- und Ionenimpulsverteilungen untersucht. Allerdings zeigte sich, dass der Bindungsenergieunterschied von etwa 1,1 eV zwischen den beiden dissoziativen Zuständen dazu führt, dass die Unterscheidung von ATI-Peaks und Seitenbändern im gemessenen Elektronenenergiespektrum eines CoRTC-Feldes nicht möglich sein würde.

### 10.1 DAS WASSERSTOFFMOLEKÜL

Das Wasserstoffmolekül stellt das einfachste natürlich vorkommende molekulare System dar. Es besteht aus kovalent gebundenen Wasserstoffatomen und stellt ein 4-Teilchensystem aus zwei Protonen und zwei Elektronen dar. Im Grundzustand  $X^1\Sigma_g 1s\sigma^2$  beträgt der internukleare Abstand  $0,74 \text{ \AA}$  [137]. Durch den Prozess der Starkfeldionisation wird der  $1s\sigma_g$ -Zustand des  $H_2^+$ -Ions bevölkert [138, 139], wobei ein Ionisationspotential von  $I_p=15,43$  eV überwunden werden muss [137], wenn sich das  $H_2^+$ -Ion anschließend im Vibrationsgrundzustand befindet. Tatsächlich wird bei der Starkfeldionisation jedoch eine kohärente Überlagerung von gebundenen Vibrationszuständen des  $H_2^+$ -Ions populiert. Die Propagation des aus dieser

Überlagerung resultierenden Vibrationswellenpakets entlang der Potentialkurve des  $1s\sigma_g$ -Zustands zu größeren internuklearen Abständen ermöglicht die resonante Koppelung durch das Lichtfeld an den dissoziativen  $2p\sigma_u$ -Zustand (siehe bspw. Figure 1 in [139]). Für übliche Photonenenergien der Fundamentalen  $\omega$  um 1,5 eV sind paritätsbedingt Übergänge durch die Aufnahme von einem Photon bzw. drei Photonen möglich, wobei in letzterem Fall durch die spätere Abgabe eines Photons ein effektiver Zwei-Photonen-Übergang realisiert werden kann [138–141]. Es ergibt sich ein Aufbruch  $H_2 \rightarrow H + H^+ + e^-$  in ein neutrales Wasserstoffatom und ein Proton, wobei Letzteres mit dem COLTRIMS-Reaktionsmikroskop experimentell nachweisbar ist. Sein Impuls kann nach der ‘axial recoil approximation’ mit der Stellung der Molekülachse im Raum identifiziert werden. Aus der Gesamtenergie der beiden Fragmente (engl. ‘kinetic energy release’, KER) kann auf den Aufbruchskanal geschlossen werden. Wie schon in dem im vorigen Kapitel 9 vorgestellten Experiment wurden auch in dem CoRTC-Feld der HASE-Messung  $H^+$ -Ionen bei einem Impuls von etwa 9 a.u. gemessen (siehe Abb. 8.13 b). Der sich daraus ergebende KER von etwa 1,2 eV legt die Dissoziation über einen Ein-Photon-Übergang nahe. Um den Rückstoß des Elektrons auf den Schwerpunkt des Moleküls zu kompensieren, wurde die Hälfte des gemessenen Elektronenimpulses vektorieil auf den Impuls des  $H^+$ -Ions addiert [142].

## 10.2 TRENNUNG VON INTERFERENZ UND EINHÜLLENDER

Wie bereits im Abschnitt 3.4 dargestellt, ist die Messung der Änderung von Drehwinkeln der Interferenzstruktur die zentrale Observable einer HASE-Messung. Da diese Observable in Abhängigkeit vom Winkel im Molekülsystem bestimmt werden soll, wurde zunächst der Zwischenwinkel  $\beta$  in der Polarisationssebene zwischen den gemessenen Impulsen des Elektrons und des  $H^+$ -Ions bestimmt:

$$\beta = \phi_{\text{elec}} - \phi_{H^+} \quad (10.1)$$

Dies entspricht wiederum nach der ‘axial recoil approximation’ dem Emissionswinkel des Elektrons relativ zur Molekülachse. Die Definition des Winkels  $\beta$  ist in Abb. 10.1 a illustriert. Die Energieverteilung der Elektronen in Abhängigkeit von  $\beta$  ist in Abb. 10.1 b aufgetragen. Die im weiteren Verlauf betrachteten drei ATI-Peaks und zwei Seitenbänder (SB) sind beschriftet. Maxima bei  $\beta = -120^\circ$  und  $\beta = 60^\circ$  sind deutlich erkennbar. Eine erhöhte Wahrscheinlichkeit für die Emission von Elektronen senkrecht zur Molekülachse ist bereits in der Literatur dokumentiert [138]. Die Auswahl einer spezifischen Molekülorientierung kann dabei den gemessenen Attoclock-Winkel im Laborsystem ändern [143]. Auf diese Observable soll weiter unten in diesem Abschnitt eingegangen werden. Für die gesamte folgende Analyse wurden Elektronen mit Impulsbeträgen senkrecht zur Polarisationssebene von weniger als 0,2 a.u. und Ionen mit Impulsbeträgen senkrecht zur Polarisationssebene von weniger als 2 a.u. betrachtet. Der Radialimpuls der Ionen wurde auf 7,5 a.u. bis 12 a.u. eingeschränkt.

Im nächsten Schritt sollen die Drehwinkel  $\alpha$  der AHR-Struktur (siehe Abschnitt 3.4) im Lichtsystem (siehe Abschnitt 8.6) energieaufgelöst und in Abhängigkeit von  $\beta$  untersucht werden. Hierzu wurden die Daten in Intervalle für  $\beta$  von  $15^\circ$  eingeteilt. Diese Einteilung stellt hierbei in mehrererlei Hinsicht einen Kompromiss dar. Zum einen erlaubt die statistische Qualität der Daten keine beliebig feine Einteilung, zum anderen möchte man die Abhängigkeit der Wignerzeit von der Emissionsrichtung relativ zur Molekülachse möglichst gut aufgelöst studieren. Eine starke Modulation der  $\beta$ -abhängigen Ionisationswahrscheinlichkeit kann dazu führen, dass innerhalb eines Bins unterschiedliche Gewichtungen der Zwischen-

winkel auftreten, was wiederum einen Fehler auf den Werten von  $\Delta\alpha$  zur Folge haben könnte. Dies kann durch ein voriges Heraussnormieren der  $\beta$ -abhängigen Ionisationsrate ausgeschlossen werden. In der ursprünglichen Auswertung der in [7] publizierten Ergebnissen wurde dies zunächst nicht berücksichtigt, ein Vergleich der relevanten Observable  $\Delta\alpha$  mit und ohne vorheriges Normieren führt jedoch zu keinen signifikanten Unterschieden. Für die im Folgenden dargestellten Ergebnisse wurde dennoch die  $\beta$ -Abhängigkeit zu Beginn der Analyse herausnormiert.

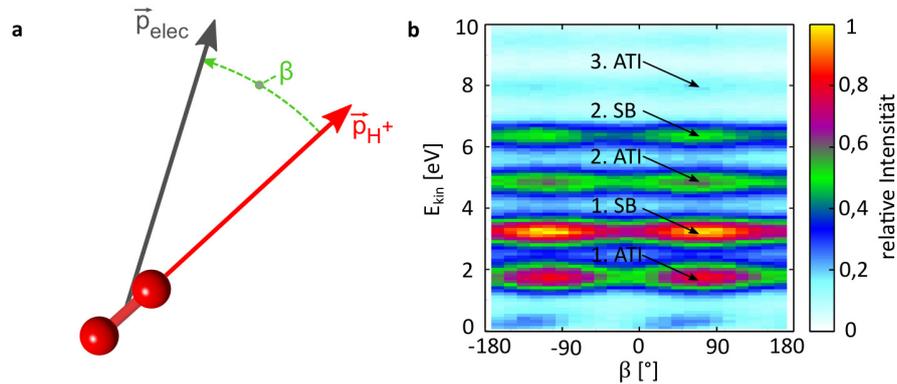


Abbildung 10.1: **a** Schematische Darstellung der Definition des Zwischenwinkels  $\beta$  in der Polarisationssebene für ein rechtshändiges Koordinatensystem. Abbildung modifiziert entnommen aus [7]. **b** Elektronenverteilung in Abhängigkeit von  $\beta$  und der kinetischen Energie.

Für jedes Intervall von  $\beta$  wurden nun die dazugehörigen energieabhängigen Elektronenwinkelverteilungen aufgetragen. Abb. 10.2 a zeigt selbige, allerdings über alle Werte von  $\beta$  integriert. Es zeigt sich der Winkelunterschied von etwa  $180^\circ$  zwischen ATI-Peaks und Seitenbändern (eine kartesische Darstellung der Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene ist in Abb. 8.13 a gezeigt). Die experimentell gemessene Verteilung kann als Produkt einer energie- und winkelabhängigen Einhüllenden und der AHR-Interferenzstruktur aufgefasst werden. Erstere ist vor allem durch die feldabhängige Ionisationswahrscheinlichkeit, Startimpulse am Tunnelausgang und der von  $r_0$  abhängigen Coulomb-Wechselwirkung des Elektrons mit dem Mutterion bestimmt (siehe Kapitel 2), während die Interferenzstruktur über das HASE-Modell den experimentellen Zugriff auf Phasengradienten im Impulsraum zulässt. Eine Zerlegung in beide Beiträge wird dadurch erreicht, dass die Einhüllende der Energieverteilung für jeden Winkel  $\phi$  unter Beibehaltung des Integrals durch die einfach-symmetrische Fourier-Komponente angenähert wird. Dies ist in Abb. 10.2 b exemplarisch für  $\phi = 0^\circ$  dargestellt. Die Wiederholung für alle  $\phi$  ergibt die in Abb. 10.2 c gezeigte zweidimensionale Einhüllende. Es ist eine deutliche winkelabhängige Modulation mit einer Tiefe von ca. 15% ersichtlich, was auf die erhöhte Ionisationswahrscheinlichkeit am Maximum des CoRTC-Feldes zurückzuführen ist. Anhand der Winkelposition der über alle Werte von  $\beta$  integrierten Einhüllenden wurde aus dem Vergleich mit einer SCTS-Rechnung unter Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung des Elektrons mit dem Mutterion die absolute Winkelposition der gemessenen Impulse im Lichtsystem bestimmt (siehe folgender Abschnitt 10.3). Laut Simulation ist ein  $\alpha_{\text{off}}$  von  $-13,9^\circ$  relativ zum Maximum des negativen Vektorpotentials zu erwarten. Das Vorzeichen entspricht der Erwartung für ein im Uhrzeigersinn (zu kleineren Werten von  $\phi$ ) drehendes CoRTC-Feld. Wird  $\phi = 0$  über die maximale

Aufspaltung der beiden Halb-Zyklen des CoRTC-Feldes definiert (siehe Fig. 2 a aus [7]), würde dies eine Drehung der gemessenen Elektronen- und Ionenwinkelverteilungen um  $+97,83^\circ$  erfordern. Es gilt dabei zu beachten, dass bezüglich der Länge des Tunnelausgangs  $r_{\text{TIPIS}}$  (siehe Gl. 2.18) adiabatische Annahmen getroffen wurden, während die nicht-adiabatischen Startimpulse  $\vec{p}_{0,\perp}$  nach Gl. 2.16 bestimmt wurden. Für die damit möglicherweise verbundenen Probleme sei auf die Diskussion der Ergebnisse in Kapitel 9 verwiesen. Für die physikalischen Aussagen zur winkelabhängigen Änderung der Wignerzeit ist die Kenntnis des absoluten Attoclock-Winkels jedoch ohnehin irrelevant. Zur besseren Anschaulichkeit wurden alle in [7] gezeigten Winkel im Lichtsystem um  $+97,83^\circ$  rotiert, was für die weitere Betrachtung hier übernommen wird.

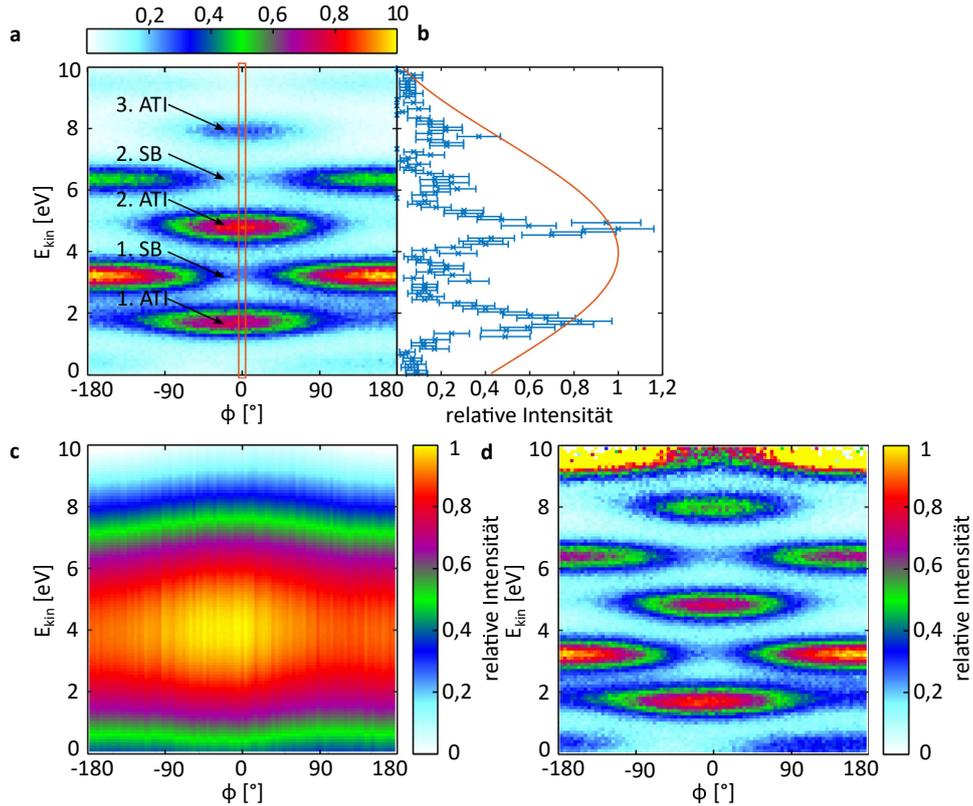


Abbildung 10.2: **a** Energieabhängige Elektronenwinkelverteilung in der Polarisationssebene integriert über alle Werte von  $\beta$ . **b** Für einen ausgewählten Winkel  $\phi$  (roter Kasten in **a**) kann die Energieverteilung (blaue Kreuze) durch die einfach-symmetrische Fourierkomponente unter Beibehaltung des Integrals (rote Kurve) angenähert werden. **c** Die extrahierte Einhüllende aus der in **a** gezeigten Verteilung. **d** Interferenzmuster nach Normieren der Verteilung in **a** mit der in **c** gezeigten Einhüllenden. Vergleiche auch Suppl. Fig. 1 a-c in [7].

Die so gefundene zweidimensionale Einhüllende kann nun genutzt werden, um aus den in Abb. 10.2 a gezeigten Daten das in Abb. 10.2 d dargestellte Interferenzmuster zu extrahieren. Diese Normierung ist ein unerlässlicher Auswertungsschritt, wie die folgende Betrachtung zeigt. Es wurde die Phase der einfach-symmetrischen Fourier-Komponente genutzt, um den jeweiligen Winkel  $\alpha$  für jeden sichtbaren ATI-Peak und jedes Seitenband in Abhängigkeit von  $\beta$  zu bestimmen. Dies wurde zunächst ohne die oben beschriebene Prozedur zur Normierung der Einhüllenden durchgeführt. Die entsprechenden Verläufe von  $\alpha(\beta)$  sind für die ATI-Peaks

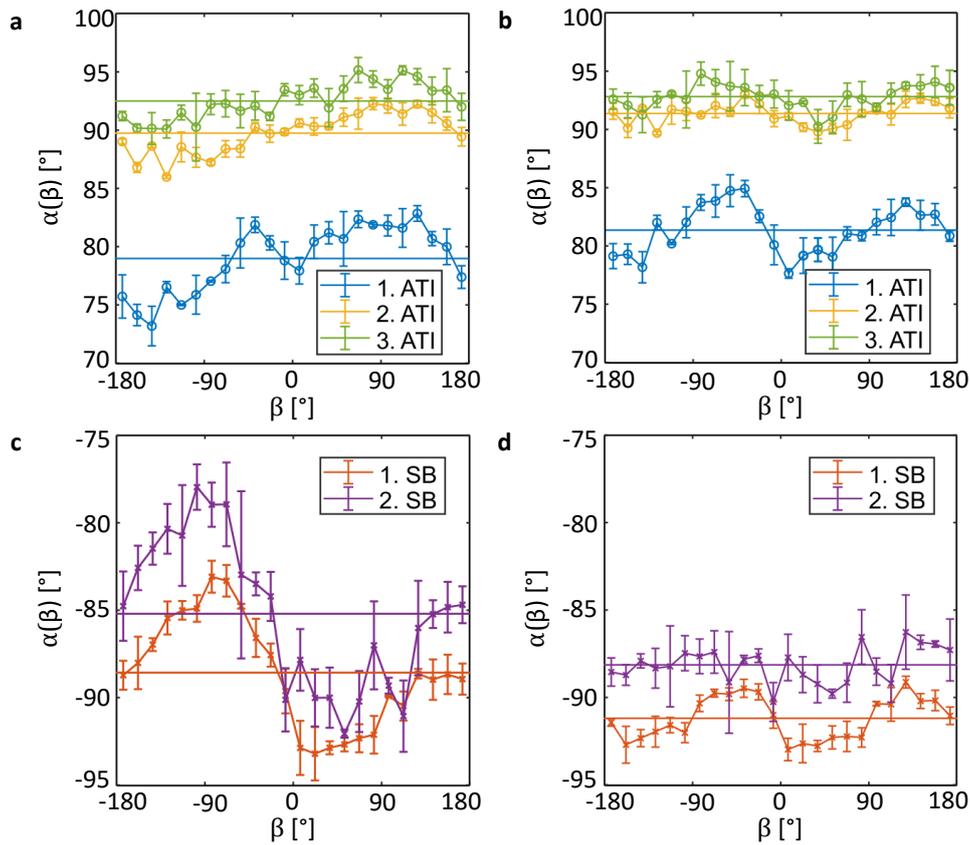


Abbildung 10.3: **a** Experimentell bestimmte Winkel  $\alpha$  in Abhängigkeit von  $\beta$  ohne die beschriebene Extraktion der Einhüllenden aus der energieabhängigen Elektronenwinkelverteilung für die drei untersuchten ATI-Peaks. **b** Wie **a**, jedoch nach dem Normieren der Einhüllenden. **c** **a** für die zwei betrachteten Seitenbänder. **d** Wie **b** für die zwei betrachteten Seitenbänder. Die jeweiligen mittleren Drehwinkel  $\alpha_{\text{mean}}$  pro Energiepeaks sind als horizontale Linien eingezeichnet. Vergleiche auch Fig. 1 c und Suppl. Fig. 3 e,f in [7].

und Seitenbänder in Abb. 10.3 a (c) dargestellt. Die horizontalen Linien geben jeweils den über alle  $\beta$  gemittelten Wert an. Die Kurven zeigen einen einfach-symmetrischen Verlauf, was darauf hindeutet, dass es sich um einen durch die Symmetrie des CoRTC-Feldes dominierten Effekt handelt. Auffällig ist der Phasenschub von  $\pi$  zwischen ATI- und SB-Peaks. Wird  $\alpha(\beta)$  jedoch nach dem Normieren der Einhüllenden bestimmt, ergeben sich qualitativ andere Kurvenverläufe (siehe Abb. 10.3 b,d). Der nun zweifach-symmetrische Kurvenverlauf weist eine deutlich geringere Modulationsamplitude auf. ATI-Peaks und Seitenbänder zeigen nun einen qualitativ gleichen Kurvenverlauf.

Dieser Unterschied lässt sich dadurch erklären, dass die Winkel hauptsächlich von einer  $\beta$ -abhängigen Drehung der Winkelposition des Maximums der Einhüllenden modifiziert werden. Das Produkt des Interferenzmusters mit der Einhüllenden verschiebt die einfach-symmetrischen Winkelverteilungen der ATI-Peaks und Seitenbänder jeweils gegenläufig zueinander. Abb. 10.4 a zeigt die über die kinetische Energie integrierte Einhüllende als Funktion von  $\beta$ . Konsistent zu Abb. 10.1 b werden Maxima bei  $\beta = -120^\circ$  und  $\beta = 60^\circ$  beobachtet. Die Winkelverteilungen weisen eine stark ausgeprägte Einfach-Symmetrie auf. Durch die spaltenweise Bestimmung des Drehwinkels der einfach-symmetrischen Fourier-Komponente er-

gibt sich der in Abb. 10.4 **b** gezeigte Verlauf. Die Definition des gezeigten Winkels entspricht mit  $90^\circ - \alpha_{\text{off}}$  der eines über den Radialimpuls integrierten Attoclock-Winkels, wobei hier nochmals auf die Unsicherheiten bei der Bestimmung der absoluten Referenz hingewiesen sei. Die horizontale gestrichelte Linie gibt die Lage des über alle Werte von  $\beta$  integrierten Drehwinkels der Einhüllenden an. Interessanterweise ist die in Abb. 10.4 **b** gezeigte Abhängigkeit dieses Winkels von  $\beta$  nicht zweifach-symmetrisch, d.h. der Attoclock-Winkel weist eine starke Abhängigkeit von der Emissionsrichtung des Ions auf. Es wird eine Winkeländerung von fast  $50^\circ$  beobachtet. Dies wirkt zunächst überraschend, da Koinzidenzexperimente in der Vergangenheit häufig Observablen in Abhängigkeit vom relativen Winkel zur Molekülachse beobachtet haben [138, 143], was einem zweifach-symmetrischen Kurvenverlauf entsprechen würde. Dies ist wenig verwunderlich, da in den genannten Arbeiten zirkular bzw. elliptische polarisierte Laserpulse genutzt wurden, wenn auch für diesen Fall subtile Abweichungen von der Zweifach-Symmetrie beobachtet wurden [139]. Ein möglicher Grund für die starke Ausprägung dieser Asymmetrie könnte hier in der einfach-symmetrischen Natur des CoRTC-Feldes liegen, welche über die Symmetrie der ansonsten üblichen Beschreibung durch gerade und ungerade Zustände dominiert (siehe auch Kapitel 11). Die Untersuchung dieses Sachverhaltes stellt ein interessantes Ziel weiterer Arbeiten dar. Abb. 10.4 **c** zeigt in Analogie zu **b** den Winkel der zweifach-symmetrischen Fourier-Komponente in Abhängigkeit von  $\beta$ . Da das Zustandekommen dieser Symmetrie nur über die Struktur des  $\text{H}_2$ -Moleküls erklärt werden kann, ist der zweifach-symmetrische Kurvenverlauf als Funktion von  $\beta$  wenig verwunderlich (siehe auch [143]). Die Einhüllende wurde auch auf eine mögliche Verschiebung des Maximums der Elektronenenergieverteilung untersucht. Die in Abb. 10.4 **d** gezeigten Datenpunkte scheinen eine minimale Abhängigkeit aufzuweisen, allerdings ist die Amplitude dieses möglichen Effekts so gering, dass auf eine weitere Diskussion verzichtet wird.

Eine weitere Observable stellt der mittlere Wert  $\alpha_{\text{mean}}$  von  $\alpha$  integriert über alle Werte von  $\beta$  für jeden einzelnen Energiepeak dar. Die jeweiligen Winkel sind in Abb. 10.4 als horizontale Linien eingezeichnet. Abb. 10.5 zeigt die  $\alpha_{\text{mean}}$  aufgetragen gegen die kinetische Energie. Die Bestimmung der Winkel wurde mit (rote Kreuze) und ohne (blaue Kreuze) voriges Heraussnormieren der Einhüllenden durchgeführt. Es werden abgesehen von einer Verschiebung im Winkel keine systematischen Abweichung der aus beiden Methoden resultierenden Kurvenverläufe voneinander festgestellt. Ein Vergleich mit den Werten von  $\alpha$  für Elektronen, die in Koinzidenz mit einem  $\text{H}_2^+$ -Ion gemessen wurden, zeigt, dass Letztere einen um etwa  $5^\circ$  geringeren Attoclock-Winkel aufweisen. Die Mittelung über  $\beta$  entfällt hier naturgemäß und es gilt  $\alpha_{\text{mean}} = \alpha$ . Die im folgenden Abschnitt diskutierte SCTS-Rechnung (violette Kreise) sagt etwas stärkere Drehungen voraus, als im Experiment beobachtet werden. Unabhängig von der absoluten Lage des negativen Vektorpotentials können alle Unterschiede der experimentell bestimmten Werte von  $\alpha_{\text{mean}}$  als konsistent zueinander betrachtet werden.

Durch Subtraktion des jeweiligen Wertes von  $\alpha_{\text{mean}}$  von den für einen bestimmten Energiepeak gemessenen Werten von  $\alpha$  in Abhängigkeit von  $\beta$  ergibt sich die Größe  $\Delta\alpha(\beta) = \alpha(\beta) - \alpha_{\text{mean}}$  [7]. Diese sind für die drei analysierten ATI-Peaks und zwei Seitenbänder in der aus [7] entnommenen Abb. 10.6 gegen  $\beta$  aufgetragen, wobei zuvor eine Symmetrisierung der Daten vorgenommen wurde. Die in Abbildung 10.3 **b,d** gezeigten Werte von  $\alpha(\beta)$  weisen eine Zweifach-Symmetrie bezüglich  $\beta$  auf.  $\beta$  wurde auf ein Intervall von  $-90^\circ$  bis  $90^\circ$  beschränkt, die Datenpunkte bei  $\beta$  und  $\beta + 180^\circ$  wurden zusammengefasst. Der Verlauf von  $\Delta\alpha(\beta)$

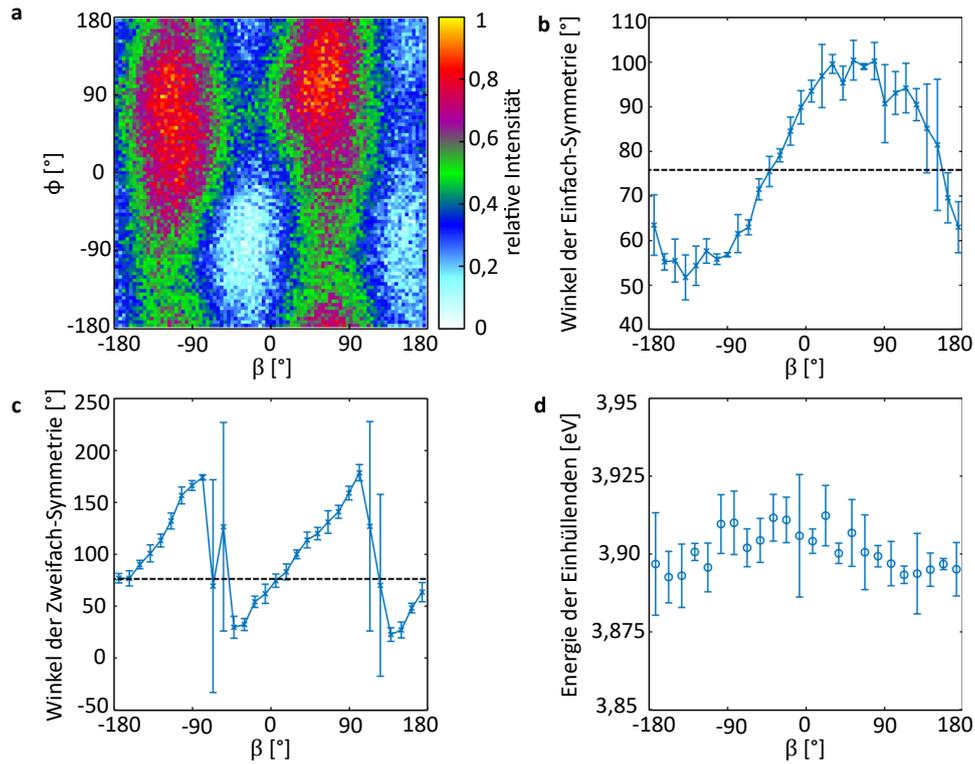


Abbildung 10.4: **a** Die Winkelverteilung der Einhüllenden integriert über die kinetische Energie als Funktion von  $\beta$ . **b** Der Winkel der spaltenweise bestimmten einfach-symmetrischen Fourier-Komponente der in **a** gezeigten Verteilung. **c** Der Winkel der spaltenweise bestimmten zweifach-symmetrischen Fourier-Komponente der in **a** gezeigten Verteilung. **d** Die Abhängigkeit der wahrscheinlichsten kinetischen Energie der Einhüllenden als Funktion von  $\beta$ . Die gestrichelten horizontalen Linien in **b** und **c** stellen den über alle  $\beta$  integrierten Wert von  $90^\circ - \alpha_{\text{off}}$  dar.

weist eine Modulation von einigen wenigen Grad auf und nimmt für höhere Elektronenenergien ab. Im folgenden Abschnitt 10.3 sollen aus  $\Delta\alpha(\beta)$  Änderungen des Phasengradienten entlang des senkrechten Startimpulses bestimmt werden.

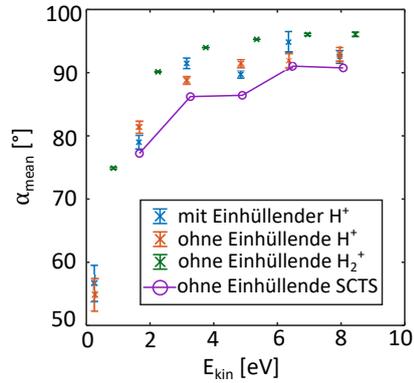


Abbildung 10.5: Mittlerer Wert  $\alpha_{\text{mean}}$  von  $\alpha$  integriert über alle  $\beta$  als Funktion der Energie mit (rote Kreuze) und ohne (blaue Kreuze) voriges Herausrnormieren der Einhüllenden. Die grünen Kreuze zeigen die entsprechenden Werte für Elektronen, die in Koinzidenz mit einem  $\text{H}_2^+$ -Ion gemessen wurden. Die violetten Kreise zeigen die aus der im nächsten Abschnitt 10.3 beschriebenen SCTS-Simulation bestimmten Werte.

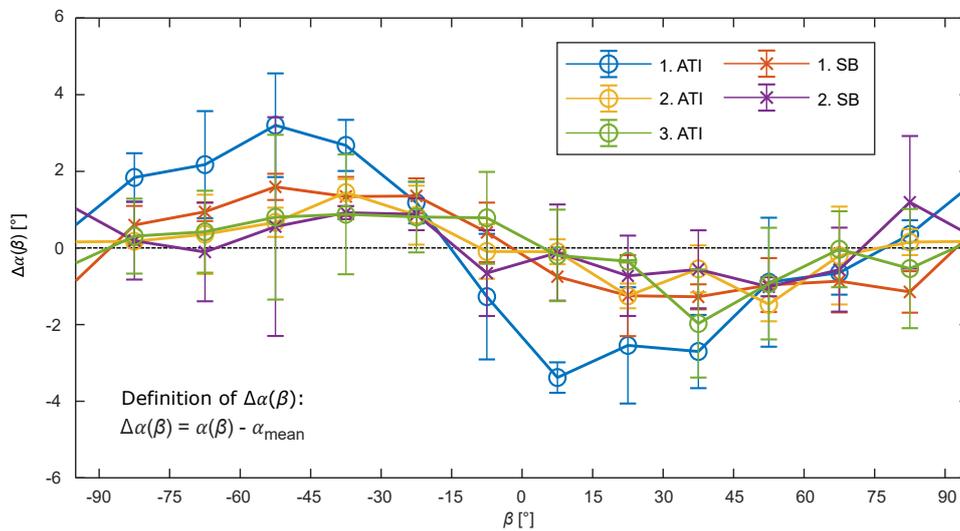


Abbildung 10.6: Symmetrisierte Werte von  $\Delta\alpha(\beta)$  als Funktion von  $\beta$  für die jeweiligen ATI-Peaks und Seitenbänder. Abbildung entnommen aus Teilabbildung c von Fig. 2 in [7].

## 10.3 SEMIKLASSISCHE MODELLIERUNG

Basierend auf dem HASE-Modell wurden semiklassische Modellierungen mit einem modifizierten SCTS-Modell [13] in Analogie zu [61] und [30] durchgeführt, um aus den gemessenen Drehwinkeln  $\Delta\alpha$  die Phasengradienten und Verschiebungen des Startortes senkrecht zum Tunnelausgang und damit Änderungen der Wignerzeit zu bestimmen. Die Rechnungen wurden unter Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektron und Mutterion für ein CoRTC-Feld mit  $E_{0,390\text{nm}}=0,037$  a.u. und  $E_{0,780\text{nm}}=0,0028$  a.u. ohne Gewichtung durch eine feldabhängige Ionisationsrate durchgeführt. Die Startzeitpunkte wurden auf die zwei zentralen Zyklen des CoRTC-Pulses mit konstanter Pulseinhüllender (engl. 'flat-top') eingeschränkt. Es wurden Rechnungen für 5 verschiedene Phasengradienten  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  auf dem senkrechten Startimpuls mit Werten von  $-\pi, -\frac{\pi}{2}, 0, \frac{\pi}{2}$  und  $-\pi$  rad/a.u. durchgeführt.  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  entspricht hier dem in Abschnitt 3.4 eingeführten  $\Phi'_{\text{off}}$ . Die Zahl der berechneten Trajektorien betrug 250 Mio.

Abb. 10.7 a zeigt die berechnete Elektronenimpulsverteilung für  $\Delta\Phi'_{\text{init}} = 0$  projiziert auf die Polarisationssebene  $xy$ . Die Zeitabhängigkeit des Betrags des elektrischen Feldes für den in der Rechnung angenommenen CoRTC-Puls ist in Abb. 10.7 b dargestellt. Es wurden nur Ereignisse berücksichtigt, deren Ionisationszeitpunkt in den zentralen zwei Schwingungszyklen des Lichtfeldes (orange markierter Bereich) lag. Aus der in Abb. 10.7 c gezeigten Darstellung der Impulse in Polarkoordinaten wurden in Analogie zur Auswertung der experimentellen Ergebnisse eindimensionale Winkelverteilungen für jeden Energiepeak ausprojiziert und die Winkel  $\Delta\alpha$  aus der Phase der einfach-symmetrischen Fourier-Komponente bestimmt. Dies wurde für alle angenommenen Werte von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  wiederholt, Abb. 10.7 d zeigt die daraus gefundene Abbildung von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  auf  $\Delta\alpha$ . Aus der SCTS-Simulation lassen sich jedoch noch weitere wichtige Informationen gewinnen.

Um konsistent mit der Darstellung in [7] zu sein, definieren wir  $p_{\text{initial}} = p_{0,\perp}$  unter Berücksichtigung der Vorzeichenkonvention in Gl. 2.13. Wie bereits in Kapitel 3.4.1 dargestellt, ergibt sich die Änderung der Wignerzeit  $\Delta\tau_{\text{Wigner}}$  aus dem Wert des Phasengradienten  $\Phi'_{\text{off}}$  dividiert durch den Endimpuls des Elektrons  $p_{\text{elec}}$  (siehe Gl. 3.9). Implizit wird hierbei angenommen, dass die Volumenelemente  $dp_{\text{initial}}$  und  $dp_{\text{elec}}$  identisch sind, also dass  $\frac{dp_{\text{elec}}}{dp_{\text{initial}}} = 1$ . Diese Annahme gilt nur für ein kurzreichweitiges Potential. Die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektron und Mutterion modifiziert diese Zuordnung und es muss zwischen einem Phasengradienten  $\Delta\Phi'_{\text{initial}}$  im Startimpulsraum und einem Phasengradienten  $\Delta\Phi'_{\text{elec}}$  im Endimpulsraum unterschieden werden (siehe Abschnitt 10.5).  $\frac{dp_{\text{elec}}}{dp_{\text{initial}}}$  kann numerisch aus der bereits diskutierten SCTS-Rechnung bestimmt werden.

In Abb. 10.8 a ist der Endimpuls des Elektrons  $p_{\text{elec}}$  gegen den Betrag  $p_{\text{einfach}}$  der vektoriellen Summe des negativen Vektorpotentials zum Zeitpunkt des Tunnels  $-\vec{A}(t_0)$  und des senkrechten Startimpulses am Tunnelausgang  $\vec{p}_{0,\perp}$  aufgetragen. In einem zirkular polarisierten Lichtfeld entspricht  $p_{\text{einfach}}$  der Summe von  $p_{\text{initial}}$  und dem Betrag von  $-\vec{A}(t_0)$ . Unter Vernachlässigung der Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektron und Mutterion gilt  $p_{\text{elec}} = p_{\text{einfach}}$ , was durch die gestrichelte diagonale Linie dargestellt wird. Dies setzt eine verschwindende Komponente  $\vec{p}_{0,\parallel}$  des Startimpulses voraus, was für (fast) zirkular polarisiertes Licht erfüllt ist. Es zeigt sich, dass unter Einbeziehung der Coulomb-Wechselwirkung alle Trajektorien kleinere Werte des Endimpulses  $p_{\text{elec}}$  erreichen. Mit größeren Werten von  $p_{\text{einfach}}$  reduziert sich die Abbremsung durch das Coulomb-Potential. Die spätere Berechnung von  $\Delta\tau_{\text{Wigner}}$  aus  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  setzt die Näherung voraus, dass ein Wert von

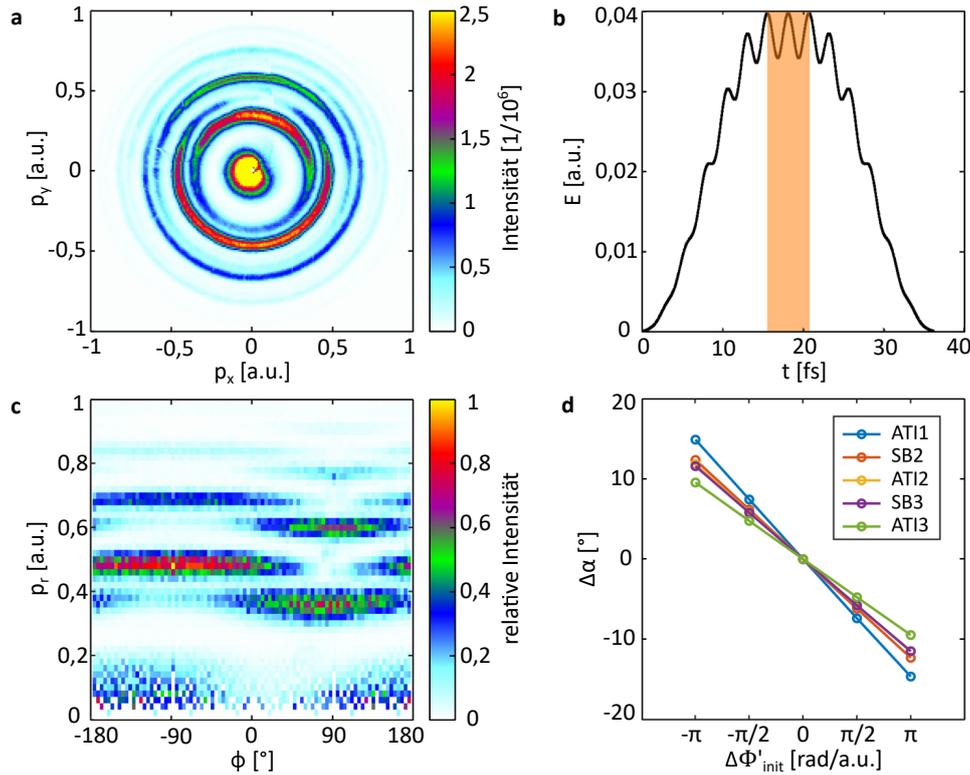


Abbildung 10.7: **a** Elektronen-Impulsverteilung projiziert auf die Polarisationssebene aus der SCTS Rechnung. **b** Betrag des elektrischen Feldes  $E$  des simulierten 'flat-top'-Laserpulses in Abhängigkeit von der Zeit. Der Ionisationszeitpunkt wurde auf die zentralen zwei Zyklen (oranger Bereich) eingeschränkt. **c** Elektronen-Impulsverteilung projiziert auf die Polarisationssebene aus der SCTS Rechnung in Polarkoordinaten. **d** Aus der Variation von  $\Delta\Phi'_{init}$  bestimmte Drehwinkel  $\Delta\alpha$ . Vergleiche auch Suppl. Fig. 2 in [7]

$p_{elec}$  genau einem Wert  $p_{initial}$  zugeordnet werden kann. Dies ist nur bei zirkular polarisiertem Licht der Fall. Daher wurde durch eine weitere SCTS-Rechnung überprüft, ob sich Inkonsistenzen zwischen dem Fall eines CoRTC-Feldes und dem eines reinen zirkular polarisierten  $2\omega$ -Feld mit  $E_{0,390nm}=0.037$  a.u. ergeben. Wie der Vergleich der beiden Spektren in Abb. 10.8 a zeigt, ergeben sich keine erkennbaren Unterschiede für die beiden Laserfelder. Im nächsten Schritt wurde für jeden Endimpuls  $p_{elec}$  der mittlere Wert von  $p_{einfach}$  berechnet und in Abb. 10.8 b dargestellt. Auch hier zeigt sich, dass sich die Zuordnung nicht durch den schwachen Anteil der Fundamentalen  $\omega$  im CoRTC-Feld ändert. Bemerkenswert ist, dass das Kontinuum nur von Trajektorien erreicht wird, die über einen senkrechten Startimpuls  $p_{initial}$  mit positivem Vorzeichen verfügen. Um dies zu verdeutlichen, ist  $-A_{390nm}(t_0)$  als vertikale gepunktete Linie in Abb. 10.8 b eingezeichnet. Aus der Kurve in 10.8 b konnte nun die Steigung und damit die Ableitung  $\frac{dp_{elec}}{dp_{initial}}$  in Abhängigkeit von  $p_{einfach}$  (und damit für zirkulare Polarisation von  $p_{initial}$ ) bestimmt werden. Es zeigt sich, dass der Wert von  $\frac{dp_{elec}}{dp_{initial}}$  für große Impulse gegen 1 konvergiert, was aus der Abnahme der durch die Coulomb-Wechselwirkung bedingten Abbremsung resultiert.

Die beiden durchgeführten SCTS-Rechnung wurden des Weiteren dazu genutzt, die SFA-Simulationen von *Simon Brennecke*, welche von einem kurzreichweitigen Potential ausgehen, auch bezüglich Winkeländerungen auf den realistischeren Fall

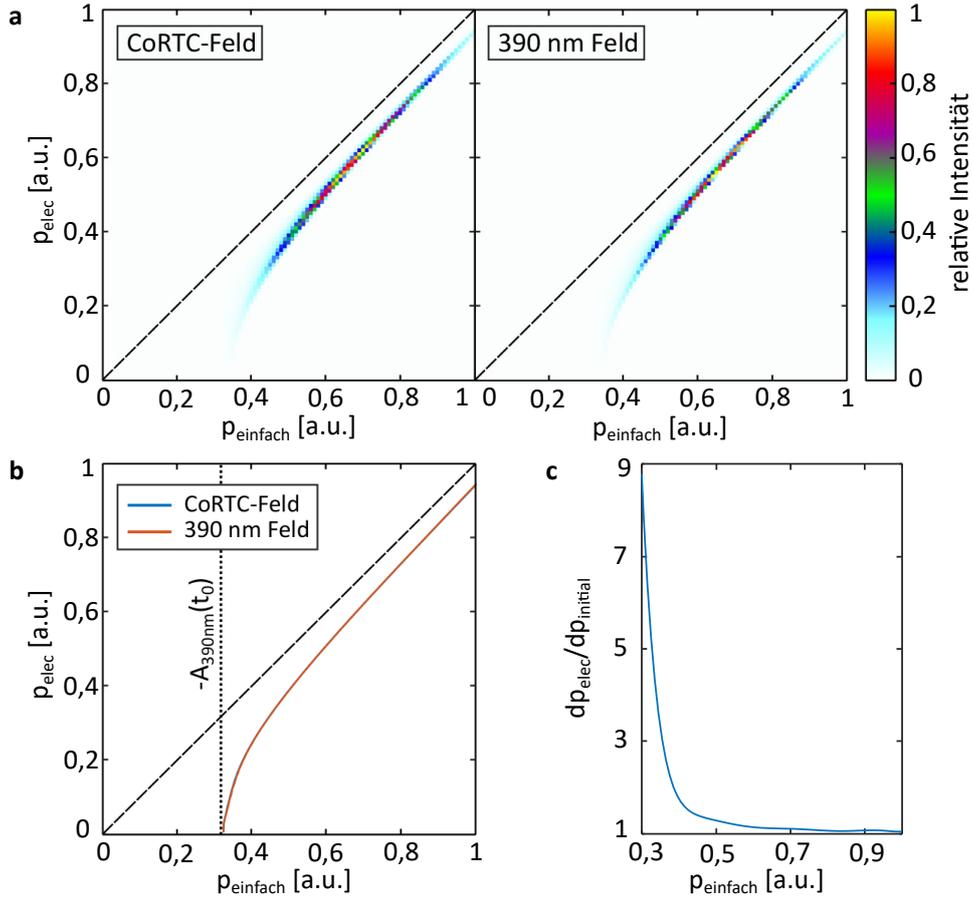


Abbildung 10.8: **a** Endimpuls des Elektrons  $p_{\text{elec}}$  in Abhängigkeit von  $p_{\text{einfach}}$  aus der SCTS Rechnung für das verwendete CoRTC-Feld (links) und für ein zirkular polarisiertes  $2\omega$ -Feld (rechts). Die gestrichelte Linie zeigt den Verlauf ohne Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung mit dem Ion. **b** Mittlerer Wert von  $p_{\text{einfach}}$  für jeden Endimpuls  $p_{\text{elec}}$ . **c** Aus der blauen Kurve in **b** numerische bestimmte Ableitung  $\frac{dp_{\text{elec}}}{dp_{\text{initial}}}$ . Vergleiche auch Suppl. Fig. 3 **a** in [7].

unter Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung abzubilden. In Abb. 10.9 **a** ist hierzu zunächst der Winkel  $\kappa$  gegen  $p_{\text{einfach}}$  aufgetragen.  $\kappa$  bezeichnet den Winkel in der Polarisationssebene, um den  $\vec{p}_{\text{elec}}$  durch die Coulomb-Wechselwirkung gedreht wird und entspricht damit der Definition des Attoclock-Winkels einer einzelnen Trajektorie. Es zeigt sich, dass  $\kappa$  im CoRTC-Feld eine deutlich breitere Verteilung als im zirkular polarisierten  $2\omega$ -Feld aufweist. Der mittlere Wert von  $\kappa$  für jeden Wert von  $p_{\text{einfach}}$  ist hingegen unabhängig von dem gewählten Feld, wie in Abb. 10.9 **b** ersichtlich ist.

Aus Kenntnis der Zuordnungen zwischen  $p_{\text{initial}}$  und dem gemessenen  $p_{\text{elec}}$  sowie  $\kappa$  und dem gemessenen  $\beta$  kann nun der Winkel  $\gamma$  definiert werden, welcher die relative Orientierung von  $\vec{r}_0$  zur Molekülachse beschreibt [7]:

$$\gamma = \beta + 90^\circ - \kappa \quad (10.2)$$

Abb. 10.10 **a** zeigt die mit Hilfe der SCTS-Rechnungen aus den in Abb. 10.6 dargestellten Werten von  $\Delta\alpha(\beta)$  berechneten Phasengradienten  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  als Funktion von  $\gamma$ . In der Beschriftung sind die jeweiligen Kombinationen aus gemessenem Endimpuls  $p_{\text{elec}}$  und durch die SCTS-Rechnung rekonstruiertem senkrechtem

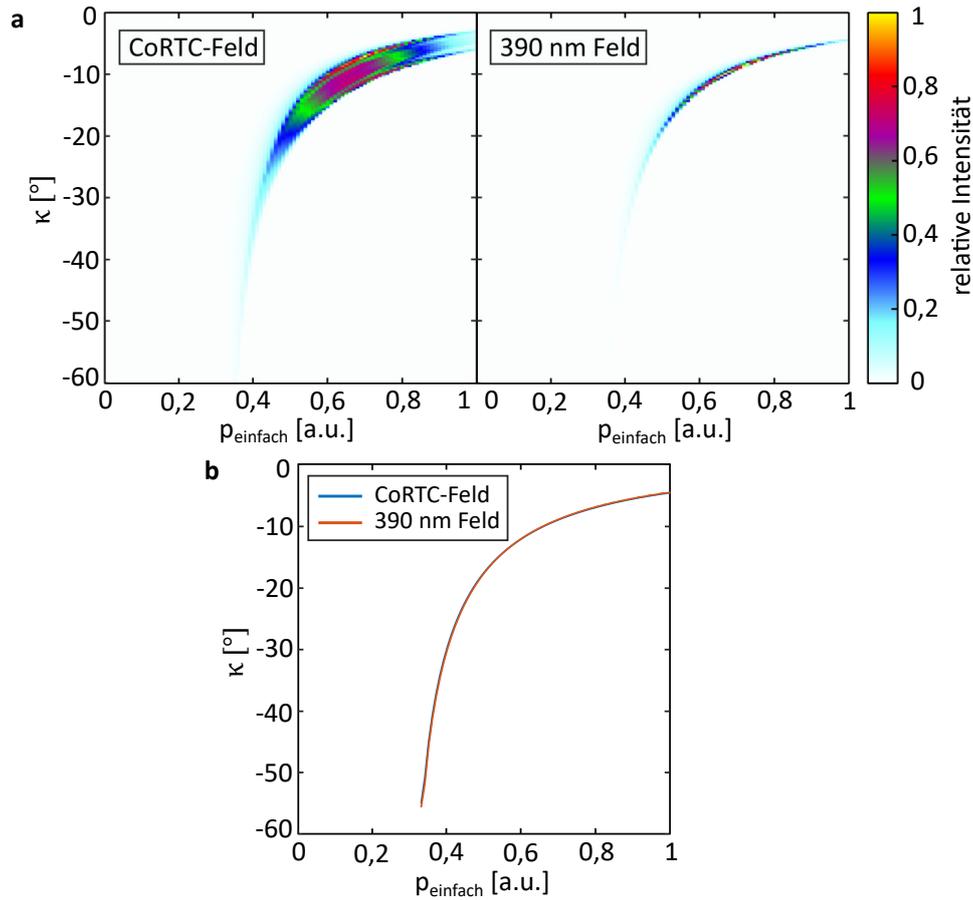


Abbildung 10.9: **a** Attoclock-Drehwinkel  $\kappa$  in Abhängigkeit von  $p_{\text{einfach}}$  aus der SCTS Rechnung für das verwendete CoRTC-Feld (links) und für ein zirkular polarisiertes  $2\omega$ -Feld (rechts). **c** Mittleres  $\kappa$  für jeden Wert von  $p_{\text{einfach}}$ . Vergleiche auch Suppl. Fig. 3 **b** in [7].

Startimpuls  $p_{\text{initial}}$  angegeben. Hieraus ergibt sich eine gute Vergleichbarkeit zu den Ergebnissen der von *Simon Brennecke* durchgeführten SFA-Rechnungen, da im Falle eines kurzreichweitigen Potentials  $\gamma = \beta + 90^\circ$  gilt. Die Ergebnisse der SFA-Simulationen sind in Abb. 10.10 **b** dargestellt und zeigen eine ausgezeichnete Übereinstimmung mit den experimentell gefundenen Werten von  $\Delta\Phi'_{\text{mit}}(\gamma)$ . Für nähere Informationen zu der konkreten Anwendung der SFA auf die Ionisation von  $\text{H}_2$  sei auf [7] verwiesen. Die gepunktete schwarze Linie stellt die aus der im nächsten Abschnitt 10.4 diskutierte Anwendung des PFT-Modells vorhergesagten Phasengradienten am Tunnelausgang dar.

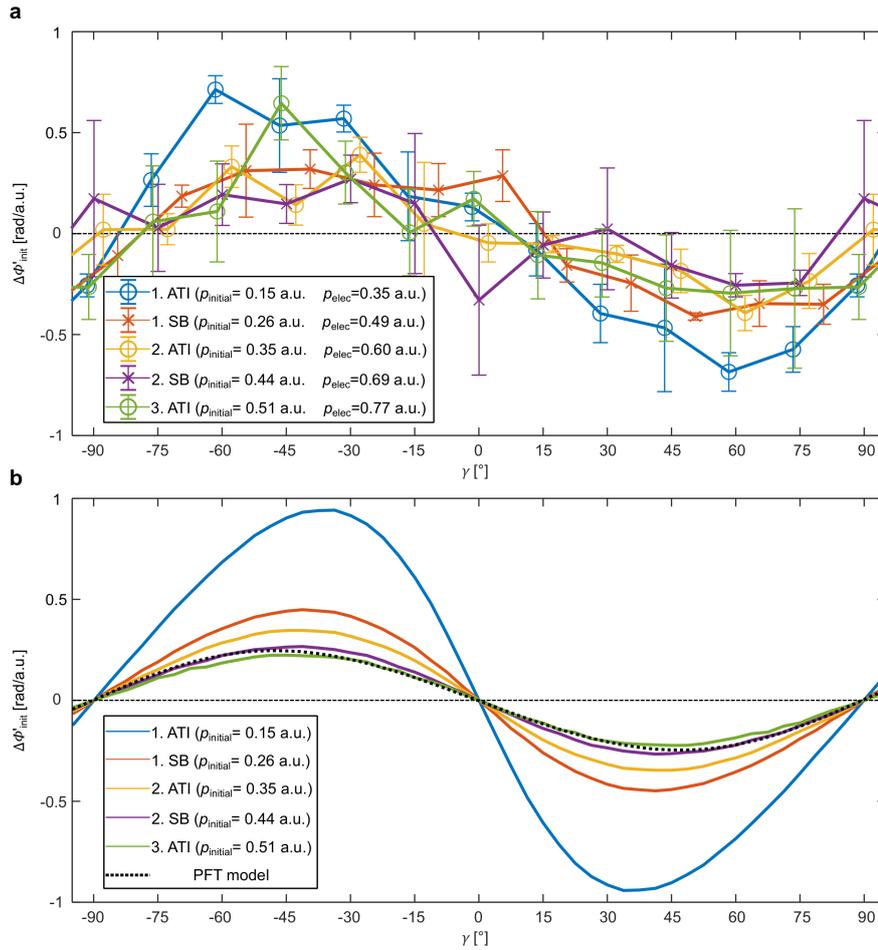


Abbildung 10.10: **a** Experimentell ermittelte Werte des Phasengradienten  $\Phi'_{\text{init}}$  am Tunnelausgang als Funktion des Startimpulses  $p_{\text{initial}}$  und des Winkels  $\gamma$  zwischen  $\vec{r}_0$  und der Molekülachse. **b** Wie **a**, allerdings aus den SFA-Rechnungen von *Simon Brennecke*. Die gepunktete schwarze Linie stellt die Vorhersage des im nächsten Abschnitt diskutierten PFT-Modells dar. Abbildung entnommen aus [7].

#### 10.4 PFT-MODELL FÜR H<sub>2</sub>

Neben den aus der SFA vorhergesagten und in [7] präsentierten Phasengradienten  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\gamma)$  wurde der Versuch unternommen, die experimentellen Ergebnisse mit einer auf dem PFT-Modell (siehe Abschnitt 3.4.3 und [98, 102]) basierenden Modellierung zu reproduzieren. Die im Folgenden gezeigten Daten entsprechen den in Fig. 1 aus [7] präsentierten, allerdings soll die Darstellung hier umfangreicher gestaltet werden.

Nach dem LCAO-Ansatz [103] kann ein Wasserstoffmolekülorbital aus der Summe zweier 1s-Orbitale im internuklearen Abstand von  $R=0,74$  Å in der Polarisations Ebene  $xy$  gebildet werden. Die resultierende Wellenfunktion  $\psi_{\text{H}_2}$  in Abhängigkeit von den beiden Ortskoordinaten  $x$  und  $y$  lautet dann (vgl. Gl. (3) in [7]):

$$\psi_{\text{H}_2}(x, y) \propto \exp\left(-\sqrt{x^2 + \left(y - \frac{R}{2}\right)^2}\right) + \exp\left(-\sqrt{x^2 + \left(y + \frac{R}{2}\right)^2}\right) \quad (10.3)$$

Im nächsten Schritt wurde die Wellenfunktion entlang der tangential zum Tunnelradius  $r_0 = \frac{I_p}{E_{0,390\text{nm}}} = 15,75$  a.u. (in [7] mit  $r_e$  bezeichnet) liegenden Komponente  $s_\perp$  ausgewertet. Um einen Ausdruck für  $\psi_\perp(s_\perp)$  zu erhalten, müssen die Koordinaten  $x$  und  $y$  als Funktion von  $r_0$  und  $\gamma$ , also dem im vorigen Abschnitt eingeführten Winkel von  $\vec{r}_0$  zur Molekülachse in der Polarisationssebene, ausgedrückt werden. Mit  $x(s_\perp) = r_{\text{eff}}(s_\perp) \cdot \sin(\eta(s_\perp))$  und  $y(s_\perp) = r_{\text{eff}}(s_\perp) \cdot \cos(\eta(s_\perp))$  unter Verwendung der Hilfsgrößen  $\eta(s_\perp) = \gamma - \tan^{-1}(\frac{s_\perp}{r_0})$  und  $r_{\text{eff}} = \sqrt{r_0^2 + s_\perp^2}$  kann (vgl. Gl. (4) in [7])

$$\psi_{\text{H}_2}(s_\perp) \propto \psi(x(s_\perp), y(s_\perp)) \quad (10.4)$$

berechnet werden.  $r_{\text{eff}}$  wurde in [7] als  $r_0$  bezeichnet, die hier vorgenommene Umbenennung soll Verwechslungen vorbeugen. Mit einer nachfolgenden Fourier-Transformation des so erhaltenen eindimensionalen Schnittes der Wellenfunktion kann  $\psi_p(p_\perp)$  bestimmt werden. Der Phasengradient  $\Phi'$  kann daraufhin aus  $\arg(\psi_p(p_\perp))$  bestimmt werden.

Abb. 10.11 a zeigt das Betragsquadrat der Wellenfunktion  $|\psi_{\text{H}_2}(x, y)|^2$ , die Definition des Winkels  $\gamma$  sowie den geometrischen Zusammenhang zwischen  $s_\perp$  und dem Radius des Tunnelausgangs  $r_0$  (welcher zwecks Anschaulichkeit hier auf  $r_0 = 0,75$  a.u. gesetzt wurde). In Abb. 10.11 b ist die zweidimensionale Fourier-Transformierte  $\psi_{\text{H}_2}(p_x, p_y)$  von  $\psi_{\text{H}_2}(x, y)$  dargestellt. Es zeigen sich destruktive Interferenzen bei Impulsen parallel zur Molekülachse von etwa 2 a.u., was deutlich größer als der im Experiment untersuchte Impulsbereich ist. Für Systeme mit größeren Bindungslängen zeigen sich hingegen stark modulierte Interferenzmuster in den gemessenen Impulsverteilungen (siehe [144] und Kapitel 11). Dass Interferenzeffekte bei der Starkfeldionisation von H<sub>2</sub> in elliptisch polarisierten Laserfeldern die Breite der zweifach-symmetrischen Elektronen-Winkelverteilung modulieren, wurde bereits sowohl theoretisch als auch experimentell gezeigt [143, 145]. Es sei jedoch darauf hingewiesen, dass die Fouriertransformierte  $\psi_{\text{H}_2}(p_x, p_y)$  des gesamten Ortsraumes in dieser Form für den Fall von Ein-Photon-Ionisationsprozessen relevant ist [146, 147], während das PFT-Modell den Tunnelausgang als Filter im Ortsraum betrachtet.

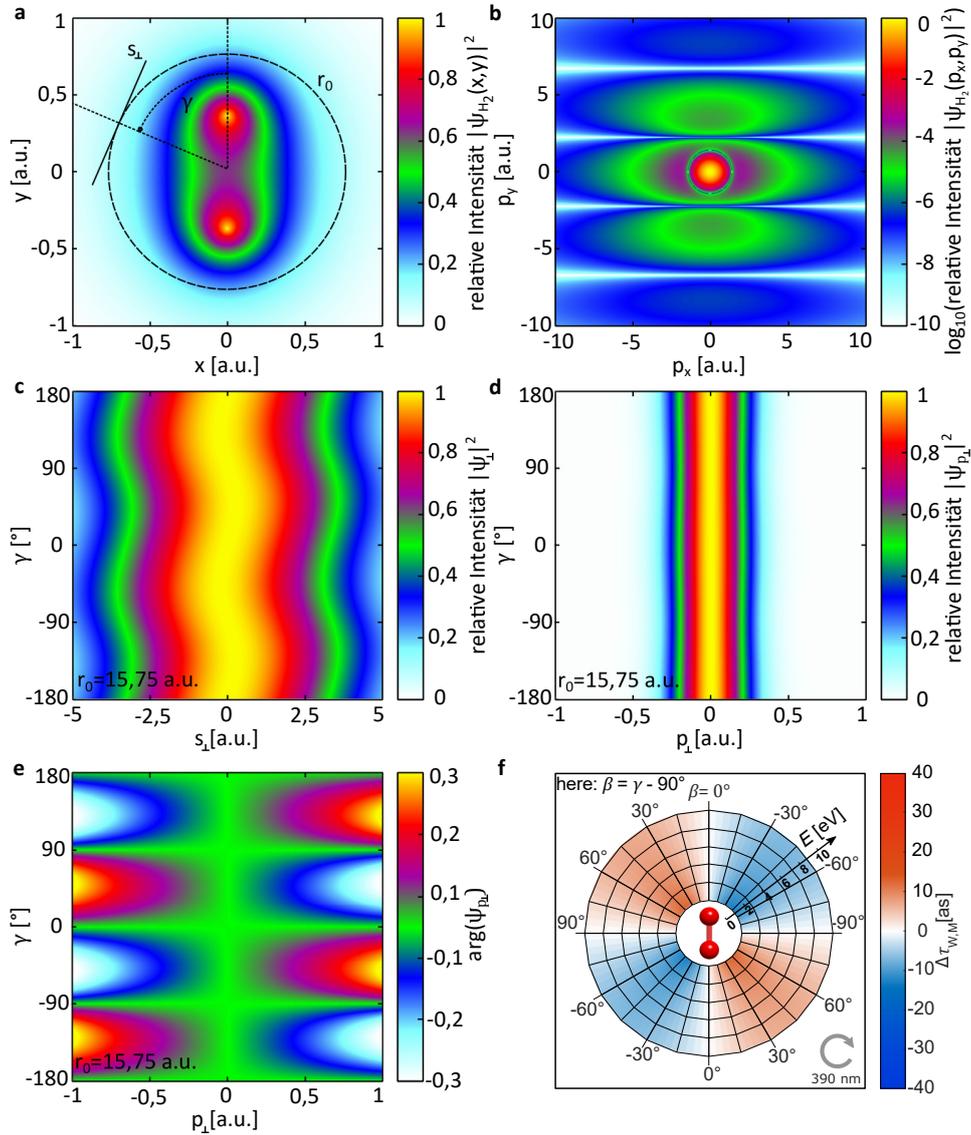


Abbildung 10.11: **a** Betragsquadrat  $|\psi_{\text{H}_2}(x, y)|^2$  des Wasserstoffmolekülorbitals aus der Überlagerung von zwei  $1s$  Wellenfunktionen in der Polarisationsebene. Die Definitionen des Winkels  $\gamma$  zur Molekülachse, des Tunnelausgangs  $r_0$  und der Gerade  $s_{\perp}$  sind eingezeichnet. **b** Durch Fourier-Transformation von  $|\psi_{\text{H}_2}(x, y)|^2$  erhaltene Darstellung  $|\psi_{\text{H}_2}(p_x, p_y)|^2$  des Molekülorbitals im Impulsraum. Entlang der Molekülachse kommt es im Abstand von etwa  $5 \text{ a.u.}$  zu destruktiver Interferenz. **c** Wahrscheinlichkeitsverteilung  $|\psi_{\perp}|^2$  entlang von  $s_{\perp}$  in Abhängigkeit von  $\gamma$ . **d** Wahrscheinlichkeitsverteilung  $|\psi_{p_{\perp}}|^2$  der Fourier-Transformierten von  $\psi_{\perp}$  in Abhängigkeit von  $p_{\perp}$  und  $\gamma$ . **e** Phase von  $\psi_{p_{\perp}}$  in Abhängigkeit von  $p_{\perp}$  und  $\gamma$ . **f** Änderungen der Wignerzeit  $\Delta\tau_{\text{W,M}}$  als Funktion von  $\beta$  und der Energie. Teilabbildung entnommen aus [7].

Gemäß dem PFT-Ansatz wurde nun  $\gamma$  für  $r_0=15,75$  a.u. systematisch von  $-180^\circ$  bis  $180^\circ$  variiert, um die jeweiligen eindimensionalen Schnitte  $\psi_\perp(\gamma)$  der Wellenfunktion  $|\psi_{\text{H}_2}(x,y)|^2$  zu erhalten. Abb. 10.11 c zeigt  $|\psi_\perp|^2$  für alle Werte von  $\gamma$ , wobei eine zeilenweise Normierung des Maximums vorgenommen wurde. Es ist eine deutliche  $\gamma$ -abhängige Verschiebung des Maximums von  $|\psi_\perp|^2$  zu beobachten. Unter Anwendung einer zeilenweisen Fourier-Transformation kann  $\psi_{p_\perp}(\gamma)$  aus  $\psi_\perp(\gamma)$  berechnet werden. Abb. 10.11 d zeigt das Betragsquadrat der resultierenden Wellenfunktion  $|\psi_{p_\perp}(\gamma)|^2$  im Impulsraum, wobei wiederum eine zeilenweise Normierung des Maximums vorgenommen wurde. Es wird deutlich, dass die Position des Maximums von  $\psi_{p_\perp}$  unabhängig von  $\gamma$  ist. Die Phase von  $\psi_{p_\perp}$  weist jedoch für alle Werte von  $\gamma$ , die kein ganzzahliges Vielfaches von  $90^\circ$  sind, einen deutlich modulierten Verlauf auf. Wie in Abb. 10.11 e ersichtlich, werden auf dem betrachteten Intervall bis  $p_\perp=\pm 1$  a.u. Werte von  $\pm 0,3$  rad angenommen. Der Verlauf der Phase zeigt einen zweifach-symmetrischen Verlauf in Abhängigkeit von  $\gamma$ , sodass sich alle Betrachtungen im Folgenden auf das Intervall  $\gamma=-90^\circ, \dots, +90^\circ$  beschränken. Für jeden Werte von  $\gamma$  kann nun der Phasengradient  $\Delta\Phi'$  senkrecht zu  $\vec{r}_0$  bestimmt werden, wobei dieser linear angenähert wurde:

$$\Delta\Phi'_{\text{init}} = \frac{\arg(\psi_{p_\perp=0,1 \text{ a.u.}}) - \arg(\psi_{p_\perp=-0,1 \text{ a.u.}})}{0,2 \text{ a.u.}} \quad (10.5)$$

Der lineare Phasengradient  $\Phi'_{\text{init}}$  kann analog auch aus dem in Gl. 3.14 aus [102] gegebenen analytischen Ausdruck bestimmt werden. Der  $\gamma$ -abhängige Verlauf von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  ist in Fig.1 c aus [7] dargestellt. Durch die Verwendung zweier Achsen wird dort auch die Äquivalenz zu der Verschiebung der Wellenfunktion  $\psi_\perp$  im Ortsraum verdeutlicht, welche zuvor in Abschnitt 3.4.2 behandelt worden war.

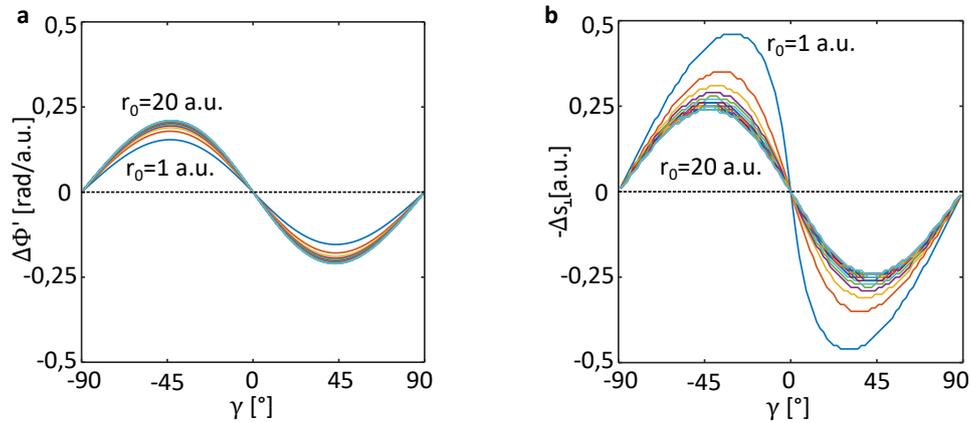


Abbildung 10.12: **a** Der Phasengradient  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  in Abhängigkeit von  $\gamma$  für Werte von  $r_0$  zwischen 1 a.u. und 20 a.u. Bereits ab einem Tunnelabstand von 3 a.u. ist der Kurvenverlauf weitgehend unabhängig von  $r_0$ . **b** Die Verschiebung des Maximums von  $\psi_\perp$  in Abhängigkeit von  $\gamma$  für Werte von  $r_0$  zwischen 1 a.u. und 20 a.u. Für größere Tunnelausgänge nähert sich  $\Delta s_\perp$  den Werten von  $\Delta\Phi'$  an.

Die von dem PFT-Modell vorhergesagten Änderungen der Wignerzeit  $\Delta\tau_{W,M}$  (siehe folgender Abschnitt 10.5) können in einem letzten Schritt aus  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\gamma)$  bestimmt werden. Hierbei muss wiederum eine Abbildung von den am Tunnelausgang relevanten Größen  $\gamma$  und  $p_{\text{init}} = p_\perp$  auf die experimentellen Observablen  $\beta$  und  $p_{\text{elec}}$  erfolgen. Im Gegensatz zu der für die Auswertung der experimentellen Daten genutzten und auf dem SCTS-Modell basierenden Methode (siehe

Abschnitt 10.3) wurden die trivialen Zuordnungen  $\gamma = \beta + 90^\circ$  und  $p_{\text{elec}} = p_{\text{einfach}}$  unter Vernachlässigung der Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektron und Mutterion angewendet. Gemäß Gl. 11 aus [61] folgt die Änderung der Wignerzeit dann aus  $\Delta\tau_{W,M} = \hbar \frac{m_e}{p_{\text{elec}}} \Delta\Phi'_{\text{init}}$ . Für  $p_{\text{elec}}$  wurden die gemessenen Endimpulse der jeweiligen ATI-Peaks und Seitenbänder eingesetzt. Der durch die PFT-Methode vorhergesagte  $\beta$ - und energieabhängige Verlauf von  $\Delta\tau_{W,M}(E, \beta)$  findet sich in Abb. 10.11 f sowie in Abb. 10.14 e. Das PFT-Modell sagt Werte bis  $\pm 20$  as voraus. Der Verlauf von  $\Delta\tau_{W,M}(E, \beta)$  zeigt eine gute qualitative Übereinstimmung mit den experimentell ermittelten Ergebnissen.

Einen freien Parameter bei der Anwendung des PFT-Modells auf das Wasserstoffmolekülorbital stellt der Radius des Tunnelausgangs  $r_0$  dar. Insbesondere die Diskussion der Ergebnisse aus der Messung an atomarem Wasserstoff in Abschnitt 9 und [6] hat gezeigt, dass physikalische Observablen eine starke Abhängigkeit von  $r_0$  aufweisen können. Auch können für die Bestimmung von  $r_0$  verschiedene Annahmen zu Polarisierungseffekten und nicht-adiabatischen Beiträgen getroffen werden (siehe Abschnitt 2.6.1). Um die Validität der aus der Anwendung der PFT-Methode erhaltenen Phasengradienten  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  im Hinblick darauf zu prüfen, wurde der Abstand des Tunnelausgangs vom Massenschwerpunkt des Moleküls systematisch von 1 a.u. bis 20 a.u. variiert. In Abb. 10.12 a sind die resultierenden Phasengradienten in Abhängigkeit von  $\gamma$  aufgetragen. Der Kurvenverlauf von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\gamma)$  zeigt dabei ab einem Tunnelradius von 3 a.u. praktisch keine Abhängigkeit von  $r_0$  mehr. Die Ergebnisse der PFT-Methode sind daher weitgehend unabhängig von der gewählten Methode zur Bestimmung der Position des Tunnelausgangs. In einem weiteren Schritt wurde den aus Gl. 10.5 berechneten und in Abb. 10.12 a dargestellten Werten die  $\gamma$ -Abhängigkeit der Verschiebung  $-\Delta s_{\perp}(\gamma)$  des Maximums von  $\psi_{\perp}$  gegenübergestellt (siehe Abb. 10.12 b). Für große Werte von  $r_0$  konvergiert der Verlauf von  $-\Delta s_{\perp}(\gamma)$  gegen  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\gamma)$ . Für kleinere Werte von  $r_0$  werden jedoch größere Verschiebungen der Position des Maximums beobachtet. Allerdings stellen diese Abweichungen zwischen  $\Delta s_{\perp}(\gamma)$  und  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\gamma)$  keinen Widerspruch zu der Interpretation von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\gamma)$  als Ortsverschiebung dar. Es zeigt nur, dass die Symmetrie um das Maximum von  $\psi_{\perp}$  für kleine Werte von  $r_0$  verloren geht.

## 10.5 WINKELABHÄNGIGKEIT DER WIGNERZEIT ALS FUNKTION DER ENERGIE

Die in [7] und im Folgenden betrachteten Änderungen der Wignerzeit  $\Delta\tau_{W,M}$  stellen nur einen Teil der gesamten Wignerzeit  $\tau_{\text{Wigner}}$  (siehe Gl. 3.4) dar. Diese kann gemäß Gl. (2) in [7] auf zwei Beiträge zurückgeführt werden:

$$\tau_{\text{Wigner}} = \tau_{W,A}(E) + \Delta\tau_{W,M}(E, \beta) \quad (10.6)$$

Der erste Beitrag  $\tau_{W,A}(E)$  fasst alle nur von der Elektronenenergie  $E$  abhängigen und von der Emissionsrichtung des Elektrons zur Molekülachse unabhängigen Beiträge zusammen. Die Interpretation seiner physikalischen Bedeutung unterliegt damit den in Kapitel 3 diskutierten Problemen. Die weitere Betrachtung macht keine Aussagen zu  $\tau_{W,A}(E)$ , sondern beschränkt sich auf den Vergleich von experimentell und theoretisch ermittelten Änderungen der Wignerzeit  $\Delta\tau_{W,M}$ .

Wie in Abschnitt 3.4.1 und [61] dargestellt, ist die Berechnung von Änderungen der Wignerzeit  $\Delta\tau_{W,M}$  aus der Änderung des Phasengradienten am Tunnelausgang  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  für den Fall ohne Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektron und Mutterion simpel und folgt Gl. 3.9. Für diese Annahmen wurden bereits im vorangegangenen Abschnitt die aus dem PFT-Modell vorhergesagten  $\beta$ - und energieabhängigen Änderungen der Wignerzeit bestimmt (siehe Abb. 10.11 e und 10.14 e). Für die Bestimmung der Wignerzeit aus den experimentellen Daten müssen jedoch die aus dem SCTS-Modell erhaltenen Abbildungen  $\gamma(\beta)$ ,  $p_{\text{initial}}(p_{\text{elec}})$  und das Volumenelement  $\frac{dp_{\text{initial}}}{dp_{\text{elec}}}$  berücksichtigt werden (siehe Abb. 10.8 und 10.9). Damit folgt (vgl. Gl. (6) aus [7])

$$\Delta\tau_{W,M}(E, \beta) = \frac{\hbar m_e}{p_{\text{elec}}} \Delta\Phi'_{\text{elec}}(p_{\text{elec}}, \beta) \approx \frac{\hbar m_e}{p_{\text{elec}}} \Phi'_{\text{init}}(p_{\text{initial}}(p_{\text{elec}}), \gamma(\beta)) \frac{dp_{\text{initial}}}{dp_{\text{elec}}} \quad (10.7)$$

mit  $\Phi'_{\text{init}}(p_{\text{initial}}, \gamma) = \frac{d\Phi_{\text{init}}(p_{\text{initial}}, \gamma)}{dp_{\text{initial}}}$  und  $\Phi'_{\text{elec}}(p_{\text{elec}}, \beta) = \frac{d\Phi_{\text{elec}}(p_{\text{elec}}, \beta)}{dp_{\text{elec}}}$ . Auf diese Weise wurde  $\Delta\tau_{W,M}(E, \beta)$  aus den in Abb. 10.10 a gezeigten experimentell bestimmten Phasengradienten am Tunnelausgang  $\Phi'_{\text{init}}(p_{\text{initial}}, \gamma)$  berechnet. Das Ergebnis ist in Abb. 10.13 a gezeigt. An dieser Stelle soll noch einmal explizit darauf hingewiesen werden, dass die gezeigten Änderungen der Wignerzeit unter der Annahme eines zirkular polarisierten  $2\omega$ -Feldes der Wellenlänge 390 nm anstatt eines CoRTC-Feldes berechnet wurden. Die Helizität dieses  $2\omega$ -Feldes ist durch die kleinen grauen Pfeile in der rechten unteren Ecke jeder Teilabbildung illustriert. Es werden Änderungen der Wignerzeit von bis zu  $\pm 30$  as beobachtet, wobei die  $\beta$ -abhängige Modulation für höhere Elektronenenergien abnimmt. In Übereinstimmung mit den in Abschnitt 3.1 beschriebenen Eigenschaften der Wignerzeit entsprechen positive Werte einer relativen Verzögerung des Elektrons, während negative Werte einer früheren Ankunftszeit an einem beliebigen Ort entsprechen. Ein Umkehren der Helizität des  $2\omega$ -Feldes hätte einen Vorzeichenwechsel von  $\Delta\tau_{W,M}$  zur Folge.

Die in Abb. 10.13 b gezeigten Werte von  $\Delta\tau_{W,M}$  entstammen einer von *Simon Brennecke* durchgeführten Rechnung zur Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung (TDSE) und stellen eine von den bisherigen semiklassischen Betrachtungen völlig unabhängige Verifizierung der gefundenen Ergebnisse dar. Um in der Rechnung die Ausbildung von ATI-Ringen durch 'intercycle'-Interferenz zu verhindern, wurde ein 3-Zyklen-Puls eines zirkular polarisierten  $2\omega$ -Feldes der Wellenlänge 390 nm mit einer  $\sin^4$ -Einhüllenden angenommen. Aus der Phase

$\Phi_{\text{TDSE}}(E, \beta)$  im Endimpulsraum kann unmittelbar  $\Delta\tau_{\text{W,M}}(E, \beta) = \hbar \frac{d\Phi_{\text{TDSE}}(E, \beta)}{dE} - b$  bestimmt werden, wobei  $b$  dem über alle  $\beta$  gemittelten Wert von  $\hbar \frac{d\Phi_{\text{TDSE}}(E, \beta)}{dE}$  entspricht [7]. Die Übereinstimmung mit den experimentellen Werten ist qualitativ gut, allerdings wird eine leichte Drehung der Nulldurchgänge in  $\beta$  beobachtet.

Abb. 10.13 c stellt  $\Delta\tau_{\text{W,M}}$  aus den im Rahmen der SFA berechneten Phasengradienten  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  (siehe Abb. 10.10 b) dar, wobei die trivialen Zuordnungen  $\beta = \gamma - 90^\circ$  und  $p_{\text{elec}} = p_{\text{einfach}}$  angenommen wurden. Die resultierenden Änderungen der Wignerzeit weisen im Vergleich mit dem Experiment durchweg deutlich zu große Amplituden auf. Werden die aus dem SCTS-Modell unter Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung gefunden Abbildungen  $\beta(\gamma)$ ,  $p_{\text{elec}}(p_{\text{initial}})$  und das Volumenelement  $\frac{dp_{\text{initial}}}{dp_{\text{elec}}}$  angenommen, ergeben sich die in Abb. 10.13 d dargestellten Ergebnisse. Diese Variante wird in [7] als 'SFA + classical mapping' bezeichnet und zeigt eine nahezu perfekte quantitative Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen.

Abb. 10.14 stellt  $\Delta\tau_{\text{W,M}}$  als Funktion von  $\beta$  für alle soeben diskutierten Fälle in einer quantitativ gut vergleichbaren Weise dar. Sie unterstreicht die geschilderten Beobachtungen und insbesondere die Bedeutung nicht-adiabatischer Effekte. Durch das vorliegende Experiment konnte gezeigt werden, dass winkelabhängige Änderungen der Wignerzeit im Bereich der Starkfeldionisation vor allem auf die Geometrie des gebundenen Zustands zurückzuführen sind. Damit wird das in Abschnitt 3.1 diskutierte Konzept einer Streuung der elektronischen Wellenfunktion in einem Potential erweitert.

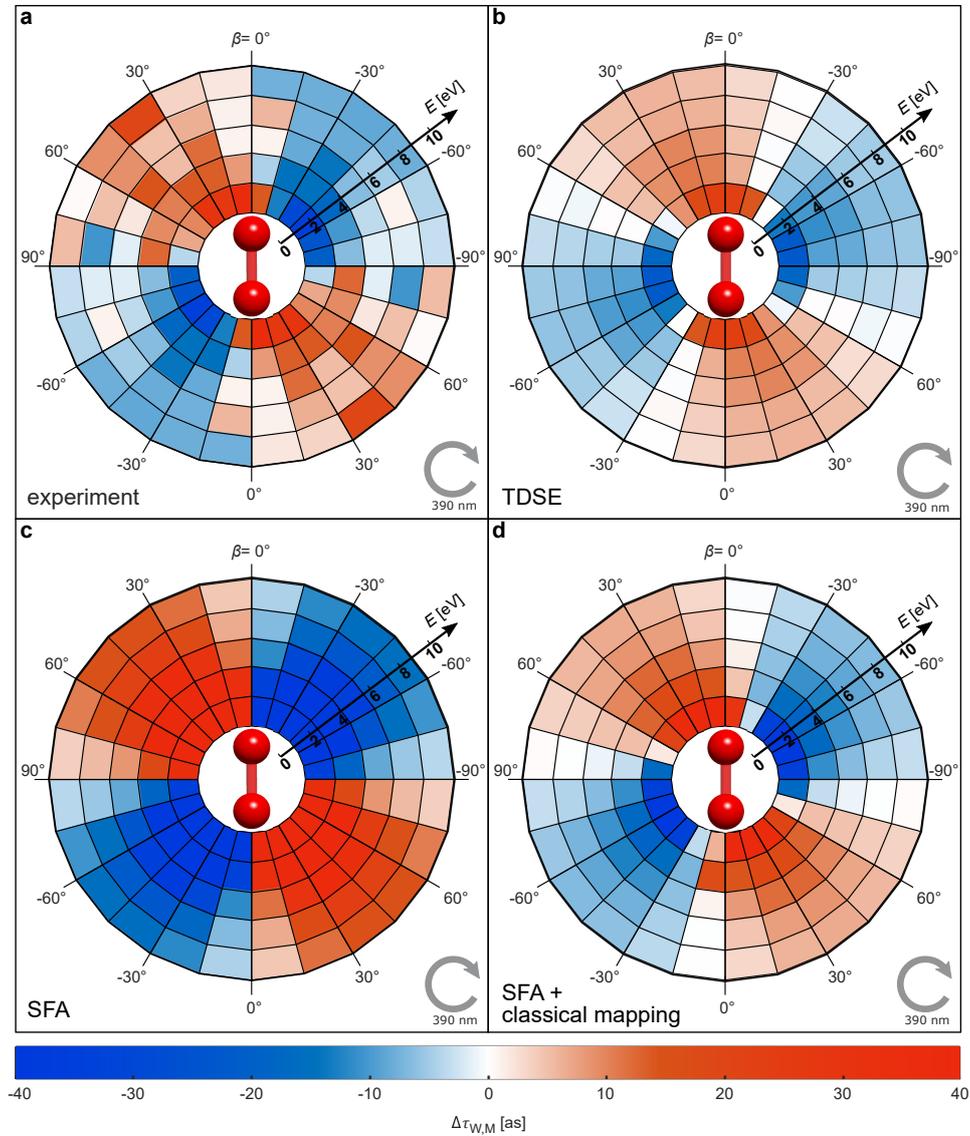


Abbildung 10.13: Gemessene Änderungen der Wignerzeit im Molekülsystem  $\Delta\tau_{W,M}$  als Funktion der Elektronenenergie und  $\beta$ . **b**  $\Delta\tau_{W,M}$  aus der Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung (TDSE). **c**  $\Delta\tau_{W,M}$  aus der SFA unter Vernachlässigung der Coulomb-Wechselwirkung. **d**  $\Delta\tau_{W,M}$  aus der SFA unter Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung durch das SCTS-Modell. Die vertikale Molekülachse ist schematisch eingezeichnet. Die grauen Pfeile geben die Helizität des zirkular polarisierten Lichts an. Abbildung entnommen aus [7].

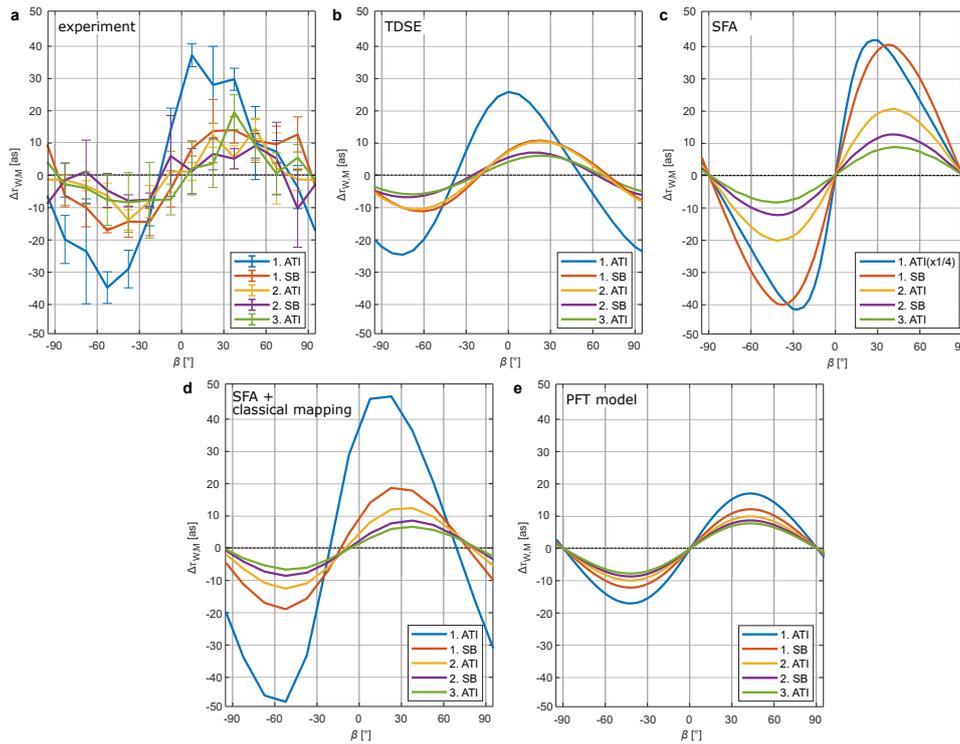


Abbildung 10.14: Quantitative Darstellung der gemessenen und berechneten Änderungen der Wignerzeit  $\Delta\tau_{W,M}$  als Funktion von  $\beta$  für die betrachteten ATI-Peaks und Seitenbänder. Die Teilabbildungen **a-d** zeigen die selben Daten wie Abb. 10.13, die Teilabbildung **e** zeigt die selben Daten wie Abb. 10.11 f. Abbildung entnommen aus der Supplementary Information zu [7].

## 10.6 INTENSITÄTSSCAN

Die in diesem Abschnitt dargestellten Ergebnisse sind bisher unveröffentlicht und können helfen, Optimierungsmöglichkeiten und Grenzen der HASE-Technik aufzuzeigen. Experimentell entspricht die hierzu durchgeführte Messung der im vorangegangenen Abschnitt geschilderten HASE-Messung und wurde direkt im Anschluss an diese durchgeführt. Dabei wurde der Anteil der Fundamentalen  $\omega$  am CoRTC-Feld systematisch variiert. Es wurden insbesondere die Modulationstiefe der AHR-Struktur (vgl. 3.4.1 und [30, 61]), die Breite der konstruktiven Interferenzen im Winkel, sowie die Auswirkungen auf die zentrale Observable  $\Delta\alpha$  untersucht.

Durch automatisiertes Verschieben des ND-Filters im Fundamentalen-Arm des verwendeten ZFA2 wurden 12 unterschiedliche mittlere Leistungen  $P_{780\text{nm}}$  von 0,26 mW bis 2,85 mW eingestellt. Die Leistung  $P_{390\text{nm}}$  und damit Intensität des  $2\omega$ -Feldes mit einer Wellenlänge von 390 nm wurde wie in der vorangegangenen Messung bei 52 mW bzw.  $(9,2 \pm 0,04) \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  belassen. Die sich aus den unterschiedlichen Werten für  $P_{780\text{nm}}$  ergebenden Feldverhältnisse  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}$  sind in Abb. 10.15 dargestellt. Das Verhältnis  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}$  wurde insgesamt um einen Faktor von etwa 3,5 variiert, wobei gezielt sowohl kleinere als auch größere Verhältnisse als das im vorigen Experiment gewählte Verhältnis von 0,076 eingestellt wurden.

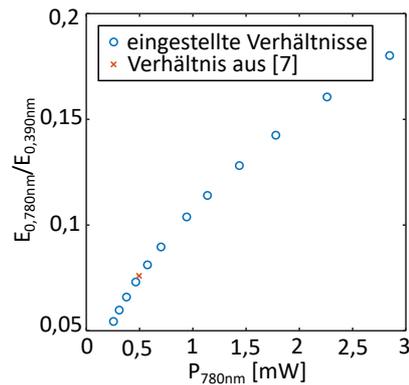


Abbildung 10.15: a Abhängigkeit des Verhältnisses  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}$  von der eingestellten Leistung  $P_{780\text{nm}}$  im Fundamentalen-Arm des ZFA2 für den in diesem Abschnitt diskutierten Intensitätsscan (blaue Kreise). Das Feldverhältnis aus [7] und der im vorigen Abschnitt diskutierten Messung betrug 0,076 (rotes Kreuz).

Da alle Spektrometereinstellungen beibehalten wurden, konnte die Analyse der Daten mit der in Abschnitt 8.5 dargestellten Impulskalibration durchgeführt werden. Die Drehung der Impulsverteilungen zur Korrektur der relativen Phase des CoRTC-Feldes (siehe Abschnitt 8.6) erfolgte ebenfalls analog. Hierbei gilt es zu beachten, dass es mit der gewählten Methode nicht möglich ist, Drehungen der Impulsverteilung zweifelsfrei auf eine Änderung der Intensität zurückzuführen bzw. dies auszuschließen. Hierfür wäre eine unabhängige aktive Stabilisierung der Phasenlage zwischen den beiden Armen des ZFA nötig. Die weitere Analyse beschränkt sich daher auf Observablen, die von der absoluten Position des CoRTC-Feldes im Lichtsystem unabhängig sind.

In Abb. 10.16 a (b) sind jeweils das zeitabhängige elektrische Feld  $\vec{E}(t)$  und das dazugehörige negative Vektorpotential  $-\vec{A}(t)$  für das kleinste (größte) untersuchte Feldverhältnis dargestellt. Diese beiden Extremfälle mit  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}=0,054$  und  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}=0,18$  sollen die wesentlichen Beobachtungen im Folgenden illustrieren. Zunächst wurden die gemessenen Elektronenimpulsverteilungen in Analogie zu dem in Abschnitt 10.2 beschriebenen Prozess in eine Einhüllende und ein Interferenzmuster zerlegt. Die extrahierten Einhüllenden für die beiden exemplarisch gezeigten Feldverhältnisse sind in Abb. 10.16 c und d dargestellt. Es ist klar ersichtlich, dass, während die Ionisationsrate für  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}=0,054$  praktisch keine Winkelabhängigkeit aufweist, sie für  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}=0,18$  bereits um fast 40 % moduliert ist. Ebenfalls erkennbar ist eine der Zunahme des zum dominieren Halbzyklus gehörenden negativen Vektorpotentials entsprechende Erhöhung der Elektronenenergie  $E_{\text{kin}}$ . Die in Abb. 10.16 e und f gezeigten Interferenzmuster weisen ebenfalls starke Unterschiede auf. Für das Feldverhältnis von 0,054 ist die Intensität auf den ATI-Peaks noch wesentlich stärker ausgeprägt, es werden jedoch auch schon deutlich erkennbare Seitenbänder geformt. Die Winkelverteilungen sowohl der ATI-Peaks als auch der Seitenbänder zeigen bereits eine klare Einfach-Symmetrie. Bei einem Feldverhältnis von 0,18 sind ATI-Peaks und Seitenbänder ähnlich stark populiert, z.T. kommt es jedoch zu einer Aufspaltung der ehemals einfach-symmetrischen Winkelverteilung. Eine einfache semiklassische Modellierung, wie in 3.4.1 eingeführt [61], kann diese Unterschiede teilweise reproduzieren (siehe Abb. 10.16 g, h). Ziel der weiteren Analyse ist es, die Änderungen an den Winkelverteilungen zu quantifizieren und einen Bereich von Feldverhältnissen zu identifizieren, in dem die AHR-Struktur die Elektronenimpulsverteilung dominiert.

In einem ersten Schritt soll die Breite der AHR-Struktur im Winkel für jeden Energiepeak separat bestimmt werden. Zunächst wird eine FFT durchgeführt, um hochfrequentes statistisches Rauschen und die  $F_0$ -Komponente aus den gemessenen eindimensionalen Winkelverteilungen zu entfernen (siehe Anhang B). Daraufhin wurde der Winkelabstand zwischen den beiden Nulldurchgängen um das Maximum bestimmt. Die Ergebnisse sind in Abb. 10.17 a dargestellt. Es zeigt sich, dass die Breite der AHR-Struktur für kleine Feldverhältnisse sowohl für ATI-Peaks als auch Seitenbänder bei etwa  $180^\circ$  liegt. Bei steigendem Anteil der Fundamentalen am CoRTC-Feld nimmt die Breite der zu den ATI Peaks gehörenden Winkelverteilungen zunächst kontinuierlich ab, die der zu den Seitenbändern gehörenden Winkelverteilungen zu. Bei einem Feldverhältnis von mehr als 0,15 zeigt sich ein weniger systematisches Verhalten. Dies ist mit Blick auf die in Abb. 10.16 f gezeigte Impulsverteilung wenig verwunderlich, da hier eindeutig der einfach-symmetrische Charakter der Winkelverteilungen verloren geht. Eine Möglichkeit, die relative Stärke der Einfach-Symmetrie und damit die Prominenz der AHR-Struktur zu quantifizieren, besteht darin, das Verhältnis der Amplitude der einfach-symmetrischen Fourier-Komponente  $F_1$  zur Amplitude der nullten Komponente  $F_0$  zu untersuchen. Die Werte des Verhältnisses  $F_1/F_0$  für die fünf untersuchten Energiepeaks ist in Abb. 10.17 b gegen das Feldverhältnis aufgetragen. Wie schon zuvor bei der Betrachtung der zweidimensionalen Impulsverteilung in Abb. 10.16 e ist ersichtlich, dass es zunächst zu einer stärkeren Modulation der Seitenbänder kommt, während insbesondere die Winkelverteilung des ersten ATI-Peaks zunächst noch relativ isotrop im Winkel bleibt. Eine komplett winkelunabhängige Verteilung würde in der gewählten Darstellung den Wert  $F_1/F_0=0$  annehmen. Bemerkenswerterweise wird das Maximum des Verhältnisses  $F_1/F_0$  und damit die stärkste Ausprägung der AHR-Struktur je nach untersuchtem Energiepeak für unterschiedliche Feldverhältnisse erreicht. Während es für die Sei-

tenbänder kurz nach ihrem Erscheinen erreicht wird, zeigt sich bei den ATI-Peaks ein energieabhängiger Verlauf. Das Maximum von  $F_1/F_0$  wird für den 3. ATI-Peak bei  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}=0,09$  erreicht, während dies für den 1. ATI-Peak erst bei  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}=0,11$  der Fall ist. Es zeigt sich wiederum, dass das Feldverhältnis von 0,076 für die in [7] publizierten Ergebnisse sehr gut gewählt war, da bei diesem Verhältnis alle Energiepeaks eine starke Ausprägung der Einfach-Symmetrie in der Winkelverteilung aufweisen.

Auch im Hinblick darauf wurde in einem weiteren Schritt untersucht, inwiefern die für eine HASE-Messung relevante Observable  $\Delta\alpha$  eine Abhängigkeit von dem eingestellten Feldverhältnis aufweist. Hierzu wurden die Daten für jedes einzelne Feldverhältnis nach der in Abschnitt 10.2 beschriebenen Methode ausgewertet. Aufgrund der geringeren Ereigniszahl und damit statistischen Qualität für jedes einzelne Feldverhältnis wurden für  $\beta$  jedoch Intervalle von  $30^\circ$  gewählt. Da der Verlauf von  $\Delta\alpha(\beta)$  in guter Näherung durch eine Sinuskurve beschrieben werden kann, sind zwei Parameter ausreichend, um die Abhängigkeit  $\Delta\alpha(\beta)$  für jedes gemessene Feldverhältnis zu charakterisieren. Zum einen ist dies die Amplitude der Sinusschwingung, bzw. das Maximum des Betrags von  $\Delta\alpha$ , den zweiten Parameter stellt die Phase der Sinusschwingung bzw. die Stelle des Nulldurchgangs, also des Wertes von  $\beta$ , für den  $\Delta\alpha(\beta)=0$  erfüllt ist, dar. Die jeweiligen Parameter sind in Abb. 10.18 in Abhängigkeit vom Feldverhältnis gezeigt. Es zeigt sich, dass die Amplituden in dem bereits zuvor identifizierten Wertebereich von  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}} \leq 0,12$  weitgehend konstant sind und Werte von weniger als  $10^\circ$  annehmen. Für die in Abb. 10.18 b gezeigte Lage des Nulldurchgangs von  $\Delta\alpha(\beta)$  in Abhängigkeit vom Feldverhältnis ergab die Messung ein weniger klares Bild, da die statistische Qualität der Daten sogar für eine qualitative Interpretation nicht ausreichend war.

Die Messung unter Variation der Intensität der Fundamentalen mit einer zentralen Wellenlänge von 780 nm hat es erlaubt, für HASE-Messungen geeignete Feldverhältnisse zu identifizieren. Es zeigt sich deutlich, dass bei einem Feldverhältnis von  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}} \geq 0,12$  der einfach-symmetrische Charakter der zu den ATI-Peaks und Seitenbändern gehörenden Elektronenwinkelverteilungen verloren geht. Dies dürfte vor allem auf die zunehmende Modulation der Ionisationsrate durch die jeweiligen elektrischen Feldstärken in den beiden Halb-Zyklen des CoRTC-Feldes zurückzuführen sein. Die unterschiedliche Gewichtung reduziert den Kontrast der Zwei-Pfad-Interferenz zwischen Wellenpaketen, die in den jeweiligen Halb-Zyklen freigesetzt werden. Hierzu trägt auch die größere Aufspaltung des negativen Vektorpotentials bei, wodurch die über den nicht-adiabatischen Startimpuls vermittelte Überlappung der beiden Wellenpakete im Endimpulsraum unwahrscheinlicher wird.

Das Feldverhältnis von 0,076, welches für die in [7] publizierten Ergebnisse eingestellt worden war, hat sich im Hinblick auf die Signalstärke der einfach-symmetrischen Fourier-Komponente  $F_1$  als optimal erwiesen. Damit entspricht es fast exakt dem Feldverhältnis von 0,071, welches sich aus dem in [91] publizierten Intensitätsverhältnis von etwa 0,005 ergibt (siehe auch Abschnitt 3.3). Für die Intensität der Lichtkomponente mit einer zentralen Wellenlänge von 400 nm werden in [91] etwa  $8 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  angegeben, was wiederum nah an dem für die vorliegende Arbeit kalibrierten Wert von  $(9,2 \pm 0,04) \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  liegt. Damit scheint die Polarisation der einzelnen Lichtkomponenten keinen Einfluss auf die Wahl eines zur Ausbildung deutlich modulierter Seitenbänder geeigneten Intensitätsverhältnisses zu haben.

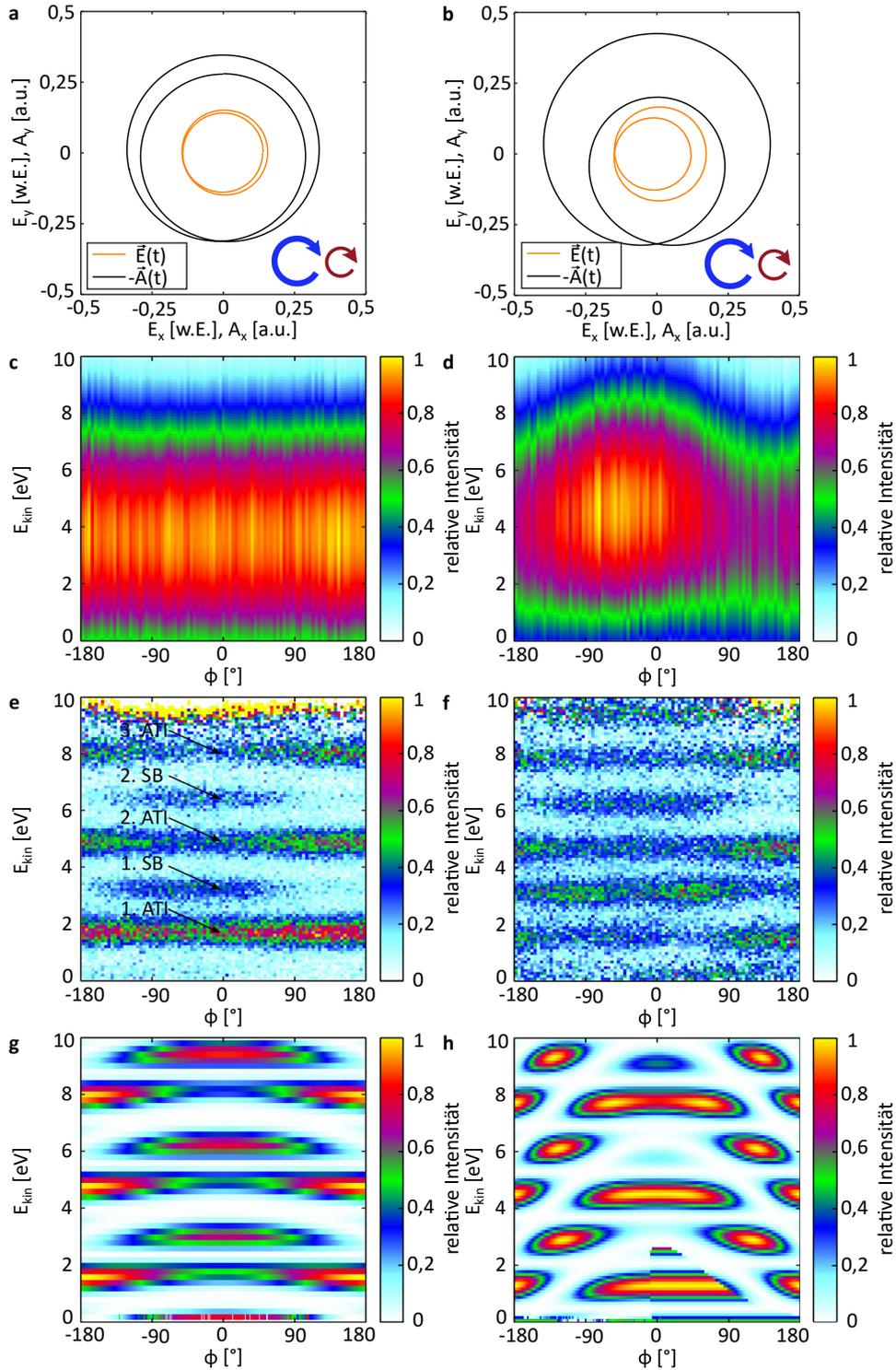


Abbildung 10.16: **a(b)** Zeitabhängiges elektrisches Feld  $\vec{E}(t)$  und dazugehöriges negatives Vektorpotential  $-\vec{A}(t)$  für ein Feldverhältnis von  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}=0,054$  ( $0,18$ ). **c(d)** Extrahierte Einhüllende der Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene. **e(f)** Aus der Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene extrahiertes Interferenzmuster. **g(d)** Mit der in 3.4.1 vorgestellten Methode berechnete Interferenzmuster.

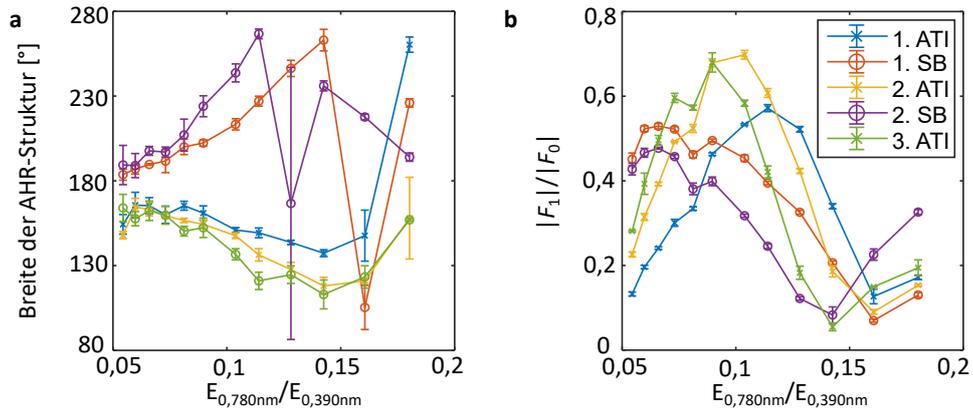


Abbildung 10.17: **a** Breite der AHR-Struktur im Winkel für jeden Energiepeak als Funktion des Feldverhältnisses  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}$ . ATI-Peaks und Seitenbänder zeigen ein im Wesentlichen gegenläufiges Verhalten. **b** Verhältnis der Amplitude der einfach-symmetrischen Fourier-Komponente  $F_1$  zur Amplitude der nullten Komponente  $F_0$  in Abhängigkeit vom Feldverhältnis  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}$ . Das Feldverhältnis, bei dem die einfach-symmetrische AHR-Struktur ihre stärkste Ausprägung erreicht, weicht für die einzelnen Energiepeaks voneinander ab.

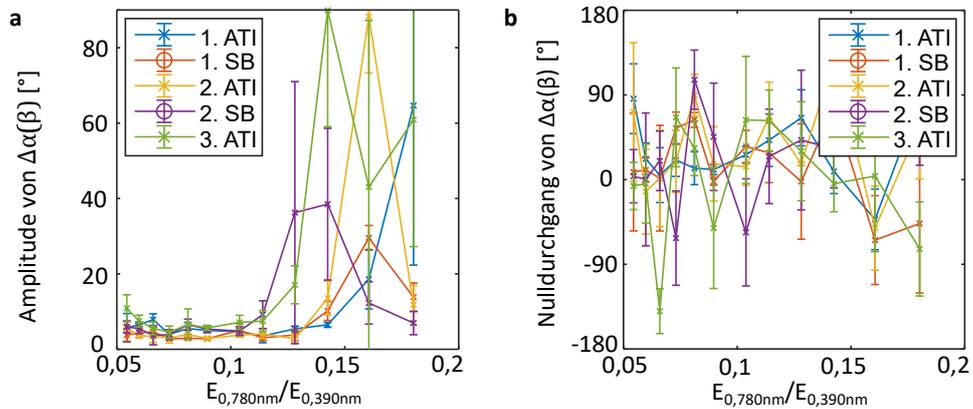


Abbildung 10.18: **a** Amplitude des  $\beta$ -abhängigen Verlaufs von  $\Delta\alpha$  in Abhängigkeit vom Feldverhältnis  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}$ . Die Werte bewegen sich für  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}} < 0,12$  im Bereich von einigen Grad. **b** Lage des Nulldurchgangs von  $\Delta\alpha(\beta)$  in Abhängigkeit vom Feldverhältnis  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}$ . Die statistische Qualität der Daten erlaubt es nicht, eine qualitative Abhängigkeit zu identifizieren.

Die in diesem Kapitel dargestellten Ergebnisse sind bisher unveröffentlicht und verstehen sich als konsequente Fortsetzung der in den letzten beiden Kapiteln 9 und 10 dargestellten Experimente zur Charakterisierung der komplexwertigen elektronischen Wellenfunktion an der Grenze zum klassisch verbotenen Bereich. In dem im Folgenden beschriebenen Experiment wurde die Starkfeldionisation von Argondimeren  $\text{Ar}_2$  (siehe Abschnitt 11.1) durch ein im Uhrzeigersinn rotierendes CoRTC-Feld untersucht. Dieses setzte sich aus einem  $2\omega$ -Feld mit  $E_{0,395\text{nm}}=0,029$  a.u. und einem  $\omega$ -Feld mit  $E_{0,790\text{nm}}=0,0022$  a.u. zusammen und weist damit ein für die Anwendung des HASE-Modells geeignetes Feldverhältnis von 0,076 auf. Hervorzuhebende Unterschiede des untersuchten Systems zu  $\text{H}_2$  sind zum einen die komplexere Struktur mit mehreren experimentell unterscheidbaren Aufbruchskanälen und zum anderen der wesentlich größere internukleare Abstand. Die beobachtete Zwei-Zentren-Interferenz (siehe Abschnitt 11.2) in dem experimentell zugänglichen Teil des Impulsraums (siehe Abschnitt 11.3) und die Änderungen von  $\Delta\alpha$  (siehe Abschnitt 3.4.1) als Funktion des Emissionswinkels des Elektrons relativ zur Dimerachse  $\beta$  (siehe Abschnitt 11.4) stellen zunächst voneinander unabhängige Observablen dar. Durch eine semiklassischen Modellierung analog zu der in Abschnitt 10.3 beschriebenen können Änderungen des Phasengradienten auf dem senkrechten Startimpuls  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  in Abhängigkeit vom Winkel  $\gamma$  des Tunnelausgangs  $\vec{r}_0$  relativ zur Dimerachse bestimmt werden (siehe Abschnitt 11.5). Abschnitt 11.6 beschreibt den Versuch, eine konsistente Modellierung der experimentellen Ergebnisse in Anlehnung an das PFT-Modell zu finden, die sowohl die beobachtete Zwei-Zentren-Interferenz als auch die Abhängigkeit von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  als Funktion von  $\gamma$  korrekt beschreibt.

### 11.1 DAS ARGONDIMER

Aufgrund der vollständig abgeschlossenen Elektronenschalen sind Argon und andere Edelgase untereinander nicht und nur in Ausnahmefällen mit anderen Elementen in der Lage, kovalente Bindungen zu bilden [148]. Allerdings gibt es eine Vielzahl von durch Van-der-Waals-Kräfte gebundenen Systemen [149, 150], von denen das Dimer, also die paarweise Bindung zweier Atome das einfachste darstellt. Die Bildung von Dimeren beschränkt sich dabei nicht auf homonukleare Systeme [151, 152]. Wie in den meisten durch Van-der-Waals-Kräfte gebundenen Systemen sind die auftretenden Bindungsenergien klein und liegen beispielsweise für das  $^4\text{He}_2$ -Dimer bei nur 150 neV [153]. Es treten große internukleare Abstände von mehreren Angström auf. Im Fall des Argondimeres beträgt der Bindungsabstand  $R_0$  im Grundzustand 3,761 Å und die Tiefe des bindenden Potentials 12,3 meV [154]. Während das Ionisationspotential  $I_p$  des Argonatoms bei 15,76 eV liegt [155], wird es für das Argondimer mit etwa 14,5 eV angegeben [156]. Allerdings liegt der Gleichgewichtsabstand  $R_1$  des gebundenen  $\text{Ar}_2^+$ -Ions bei etwa 2,38 Å ([157] zitiert nach [158]), sodass der relevante Wert für den senkrechten Übergang von der Potentialkurve des neutralen auf die Potentialkurve des ionischen Grundzustandes eher in der Nähe des atomaren Ionisationspotentials liegen dürfte (siehe Fig.1 in [158]).

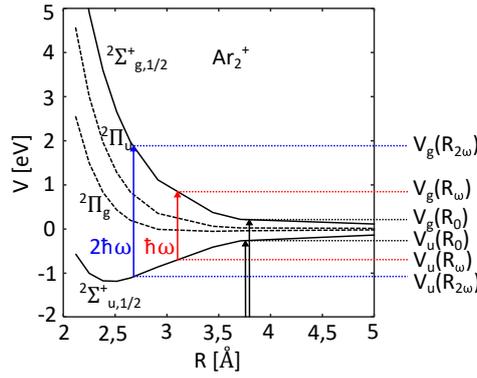


Abbildung 11.1: Berechnete potentielle Energie  $V$  in Abhängigkeit vom internuklearen Abstand  $R$  für die Zustände  $2\Sigma_{u,1/2}^+$ ,  $2\Pi_g^+$ ,  $2\Pi_u^+$  und  $2\Sigma_{g,1/2}^+$  des  $\text{Ar}_2^+$ -Ions. Daten entnommen aus [159]. Die schwarzen Pfeile stellen den Übergang aus dem neutralen Grundzustand in den gebundenen  $2\Sigma_{u,1/2}^+$ -Zustand bzw. den dissoziierenden  $2\Sigma_{g,1/2}^+$ -Zustand des  $\text{Ar}_2^+$ -Ions bei  $R = R_0 = 3,761 \text{ \AA}$  dar. Aus dem gebundenen  $2\Sigma_{u,1/2}^+$ -Zustand kann der dissoziierende  $2\Sigma_{g,1/2}^+$ -Zustand durch die spätere Absorption eines Photons der Energie  $\hbar\omega$  (roter Pfeil) bzw.  $2\hbar\omega$  (blauer Pfeil) erreicht werden.

Abb. 11.1 zeigt die Potentialkurven der für die folgende Betrachtung relevanten Zustände  $2\Sigma_{u,1/2}^+$ ,  $2\Pi_g^+$ ,  $2\Pi_u^+$  und  $2\Sigma_{g,1/2}^+$  des  $\text{Ar}_2^+$ -Ions. Die jeweiligen potentiellen Energien  $V$  in Abhängigkeit vom internuklearen Abstand  $R$  sind aus [159] entnommen und wurden unter Vernachlässigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung berechnet. Ihre Berücksichtigung würde zu einer geringfügigen Aufspaltung der zu den Zuständen  $2\Pi_g^+$  und  $2\Pi_u^+$  gehörenden Potentialkurven führen, die allerdings für die folgende Betrachtung irrelevant ist.

Bei der Ionisation kann zunächst von einer Population des *ungeraden* ionischen Grundzustandes  $2\Sigma_{u,1/2}^+$  bei einem internuklearen Abstand von  $R = R_0 = 3,761 \text{ \AA}$  ausgegangen werden, was in Abb. 11.1 durch den linken schwarzen Pfeil dargestellt wird. Nach der Propagation des aus der kohärenten Überlagerung von Vibrationszuständen erzeugten Wellenpakets zu kleineren internuklearen Abständen kann durch die Aufnahme eines weiteren Photons der dissoziative  $2\Sigma_{g,1/2}^+$ -Zustand erreicht werden [157–160]. Dies kann in Gegenwart eines CoRTC-Feldes sowohl durch ein Photon der Energie  $\hbar\omega$  (roter Pfeil) als auch der Energie  $2\hbar\omega$  (blauer Pfeil) erfolgen. Die internuklearen Abstände, bei denen es zu dem jeweiligen Übergang kommt, können mit  $R_\omega$  bzw.  $R_{2\omega}$  bezeichnet werden. Der KER des resultierenden indirekten Aufbruchs  $\text{Ar}_2^+ \rightarrow \text{Ar} + \text{Ar}^+$  lässt sich dann über  $V_u(R_0) - V_u(R_{\omega/2\omega}) + V_g(R_{\omega/2\omega})$  abschätzen, wobei  $V_{u,g}$  die vom internuklearen Abstand abhängige potentielle Energie der beiden involvierten Zustände des  $\text{Ar}_2^+$ -Ions bezeichnet. Die Koppelung des  $2\Sigma_{u,1/2}^+$ -Zustands an den  $2\Pi_g^+$ -Zustand ist stark unterdrückt, sodass dieser Dissoziationsmechanismus vernachlässigt werden kann [159]. Ein direkter Übergang aus dem neutralen Grundzustand in den *geraden* dissoziativen Zustand (rechter schwarzer Pfeil in Abb. 11.1) wurde in [161] für den Prozess der Ein-Photon-Ionisation und in [144] für den Prozess der Starkfeldionisation des Neondimers beobachtet, wobei sich der resultierende Aufbruch durch einen kleinen KER auszeichnete. Die zu den jeweiligen KER-Kanälen koinzident gemessenen Elektronenimpulsverteilungen im Molekülsystem waren durch die im folgenden Abschnitt 11.2 eingeführten Zwei-Zentren-Interferenzen moduliert.

## 11.2 COHEN-FANO-INTERFERENZ

Im Jahr 1966 wendeten *Cohen und Fano* das zur Beschreibung des optischen Doppelspaltexperiments bereits bekannte Konzept der Zwei-Zentren-Interferenz auf die Photoionisation von zweiatomigen Molekülen an [162]. Auf diese Weise gelang ihnen die Erklärung von zuvor experimentell bestimmten Unterschieden im Photoabsorptionsquerschnitt von O<sub>2</sub> und N<sub>2</sub> bei Photonenenergien im Bereich von 30-60 eV [163]. Die Interferenz ergibt sich aus der kohärenten Überlagerung von zwei durch den Ortsvektor  $\vec{R}_0$  separierten elektronischen Wellenpaketen im Impulsraum. Der Betrag  $R_0$  entspricht dabei dem internuklearen Abstand des jeweiligen Moleküls. Mit dem Elektronenimpuls  $\vec{p}_{\text{elec}}$  ergibt sich dann für die Intensität der Zwei-Zentren-Interferenz  $I_{\text{TC}}$  [144]:

$$I_{\text{TC}} \sim \cos^2 \left( \vec{p}_{\text{elec}} \cdot \frac{\vec{R}_0}{2} + \frac{\delta_{\text{rel}}}{2} \right) \quad (11.1)$$

Dabei bezeichnet  $\delta_{\text{rel}}$  einen möglichen Phasenunterschied zwischen den beiden kohärent überlagerten Wellenfunktionen. Wird der Elektronenimpuls  $\vec{p}_{\text{elec}}$  in eine zur internuklearen Achse parallele Komponente  $p_{\text{mol},\parallel}$  und eine senkrechte Komponente  $p_{\text{mol},\perp}$  zerlegt, kann das Skalarprodukt  $\vec{p}_{\text{elec}} \cdot \frac{\vec{R}_0}{2}$  durch  $\frac{p_{\text{mol},\parallel} R_0}{2}$  ersetzt werden.

Koinzidenzfähige Messmethoden wie die COLTRIMS-Technik ermöglichen die direkte experimentelle Beobachtung der Interferenzmuster im durch  $p_{\text{mol},\parallel}$  und  $p_{\text{mol},\perp}$  aufgespannten Molekülsystem [146, 161, 164–166]. Auf diese Weise gelang sogar die Messung von Phasenunterschieden  $\delta_{\text{rel}}$  zwischen den beiden emittierenden Zentren, die auf die endliche Ausbreitungsgeschwindigkeit des Lichtes entlang der internuklearen Achse von H<sub>2</sub> zurückgeführt werden konnten [167]. Das Konzept der Cohen-Fano-Interferenz kann auch auf mehratomige Systeme angewandt werden [168].

Im Bereich der Starkfeldionisation ist insbesondere die Arbeit von *Kunitski et al.* hervorzuheben [144]. Unter anderem wurde die Ionisation und Dissoziation von Neondimeren durch zirkular polarisiertes Licht mit einer zentralen Wellenlänge von 780 nm untersucht. Anhand des KER konnten die zu den beiden im vorigen Abschnitt 11.1 beschriebenen Aufbruchskanälen des Argondimers analogen Aufbruchskanäle des Neondimers unterschieden werden. Die Orientierung der Dimerachse wurde im Rahmen der 'axial recoil approximation' aus der Emissionsrichtung des Ne<sup>+</sup>-Ions bestimmt. Abb. 11.2 b(e) zeigt die gemessenen Verteilungen von  $p_{\text{mol},\parallel}$  und  $p_{\text{mol},\perp}$  (in den Achsenbeschriftungen als  $k_{\parallel}$  bzw.  $k_{\perp}$  bezeichnet) für die Population des *geraden* (*ungeraden*) Zustands des Ne<sub>2</sub><sup>+</sup>-Ions. In letzterem Fall erfolgte die Dissoziation über die Aufnahme eines zusätzlichen Photons der Energie  $\hbar\omega$ . Entlang von  $p_{\text{mol},\parallel}$  sind deutliche Modulationen der Intensität zu beobachten, die dem nach Gl. 11.1 zu erwartenden Verlauf mit  $\delta_{\text{rel}} = \pi$  (*gerade*) bzw.  $\delta_{\text{rel}} = 0$  (*ungerade*) folgen. Abb. 11.2 a und d zeigen die jeweiligen simulierten Verteilungen. Hierzu wurde die TDSE für die Ionisation eines einzelnen Neonatoms gelöst, zwei identische Kopien der resultierenden Elektronenimpulsverteilungen wurden mit dem Faktor  $\exp\left(\pm i \vec{p}_{\text{elec}} \cdot \frac{\vec{R}_0}{2}\right)$  und je nach Symmetrie mit  $\pm 1$  multipliziert und kohärent addiert. Abb. 11.2 c und f zeigen die in b und e dargestellten Verteilungen, allerdings wurde eine Normierung auf die Elektronenimpulsverteilung aus der Ionisation eines einzelnen Neonatoms vorgenommen. Dies verdeutlicht

die alleinige Abhängigkeit des Interferenzterms von der Impulskomponente  $p_{\text{mol},\parallel}$ .

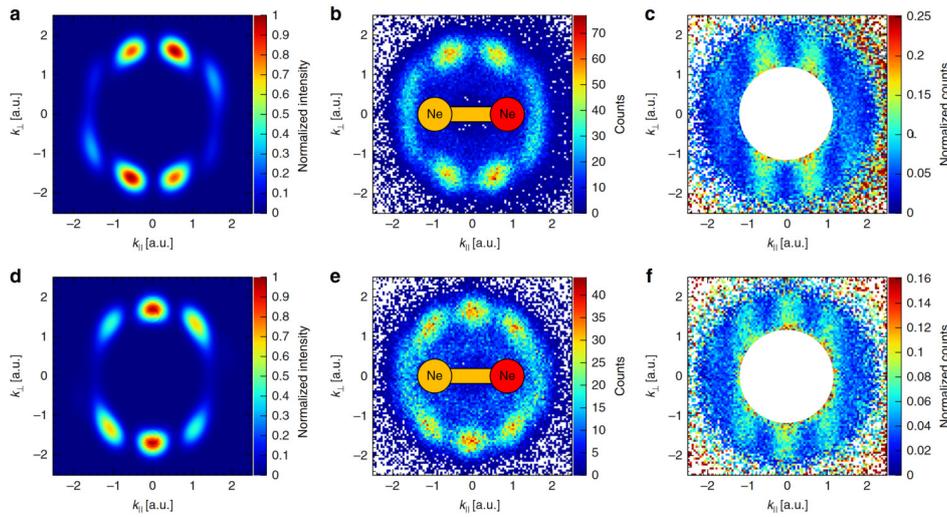


Abbildung 11.2: Elektronenimpulsverteilungen im durch  $p_{\text{mol},\parallel}$  und  $p_{\text{mol},\perp}$  (in den Achsenbeschriftungen als  $k_{\parallel}$  bzw.  $k_{\perp}$  bezeichnet) aufgespannten Molekülsystem. Simulierte (a, d) und gemessene (b, e) Verteilungen für die beiden betrachteten Aufbruchskanäle (siehe Text). Die rote Seite des skizzierten Neodimers stellt die Emissionsrichtung des  $\text{Ne}^+$ -Ions dar. c, f Verteilungen aus b, e normiert auf die die Elektronenimpulsverteilung aus der Ionisation eines einzelnen Neatoms. Abbildung entnommen aus [144].

Die Wahl von Argondimeren für die im weiteren Verlauf dieses Kapitels vorgestellte Messung wurde durch die soeben beschriebene Beobachtung von Zwei-Zentren-Interferenzen in [144] und die Vorhersage divergierender Wignerzeiten [169] in den Minima der durch Gl. 11.1 beschriebenen Interferenzstruktur motiviert.

### 11.3 AUFBRUCHSKANÄLE UND ZWEI-ZENTREN-INTERFERENZ

Die allen folgenden Auswertungsschritten zugrunde liegenden rekonstruierten Impulse der gemessenen Teilchen im Laborsystem finden sich in Abb. F.3 in Anhang F. Die für einen möglichst untergrundfreien Nachweis des Aufbruchs  $\text{Ar}_2 \rightarrow \text{Ar} + \text{Ar}^+ + e^-$  durchgeführten Schnitte in der Ionenimpulsverteilung werden in Anhang J dargestellt. Abb. G.2 in Anhang G zeigt die sich unter Berücksichtigung dieser Schnitte ergebenden Impulsverteilungen in der Polarisationsenebene nach Anwendung der Phasenkorrektur.

Wie in Abb. G.2 b ersichtlich, weist die Impulsverteilung der  $\text{Ar}^+$ -Ionen in der Polarisationsenebene zwei klar erkennbare Ringe bei einem Radialimpuls von 55 a.u. und 82 a.u. auf. Alle Ionenimpulse wurden auf einen Winkel von höchstens  $\pm 45^\circ$  zur Polarisationsenebene, alle Elektronenimpulse auf einen Impuls in Lichtausbreitungsrichtung von maximal  $\pm 0,2$  a.u. eingeschränkt. Um die Eigenschaften und Bedeutung der sichtbaren Aufbruchskanäle näher zu studieren, ist der KER, der sich aus dem Zweifachen der gemessenen kinetischen Energie des jeweiligen  $\text{Ar}^+$ -Ions berechnet, in Abb. 11.3 a aufgetragen. Es werden drei Maxima in der KER-Verteilung beobachtet. Das durch einen gelben Kasten markierte Maximum bei 1,125 eV und das durch einen violetten Kasten markierte Maximum bei 2,5 eV lassen sich mit hoher Wahrscheinlichkeit auf den in Abschnitt 11.1 beschriebenen zweistufigen Dissoziationsvorgang zurückführen. Das Maximum bei 1,125 eV re-

sultiert höchstwahrscheinlich aus der Aufnahme eines Photons der fundamentalen Wellenlänge von 790 nm, die Position des Maximums entspricht fast genau dem in [158] publizierten Wert von 1,2 eV für die Aufnahme eines Photons der Wellenlänge 780 nm. Das Maximum bei 2,5 eV kann damit auf die Aufnahme eines Photons der 2. Harmonischen bei einer Wellenlänge von 395 nm zurückgeführt werden. Dieser Wellenlängenbereich wurde in [126] nicht abgedeckt, die Position des Maximums wirkt aus der Tendenz der dort bis zu einer Wellenlänge von 600 nm gezeigten Daten allerdings plausibel. Für diese Interpretation spricht auch, dass dieser Kanal dominiert, was auf den höheren Anteil der  $2\omega$ -Komponente an dem gewählten CoRTC-Feld zurückzuführen sein dürfte. Da bei dem geschilderten Übergang zunächst der  ${}^2\Sigma_{u,1/2}^+$ -Zustand populiert wird, werden die beiden Aufbruchskanäle im Folgenden als 'ungerade 1' und 'ungerade 2' bezeichnet. In Analogie zu der in [144] gemachten Beobachtung dürfte das durch einen roten Kasten markierte Maximum in der KER-Verteilung auf den direkten Übergang in den  ${}^2\Sigma_{g,1/2}^+$ -Zustand zurückzuführen sein, der Aufbruchskanal wird folglich als 'gerade' bezeichnet. Um eine Vermischung mit Ionisationsereignissen an atomarem Argon zu unterbinden, wurde für die weitere Auswertung ein minimaler KER von 0,02 eV gefordert.

Um die Eigenschaften der einzelnen Aufbruchskanäle näher zu untersuchen, bietet es sich an, die Elektronenimpulsverteilungen im Molekülsystem auf die im vorigen Abschnitt 11.2 eingeführten Zwei-Zentren-Interferenzen hin zu untersuchen. Hierfür wird die zur Dimerachse parallele Impulskomponente in der Polarisationssebene mit  $p_{\text{mol},\parallel} = \cos(\beta) \cdot p_r$  und die zur Dimerachse senkrechte Impulskomponente in der Polarisationssebene mit  $p_{\text{mol},\perp} = \sin(\beta) \cdot p_r$  definiert. Dabei entspricht  $\beta$  der Definition in Gl. 10.1 und  $p_r = \sqrt{p_y^2 + p_z^2}$  dem Radialimpuls in der Polarisationssebene des Lichtes  $yz$ . Um den Rückstoß des Elektrons auf den Schwerpunkt des Dimers zu kompensieren, wurde die Hälfte des gemessenen Elektronenimpulses vektoriell auf den gemessenen Impuls des  $\text{Ar}^+$ -Ions addiert [142]. Abb. 11.3 b zeigt die für den Aufbruchskanal 'gerade' resultierende Impulsverteilung. Bei  $p_{\text{mol},\parallel} = 0$  wird eine deutlich reduzierte Intensität beobachtet, was den in Abb. 11.2 b gezeigten Ergebnissen entspricht. Die in Abb. 11.3 c und d gezeigten Impulsverteilungen zu den beiden Aufbruchskanälen 'ungerade 1' und 'ungerade 2' weisen völlig konsistent ein gegensätzliches Verhalten auf. Die Interpretation wird dadurch bestärkt, dass die in Abb. 11.3 b zu sehenden ATI-Peaks und Seitenbänder zu den in Abb. 11.3 c und d gezeigten um 0,28 eV zu niedrigeren Energien verschoben sind. Der in [159] allerdings ohne Berücksichtigung des Spin-Orbit-Splittings berechnete Energieabstand zwischen dem  $\Sigma_{u,1/2}^+$ - und dem  $\Sigma_{g,1/2}^+$ -Zustand liegt für  $R=7$  a.u. ( $3.703 \text{ \AA}$ ) bei 0,48 eV. Inwiefern direkte Übergänge vom neutralen Grundzustand auf die durch Spin-Orbit-Splitting weiter aufgespaltenen Zustände  ${}^2\Pi_g^+$  und  ${}^2\Pi_u^+$  einen Beitrag zu dem als 'gerade' bezeichnete Aufbruchskanal leisten, kann an dieser Stelle nicht abschließend geklärt werden.

Die in den Abb. 11.3 b-d gezeigten Elektronenimpulsverteilungen im System des Dimers werden sowohl durch die Einhüllende der Elektronenimpulsverteilung entlang  $p_r$ , als durch die Zwei-Zentren-Interferenz modulierte. Um die beiden Beiträge möglich gut voneinander zu trennen, werden die in Abb. 11.3 b und d gezeigten Impulsverteilungen auf die jeweilige winkelunabhängige Verteilung des Radialimpulses normiert. Ein ähnliches Vorgehen wurde in [144] gewählt, allerdings wurden dort keine sichtbaren Interferenzen in der Energie in Form von ATI-Peaks beobachtet. Der Aufbruchskanal 'ungerade 1' wird fortan als äquivalent zu 'ungerade 2' betrachtet und aufgrund seiner schlechteren statistischen

Qualität in diesem Abschnitt nicht weiter untersucht. Abb. 11.3 e und f zeigen die resultierenden normierten Verteilungen. Die Lage der Dimerachse ist durch zwei verbundene Kreise illustriert, wobei rot die Emissionsrichtung des  $\text{Ar}^+$ -Ions angibt. Die schwarzen vertikalen Linien geben die Positionen der bei einem internuklearen Abstand von  $R_0=3,761 \text{ \AA}$  zu erwartenden Maxima (durchgezogene Linien) und Minima (gestrichelte Linien) der Zwei-Zentren-Interferenz gemäß Gl. 11.1 an. Dabei wurde für  $\delta_{\text{rel}}$  im Fall *gerader* Symmetrie der Wert  $\pi$ , im Fall *ungerader* Symmetrie der Wert 0 angenommen. Der im Impulsraum ausgeleuchtete Teil des Interferenzmusters entspricht der erwarteten Struktur. Durch den im Vergleich zu [144] wesentlich geringeren Betrag des negativen Vektorpotentials in der vorliegenden Messung ist allerdings nur ein kleiner Ausschnitt des Interferenzmusters sichtbar. Insbesondere in Abb. 11.3 e ist eine leichte Drehung der gemessenen Interferenzstreifen entgegen der durch die farbigen Pfeile angegebenen Helizität des Laserfeldes zu beobachten. Diese ist möglicherweise auf den Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung des Elektrons mit dem Mutterion auf die Phasen der elektronischen Wellenfunktion zurückzuführen. Die durch die blauen Kurven dargestellten Projektionen auf die Impulskomponente  $p_{\text{mol},\parallel}$  zeigen eine Modulationstiefe von etwa 70% für den Aufbruchskanal 'gerade' (Abb. 11.3 e) und von etwa 40% für den Aufbruchskanal 'ungerade 2' (Abb. 11.3 f). Die roten Kurven stellen die jeweilige Vorhersage für  $I_{TC}$  aus Gl. 11.1 dar.

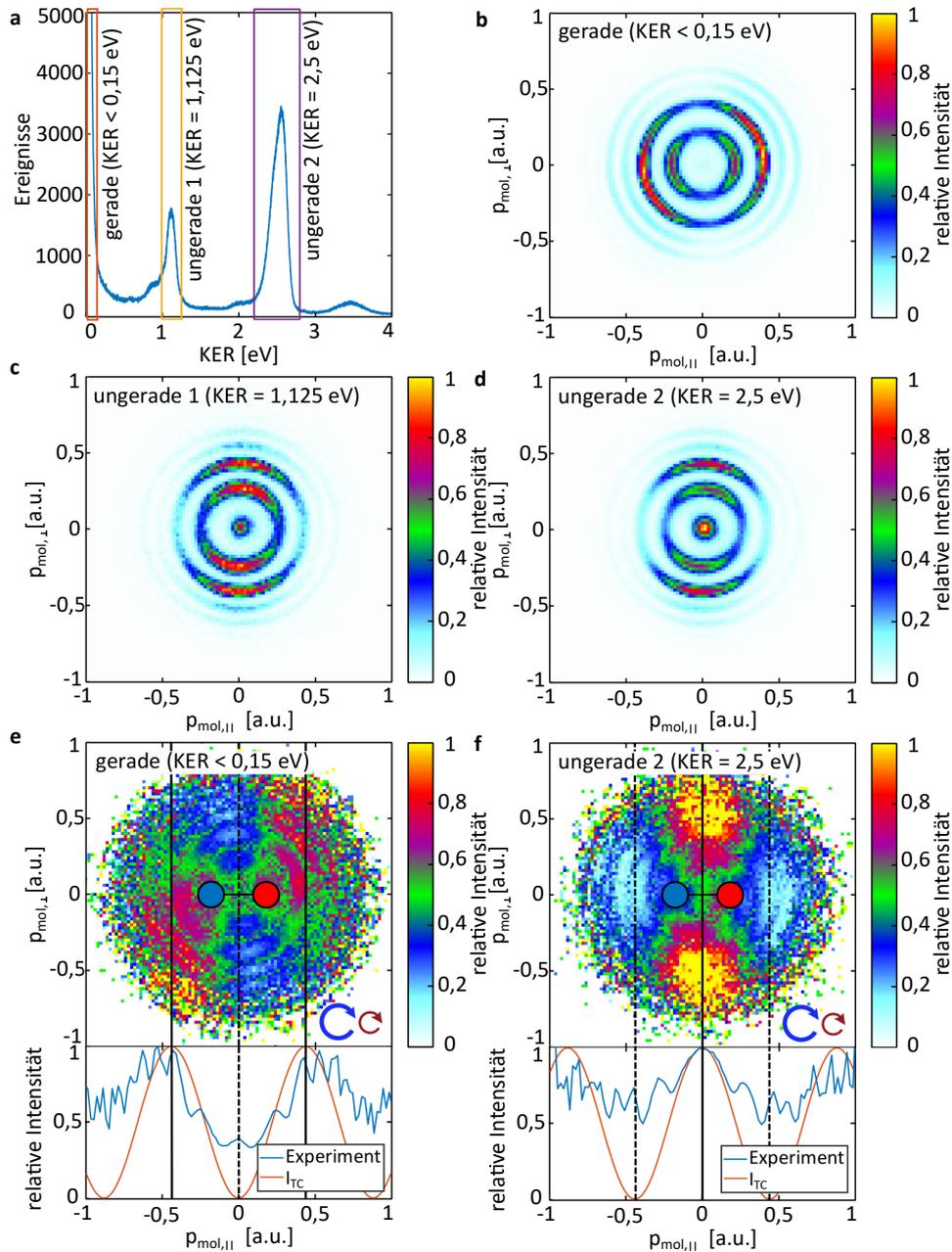


Abbildung 11.3: **a** Kinetischen Energie aus der Dissoziation des Argondimers. Die den drei im Folgenden betrachteten Aufbruchskanälen entsprechenden Intervalle im KER sind durch farbige Kästen dargestellt. **b-d** Paralleler Elektronenimpuls  $p_{\text{mol},\parallel}$  und senkrechter Elektronenimpuls  $p_{\text{mol},\perp}$  bezüglich der Dimerachse für die drei Aufbruchskanäle. **e,f** Normierte Elektronenimpulsverteilungen aus **b,d** (siehe Text) und ihre Projektionen auf die Komponente  $p_{\text{mol},\parallel}$  (blaue Kurven). Die durchgezogenen (gestrichelten) vertikalen Linien stellen die Positionen der aus dem internuklearen Abstand  $R_0=3,761 \text{ \AA}$  erwarteten Interferenz-Maxima (Minima) dar. Der Verlauf von  $I_{TC}$  ist durch die roten Kurven dargestellt.

## 11.4 TRENNUNG VON INTERFERENZ UND EINHÜLLENDER

Analog zu Abschnitt 10.2 im vorangegangenen Kapitel sollen auch in diesem Abschnitt die Beiträge der AHR-Interferenzstruktur und der Einhüllenden der Elektronenimpulsverteilung separiert und jeweils untersucht werden. Die Betrachtung soll sich zunächst mit der  $\beta$ -Abhängigkeit der Einhüllenden befassen. Abb. 11.4 a und b zeigt in Analogie zu Abb. 10.4 a die zu den Aufbruchskanälen 'gerade' und 'ungerade 2' gehörigen Elektronenwinkelverteilungen im Lichtsystem integriert über die kinetische Energie als Funktion von  $\beta$ . Auf die Festlegung einer absoluten Orientierung des negativen Vektorpotentials wie in Kapitel 10 soll in diesem Kapitel verzichtet werden. Während sich entlang von  $\beta$  die im vorigen Abschnitt diskutierte Zwei-Zentren-Interferenz zeigt, wird die Winkelverteilung im Lichtsystem durch eine klar erkennbare Zweifach-Symmetrie dominiert. Dies steht im Kontrast zu der Dominanz der Einfach-Symmetrie bei der Untersuchung des Wasserstoffmoleküls. Die Drehwinkel der jeweiligen Fourierkomponenten entlang von  $\phi$  sind in Abb. 11.4 c und d als Funktion von  $\beta$  dargestellt. Obwohl die schwach ausgeprägte Einfach-Symmetrie einen unsicheren  $\beta$ -abhängigen Verlauf zur Folge hat, scheint der Aufbruchskanal 'gerade' eine ähnliche Kurvenform zu der in Abb. 11.4 b gezeigten aufzuweisen. Zweifelsfrei lässt sich hingegen eine globale Drehung zwischen dem Aufbruchskanal 'gerade' und den beiden Kanälen 'ungerade 1' und 'ungerade 2' feststellen. Der in Abb. 11.4 d gezeigte Verlauf der Winkel der Zweifach-Symmetrie als Funktion von  $\beta$  ist ähnlich zu dem zuvor im Falle molekularen Wasserstoffs beobachteten. Die schwache Ausprägung der Einfach-Symmetrie ist möglicherweise darauf zurückzuführen, dass die Ionisation des Argondimers als Vorgang an voneinander nahezu unabhängigen Atomen aufgefasst werden muss (siehe Abschnitt 11.6), während die Nähe des Tunnelausgangs zu einem der beiden Atome des Wasserstoffmoleküls zumindest teilweise Rückschlüsse auf die Emissionsrichtung des  $H^+$ -Ions zulässt (vgl. [139] und Abschnitt 10.2). Ein weiterer Aspekt könnte eine weniger starke Modulation der Ionisationswahrscheinlichkeit durch die Winkelabhängigkeit des CoRTC-Feldes sein. Während das Feldverhältnis  $E_{0,790\text{nm}}/E_{0,395\text{nm}}$  von 0,76 exakt dem aus der im vorigen Kapitel 10 diskutierten Messung entspricht, ist die absolute Feldstärke um etwa ein Viertel geringer (vgl.  $E_{0,395\text{nm}}=0,029$  a.u. zu  $E_{0,390\text{nm}}=0,037$  a.u.). Die bei vergleichbarem Ionisationspotential entsprechend erhöhte Nicht-Adiabatizität dürfte die Feldabhängigkeit der Ionisationswahrscheinlichkeit verringern (siehe Abschnitt 2.5).

Um die zuletzt beschriebene Hypothese zu prüfen, wird die Einhüllende der Elektronenimpulsverteilungen im Lichtsystem aus der Ionisation atomaren Argons in Abb. 11.4 e dargestellt. Die Winkelverteilung der in Abb. 11.4 e gezeigten Einhüllenden ist in Abb. 11.4 f als grüne Kurve dargestellt. Ihr werden die jeweiligen Winkelverteilungen der Einhüllenden zu den Aufbruchskanälen 'gerade' (blaue Kurve), 'ungerade 1' (rote Kurve) und 'ungerade 2' (gelbe Kurve) integriert über alle Werte von  $\beta$  gegenübergestellt. Auffällig ist die Drehung um mehr als  $100^\circ$  zwischen den zu den Aufbruchskanälen 'gerade' und 'ungerade 1' bzw. 'ungerade 2' gehörenden Winkelverteilungen der Einhüllenden. Die Winkelverteilungen atomaren Argons und des Aufbruchskanals 'gerade' weisen nur eine Modulationstiefe von etwa 8% auf, was deutlich weniger als die im vorigen Kapitel beobachteten 15% ist und somit für eine geringere Feldabhängigkeit der Ionisationswahrscheinlichkeit spricht. Die beiden Kanäle 'ungerade 1' und 'ungerade 2' sind mit etwa 12% auffallend stärker moduliert.

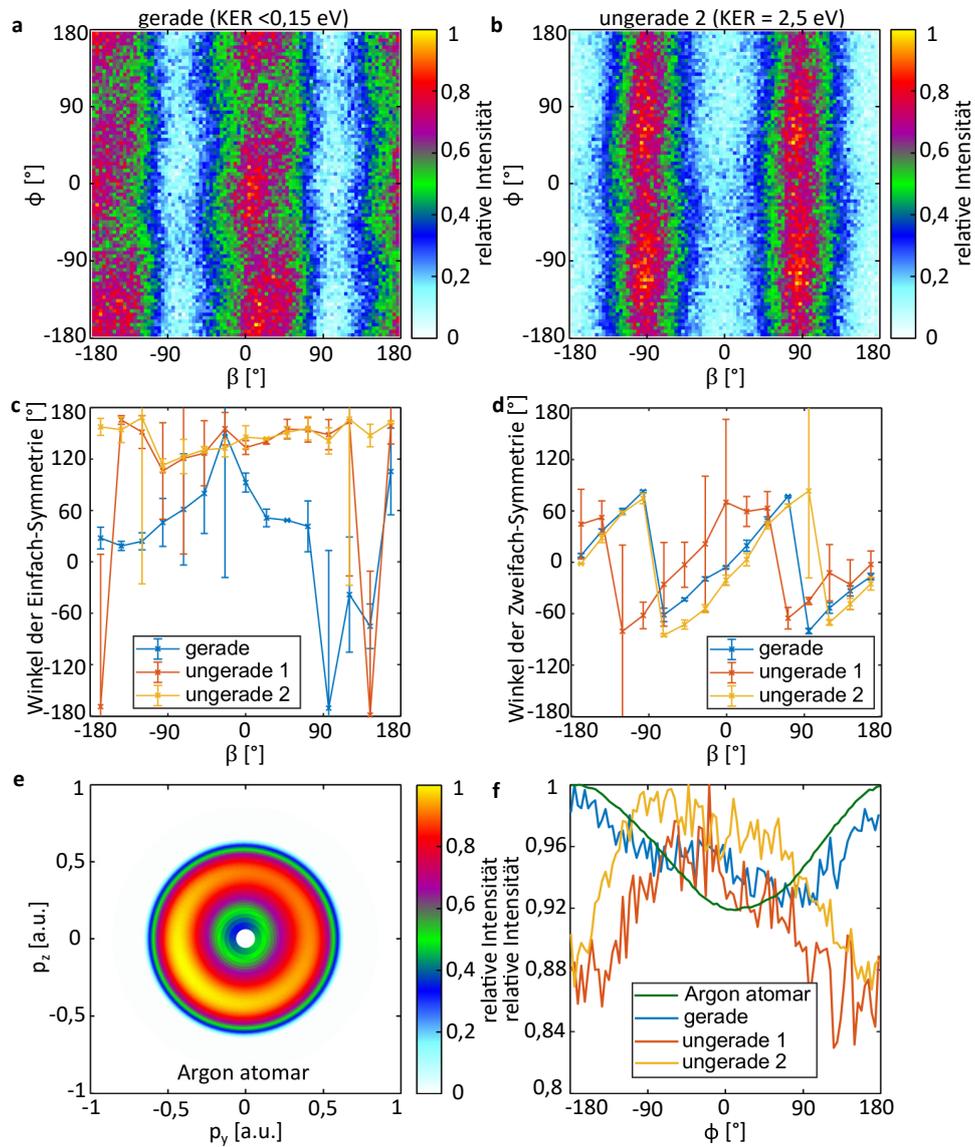


Abbildung 11.4: **a** Die Winkelverteilung der Einhüllenden integriert über die kinetische Energie als Funktion von  $\beta$  für den Aufbruchskanal 'gerade'. **b** Wie **a**, allerdings für den Aufbruchskanal 'ungerade 2'. **c** Der Winkel der spaltenweise bestimmten einfach-symmetrischen Fourier-Komponente für die drei untersuchten Aufbruchskanäle. **d** Der Winkel der spaltenweise bestimmten zweifach-symmetrischen Fourier-Komponente für die drei untersuchten Aufbruchskanäle. **e** Einhüllende der Elektronenimpulsverteilung im Lichtsystem aus der Ionisation atomaren Argons. Die Darstellung entspricht der für Fig. S1 b in [7] gewählten. **f** Winkelverteilungen der Einhüllenden im Lichtsystem integriert über alle Werte von  $\beta$ .

Im weiteren Verlauf soll die Extraktion der AHR-Interferenzstruktur aus der Elektronenimpulsverteilung und die darauf basierende Bestimmung der HASE-Observablen  $\Delta\alpha(\beta)$  beschrieben werden. Abb. 11.5 a zeigt die gemessenen Elektronenwinkelverteilung im Lichtsystem als Funktion der kinetischen Energie am Beispiel atomaren Argons. Die Einteilung der Maxima in der Energieverteilung in ATI-Peaks und Seitenbänder bezieht sich wiederum auf das Verschwinden der Seitenbänder im Falle eines reinen  $2\omega$ -Feldes. Die als '1. SB' und '2. ATI' bezeichneten Maxima sind am stärksten ausgeprägt. Auf sie wird sich die weitere Analyse, einschließlich der Bestimmung von  $\Delta\alpha(\beta)$  beschränken. Wie im vorangegangenen Kapitel 10 beschrieben, wird zunächst die  $\beta$ -abhängige Ionisationswahrscheinlichkeit für jede kinetische Energie aus der Elektronenimpulsverteilung heraus normiert. Abb. 11.5 b-d zeigt die hierzu verwendeten Verteilungen. Abgesehen von der durch die Zwei-Zentren-Interferenz verursachten Modulation in Abhängigkeit von  $\beta$  lässt sich auch hier die Verschiebung der Maxima in der Energieverteilung um etwa 0,28 eV zwischen dem *geraden* und den beiden *ungeraden* Aufbruchskanälen beobachten (siehe vorangegangener Abschnitt 11.3).

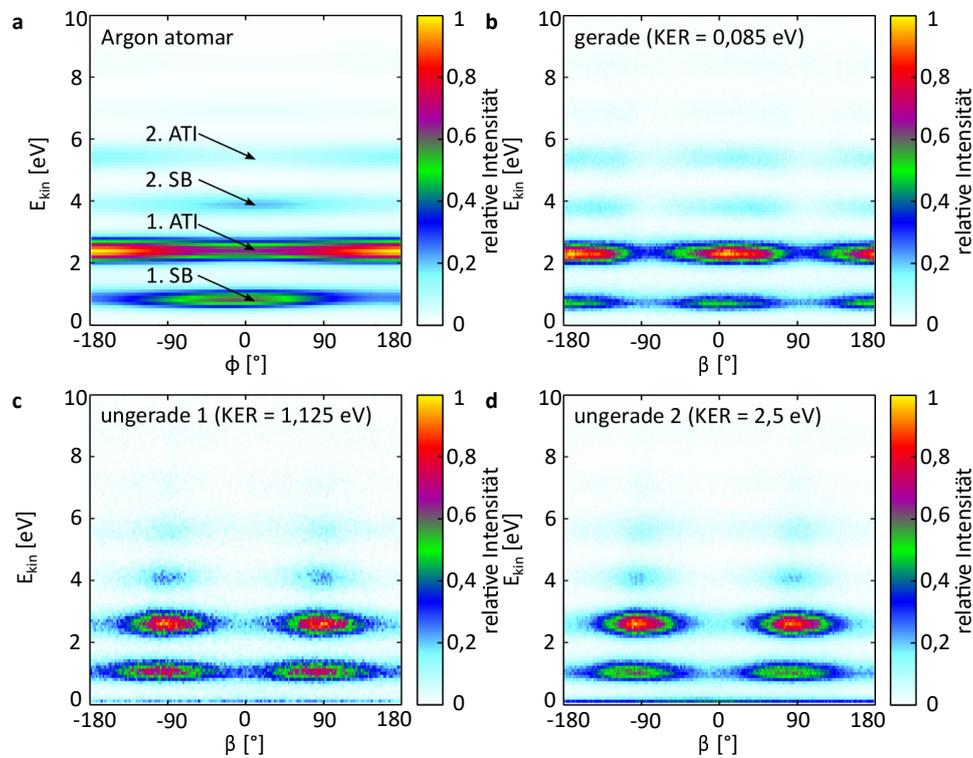


Abbildung 11.5: **a** Die gemessene kinetische Energie der Elektronen in Abhängigkeit vom Winkel  $\phi$  im Lichtsystem für Elektronen aus der Ionisation atomaren Argons. Es werden mehrere ATI-Peaks und Seitenbänder beobachtet. **b-d** Kinetische Energie des Elektrons gegen  $\beta$  für die Aufbruchskanäle 'gerade', 'ungerade 1' und 'ungerade 2'. Die dargestellten Verteilungen wurden direkt zur Normierung der Elektronenimpulsverteilungen genutzt.

Nach der Herausrückung der in 11.5 b-d dargestellten Abhängigkeit von  $\beta$  für jedes einzelne Ereignis, wurde in Analogie zu dem in Abschnitt 10.2 geschilderten Vorgehen eine Einteilung der Ereignisse in Intervalle entlang  $\beta$  von  $10^\circ$  vorgenommen. Für jeden Aufbruchskanal und jedes Intervall von  $\beta$  wurde die in Abb. 10.2 dargestellte Extraktion der Einhüllenden aus der energieabhängigen Elektronenwinkelverteilung vorgenommen. Abb. 11.6 b (d) zeigt die daraufhin

als Funktion von  $\beta$  bestimmten Drehwinkel  $\alpha$  der AHR-Struktur für das erste Seitenband (den ersten ATI-Peak). Die jeweiligen über alle Werte von  $\beta$  integrierten Drehwinkel  $\alpha_{\text{mean}}$  sind als horizontale Linien dargestellt. Wie im vorigen Kapitel (siehe Abb. 10.3 **b, d**) werden ein zweifach-symmetrischer Verlauf von  $\alpha(\beta)$  und ein Winkelunterschied von etwa  $180^\circ$  zwischen Seitenband und ATI-Peak beobachtet. Abb. 11.6 **a** und **c** stellen die resultierenden Ergebnisse für  $\alpha(\beta)$  dar, wenn sowohl auf die Herausnormierung der  $\beta$ -Abhängigkeit, als auch der energieabhängigen Einhüllenden (siehe Abb. 10.2) verzichtet wird. Im Gegensatz zu dem im vorigen Kapitel beschriebenen Fall (siehe Abb. 10.3 **a, c**), geht die zweifach-symmetrische Struktur von  $\alpha(\beta)$  für das erste Seitenband nicht und für den ersten ATI-Peak nur teilweise verloren. Dies dürfte zum einen auf die deutlich größere Amplitude von  $\alpha(\beta)$  und die schwächere Ausprägung der Feldabhängigkeit der Ionisationswahrscheinlichkeit zurückzuführen sein. Während bei der Betrachtung der Einhüllenden die Winkel der Einfach-Symmetrie starke Unterschiede zwischen den einzelnen Aufbruchskanälen zeigen (siehe Abb. 11.4 **f**), unterscheiden sich die Werte von  $\alpha_{\text{mean}}$  allenfalls minimal voneinander.

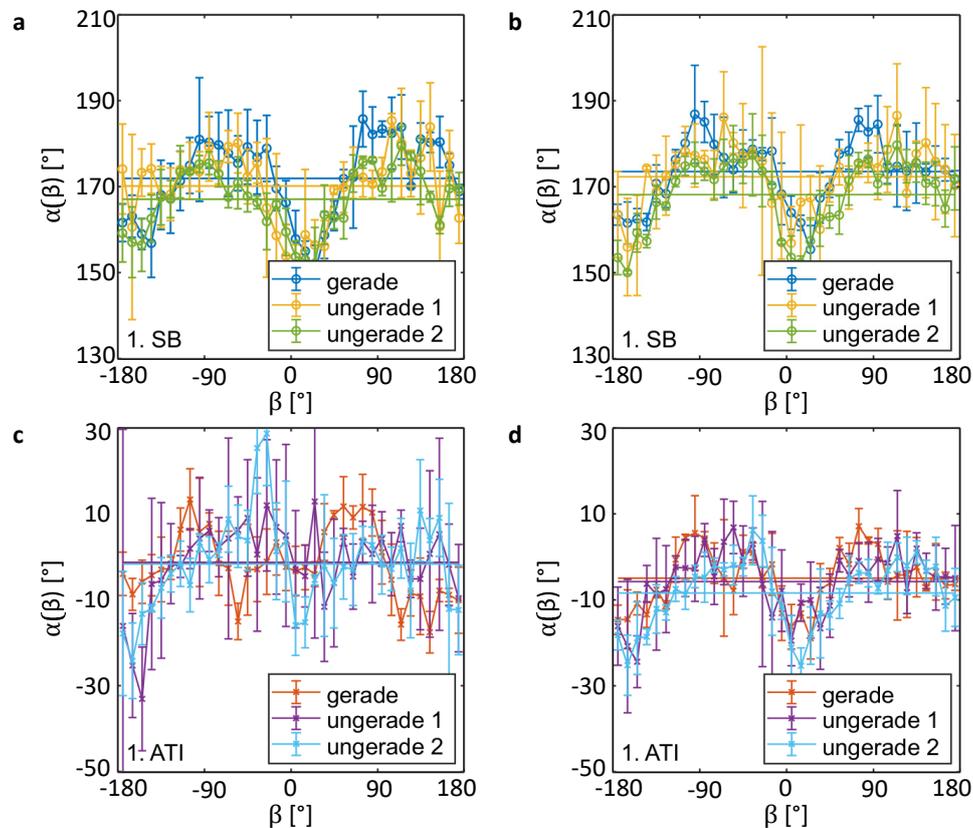


Abbildung 11.6: **a** Experimentell bestimmte Winkel  $\alpha$  des ersten Seitenbandes in Abhängigkeit von  $\beta$  ohne die Herausnormierung der  $\beta$ -Abhängigkeit und die in Abschnitt 10.2 beschriebene Extraktion der Einhüllenden aus der energieabhängigen Elektronenwinkelverteilung für die drei untersuchten Aufbruchskanäle. **b** Wie **a**, jedoch nach den beschriebenen Normierungen. **c** Wie **a**, jedoch für den ersten ATI-Peak. **d** Wie **b**, jedoch für den ersten ATI-Peak. Die jeweiligen mittleren Drehwinkel  $\alpha_{\text{mean}}$  sind als horizontale Linien eingezeichnet.

Durch Subtrahieren des jeweiligen  $\alpha_{\text{mean}}$  von den in Abb. 11.6 **b** und **d** gezeigten  $\alpha(\beta)$  ergibt sich die Observable  $\Delta\alpha(\beta)$ . Sie ist symmetrisiert für die drei untersuch-

ten Aufbruchskanäle in Abb. 11.7 dargestellt, wobei der betrachtete Bereich von  $\beta$  wie in Abb. 10.6 auf  $-90^\circ$  bis  $+90^\circ$  eingeschränkt wurde. Die Kurvenverläufe von  $\Delta\alpha(\beta)$  zeigen im Rahmen der statistischen Qualität der Daten weder eine Abhängigkeit von dem betrachteten Energiepeak, noch von dem ausgewählten Aufbruchskanal. Insbesondere Letzteres wirkt im Hinblick auf die Struktur der Molekülorbitale des Dimers zunächst überraschend (siehe Abschnitt 11.6). Aufgrund dieser Beobachtung scheint es sinnvoll, einen über alle sechs dargestellten Kurven gemittelten Wert von  $\Delta\alpha(\beta)$  zu berechnen. Dieser ist als schwarze Kurve dargestellt und weist erwartungsgemäß eine deutlich reduzierte statistische Unsicherheit auf. Der graue Bereich entspricht dabei dem ansonsten durch Fehlerbalken angegebenen Intervall. Die größere Amplitude von  $\Delta\alpha(\beta)$  lässt bereits vermuten, dass bei der Ionisation von Argondimeren größere Phasengradienten  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  auf dem zum Tunnelausgang senkrechten Startimpuls auftreten, als dies für  $\text{H}_2$  der Fall ist. Diese sollen im nächsten Abschnitt quantitativ korrekt unter Berücksichtigung der Feldstärken des CoRTC-Feldes bestimmt werden.

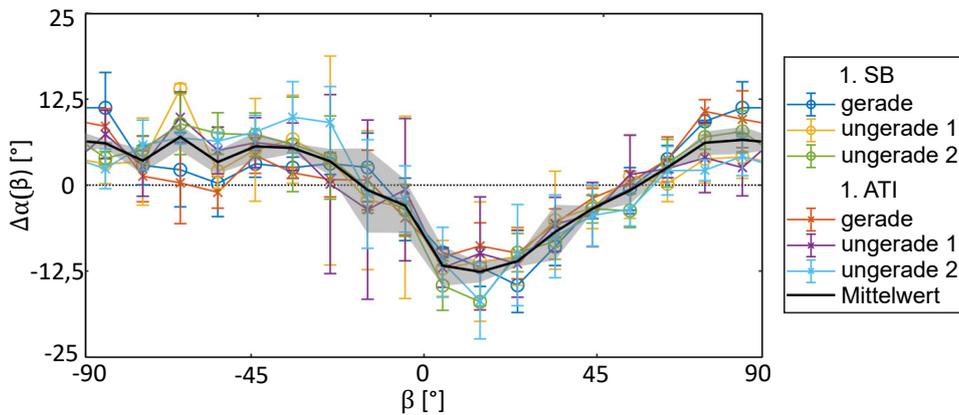


Abbildung 11.7: Symmetrisierte Werte von  $\Delta\alpha(\beta)$  als Funktion von  $\beta$  für die drei untersuchten Aufbruchskanäle. Die schwarze Kurve stellt den über alle sechs Kurven gemittelten Verlauf dar und weist eine geringere statistische Unsicherheit (grauer Bereich) auf.

## 11.5 BESTIMMUNG DER PHASENGRADIENTEN AM TUNNELAUSGANG

Die semiklassische Modellierung durch das SCTS-Modell zur Bestimmung des Zusammenhangs zwischen  $\Delta\alpha$  und  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$ ,  $p_{\text{elec}}$  und  $p_{\text{initial}}$ , sowie  $\beta$  und  $\gamma$  wurde völlig analog zu dem in Abschnitt 10.3 beschriebenen Vorgehen durchgeführt. Daher soll die Beschreibung an dieser Stelle nur sehr knapp ausfallen. Die einzigen Unterschiede stellen die Anzahl von 500 Mio. berechneten Trajektorien, sowie die angepassten Feldstärken und Wellenlängen dar. Es wurden  $E_{0,395\text{nm}}=0,029$  a.u.,  $E_{0,790\text{nm}}=0,0022$  a.u. und ein Ionisationspotential  $I_p$  von 15,76 eV angenommen.

Abb. 11.8 a zeigt die berechnete Elektronenimpulsverteilung für  $\Delta\Phi'_{\text{init}} = 0$  projiziert auf die Polarisations Ebene  $yz$ . Die ermittelte Zuordnung zwischen  $\Delta\alpha$  und  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  ist in Abb. 11.8 b dargestellt. Sie weist für die ersten beiden ATI-Peaks und Seitenbänder praktisch keine nennenswerten Unterschiede auf. Die aus dieser Zuordnung berechneten Phasengradienten  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  als Funktion von  $\beta$  werden in Abb. 11.8 c gezeigt. Der durch die schwarze Kurve dargestellte Mittelwert weist einen maximalen Phasengradienten von etwa 3 rad/a.u. auf. Dies ist in etwa das Fünffache des für  $\text{H}_2$  maximal erreichten Wertes und verhält sich damit ähnlich zu dem Verhältnis des internuklearen Abstands in beiden Systemen. Für einen einfacheren

Vergleich mit den Ergebnissen der im folgenden Abschnitt 11.6 diskutierten Modelle wurde Gl. 10.2 genutzt, um  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\gamma)$  aus  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\beta)$  zu bestimmen.  $\kappa$  wurde auf  $-29^\circ$  für das erste Seitenband bzw.  $-25^\circ$  für den ersten ATI-Peak bestimmt. Das Ergebnis ist in Abb. 11.8 d dargestellt. Der Verlauf des Mittelwertes von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\gamma)$  dient im weiteren Verlauf als Referenz zur Beurteilung der Übereinstimmung von Experiment und Modell.

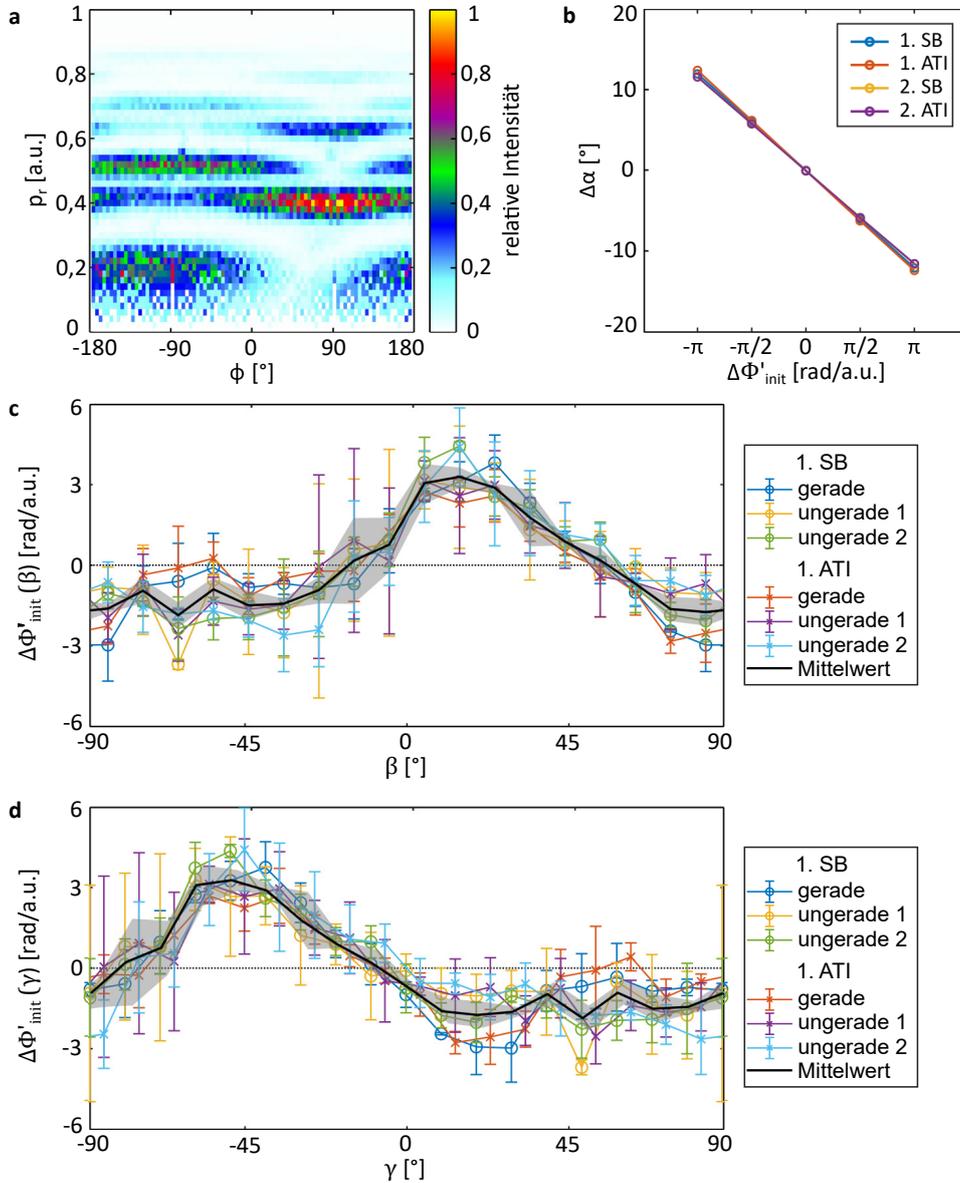


Abbildung 11.8: **a** Elektronen-Impulsverteilung projiziert auf die Polarisationssebene aus der SCTS Rechnung. **b** Aus der Variation von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  bestimmte Drehwinkel  $\Delta\alpha$ . **c** Unter Anwendung der in **b** gezeigten Zuordnung aus den gemessenen Werten von  $\Delta\alpha(\beta)$  berechneter Phasengradient  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\beta)$ . **d** Aus der Abbildung von  $\beta$  auf  $\gamma$  bestimmter Kurvenverlauf von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\gamma)$ .

11.6 PFT-MODELL FÜR AR<sub>2</sub>

Zunächst soll der Versuch unternommen werden, die auf dem PFT-Modell (siehe Abschnitt 3.4.3) basierende und in [7] und Abschnitt 10.4 vorgestellte Methode zur Vorhersage von  $\Delta\Phi_{\text{init}}(\gamma)$  aus der räumlichen Struktur des molekularen Orbitals auf das Argondimer unverändert anzuwenden. Hierfür wird die Überlagerung zweier  $3p_0$ -Orbitale [123] in einem internuklearen Abstand von 7,11 a.u. (3,761 Å) zu einem  $3p\sigma$ -Orbital (vgl. auch [144]) angenommen. Folglich wurde die Dimerachse als ausgezeichnete Achse der  $3p_0$ -Orbitale gewählt. Für eine *gerade* Symmetrie wurde die Wellenfunktion eines der beiden Orbitale mit dem Faktor  $\exp(i\pi)$  multipliziert. Abb. 11.9 a zeigt die resultierende Aufenthaltswahrscheinlichkeit  $|\psi_{3p\sigma_g}|^2$  in der Polarisations Ebene  $yz$ . Die Dimerachse ist entlang der  $y$ -Richtung ausgerichtet, die Definition des Winkels  $\gamma$  zwischen Tunnelausgangsvektor und Dimerachse ist ebenso illustriert wie die zum Tunnelausgang senkrechte Komponente  $s_{\perp}$ , die zuvor in Abschnitt 10.4 definiert wurde. Zu Illustrationszwecken ist der Radius  $r_0$  dabei durch den gestrichelten Kreis bei einem Wert von 15 a.u. dargestellt, während der tatsächlich angenommenen Wert aus dem TIPIS-Modell bei  $r_{\text{TIPIS}}=19,97$  a.u. liegt und durch den strichpunktierten Kreis repräsentiert wird. Abb. 11.9 b zeigt analog zu a die Aufenthaltswahrscheinlichkeit  $|\psi_{3p\sigma_u}|^2$  für eine *ungerade* Symmetrie.

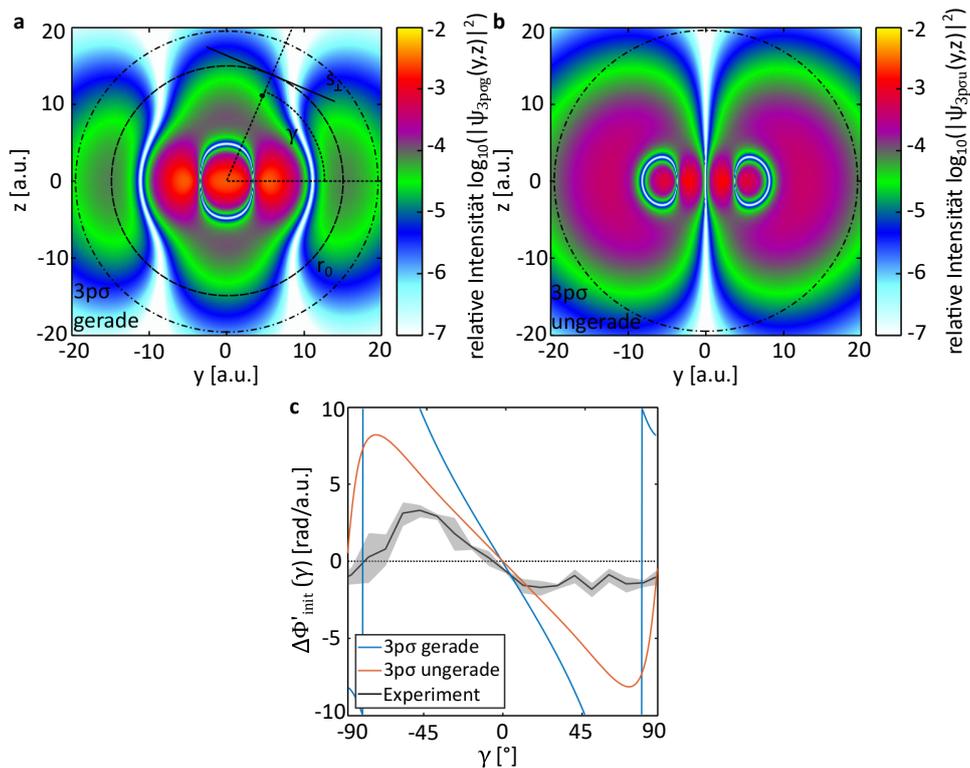


Abbildung 11.9: **a** Aufenthaltswahrscheinlichkeit  $|\psi_{3p\sigma_g}|^2$  für eine entlang der  $y$ -Richtung ausgerichtete Dimerachse. Die Definitionen des Winkels  $\gamma$  und der zum Tunnelausgang senkrechten Ortskomponente  $s_{\perp}$  sind eingezeichnet. Der gestrichelte Kreis stellt  $r_0$  zu Illustrationszwecken, der strichpunktierte Kreis  $r_{\text{TIPIS}}=19,97$  a.u. dar. **b** Wie **a**, allerdings ist die Aufenthaltswahrscheinlichkeit  $|\psi_{3p\sigma_u}|^2$  gezeigt. **c** Die aus den in **a** und **b** gezeigten Orbitalen ermittelten Kurvenverläufe von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\gamma)$  im Vergleich mit dem experimentellen Ergebnis.

Die den in Abb. 11.9 a und b gezeigten Aufenthaltswahrscheinlichkeiten zugrunde liegenden Wellenfunktionen wurden analog zu dem in Abschnitt 10.4 beschriebenen Vorgehen für verschiedene  $\gamma$  von  $-90^\circ$  bis  $+90^\circ$  entlang von  $s_\perp$  ausgewertet. Dabei wurde  $r_{\text{TIPIS}}=19,97$  a.u. angenommen. Die aus Gl. 10.5 resultierenden Phasengradienten  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  als Funktion von  $\gamma$  werden in Abb. 11.9 c gezeigt. Dabei finden sich insbesondere für die als blaue Kurve dargestellte Vorhersage für das  $3p\sigma_g$ -Orbital mit über 10 rad/a.u. im Vergleich zu dem als schwarze Kurve dargestellten experimentellen Ergebnis äußerst hohe Werte von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  auf. Der Kurvenverlauf weist Unstetigkeiten auf, die im Experiment nicht beobachtet werden. Im Gegensatz dazu ist die als rote Kurve dargestellte Abhängigkeit von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  von  $\gamma$  unter Annahme eines  $3p\sigma_u$ -Orbitals qualitativ in deutlich besserer Übereinstimmung mit den experimentell ermittelten Werten. Unter quantitativen Gesichtspunkten ist noch immer die deutliche Überschätzung des Phasengradienten im Maximum festzustellen. Die Abweichung zwischen der blauen und der roten Kurve widerspricht dem experimentellen Ergebnis, welches einen identischen Kurvenverlauf von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\gamma)$  für die drei untersuchten Aufbruchskanäle aufweist.

Als zentrale Voraussetzung für das Auftreten von Zwei-Zentren-Interferenzen sowohl hinter einem optischen Doppelspalt als auch in der Impulsverteilung von Photoelektronen im Molekülsystem (siehe Abschnitt 11.2) wird die prinzipiell nicht vorhandene Information über den Anfangsort der Trajektorie eines nachgewiesenen Photons oder Elektrons gesehen. Die in [144] beobachteten Zwei-Zentren-Interferenzen am Neondimer wurden beispielsweise dadurch reproduziert, dass die Elektronenimpulsverteilungen aus der Ionisation zweier voneinander unabhängiger Neonatome mit einem den internuklearen Abstand berücksichtigenden Phasenfaktor kohärent addiert wurden (siehe Abb. 11.2 a und d). Das Auftreten von Interferenz wurde dabei als reine Eigenschaft des Endimpulsraums betrachtet, ohne explizit das mikroskopische Bild eines am Tunnelausgang  $\vec{r}_0$  freiwerdenden und im kombinierten elektrischen Feld des Lasers und des Mutterions beschleunigten Elektrons zu bemühen.

Da das Zustandekommen von Zwei-Zentren-Interferenzen in der soeben beschriebenen Variante des PFT-Modells keine Berücksichtigung findet, soll im weiteren Verlauf ein Modell in Anlehnung an [144] diskutiert werden. Abb. 11.10 a zeigt schematisch den untersuchten Mechanismus. Die Tunnelionisation der durch den internuklearen Abstand  $R_0$  separierten  $3p_0$ -Orbitale wird als zunächst unabhängig voneinander angesehen. Der Fall einer Ionisation des linken Atoms wird als  $|L\rangle$ , die Ionisation des rechten Atoms als  $|R\rangle$  bezeichnet. Für jedes Atom kann nun lokal das bisher im Rahmen des PFT-Modells gewählte Vorgehen angewendet werden, wobei der jeweilige Kern den Ursprung des atomaren Koordinatensystems darstellt. Abb. 11.10 b zeigt  $|\psi_\perp|^2$  und die dazugehörige Phase  $\arg(\psi_\perp)$  als Funktion von  $s_\perp$  für die drei exemplarischen Fälle  $\gamma=0^\circ$ ,  $\gamma=45^\circ$  und  $\gamma=90^\circ$ . Für letzteren Fall wird bei  $s_\perp=0$  a.u. erwartungsgemäß ein Knoten mit verschwindender Amplitude beobachtet. Durch Anwendung der Fourier-Transformation auf  $\psi_\perp$  kann die in Abb. 11.10 c gezeigte Darstellung im Impulsraum  $\psi_{p_\perp}$  als Funktion von  $p_\perp$  erhalten werden. Für  $\gamma=45^\circ$  ergibt sich ein negativer Phasengradient, während die Phase für  $\gamma=0^\circ$  konstant ist. Für  $\gamma=90^\circ$  ergibt sich auch im Impulsraum ein Knoten bei  $p_\perp=0$  a.u. Außerdem sind weitere Phasensprünge um  $\pi$  bei  $p_\perp = \pm 0,77$  a.u. zu beobachten. Die beiden Seiten des  $3p_0$ -Orbitals stellen also bereits für sich einen Doppelspalt dar.

Für eine vollständige Beschreibung einschließlich der auftretenden Zwei-Zentren-Interferenz müssen die in Abb. 11.10 c gezeigten Wellenfunktionen  $\psi_{p_{\perp}}$  nun in ein gemeinsames Koordinatensystem transformiert werden. Hierzu wird für  $|L\rangle$  eine Verschiebung um  $-R_0/2$ , für  $|R\rangle$  eine Verschiebung um  $R_0/2$  vorgenommen. In Anlehnung an Gl. 3.10 wird  $\psi_{p_{\perp}}$  hierfür mit  $\exp\left(\pm i \frac{R_0}{2} \cdot p_{\perp} \cdot \sin(\gamma)\right)$  multipliziert. Es ergeben sich die in Abb. 11.10 d und e gezeigten Wellenfunktionen. Der Vergleich mit Abb. 11.10 c zeigt, dass die Verschiebung einen zusätzlichen positiven ( $|L\rangle$ ) bzw. negativen ( $|R\rangle$ ) Phasengradienten zur Folge hat, während es zu keiner Änderung der Amplituden im Impulsraum gekommen ist.

Im nächsten Schritt werden die *ungerade* Symmetrie  $|u\rangle = |L\rangle + |R\rangle$  und die *gerade* Symmetrie  $|g\rangle = |L\rangle - |R\rangle$  aus der kohärenten Überlagerung von  $|L\rangle$  und  $|R\rangle$  gebildet. Die Phase der resultierenden Wellenfunktionen  $\psi_{p_{\perp}}$  ist in Abb. 11.11 für  $|u\rangle$  (a) und  $|g\rangle$  (b) als gestrichelte Linie aufgetragen. Hierbei werden wiederum die drei exemplarischen Fälle  $\gamma=0^\circ$ ,  $\gamma=45^\circ$  und  $\gamma=90^\circ$  angenommen. Die entsprechenden Projektionen der Zwei-Zentren-Interferenz  $I_{TC}$  auf  $p_{\perp}$  sind als durchgezogene Linien dargestellt, für die Berechnung wurde Gl. 11.1 genutzt. Diese Darstellung wurde gewählt, da die Intensitäten  $|\psi_{p_{\perp}}|^2$  den Impulsraum nur bis etwa  $\pm 0,3$  a.u. ausleuchten. Die zu  $|u\rangle$  gehörende Phase weist auch abseits der Minima von  $I_{TC}$  Sprünge um  $\pi$  auf, was dem Fall destruktiver Interferenz entspricht. Insbesondere der Phasensprung bei  $p_{\perp}=0$  a.u. dürfte zu der auch in [144] beobachteten Verringerung der Intensität für entlang der Dimerachse orientierte Elektronenimpulse unabhängig von dem gewählte Aufbruchskanal führen (siehe Fig. 1 b in [144]). Hierin liegt auch eine mögliche Erklärung für die in Abb. 11.3 e zu sehende vermeintliche Drehung entgegen der Helizität des Lichtes. Durch die Coulomb-Wechselwirkung mit dem Mutterion bilden die Endimpulse von Trajektorien, die mit  $\gamma=90^\circ$  in Kontinuum eintreten, einen Winkel von  $\beta=-25^\circ$  zu der Achse des Dimers.

Die vertikalen Linien in Abb. 11.11 a und b stellen den aus der im vorigen Abschnitt 11.5 beschriebenen SCTS-Simulation bestimmten senkrechten Startimpuls von 0,12 a.u. (0,24 a.u.) zum Erreichen des Endimpulses des ersten Seitenbandes (des ersten ATI-Peaks) dar. Der Phasengradient  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\gamma)$  wurde an den beiden Stellen ausgewertet, wobei Gl. 10.5 dahingehend modifiziert wurde, dass ein Intervall von nur 0,1 a.u. zentriert um den jeweils wahrscheinlichsten Startimpuls berücksichtigt wurde.  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\gamma)$  ist unabhängig davon, ob der Zustand  $|u\rangle$  oder  $|g\rangle$  betrachtet wird. Der sich ergebende Verlauf als Funktion von  $\gamma$  ist in Abb. 11.11 c gezeigt. Das zum Vergleich dargestellte experimentelle Ergebnis entspricht dem zuvor in Abb. 11.8 d gezeigten. Das Modell zeigt eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Werten. Damit kann das modifizierte PFT-Modell sowohl die Phasengradienten auf dem senkrechten Startimpuls am Tunnelausgang, als auch die in Abschnitt 11.3 gezeigten Zwei-Zentren-Interferenzen konsistent modellieren. Auch die im Experiment beobachtete Unabhängigkeit des Verlaufs von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}(\gamma)$  von dem gewählten Aufbruchskanal wird erfolgreich reproduziert. Entsprechend besitzt es eine überlegene Vorhersagekraft gegenüber der ursprünglichen im Kontext von molekularem Wasserstoff vorgestellten Variante des PFT-Modells. Allerdings würden sich in der Basis aus  $|L\rangle$  und  $|R\rangle$  für die isotropen 1s-Orbitale und damit für das Wasserstoffmolekül verschwindende Werte von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  für alle  $\gamma$  ergeben. Abb. 11.11 d liefert eine mögliche Erklärung für diese scheinbare Inkonsistenz. Sie stellt das vereinfachte elektrostatische Potential von H<sub>2</sub> und Ar<sub>2</sub> unter Annahme von zwei halben Elementarladungen in dem jeweiligen internuklearen Abstand dar. Die jeweiligen Werte von  $-I_p$  sind als horizontale Linien eingezeichnet. Es zeigt sich ein deutlicher qualitativer Unterschied zwischen beiden Fällen. Während

die Energie des gebundene Elektrons in H<sub>2</sub> weit über der Potentialbarriere des Doppelmuldenpotentials liegt, ist für Ar<sub>2</sub> das Gegenteil der Fall. Daher erscheint es wenig sinnvoll, den Ionisationsprozess von Ar<sub>2</sub> durch einen einzelnen, um die Mitte der Dimerachse symmetrischen Tunnelradius  $r_0$  zu modellieren. Eine mögliche Systematisierung der beiden Fälle besteht somit darin, kovalent gebundene Systeme mit kleinen internuklearen Abständen durch die in Abschnitt 10.4 beschriebene Variante des PFT-Modells, durch Van-der-Waals-Kräfte gebundene Systeme mit großen internuklearen Abständen durch die in diesem Abschnitt beschriebene Variante des PFT-Modells zu beschreiben.

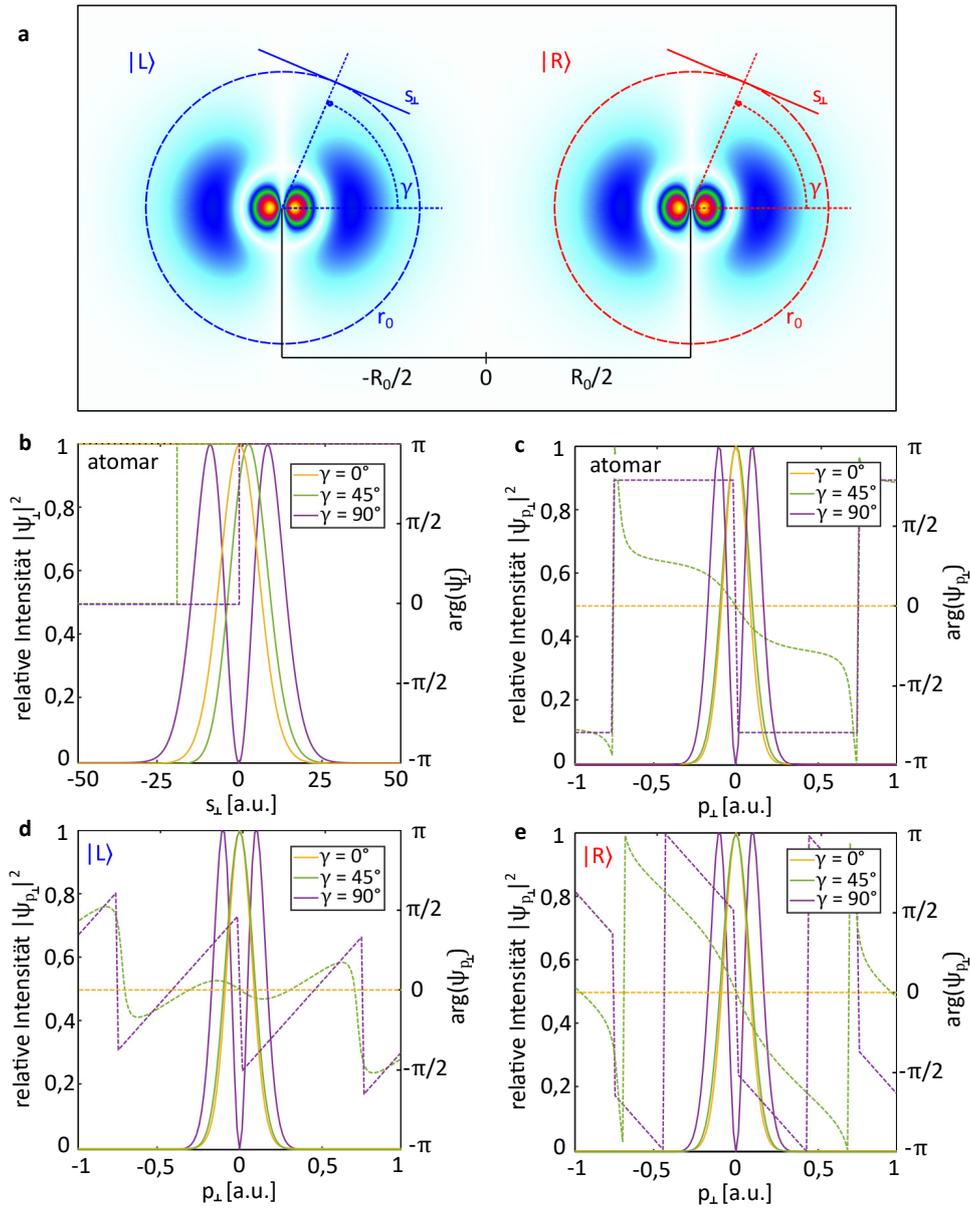


Abbildung 11.10: **a** Schematische Darstellung der als zunächst unabhängig betrachteten Ionisationsvorgänge am linken bzw. rechten Atom des Argondimers. **b** Wahrscheinlichkeitsverteilung  $|\psi_{\perp}|^2$  und Phase von  $\psi_{\perp}$  entlang von  $s_{\perp}$  in Abhängigkeit von  $\gamma$  für die Ionisation eines einzelnen Argonatoms. **c** Wahrscheinlichkeitsverteilung  $|\psi_{p_{\perp}}|^2$  und Phase der Fourier-Transformierten von  $\psi_{\perp}$  in Abhängigkeit von  $p_{\perp}$  und  $\gamma$  für die Ionisation eines einzelnen Argonatoms. **d** Wie **c**, unter Berücksichtigung einer Verschiebung um  $-R_0/2$ . **e** Wie **c**, unter Berücksichtigung einer Verschiebung um  $R_0/2$ . Die durchgezogenen Kurven in **b-e** stellen Intensitäten, die gestrichelten Kurven die jeweiligen Phasen dar.

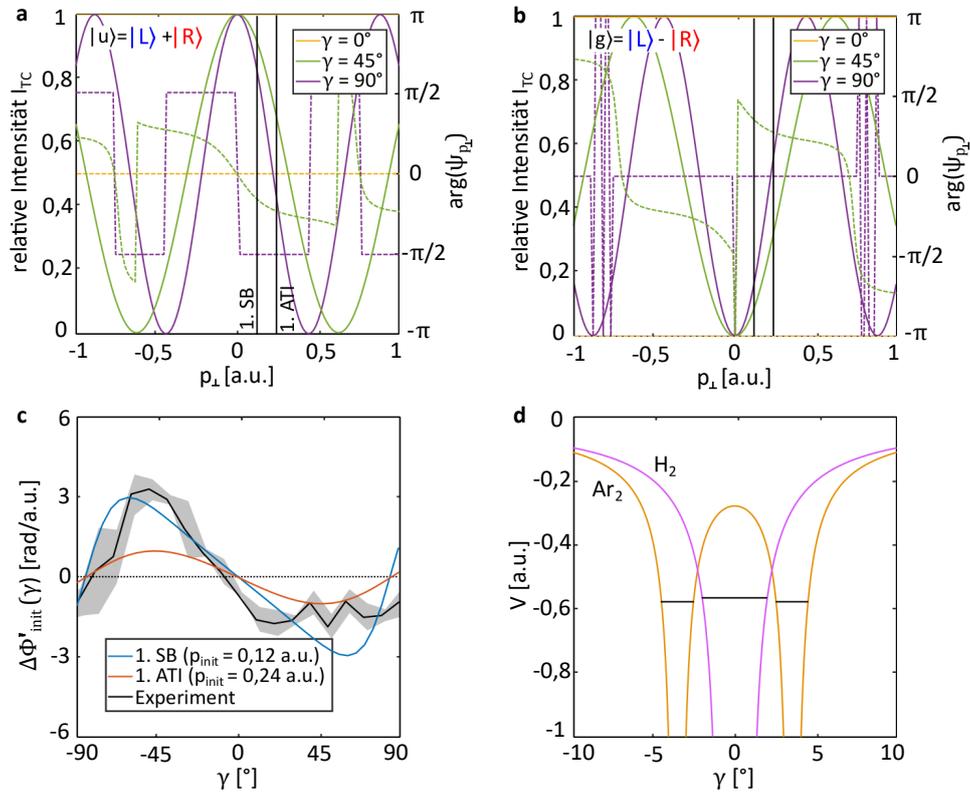


Abbildung 11.11: **a** Wahrscheinlichkeitsverteilung  $|\psi_{p_{\perp}}|^2$  und Phase der Fouriertransformierten von  $\psi_{\perp}$  in Abhängigkeit von  $p_{\perp}$  und  $\gamma$  für die Überlagerung  $|u\rangle = |L\rangle + |R\rangle$ . Die vertikalen schwarzen Linien stellen den wahrscheinlichsten senkrechten Startimpuls für das erste Seitenband bzw. den ersten ATI-Peaks dar. **b** Wie **a**, jedoch für  $|g\rangle = |L\rangle - |R\rangle$ . **c** Die ermittelten Kurvenverläufe von  $\Delta\Phi'_{init}(\gamma)$  für die beiden in **a** und **b** eingezeichneten Startimpulse im Vergleich mit dem experimentellen Ergebnis. **d** Vereinfachte elektrostatische Potentiale von  $H_2$  und  $Ar_2$  unter Annahme von zwei halben Elementarladungen in dem jeweiligen internuklearen Abstand. Die jeweiligen Werte von  $-I_p$  sind als horizontale Linien eingezeichnet.

## Teil V

### ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK

## ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK

In der vorliegenden Arbeit wurde die Ionisation von Atomen und Molekülen in starken Laserfeldern experimentell untersucht. Hierbei kam die COLTRIMS-Technik zur koinzidenten Messung der Impulse aller aus einem Ionisationsereignis stammender Ionen und Elektronen zum Einsatz. Unter Mitwirkung des Autors wurde ein COLTRIMS-Reaktionsmikroskop umgebaut und mit einem neuen Spektrometer sowie einer atomaren Wasserstoffquelle ausgestattet. Des Weiteren entstand ein interferometrischer Aufbau zur Erzeugung von Zwei-Farben-Feldern. Aus jedem der vorgestellten Experimente konnten Informationen über die elektronische Wellenfunktion an der Grenze zum klassisch verbotenen Bereich gewonnen werden. Dies geschah sowohl im Hinblick auf die Amplitude, als auch auf die Phase der Wellenfunktion. Mit dem Wasserstoffatom (siehe Kapitel 9), dem Wasserstoffmolekül (siehe Kapitel 10) und dem Argondimer (siehe Kapitel 11) wurden drei Systeme unterschiedlicher Komplexität gewählt.

Am Wasserstoffatom wurde eine energieaufgelöste Messung des Attoclock-Winkels vorgenommen. Der atomare Wasserstoff wurde hierzu durch ein elliptisch polarisiertes Laserfeld mit einer zentralen Wellenlänge von 390 nm ionisiert. Der Attoclock-Winkel wurde für vier ATI-Peaks separat bestimmt. Dabei zeigte sich eine intuitiv zunächst unerwartete Abhängigkeit des Attoclock-Winkels von dem Radialimpuls in der Polarisationssebene des elliptisch polarisierten Lichtes. Die experimentellen Ergebnisse wurden mit einer Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung verglichen, wobei Letztere ein hohes Maß an quantitativer Übereinstimmung aufweist. Es zeigte sich, dass die Lage der großen Halbachse der Polarisationsellipse sehr präzise anhand der bevorzugten Emissionsrichtung von Protonen aus der Dissoziation molekularen Wasserstoffs bestimmt werden kann. Die experimentellen Observablen konnten im Rahmen semiklassischer Modelle nur durch eine vollständige Berücksichtigung von nicht-adiabatischen Startimpulsen und impulsabhängigen Verschiebungen des Anschlussortes an den klassisch verbotenen Bereich reproduziert werden. Damit kann das beschriebene Experiment im Umkehrschluss als Möglichkeit zur Bestimmung der Amplituden sowohl im Startimpulsraum, als auch in der zum instantanen elektrischen Feld des Lasers parallelen Komponente des Ortsraums betrachtet werden. Der Zusammenhang zwischen zum Tunnelausgang senkrechten Startimpulsen und Verschiebungen des Tunnelausgangsortes selbst lässt sich auf die simultane Aufnahme von Drehimpuls und Energie während des Tunnelvorgangs zurückführen. Somit konnten wichtige Informationen über grundlegende Mechanismen der Starkfeldionisation gewonnen werden. Die Einfachheit des untersuchten Systems ermöglichte dabei eine transparente Interpretation der Ergebnisse.

Am Wasserstoffmolekül wurde der Einfluss eines nicht sphärisch-symmetrischen Systems auf den Ionisationsprozess untersucht. Der molekulare Wasserstoff wurde in einem stark durch die  $2\omega$ -Komponente dominierten CoRTC-Feld ionisiert und dissoziiert. In Abhängigkeit vom Winkel zwischen Elektronen- und Ionenimpuls in der Polarisationssebene wurden Drehungen der Elektronenwinkelverteilungen von ATI-Peaks und Seitenbändern beobachtet. Diese Drehungen resultieren gemäß dem HASE-Modell aus Phasengradienten auf der elektronischen Impulswellenfunktion am Tunnelausgang. Gemäß den Eigenschaften der Fourier-Transformation sind die

se äquivalent zu einer Amplitudenverschiebung der elektronischen Wellenfunktion im Ortsraum. Eine einfache Modellierung unter Annahme eines Wasserstoffmolekülorbitals aus der Summe zweier  $1s$ -Orbitale im internuklearen Abstand von  $0,74 \text{ \AA}$  zeigte eine gute qualitative Übereinstimmung mit den experimentell ermittelten Werten. Somit konnten durch die Wahl eines geeigneten Zwei-Farben-Feldes Phasengradienten auf der Impulswellenfunktion am Tunnelausgang gemessen und auf die räumliche Struktur der gebundenen Wellenfunktion zurückgeführt werden. Im Rahmen der 'Strong field approximation' wurde der Einfluss nicht-adiabatischer Effekte auf die Phasengradienten untersucht und eine sehr gute quantitative Übereinstimmung mit den gemessenen Werten erzielt. Die aus den Phasengradienten bestimmte Winkelabhängigkeit der Wignerzeit wurde erstmals für die Tunnelionisation von Molekülen nachgewiesen. Die experimentellen Ergebnisse wurden durch eine Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung extern verifiziert. Damit konnte gezeigt werden, dass Wignerzeiten im Kontext der Tunnelionisation auf einen grundlegend anderen Ursprung als in dem in der Literatur diskutierten Fall der Ein-Photon-Ionisation zurückzuführen sind. In einem weiteren Schritt wurde das Feldverhältnis des Zwei-Farben-Feldes systematisch variiert und die Auswirkung auf die experimentellen Observablen untersucht. Es zeigte sich, dass die Ausbildung der AHR-Struktur als charakteristisches Interferenzmuster in der Elektronenimpulsverteilung nur innerhalb eines kleinen Intervalls von Feldverhältnissen beobachtet werden kann.

Das Argondimer wurde gewählt, um das Zusammenspiel von Phasengradienten auf der Impulswellenfunktion am Tunnelausgang und dem Auftreten von Zwei-Zentren-Interferenzen im Endimpulsraum zu untersuchen. Hierzu wurde wiederum ein stark durch die  $2\omega$ -Komponente dominiertes CoRTC-Feld zur Ionisation und Dissoziation der Argondimere verwendet. Anhand der bei der Dissoziation freiwerdenden kinetischen Energie konnten drei unterschiedliche Aufbruchkanäle identifiziert werden. Die jeweiligen Elektronenimpulsverteilungen im Molekülsystem weisen deutliche Zwei-Zentren-Interferenzen unterschiedlicher Symmetrie auf. Die unter Anwendung des HASE-Modells bestimmten Phasengradienten auf der elektronischen Impulswellenfunktion am Tunnelausgang sind hingegen für alle analysierten Aufbruchkanäle weitgehend identisch. Ihr Zustandekommen konnte aus der Struktur der durch die ausgezeichnete Achse des Dimers ausgerichteten atomaren Orbitale erklärt werden. Zusammen mit der auf den internuklearen Abstand sensitiven Zwei-Zentren-Interferenz in der Elektronenimpulsverteilung ergibt sich so ein komplementäres Bild der gebundenen Wellenfunktion des Argondimers. Damit konnte gezeigt werden, unter welchen Bedingungen ein homonukleares System molekularen bzw. atomaren Charakter bei der Starkfeldionisation besitzt.

Ausgehend von den in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnissen ergeben sich zahlreiche Fragestellungen und mögliche Ziele künftiger Untersuchungen der Starkfeldionisation. Die experimentellen Möglichkeiten zur Erzeugung atomaren Wasserstoffs sollten wenn möglich dahingehenden verbessert werden, eine höhere Dichte in der Reaktionszone des COLTRIMS-Reaktionsmikroskops zu realisieren. Eine direkte experimentelle Ermittlung des Dissoziationsgrades der Quelle und eine näherungsweise Bestimmung der Temperatur der Wolframkapillare könnten erste Ansatzpunkte für künftige Verbesserungen liefern. Energieaufgelöste Messungen des Attoclock-Winkels an atomarem Wasserstoff für andere Keldysh-Parameter könnten helfen, die Geltungsbereiche unterschiedlicher semiklassischer Modelle genauer zu untersuchen. Insbesondere im Hinblick auf die Messung von Wignerzeiten sollten künftig die einzigartigen experimentellen Möglichkeiten zur

simultanen Untersuchung der Starkfeldionisation von atomaren oder molekularen Systemen und atomarem Wasserstoff genutzt werden.

Die Anwendung der HASE-Technik auf heteronukleare Moleküle mit asymmetrischen Orbitalstrukturen wie CO und mehratomige Moleküle mit komplexeren und möglicherweise sogar chiralen Symmetrien könnte lohnenswerte nächste Schritte darstellen. Zugleich würde dies erlauben, die in dieser Arbeit erfolgreich eingesetzte HASE-Technik auf ihre Universalität hin zu überprüfen. Hierzu geeignete Systeme müssen die experimentelle Bestimmung der Lage relevanter Symmetrieachsen im Raum gemäß der 'axial recoil approximation' erlauben. Erfolgt die Ionisation aus mehreren Zuständen mit unterschiedlichen Ionisationspotentialen, muss dennoch eine eindeutige Trennung von ATI-Peaks und Seitenbändern in der Elektronenimpulsverteilung gewährleistet sein. In Verbindung mit der Pump-Probe-Technik könnten auch zeitabhängige Orbitalstrukturen angeregter Zustände oder dissoziierender Moleküle untersucht werden. Anhand der gemessenen Phasengradienten auf der Impulswellenfunktion könnte so bestimmt werden, wann und bei welchem internuklearen Abstand der molekulare Charakter eines dissoziierenden Systems verloren geht und atomare Eigenschaften dominant werden.

Teil VI

ANHANG

## ATOMARE EINHEITEN

Atomare Einheiten setzen wichtige Konstanten der Atomphysik so zueinander in Beziehung, dass sich daraus ein konsistentes und in der Handhabung praktikables Einheitensystem ergibt. Die entsprechenden Zahlenwerte sind im Gegensatz zu der Darstellung in SI-Einheiten in der Größenordnung von 1. Die folgende Tabelle stellt die Definitionen für 1 a.u. der für diese Dissertation relevanten Größen sowie die jeweilige Umrechnung in SI-Einheiten gerundet auf drei Nachkommastellen dar:

Größe	Konstante	Formelzeichen	SI
Ladung	Elementarladung	$e$	$1,602 \cdot 10^{-19} \text{ C}$
Masse	Ruhemasse des Elektrons	$m_e$	$9,109 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$
Wirkung	reduziertes Plancksches Wirkungsquantum	$\hbar$	$1,055 \cdot 10^{-34} \text{ Js}$
Länge	Bohrscher Radius	$a_0$	$5,292 \cdot 10^{-11} \text{ m}$
Energie	Hartree-Energie	$E_h = \frac{\hbar^2}{m_e a_0^2}$	$4,360 \cdot 10^{-18} \text{ J}$
Zeit	-	$\hbar/E_h$	$2,419 \cdot 10^{-17} \text{ s}$
Impuls	-	$\hbar/a_0$	$1,993 \cdot 10^{-24} \text{ kg m/s}$
elektrisches Feld	-	$\frac{E_h}{ea_0}$	$5,142 \cdot 10^{-11} \text{ V/m}$

Tabelle A.1: Übersicht der wichtigsten atomphysikalischen Größen und Konstanten in atomaren Einheiten und die Umrechnungsfaktoren in das SI-System. Werte auf drei Nachkommastellen gerundet entnommen aus [170].



## DISKRETE FOURIER-TRANSFORMATION

Bei diversen Schritten in der Auswertung der experimentellen Daten wurde die schnelle Fourier-Transformation (engl. 'fast Fourier transform', FFT [171]) in MATLAB durchgeführt. Dieser Algorithmus dient der schnellen und effizienten Berechnung der diskreten Fourier-Transformierten  $Y$  eines im Allgemeinen komplexwertigen Eingangsvektors  $X$  mit  $n$  Einträgen [172]:

$$Y_k = \sum_{j=1}^n X_j W_n^{(j-1)(k-1)} \quad (\text{B.1})$$

Die entsprechende inverse Transformation ist gegeben durch

$$X_j = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n Y_k W_n^{-(j-1)(k-1)} \quad (\text{B.2})$$

wobei  $W_n = e^{-i2\pi/n}$ . Im Folgenden soll nur der Fall eines reellwertigen Eingangsvektors betrachtet werden, da diese Eigenschaft auf Messdaten zutrifft. Abb. B.1 a zeigt beispielhaft einen reellwertigen Eingangsvektor  $X$  mit 180 Einträgen. Die Anwendung der diskreten Fourier-Transformation erzeugt den Vektor  $Y$ . Die Einträge von  $Y$  sind komplexwertig, weshalb eine vollständige Darstellung durch den Betrag  $|Y|$  (Abb. B.1 b) und die Phase  $\arg(Y)$  (Abb. B.1 c) der einzelnen Einträge möglich ist. Der erste Eintrag  $Y_1$  stellt den Gleichanteil, also die nicht schwingende Komponente von  $X$  dar. Der zweite und letzte Eintrag von  $Y$  entsprechen einer Schwingung mit der Kreisfrequenz  $\omega_{FFT,1} = \pm 1 \cdot 2\pi/n$ , der dritte und vorletzte Eintrag einer Schwingung mit  $\omega_{FFT,2} = \pm 2 \cdot 2\pi/n$ . Entsprechend sind die Phasen  $\arg(Y)$  der jeweiligen Paare betragsmäßig gleich, unterscheiden sich jedoch im Vorzeichen.

Durch die Rücktransformation der beiden einem Betrag von  $\omega_{FFT,m} = \pm m \cdot 2\pi/n$  zuzuordnenden Einträge von  $Y$  kann der entsprechenden  $m$ -fach-symmetrischen Anteil  $F_m$  von  $X$  dargestellt werden. Dies ist in Abb. B.1 d bis für die ersten vier Symmetrien gezeigt. Diese Eigenschaft wurde beispielsweise für die in Abschnitt 10.2 diskutierte Trennung der Einhüllenden von dem Interferenzmuster in Energierichtung genutzt. In vielen Fällen wurde die diskrete Fourier-Transformation genutzt, um den charakteristischen Winkel  $\Phi$  eines einfach- oder zweifach-symmetrischen Anteils einer Winkelverteilung zu extrahieren. Der entsprechende Wert im Bogenmaß wurde durch  $\Phi_{F_1} = -\arg(Y_2)$  bzw.  $\Phi_{F_2} = -\arg(Y_3)/2$  bestimmt.

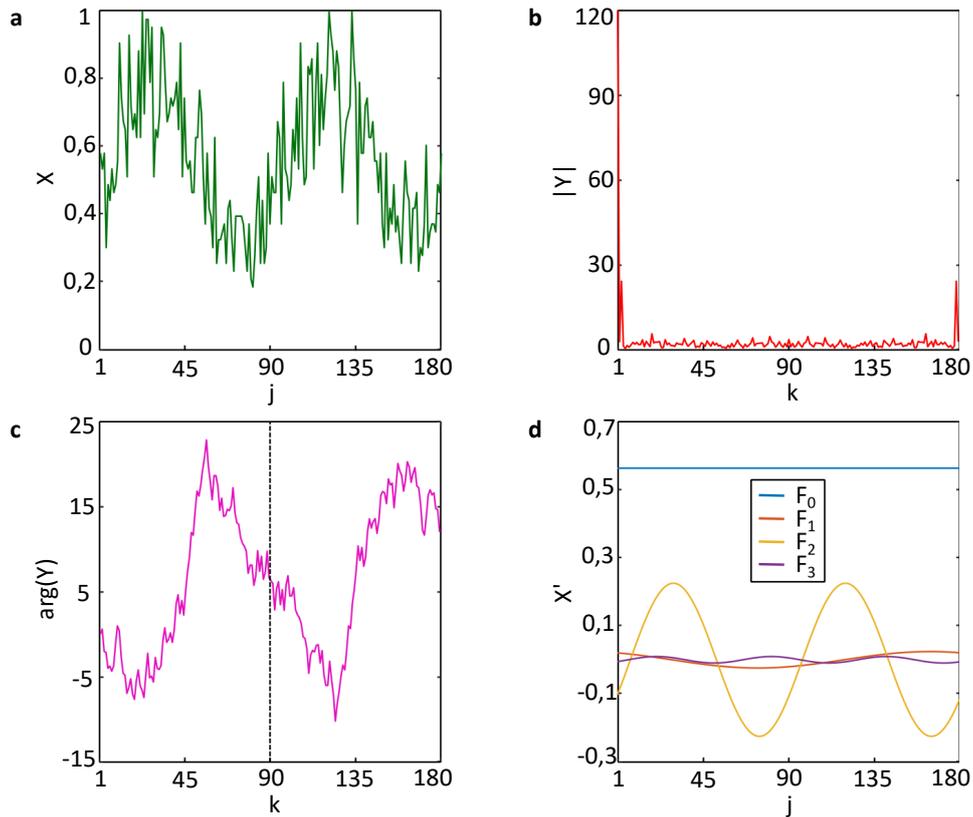


Abbildung B.1: **a** Ein reellwertiges Eingangssignal  $X$  mit 180 Einträgen weist eine deutlich erkennbare Zweifach-Symmetrie  $F_2$  und einen Gleichanteil  $F_0$  auf. **b** Betrag der Fourier-Transformierten  $|Y|$ . Wie zu erwarten, weisen  $Y_1$ , sowie  $Y_3$  und  $Y_{179}$  die größten Amplituden auf. **c** Phase der Fourier-Transformierten  $\arg(Y)$ . **d** Durch Rücktransformation separierte Anteile des Eingangssignals  $X$ . Der Gleichanteil  $F_0$  und der zweifach-symmetrische Anteil  $F_2$  weisen die größten Amplituden auf.

## INTENSITÄTSABSCHWÄCHUNG DURCH EINEN DÜNNSCHICHTPOLARISATOR

Ein Dünnschichtpolarisator (DSP) kann durch das Verhältnis  $\eta_t$  der transmittierten prozentualen Leistungen für s- und p-polarisiertes Licht charakterisiert werden:

$$\eta_t = \frac{T_s}{T_p} \propto \frac{E_s^2}{E_p^2} \quad (\text{C.1})$$

Für den im 395 nm-Arm des ZFA1 zur Intensitätseinstellung verbauten DSP des Herstellers *Layertec* werden Werte von  $T_s \leq 0,1\%$  und  $T_p \geq 98\%$  angegeben, was einem Kontrastverhältnis von etwa 1:1000 entspricht. Da sich die Werte von  $T_s$  und  $T_p$  auf die transmittierte Leistung beziehen, ist das Verhältnis der zu Grunde liegenden elektrischen Feldstärken  $E_s$  und  $E_p$  durch  $\sqrt{\eta_t}$  gegeben. Das Prinzip der Intensitätsabschwächung beruht auf der Drehung der linearen Eingangspolarisation vor dem DSP. Für Orientierungen, die zu einem großem s-polarisierten Anteil des einfallenden Lichtes führen, kann das endliche Kontrastverhältnis eine Drehung der transmittierten gegenüber der einfallenden Polarisation bewirken. Die Auswirkungen einer solchen Drehung auf die Funktionsweise eines nachfolgenden  $\lambda/4$ -Wellenplättchens soll hier an einem Beispiel untersucht werden.

Wie in Abschnitt 9.2 erwähnt, wurde für die Messungen an atomarem Wasserstoff eine Elliptizität von  $\epsilon = 0,85$  gewählt. Für die Verwendung eines Polarisators zur Charakterisierung der Polarisationsellipse musste die mittlere Laserleistung  $P_0$  etwa um einen Faktor 5 reduziert werden. Die durchgezogene blaue Linie in Abb. C.1 a zeigt die vom DSP transmittierte Polarisation unter der Annahme eines rein p-polarisierten Einfallstrahls ( $\zeta_{\text{lin}} = 90^\circ$ ). Das nachfolgende  $\lambda/4$ -Wellenplättchen ist so orientiert, dass die erwünschte Elliptizität von  $\epsilon = 0,85$  erreicht wird (blau gestrichelte Ellipse). Für eine Leistungsabschwächung um  $P_{\text{trans}}/P_0 = 0,2$  muss die Polarisationsachse vor dem DSP um  $63,5^\circ$  gedreht werden. Dies führt zu einer Drehung der transmittierten Polarisation (rote durchgezogene Linie) zu  $\zeta_{\text{lin}} = 86,3^\circ$ , was bei gleicher Orientierung des  $\lambda/4$ -Wellenplättchens eine Elliptizität von  $\epsilon = 0,75$  zur Folge hat (rot gestrichelte Ellipse). Die Abhängigkeit des Winkels der transmittierten Polarisation  $\zeta_{\text{lin}}$  und die daraus resultierende Elliptizität  $\epsilon$  in Abhängigkeit vom Grad der Leistungsabschwächung  $P_{\text{trans}}/P_0$  ist in Abb. C.1 b dargestellt.

Während  $\epsilon$  für ein Abschwächungsverhältnis  $P_{\text{trans}}/P_0 > 0,5$  relativ konstant bleibt, sind für stärkere Abschwächungen zunehmend größere Abweichungen erkennbar. Dies kann beispielsweise ein Problem bei Experimenten mit der HASE-Technik darstellen, da zwischen der zum Einstellen einer möglichst zirkularen Polarisation nötige Intensität und der bei der tatsächlichen Messung genutzten Intensität ein Unterschied von 1 bis 2 Größenordnungen liegen kann. Daher wurde für das in Kapitel 11 diskutierte Experiment ein zusätzlicher Neutraldichtefilter in den ZFA1 eingebaut, während der für die in Kapitel 10 beschriebene Messung genutzte ZFA2 ohnehin Neutraldichtefilter zur Leistungseinstellung nutzt.

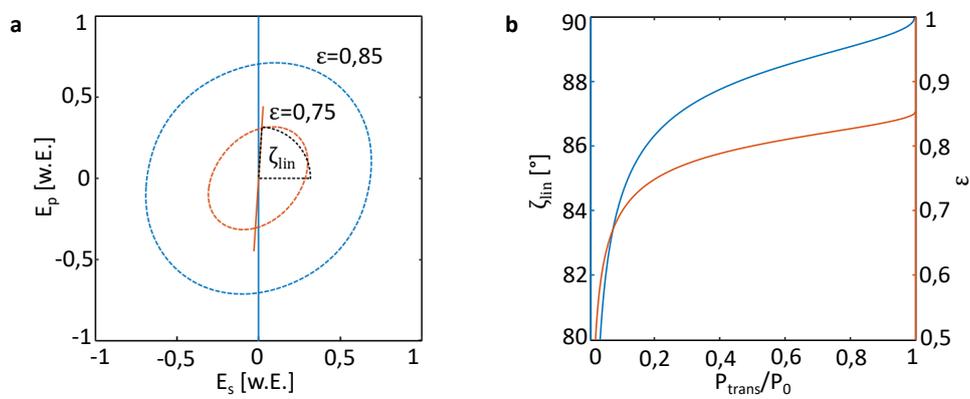


Abbildung C.1: **a** Transmittierte Polarisation für einen p-polarisierten (blaue durchgezogene Linie) und einem um  $63,5^\circ$  dazu verkippten (rote durchgezogene Linie) Eingangsstrahl. Das nachfolgende  $\lambda/4$ -Wellenplättchen führt entsprechend zu einer Elliptizität von  $\epsilon = 0,85$  (blau gestrichelte Ellipse) bzw.  $\epsilon = 0,75$  (rot gestrichelte Ellipse). **b** Der Winkel der transmittierten Polarisation  $\zeta_{lin}$  (blaue Kurve) und die daraus resultierende Elliptizität  $\epsilon$  (rote Kurve) in Abhängigkeit vom Grad der Leistungsabschwächung  $P_{trans}/P_0$

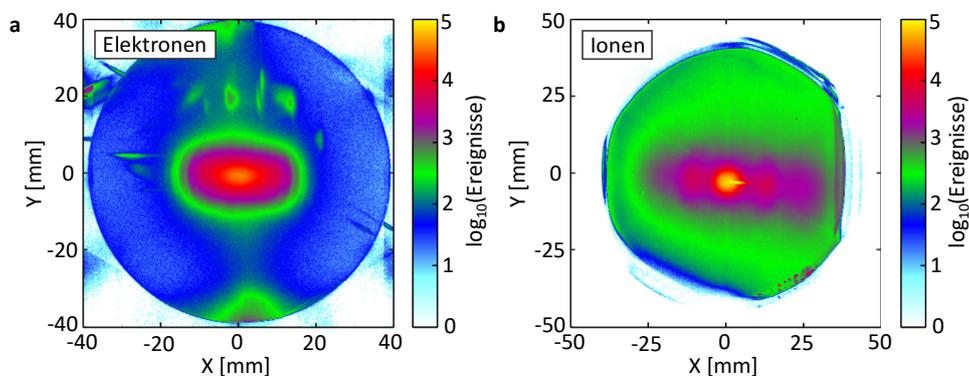


Abbildung D.1: Unverarbeitete rekonstruierte Detektorbilder des Datensatzes DS<sub>1</sub> (siehe Kapitel 9) im Reaktionsmikroskop COL1 für Elektronen (a) und Ionen (b). In den Randbereichen des Elektronendetektors sind von der atomaren Wasserstoffquelle emittierte Elektronen sichtbar. Auf dem Ionendetektor zeigen sich die Aufbruchkanäle von H<sub>2</sub>.

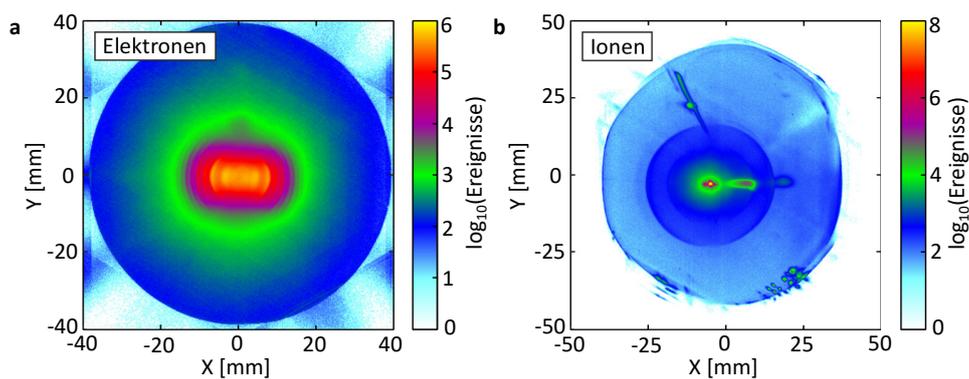


Abbildung D.2: Unverarbeitete rekonstruierte Detektorbilder des Datensatzes DS<sub>3</sub> (siehe Kapitel 11) im Reaktionsmikroskop COL1 für Elektronen (a) und Ionen (b).

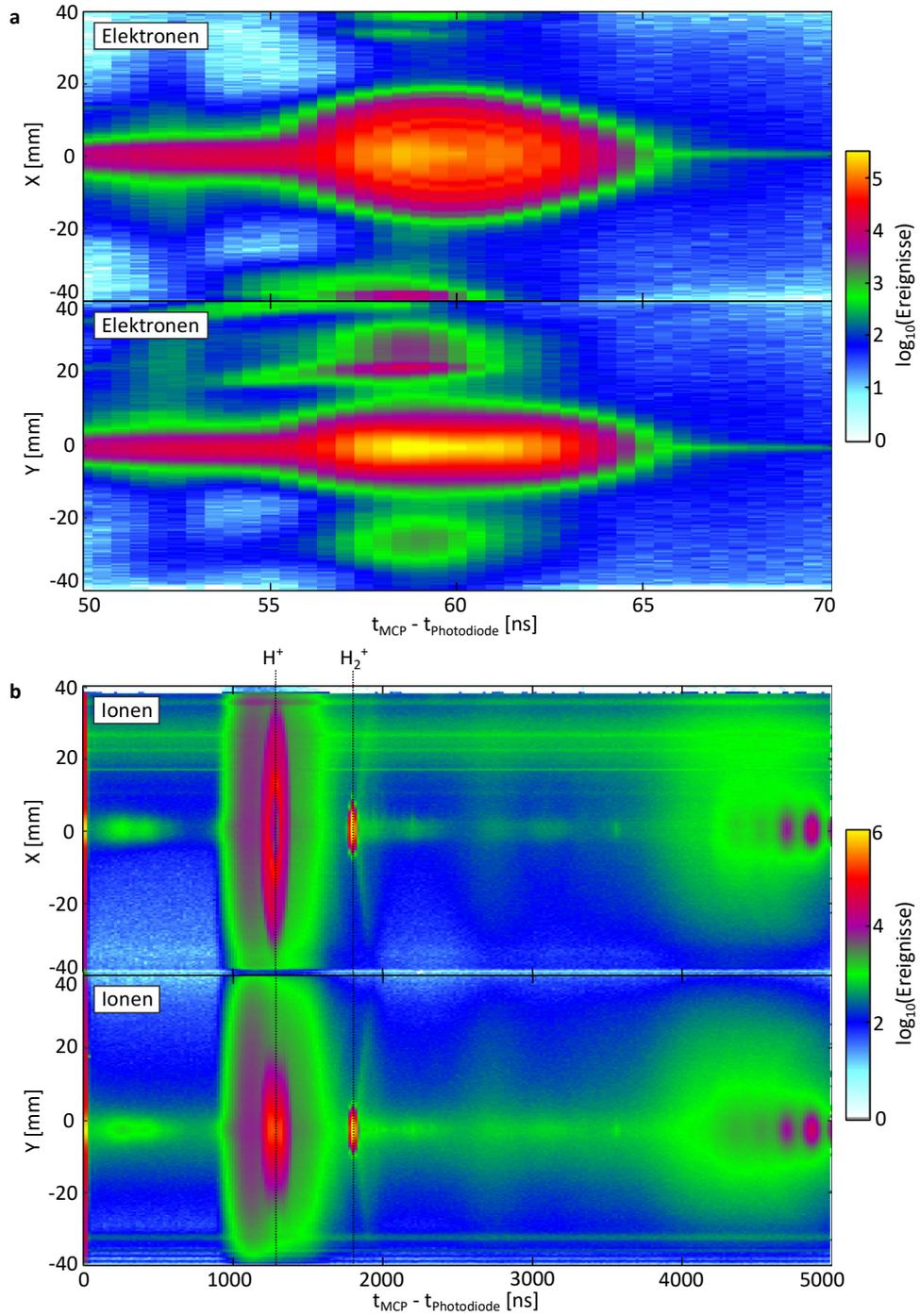


Abbildung D.4: **a** Auftreffort der Elektronen auf dem Detektor gegen die unkorrigierte Flugzeit  $t_{\text{MCP}} - t_{\text{Photodiode}}$ . **b** Auftreffort der Ionen auf dem Detektor gegen die unkorrigierte Flugzeit  $t_{\text{MCP}} - t_{\text{Photodiode}}$ . DS1.

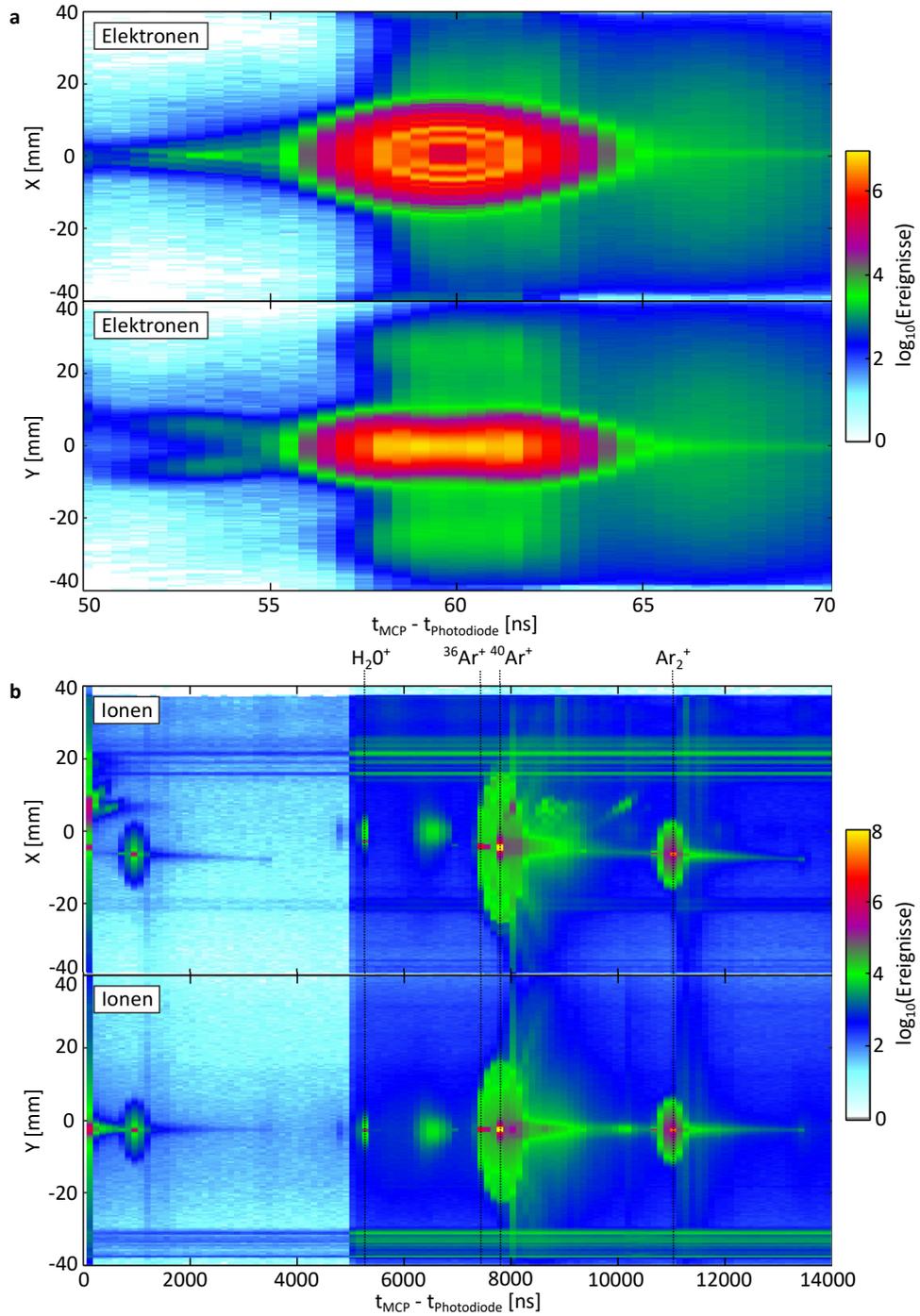


Abbildung D.6: **a** Auftreffort der Elektronen auf dem Detektor gegen die unkorrigierte Flugzeit  $t_{\text{MCP}} - t_{\text{Photodiode}}$ . **b** Auftreffort der Ionen auf dem Detektor gegen die unkorrigierte Flugzeit  $t_{\text{MCP}} - t_{\text{Photodiode}}$ . DS3.



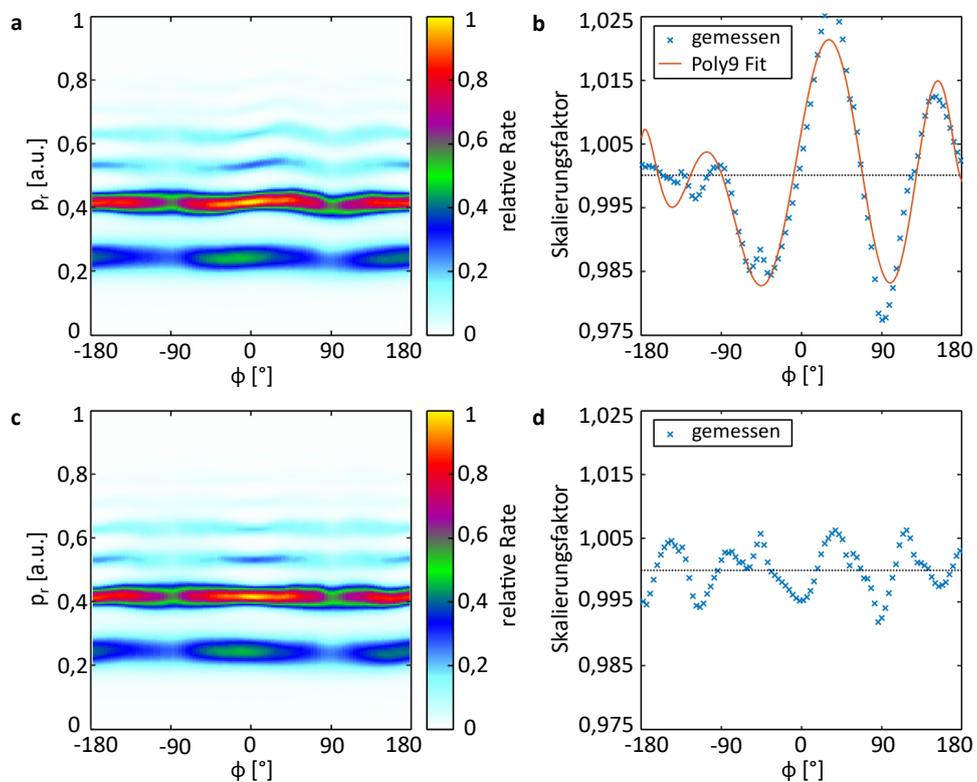
IMPULSKORREKTUREN (DS<sub>3</sub>)

Abbildung E.1: Korrektur der Elektronenimpulse aus DS<sub>3</sub> in der Polarisations Ebene. **a** Unkorrigierte Elektronenimpulsverteilung projiziert auf die Polarisations Ebene in Zylinderkoordinaten. **b** Relative Abweichung vom mittleren Wert für  $p_r$  über alle Winkel  $\phi$  integriert (blaue Kreuze). Die rote Linie stellt das zur Korrektur genutzte Polynom neunten Grades dar. **c** Korrigierte Elektronenimpulsverteilung projiziert auf die Polarisations Ebene in Zylinderkoordinaten. **d** Relative Abweichung vom mittleren Wert von  $p_r$  über alle Winkel  $\phi$  integriert nach Anwendung der in Abschnitt 8.5 beschriebenen Korrektur.

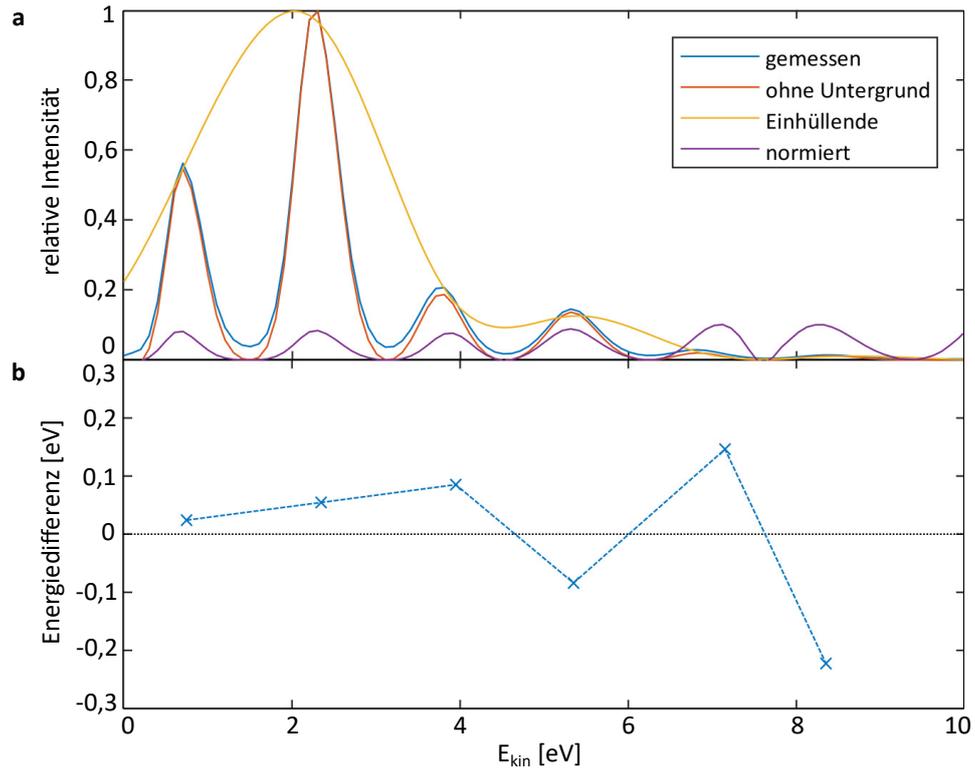


Abbildung E.2: **a** Die gemessene Elektronenenergieverteilung (blaue Kurve) kann nach Abzug des Untergrunds (rote Kurve) in eine Einhüllende (gelbe Kurve) und ein Interferenzmuster (violette Kurve) zerlegt werden. **b** Relative Abweichung der Position der Maxima der violetten Kurve in **a** von der aus der Photonenenergie von 1,57 eV zu erwartenden Position. DS<sub>3</sub>.

## IMPULSE IN KARTESISCHER DARSTELLUNG

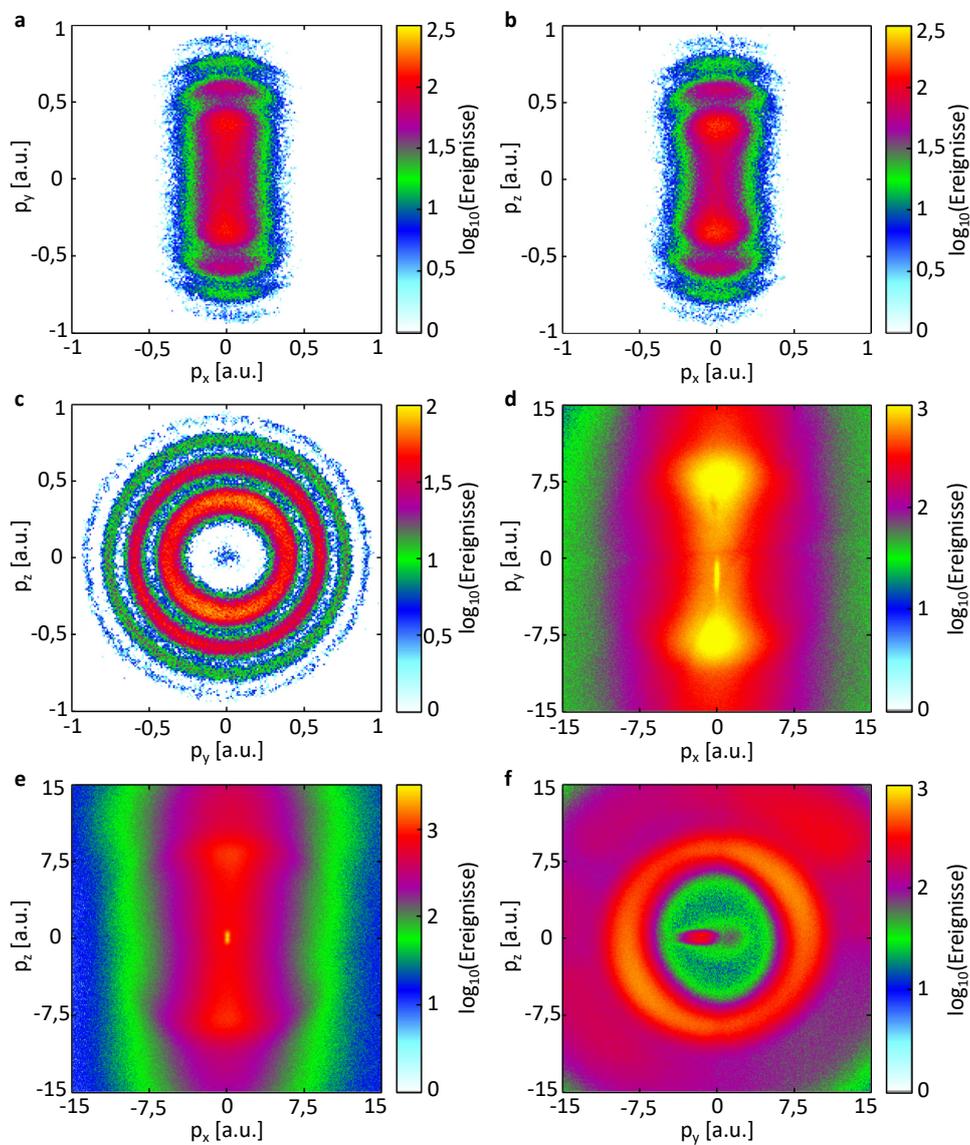


Abbildung F.1: Vollständig rekonstruierte Elektronenimpulsverteilung (**a-c**) und vollständig rekonstruierte Impulsverteilung der  $H^+$ -Ionen (**d-f**) aus DS1.

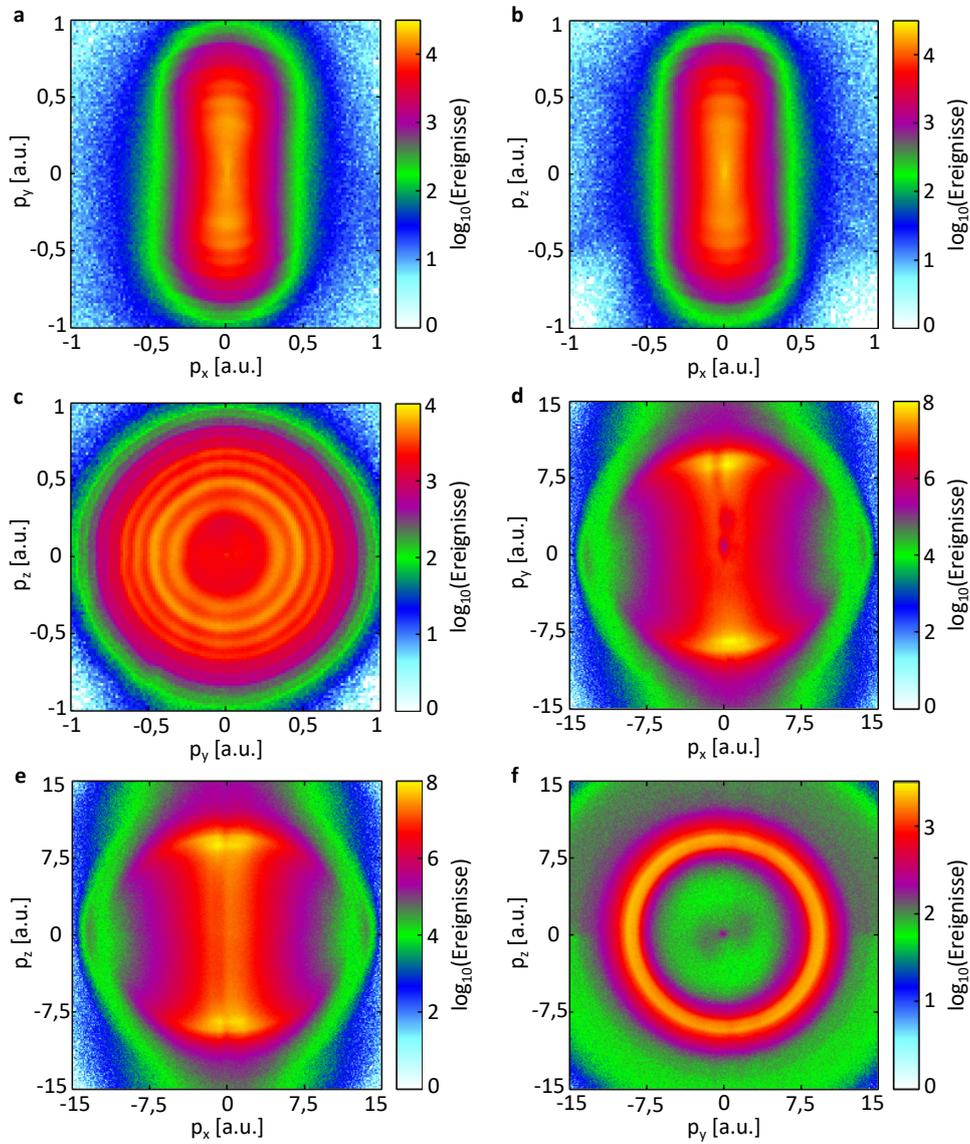


Abbildung F.2: Vollständig rekonstruierte Elektronenimpulsverteilung (a-c) und vollständig rekonstruierte Impulsverteilung der  $H^+$ -Ionen (d-f) aus DS2A.

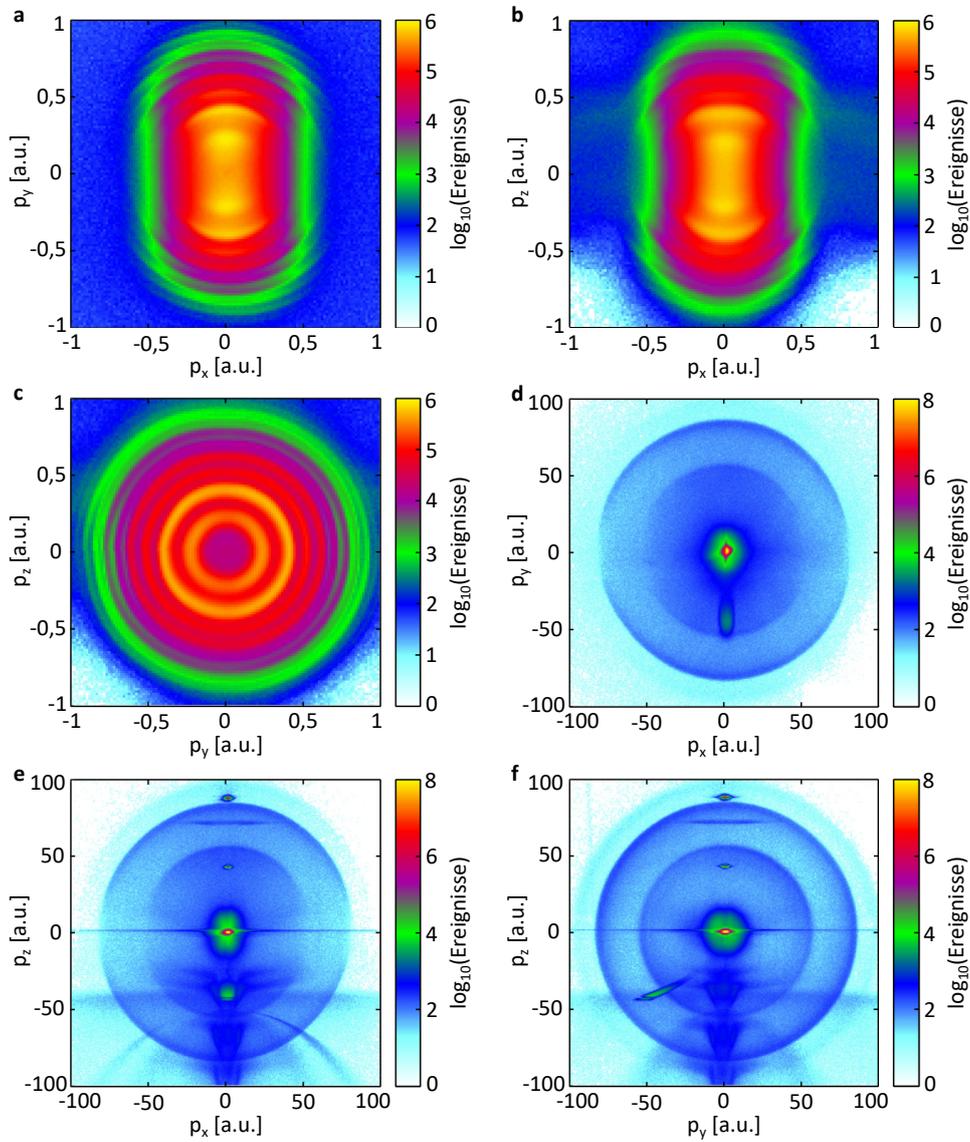


Abbildung F.3: Vollständig rekonstruierte Elektronenimpulsverteilung (**a-c**) und vollständig rekonstruierte Impulsverteilung der  $\text{Ar}^+$ -Ionen (**d-f**) aus DS<sub>3</sub>.



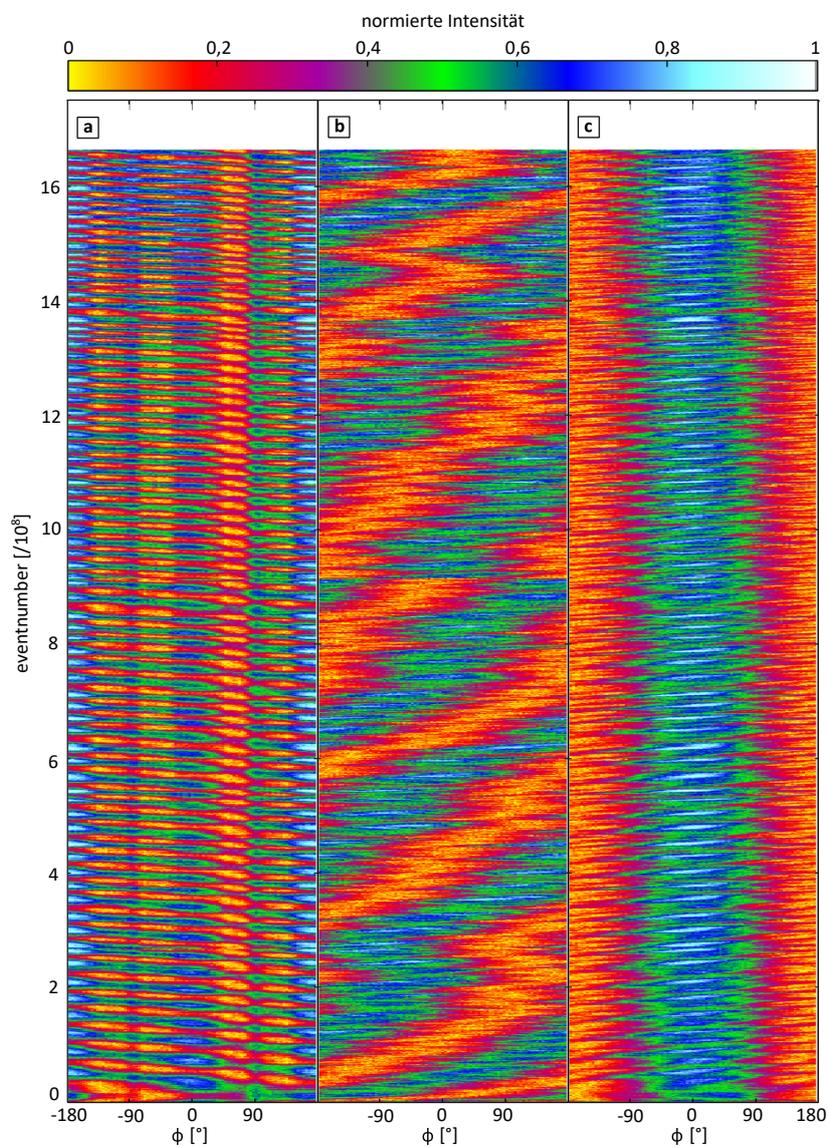


Abbildung G.1: Zeilenweise normierte Winkelverteilung der Elektronen aus DS<sub>3</sub> in der Polarisationsebene für den ersten ATI-Peak ( $0,34 \text{ a.u.} < p_r < 0,48 \text{ a.u.}$ ) in Abhängigkeit vom Parameter 'eventnumber'. **a** Unkorrigierte Verteilung. **b** Mit bekannter Position der 'delay stage' analytisch korrigierte Verteilung. **c** Durch Bestimmung der einfach-symmetrischen Fourier-Komponente korrigierte Verteilung.

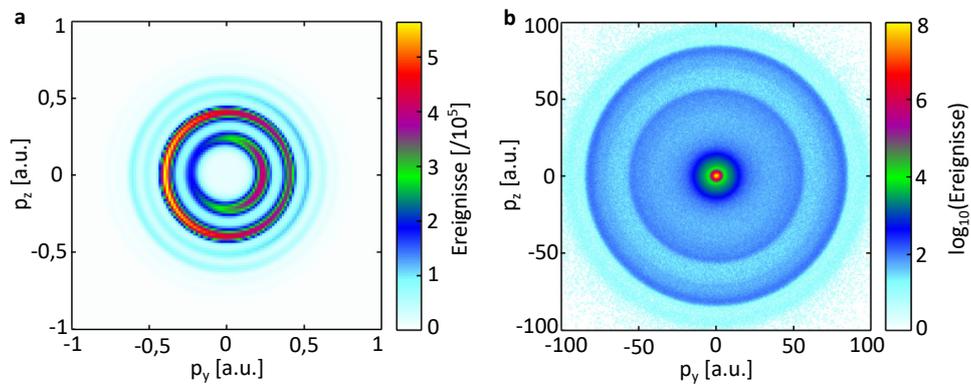


Abbildung G.2: **a** Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene aus DS<sub>3</sub> nach Korrektur der Phase des CoRTC-Feldes. Die charakteristische AHR-Struktur ist sichtbar geworden. **b** Impulsverteilung der  $\text{Ar}^+$ -Ionen in der Polarisationssebene unter Berücksichtigung der in Anhang J beschriebenen Schnitte.

INTENSITÄTSKALIBRATION (DS<sub>2</sub>)

Die Intensitätskalibration für DS<sub>2</sub> wurde analog zu dem in Abschnitt 8.7 dargestellten Vorgehen durchgeführt. Zur Intensitätskalibration wurde ebenfalls die Ionisation von Argon betrachtet, obwohl anhand von DS<sub>2</sub> die Ionisation von H<sub>2</sub> untersucht wurde. Abb. H.1 a und b zeigen wiederum exemplarisch die Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene für zirkular polarisiertes Licht mit einer zentralen Wellenlänge von 390 nm bei Laserleistungen  $P$  von 38 mW bzw. 64 mW. Es wurden vier unterschiedliche Werte von  $P$  eingestellt. Die gemessenen Elektronenenergieverteilungen sind in Abb. H.1 c gezeigt. Neben der Verschiebung der Peak-Positionen zeigt sich deutlich, dass die Höhe des zweiten ATI-Peaks bei 4-6 eV für größere Werte von  $P$  zunimmt. Abb. H.1 d zeigt die lineare Abhängigkeit der Position des ersten ATI-Peaks von der eingestellten Laserleistung  $P$ . Aus der charakteristischen Steigung  $U_p/P$  von  $0,0233 \pm 0,0011$  eV/mW ergibt sich eine Intensität von  $(9,2 \pm 0,4) \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> bei der in der Messung eingestellten Laserleistung von 56 mW. Das entsprechende elektrische Feld  $E_{0,390\text{nm}}$  beträgt  $0,0362 \pm 0,0008$  a.u.

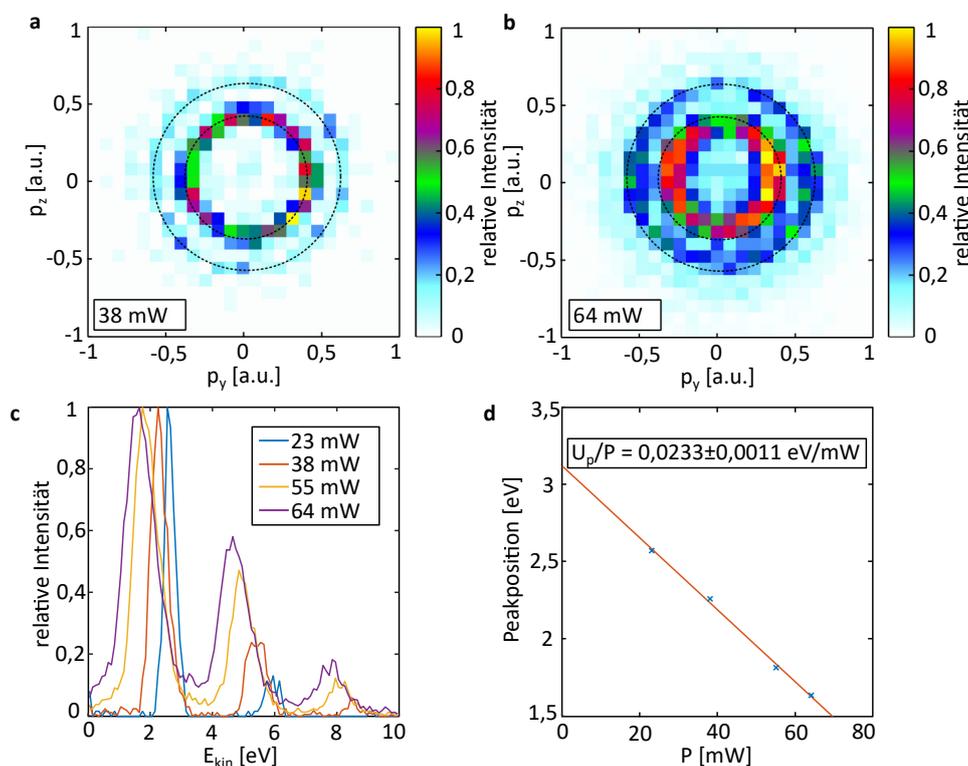


Abbildung H.1: **a** Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene für die Ionisation von Argon durch zirkular polarisiertes Licht mit einer Wellenlänge von 390 nm und einer Laserleistung von 38 mW unter den experimentellen Bedingungen aus DS<sub>2</sub>. **b** Elektronenimpulsverteilung analog zu **a** für eine Laserleistung von 64 mW. **c** Elektronenenergieverteilung für eine Laserleistung von 23 mW, 38 mW, 55 mW und 64 mW. **d** Position des ersten ATI-Peaks für die vier gemessenen Laserleistungen.

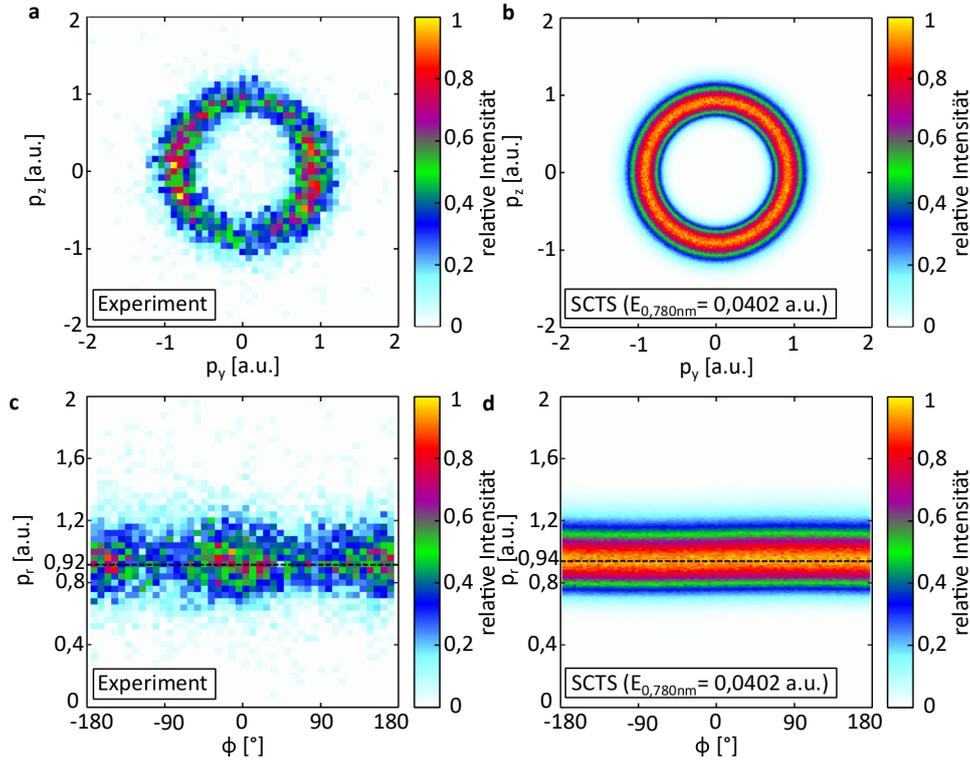


Abbildung H.2: **a** Gemessene Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationsebene für die Ionisation von Argon durch zirkular polarisiertes Licht mit einer Wellenlänge von 780 nm und einer Laserleistung von 103 mW unter den experimentellen Bedingungen für DS2. **b** Durch eine SCTS Rechnung simulierte Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationsebene für die Ionisation von Argon durch zirkular polarisiertes Licht mit einer Wellenlänge von 780 nm und einem angenommenen Feld von  $E_{0,780\text{nm}} = 0,0402$  a.u. **c** Gemessene Elektronenimpulsverteilung aus **a** in Polarkoordinaten. Das Maximum der Radialimpulsverteilung liegt bei 0,92 a.u. **d** Simulierte Elektronenimpulsverteilung aus **b** in Polarkoordinaten. Das Maximum der Radialimpulsverteilung bei 0,94 a.u. stimmt gut mit dem gemessenen Wert überein.

Die Kalibration des zirkular polarisierten Feldes mit einer zentralen Wellenlänge von 780 nm erfolgt wiederum durch den Vergleich der gemessenen Elektronenimpulsverteilung mit einer SCTS Rechnung unter Berücksichtigung einer nicht-adiabatisch verschobenen Startimpulsverteilung und der Coulombwechselwirkung des Elektrons mit dem Ion. Abb. H.1 **a** und **b** zeigen im Vergleich die Elektronenimpulsverteilung in kartesischer Darstellung für ein angenommenes  $E_{0,780\text{nm}}$  des zirkular polarisierten Lichtes von 0,0402 a.u. Aus dem in Abb. H.1 **c** und **d** dargestellten Vergleich in Polarkoordinaten wird die gute Übereinstimmung des wahrscheinlichsten Radialimpulses  $p_r$  von 0,92 a.u. deutlich. Das Skalieren auf die in DS2A eingestellte Leistung von 0,5 mW ergibt eine Intensität von  $(5,5 \pm 1,1) \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$  für den 780 nm Anteil des CoRTC-Feldes. Mit dem entsprechenden elektrischen Feld  $E_{0,780\text{nm}} = 0,0028 \pm 0,0003$  a.u. folgt ein Feldverhältnis  $E_{0,780\text{nm}}/E_{0,390\text{nm}}$  von 0,76.

## AUSWAHL VON ELEKTRONEN AUS DER IONISATION VON ATOMAREM WASSERSTOFF (DS<sub>1</sub>)

---

Da der Anteil atomaren Wasserstoffs an der gesamten von der Wasserstoffquelle abgegebenen Gasmenge klein ist, ist eine möglichst saubere Auswahl der aus der Ionisation von atomarem Wasserstoff stammenden Elektronen entscheidend für den Erfolg einer Messung. Während die Trennung von nicht dissoziierten  $\text{H}_2^+$ -Ionen anhand des großen Flugzeitunterschieds einfach ist, stellen die  $\text{H}^+$ -Ionen aus der laserinduzierten Dissoziation von  $\text{H}_2$  gemäß  $\text{H}_2 \rightarrow \text{H} + \text{H}^+ + e^-$  ein deutlich größeres Problem hinsichtlich der Separation von Ionisationsereignissen atomaren Wasserstoffs dar. Allerdings hilft hierbei der Impuls aus der Dissoziation molekularen Wasserstoffs von etwa 9 a.u. Wie in Abb. I.1 ersichtlich, sorgt dieser sowohl im Auftreffort auf den Ionendetektor, als auch in der Flugzeit (entspricht  $t_{\text{Flugzeit}}$ ) für eine hinreichende Separation von den aus der Ionisation atomaren Wasserstoffs resultierenden  $\text{H}^+$ -Ionen. Durch Schnitte in den beiden Dimensionen  $x$  und  $y$  des Auftreffortes sowie der Flugzeit lassen sich die Ereignisse weitgehend frei von Untergrund voneinander unterscheiden. Letztlich wurden  $-1,5 \text{ mm} < x < 1,5 \text{ mm}$ ,  $-6,2 \text{ mm} < y < 0,8 \text{ mm}$  und  $1240 \text{ ns} < \text{Flugzeit} < 1254 \text{ ns}$  gewählt [118].

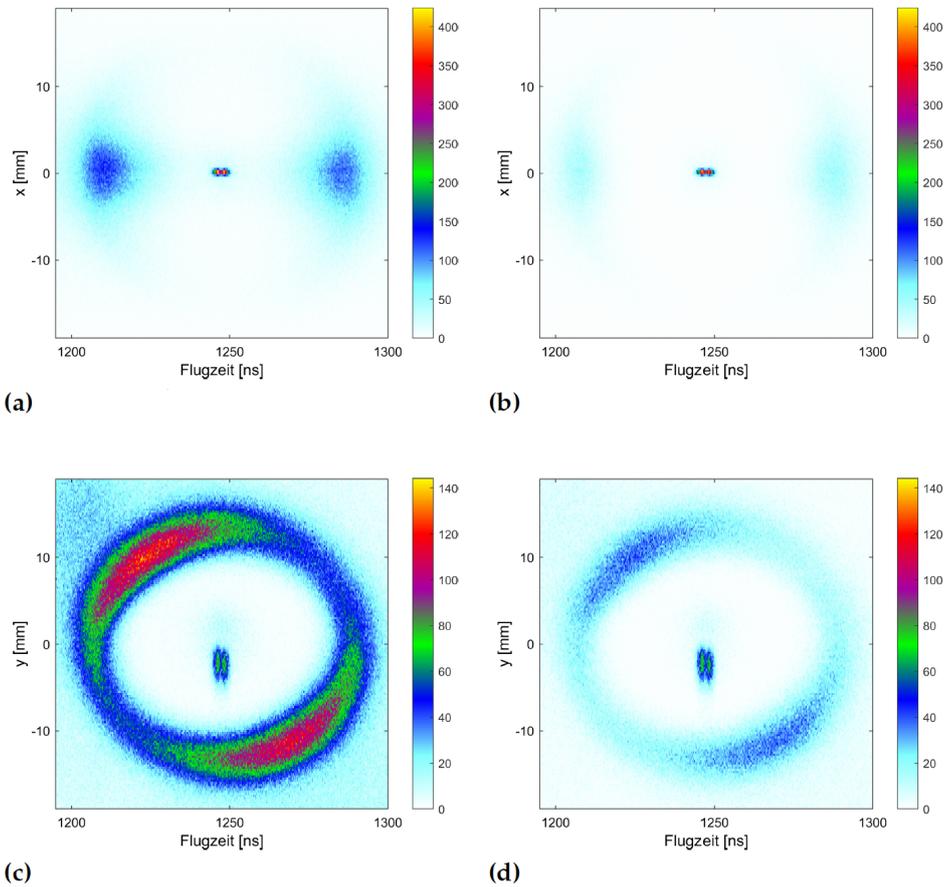


Abbildung I.1: Abbildung modifiziert entnommen aus [118]. Angepasste Original-Bildunterschrift: „Zu sehen ist jeweils eine Komponente des Auftreffortes auf den Detektor gegen die Flugzeit der  $H^+$ -Ionen im 395 nm Laserfeld mit elliptischer Polarisation. Schnitte: **a**  $-10 \text{ mm} < y < 10 \text{ mm}$ . **b**  $-6,2 \text{ mm} < y < 0,8 \text{ mm}$ . **c**  $-8,5 \text{ mm} < x < 8,5 \text{ mm}$ . **d**  $-1,5 \text{ mm} < x < 1,5 \text{ mm}$ . Links ist, im Gegensatz zu 790 nm, bereits mit schwachen Schnitten in der jeweiligen nicht dargestellten Dimension der atomare Wasserstoff getrennt erkennbar. Stärker beschnitten ist der atomare Wasserstoff noch prägnanter und kann hervorragend mit minimalem Untergrund aus den Daten herausgeschnitten werden.“

## AUSWAHL VON IONEN AUS DER DISSOZIATION VON $\text{Ar}_2$ (DS<sub>3</sub>)

In der Impulsverteilung der  $\text{Ar}^+$ -Ionen aus DS<sub>3</sub> zeigen sich mehrere Strukturen, die nicht auf die untersuchte Dissoziation  $\text{Ar}_2 \rightarrow \text{Ar} + \text{Ar}^+ + e^-$  zurückgeführt werden können. Dies wird in Abb. J.1 a in Polarkoordinatendarstellung der rekonstruierten Ionenimpulse in der Polarisationssebene deutlich. Für die Rekonstruktion der Impulse wurde eine Masse von 40 amu angenommen, wie sie für das häufigste Argon-Isotop  $^{40}\text{Ar}$  zu erwarten ist. Bei einem  $\phi$  von  $90^\circ$  sind zwei Maxima zu sehen, die auf die Argon-Isotope  $^{36}\text{Ar}$  und  $^{38}\text{Ar}$  zurückzuführen sind und deren entsprechend kürzere Flugzeiten zu einer falschen Impulsrekonstruktion führen. Ereignisse, die die dazugehörigen Kombinationen von Flugzeit und Auftreffort aufweisen, werden daher für die weitere Analyse verworfen. Um  $\phi = -90^\circ$  sind Strukturen erkennbar, die vermutlich auf Signalreflexionen zurückzuführen sind. Daher wurden alle Ereignisse mit einem  $\phi$  zwischen  $-150^\circ$  und  $-50^\circ$  für die weitere Auswertung verworfen. Abb. J.1 b zeigt die Ionenimpulse in der Polarisationssebene nach Anwendung der zuvor beschriebenen Schnitte. Die Schnitte wurden vor der in Abschnitt 8.6 beschriebenen Phasenkorrektur angewendet und sind daher in Abb. G.1 bereits berücksichtigt.

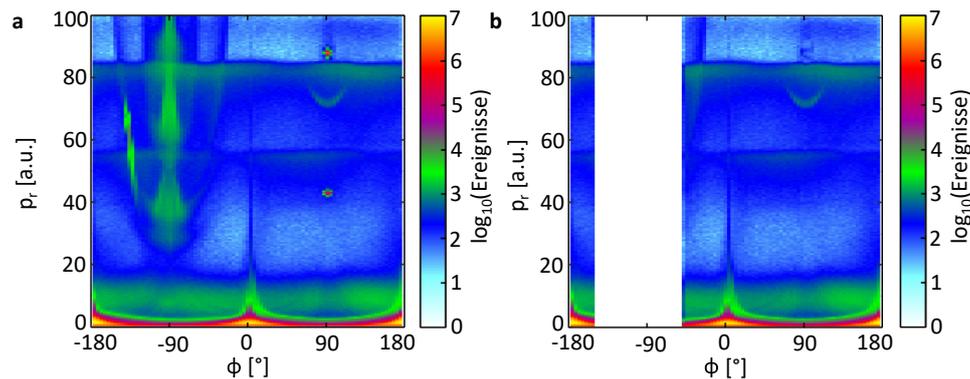


Abbildung J.1: **a** Rekonstruierte Ionenimpulse in der Polarisationssebene unter Annahme einer Ionenmasse von 40 amu. **b** Wie **a**, jedoch nach Anwendung der im Text beschriebenen Schnitte.



Im Rahmen der Auswertung von DS<sub>3</sub> (siehe Kapitel 11) wurde eine SCTS-Rechnung für ein CoRTC-Feld zur Extraktion der Phasengradienten auf dem Startimpuls  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  aus den gemessenen Winkeländerungen  $\Delta\alpha$  der Elektronenwinkelverteilung durchgeführt. Abb. K.1 a zeigt die Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene in Polarkoordinaten für  $\Delta\Phi'_{\text{init}} = 0$  und ist identisch mit Abb. 11.8 a. Die Integration über die durch die vier farbigen Kästen markierten Radialimpulsintervalle (entsprechend den jeweiligen ATI- und SB-Peaks) führt zu den in Abb. K.1 c gezeigten Winkelverteilungen in den dazugehörigen Farben. Für jedes Radialimpulsintervall sind die Winkelverteilungen für fünf unterschiedliche Werte von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  gezeigt ( $-\pi, -\frac{\pi}{2}, 0, \frac{\pi}{2}, \pi$ ). Die Winkelverteilungen zeigen eine stark ausgeprägte Einfach-Symmetrie. Die Bestimmung der jeweiligen Phasen führt zu dem in Abb. K.1 e gezeigten Zusammenhang von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  und  $\Delta\alpha$  für die vier betrachteten Energiepeaks und das vorliegende CoRTC-Feld mit  $E_{0,395nm} = 0,029$  a.u. und  $E_{0,790nm} = 0,0022$  a.u. Durch Invertieren der Helizität der Komponente mit einer zentralen Wellenlänge von 790 nm ergibt sich die in Abb. K.1 b gezeigte Elektronenimpulsverteilung. Die aus [30] bekannte Unterdrückung der Seitenbänder wird beobachtet. Das Ausprojizieren der Winkelverteilungen gemäß den gezeigten Radialimpulsintervallen offenbart eine unterschiedlich starke Ausprägung der für ein CRTC-Feld zu erwartenden dreifach-symmetrischen Struktur (siehe Abb. K.1 d). Insbesondere der erste ATI-Peak zeigt keine erkennbare Dreifach-Symmetrie. Dies stellt einen deutlichen Unterschied zu den Beobachtungen für CoRTC-Felder dar, der einer zukünftigen Untersuchung bedarf. Die aus den Phasen der dreifach-symmetrischen Fourier-Komponenten extrahierten Drehwinkel  $\Delta\alpha$  in Abhängigkeit von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$  sind in Abb. K.1 e dargestellt. Der auffälligste Unterschied zum Fall eines CoRTC-Feldes sind das invertierte Vorzeichen und die deutliche Radialimpulsabhängigkeit der Zuordnungen. Für den ersten ATI-Peak ist keine sinnvolle Bestimmung des Winkels möglich.

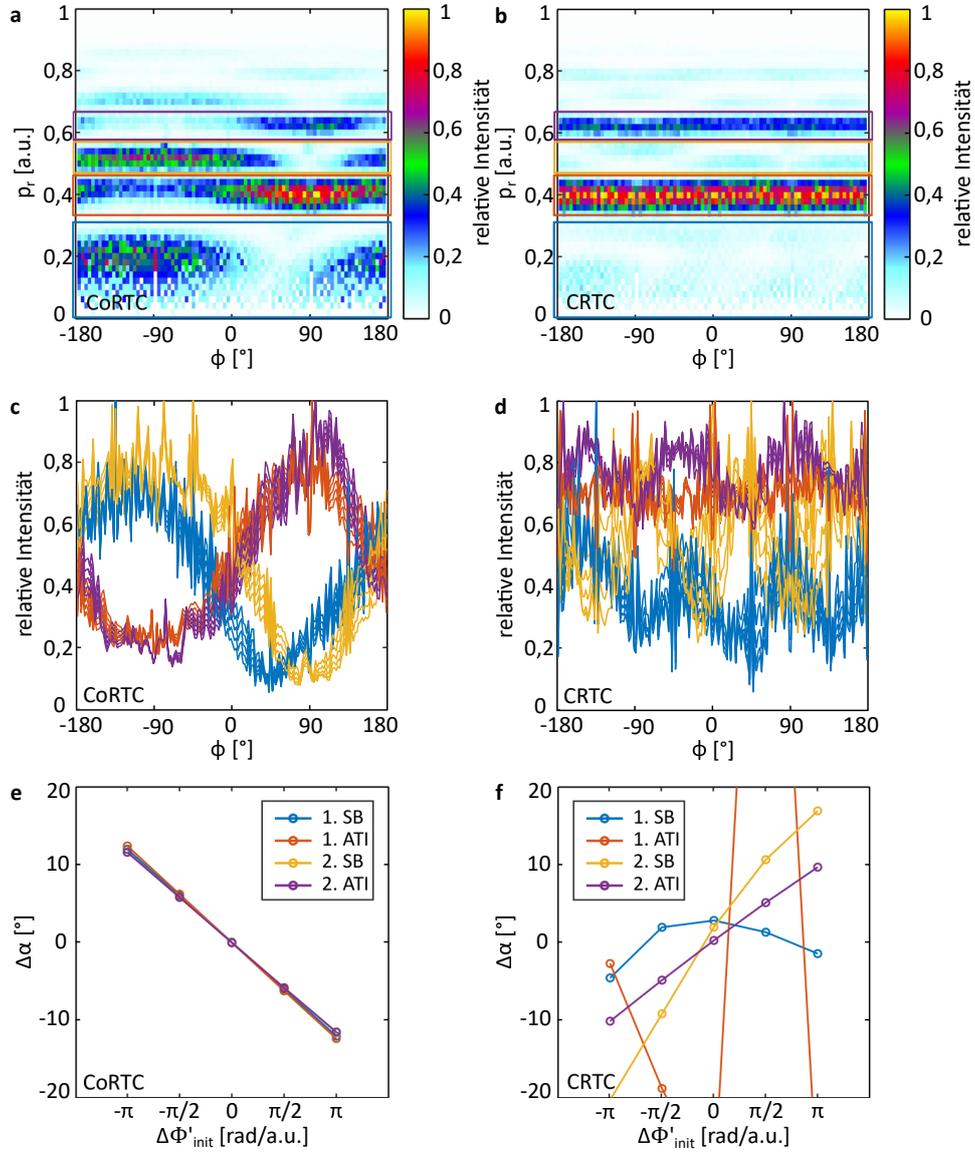


Abbildung K.1: **a** Elektronenimpulsverteilung in der Polarisationssebene in Polarkoordinaten für ein CoRTC-Feld mit  $\Delta\Phi' = 0$  aus der in Kapitel 11 beschriebenen SCTS-Rechnung. **b** Elektronenimpulsverteilung wie in **a** mit invertierter Helizität des 790 nm Lichtes. **c**(**d**) Winkelverteilungen der jeweiligen Energiepeaks aus **a**(**b**) für  $\Delta\Phi'_{\text{init}} = -\pi, -\pi/2, 0, \pi/2, \pi$ . **e**(**f**) Drehung der einfach- (dreifach-)symmetrischen Fourier-Komponente in Abhängigkeit von  $\Delta\Phi'_{\text{init}}$ .

## LITERATUR

---

- [1] A Einstein. „Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt“. In: *Ann. Phys.* 322.6 (1905), S. 132–148. DOI: [10.1002/andp.19053220607](https://doi.org/10.1002/andp.19053220607). URL: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/andp.19053220607> (siehe S. 5).
- [2] Maria Göppert-Mayer. „Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen“. In: *Ann. Phys.* 401.3 (1931), S. 273–294. ISSN: 00033804. DOI: [10.1002/andp.19314010303](https://doi.org/10.1002/andp.19314010303). URL: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/andp.19314010303> (siehe S. 5).
- [3] T. H. Maiman. „Optical and Microwave-Optical Experiments in Ruby“. In: *Phys. Rev. Lett.* 4.11 (1960), S. 564–566. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.4.564](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.4.564). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.4.564> (siehe S. 5).
- [4] R. G. Meyerand und A. F. Haught. „Gas Breakdown at Optical Frequencies“. In: *Phys. Rev. Lett.* 11.9 (1963), S. 401–403. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.11.401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.11.401). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.11.401> (siehe S. 5).
- [5] L V Keldysh. „Ionization in the field of a strong electromagnetic wave“. In: *Sov. Phys. JETP* 20.5 (1965), S. 1307. ISSN: 0038-5646 (siehe S. 5, 6).
- [6] D. Trabert u. a. „Nonadiabatic Strong Field Ionization of Atomic Hydrogen“. In: *Phys. Rev. Lett.* 127.27 (2021), S. 273201. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.127.273201](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.127.273201). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.127.273201> (siehe S. 5, 11, 17, 20, 99, 100, 103, 106, 108, 109, 111, 112, 131, 206).
- [7] D. Trabert u. a. „Angular dependence of the Wigner time delay upon tunnel ionization of H<sub>2</sub>“. In: *Nat. Commun.* 12.1 (2021), S. 1697. ISSN: 2041-1723. DOI: [10.1038/s41467-021-21845-6](https://doi.org/10.1038/s41467-021-21845-6). URL: <http://www.nature.com/articles/s41467-021-21845-6> (siehe S. 5, 15, 38, 40, 45, 102, 110, 113, 115, 117–120, 122–130, 132–136, 138, 149, 154, 206).
- [8] Ingo Barth und Olga Smirnova. „Nonadiabatic tunneling in circularly polarized laser fields: Physical picture and calculations“. In: *Phys. Rev. A* 84.6 (2011), S. 063415. ISSN: 1050-2947. DOI: [10.1103/PhysRevA.84.063415](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.84.063415). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.84.063415> (siehe S. 6, 8, 17, 18).
- [9] S. Eckart u. a. „Direct Experimental Access to the Nonadiabatic Initial Momentum Offset upon Tunnel Ionization“. In: *Phys. Rev. Lett.* 121.16 (2018), S. 163202. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.121.163202](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.121.163202). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.121.163202> (siehe S. 6, 8).
- [10] P. Agostini u. a. „Free-Free Transitions Following Six-Photon Ionization of Xenon Atoms“. In: *Phys. Rev. Lett.* 42.17 (1979), S. 1127–1130. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.42.1127](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.42.1127). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.42.1127> (siehe S. 7).
- [11] R R Freeman u. a. „Above-threshold ionization with subpicosecond laser pulses“. In: *Phys. Rev. Lett.* 59.10 (1987), S. 1092. DOI: [10.1103/PhysRevLett.59.1092](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.59.1092). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.59.1092> (siehe S. 7).

- [12] F. Lindner u. a. „Attosecond Double-Slit Experiment“. In: *Phys. Rev. Lett.* 95.4 (2005), S. 040401. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.95.040401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.040401). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.95.040401> (siehe S. 7).
- [13] N. I. Shvetsov-Shilovski u. a. „Semiclassical two-step model for strong-field ionization“. In: *Phys. Rev. A* 94.1 (2016), S. 013415. ISSN: 2469-9926. DOI: [10.1103/PhysRevA.94.013415](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.94.013415). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.94.013415> (siehe S. 7, 10, 11, 15, 108, 123).
- [14] Maxim V. Ammosov, Nikolai B. Delone und Vladimir P. Krainov. „Tunnel Ionization Of Complex Atoms And Atomic Ions In Electromagnetic Field“. In: Hrsg. von John A. Alcock. 1986, S. 138. DOI: [10.1117/12.938695](https://doi.org/10.1117/12.938695). URL: <http://proceedings.spiedigitallibrary.org/proceeding.aspx?doi=10.1117/12.938695> (siehe S. 7, 15).
- [15] Misha Yu Ivanov, Michael Spanner und Olga Smirnova. „Anatomy of strong field ionization“. In: *J. Mod. Opt.* 52.2-3 (2005), S. 165–184. ISSN: 0950-0340. DOI: [10.1080/0950034042000275360](https://doi.org/10.1080/0950034042000275360). URL: <http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/0950034042000275360> (siehe S. 8, 16).
- [16] T. F. Gallagher. „Above-Threshold Ionization in Low-Frequency Limit“. In: *Phys. Rev. Lett.* 61.20 (1988), S. 2304–2307. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.61.2304](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.61.2304). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.61.2304> (siehe S. 10).
- [17] P. B. Corkum. „Plasma perspective on strong field multiphoton ionization“. In: *Phys. Rev. Lett.* 71.13 (1993), S. 1994–1997. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.71.1994](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.71.1994). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.71.1994> (siehe S. 10).
- [18] Thomas Brabec, Misha Yu. Ivanov und Paul B. Corkum. „Coulomb focusing in intense field atomic processes“. In: *Phys. Rev. A* 54.4 (1996), R2551–R2554. ISSN: 1050-2947. DOI: [10.1103/PhysRevA.54.R2551](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.54.R2551). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.54.R2551> (siehe S. 10).
- [19] Petrisa Eckle u. a. „Attosecond angular streaking“. In: *Nat. Phys.* 4.7 (2008), S. 565–570. ISSN: 1745-2473. DOI: [10.1038/nphys982](https://doi.org/10.1038/nphys982). URL: <http://www.nature.com/articles/nphys982> (siehe S. 12, 14).
- [20] P. Eckle u. a. „Attosecond Ionization and Tunneling Delay Time Measurements in Helium“. In: *Science* (80-. ). 322.5907 (2008), S. 1525–1529. ISSN: 0036-8075. DOI: [10.1126/science.1163439](https://doi.org/10.1126/science.1163439). URL: <https://www.sciencemag.org/lookup/doi/10.1126/science.1163439> (siehe S. 14, 15, 101, 108, 112).
- [21] U Satya Sainadh, R T Sang und I V Litvinyuk. „Attoclock and the quest for tunnelling time in strong-field physics“. In: *J. Phys. Photonics* 2.4 (2020), S. 042002. ISSN: 2515-7647. DOI: [10.1088/2515-7647/aba009](https://doi.org/10.1088/2515-7647/aba009). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/2515-7647/aba009> (siehe S. 14).
- [22] L.D. Landau und E.M. Lifshitz. *Quantum Mechanics: Non-Relativistic Theory. Vol. 3 (2nd ed.)* Pergamon Press, 1965 (siehe S. 15).
- [23] A.M Perelomov, V.S. Popov und M.V. Terent'ev. „Ionization of Atoms in an Alternating Electric Field“. In: *JETP* 23.5 (1966), S. 924 (siehe S. 15).
- [24] Sebastian Eckart. „Strong Field Ionization in Two-Color Fields“. Dissertation. Goethe-Universität Frankfurt, 2019. URL: [https://www.atom.uni-frankfurt.de/publications/files/Eckart\\_2019\\_Dissertation.pdf](https://www.atom.uni-frankfurt.de/publications/files/Eckart_2019_Dissertation.pdf) (siehe S. 15, 49, 51, 52, 54, 114).

- [25] M. Smolarski u. a. „Semiclassical model for attosecond angular streaking“. In: *Opt. Express* 18.17 (2010), S. 17640. ISSN: 1094-4087. DOI: [10.1364/OE.18.017640](https://doi.org/10.1364/OE.18.017640). URL: <https://www.osapublishing.org/abstract.cfm?URI=oe-18-17-17640> (siehe S. 15, 108).
- [26] W. Becker u. a. „Above-Threshold Ionization: From Classical Features to Quantum Effects“. In: *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* 2002, S. 35–98. DOI: [10.1016/S1049-250X\(02\)80006-4](https://doi.org/10.1016/S1049-250X(02)80006-4). URL: <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S1049250X02800064> (siehe S. 16).
- [27] Kasra Amini u. a. „Symphony on strong field approximation“. In: *Reports Prog. Phys.* 82.11 (2019), S. 116001. ISSN: 0034-4885. DOI: [10.1088/1361-6633/ab2bb1](https://doi.org/10.1088/1361-6633/ab2bb1). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1361-6633/ab2bb1> (siehe S. 16).
- [28] D B Milošević u. a. „Above-threshold ionization by few-cycle pulses“. In: *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* 39.14 (2006), R203–R262. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/39/14/R01](https://doi.org/10.1088/0953-4075/39/14/R01). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0953-4075/39/14/R01> (siehe S. 16).
- [29] D. B. Milošević, G. G. Paulus und W. Becker. „Phase-Dependent Effects of a Few-Cycle Laser Pulse“. In: *Phys. Rev. Lett.* 89.15 (2002), S. 153001. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.89.153001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.89.153001). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.89.153001> (siehe S. 16).
- [30] S. Eckart u. a. „Sideband modulation by subcycle interference“. In: *Phys. Rev. A* 102.4 (2020), S. 043115. ISSN: 2469-9926. DOI: [10.1103/PhysRevA.102.043115](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.102.043115). arXiv: 2005.04148. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.102.043115><https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.102.043115> (siehe S. 17, 36, 123, 136, 189).
- [31] Sebastian Eckart u. a. „Ultrafast preparation and detection of ring currents in single atoms“. In: *Nat. Phys.* 14.7 (2018), S. 701–704. ISSN: 1745-2473. DOI: [10.1038/s41567-018-0080-5](https://doi.org/10.1038/s41567-018-0080-5). URL: <http://www.nature.com/articles/s41567-018-0080-5> (siehe S. 18).
- [32] Ingo Barth und Olga Smirnova. „Spin-polarized electrons produced by strong-field ionization“. In: *Phys. Rev. A* 88.1 (2013), S. 013401. ISSN: 1050-2947. DOI: [10.1103/PhysRevA.88.013401](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.88.013401). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.88.013401> (siehe S. 18).
- [33] Alexander Hartung u. a. „Electron spin polarization in strong-field ionization of xenon atoms“. In: *Nat. Photonics* 10.8 (2016), S. 526–528. ISSN: 1749-4885. DOI: [10.1038/nphoton.2016.109](https://doi.org/10.1038/nphoton.2016.109). URL: <http://www.nature.com/articles/nphoton.2016.109> (siehe S. 18).
- [34] D. Trabert u. a. „Spin and Angular Momentum in Strong-Field Ionization“. In: *Phys. Rev. Lett.* 120.4 (2018), S. 043202. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.120.043202](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.043202). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.120.043202> (siehe S. 18, 206).
- [35] Hongcheng Ni, Ulf Saalman und Jan-Michael Rost. „Tunneling Ionization Time Resolved by Backpropagation“. In: *Phys. Rev. Lett.* 117.2 (2016), S. 023002. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.117.023002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.117.023002). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.117.023002> (siehe S. 19).
- [36] Hongcheng Ni, Ulf Saalman und Jan-Michael Rost. „Tunneling exit characteristics from classical backpropagation of an ionized electron wave packet“. In: *Phys. Rev. A* 97.1 (2018), S. 013426. ISSN: 2469-9926. DOI: [10.1103/PhysRevA.97.013426](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.97.013426). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.97.013426> (siehe S. 19, 114).

- [37] Hongcheng Ni u. a. „Tunneling criteria and a nonadiabatic term for strong-field ionization“. In: *Phys. Rev. A* 98.1 (2018), S. 013411. ISSN: 2469-9926. DOI: [10.1103/PhysRevA.98.013411](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.98.013411). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.98.013411> (siehe S. 19, 20).
- [38] Simon Brennecke, Sebastian Eckart und Manfred Lein. „Attoclock with bi-circular laser fields as a probe of velocity-dependent tunnel-exit positions“. In: *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* 54.16 (2021), S. 164001. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/1361-6455/ac190d](https://doi.org/10.1088/1361-6455/ac190d). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1361-6455/ac190d> (siehe S. 19, 21, 22).
- [39] Bernold Feuerstein und Uwe Thumm. „On the computation of momentum distributions within wavepacket propagation calculations“. In: *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* 36.4 (2003), S. 707–716. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/36/4/305](https://doi.org/10.1088/0953-4075/36/4/305). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0953-4075/36/4/305> (siehe S. 19).
- [40] Adrian N. Pfeiffer u. a. „Attoclock reveals natural coordinates of the laser-induced tunnelling current flow in atoms“. In: *Nat. Phys.* 8.1 (2012), S. 76–80. ISSN: 1745-2473. DOI: [10.1038/nphys2125](https://doi.org/10.1038/nphys2125). URL: <http://www.nature.com/articles/nphys2125> (siehe S. 20, 108, 112).
- [41] C Hofmann u. a. „Comparison of different approaches to the longitudinal momentum spread after tunnel ionization“. In: *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* 46.12 (2013), S. 125601. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/46/12/125601](https://doi.org/10.1088/0953-4075/46/12/125601). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0953-4075/46/12/125601> (siehe S. 20).
- [42] Wayne A. Bowers. „The classical polarizability of the hydrogen atom“. In: *Am. J. Phys.* 54.4 (1986), S. 347–350. ISSN: 0002-9505. DOI: [10.1119/1.14620](https://doi.org/10.1119/1.14620). URL: <http://aapt.scitation.org/doi/10.1119/1.14620> (siehe S. 20).
- [43] H. Eichmann u. a. „Polarization-dependent high-order two-color mixing“. In: *Phys. Rev. A* 51.5 (1995), R3414–R3417. ISSN: 1050-2947. DOI: [10.1103/PhysRevA.51.R3414](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.51.R3414). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.51.R3414> (siehe S. 25).
- [44] W. Becker, B. N. Chichkov und B. Wellegehausen. „Schemes for the generation of circularly polarized high-order harmonics by two-color mixing“. In: *Phys. Rev. A* 60.2 (1999), S. 1721–1722. ISSN: 1050-2947. DOI: [10.1103/PhysRevA.60.1721](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.60.1721). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.60.1721> (siehe S. 25).
- [45] Markus Kitzler und Matthias Lezius. „Spatial Control of Recollision Wave Packets with Attosecond Precision“. In: *Phys. Rev. Lett.* 95.25 (2005), S. 253001. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.95.253001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.253001). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.95.253001> (siehe S. 25).
- [46] Martin Richter u. a. „Ionization in orthogonal two-color laser fields: Origin and phase dependences of trajectory-resolved Coulomb effects“. In: *Phys. Rev. A* 94.3 (2016), S. 033416. ISSN: 2469-9926. DOI: [10.1103/PhysRevA.94.033416](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.94.033416). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.94.033416> (siehe S. 25).
- [47] Martin Richter u. a. „Streaking Temporal Double-Slit Interference by an Orthogonal Two-Color Laser Field“. In: *Phys. Rev. Lett.* 114.14 (2015), S. 143001. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.114.143001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.143001). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.114.143001> (siehe S. 25).

- [48] S Eckart u. a. „Nonsequential Double Ionization by Counterrotating Circularly Polarized Two-Color Laser Fields“. In: *Phys. Rev. Lett.* 117.13 (2016), S. 133202. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.117.133202](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.117.133202). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.117.133202> (siehe S. 26).
- [49] David Ayuso u. a. „Attosecond control of spin polarization in electron-ion recollision driven by intense tailored fields“. In: *New J. Phys.* 19.7 (2017), S. 073007. ISSN: 1367-2630. DOI: [10.1088/1367-2630/aa732f](https://doi.org/10.1088/1367-2630/aa732f). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1367-2630/aa732f> (siehe S. 26).
- [50] S. Eckart u. a. „Subcycle interference upon tunnel ionization by counterrotating two-color fields“. In: *Phys. Rev. A* 97.4 (2018), S. 041402. ISSN: 2469-9926. DOI: [10.1103/PhysRevA.97.041402](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.97.041402). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.97.041402> (siehe S. 26).
- [51] Eugene P Wigner. „Lower Limit for the Energy Derivative of the Scattering Phase Shift“. In: *Phys. Rev.* 98.1 (1955), S. 145–147. DOI: [10.1103/PhysRev.98.145](https://doi.org/10.1103/PhysRev.98.145). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.98.145> (siehe S. 27–30).
- [52] Felix T. Smith. „Lifetime Matrix in Collision Theory“. In: *Phys. Rev.* 118.1 (1960), S. 349–356. ISSN: 0031-899X. DOI: [10.1103/PhysRev.118.349](https://doi.org/10.1103/PhysRev.118.349). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.118.349> (siehe S. 27, 29, 31).
- [53] D. Strickland u. a. „Picosecond pulse amplification using pulse compression techniques“. In: *Conf. Lasers Electro-Optics*. Washington, D.C.: OSA, 1986, THL1. ISBN: 0-936659-09-2. DOI: [10.1364/CLEO.1986.THL1](https://doi.org/10.1364/CLEO.1986.THL1). URL: <https://www.osapublishing.org/abstract.cfm?URI=CLEO-1986-THL1> (siehe S. 27, 51).
- [54] Ahmed H. Zewail. „Femtochemistry: Atomic-Scale Dynamics of the Chemical Bond“. In: *J. Phys. Chem. A* 104.24 (2000), S. 5660–5694. ISSN: 1089-5639. DOI: [10.1021/jp001460h](https://doi.org/10.1021/jp001460h). URL: <https://pubs.acs.org/doi/10.1021/jp001460h> (siehe S. 27).
- [55] Ferenc Krausz. „From femtochemistry to attophysics“. In: *Phys. World* 14.9 (2001), S. 41–46. ISSN: 0953-8585. DOI: [10.1088/2058-7058/14/9/31](https://doi.org/10.1088/2058-7058/14/9/31). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/2058-7058/14/9/31> (siehe S. 27).
- [56] Markus Drescher u. a. „X-ray Pulses Approaching the Attosecond Frontier“. In: *Science (80-. )*. 291.5510 (2001), S. 1923–1927. ISSN: 0036-8075. DOI: [10.1126/science.1058561](https://doi.org/10.1126/science.1058561). URL: <https://www.science.org/doi/10.1126/science.1058561> (siehe S. 27).
- [57] Anne L’Huillier und Ph. Balcou. „High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser“. In: *Phys. Rev. Lett.* 70.6 (1993), S. 774–777. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.70.774](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.70.774). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.70.774> (siehe S. 27).
- [58] Renate Pazourek, Stefan Nagele und Joachim Burgdörfer. „Attosecond chronoscopy of photoemission“. In: *Rev. Mod. Phys.* 87.3 (2015), S. 765–802. DOI: [10.1103/RevModPhys.87.765](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.87.765). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.87.765> (siehe S. 27, 28, 30, 31, 35).
- [59] H G Muller. „Reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transitions“. In: *Appl. Phys. B* 74.1 (2002), S. 17. ISSN: 1432-0649. DOI: [10.1007/s00340-002-0894-8](https://doi.org/10.1007/s00340-002-0894-8). URL: <https://doi.org/10.1007/s00340-002-0894-8> (siehe S. 27, 34).

- [60] Ulf Saalmann und Jan M. Rost. „Proper Time Delays Measured by Optical Streaking“. In: *Phys. Rev. Lett.* 125.11 (2020), S. 113202. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.125.113202](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.125.113202). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.125.113202> (siehe S. 27, 31, 33).
- [61] Sebastian Eckart. „Holographic angular streaking of electrons and the Wigner time delay“. In: *Phys. Rev. Res.* 2.3 (2020), S. 033248. ISSN: 2643-1564. DOI: [10.1103/PhysRevResearch.2.033248](https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.2.033248). arXiv: 2003.07249. URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevResearch.2.033248> (siehe S. 27, 36–43, 123, 131, 132, 136, 137).
- [62] J. J. Sakurai und Jim Napolitano. *Modern Quantum Mechanics*. Cambridge University Press, 2017. ISBN: 9781108499996. DOI: [10.1017/9781108499996](https://doi.org/10.1017/9781108499996). URL: <https://www.cambridge.org/core/product/identifier/9781108499996/type/book> (siehe S. 28).
- [63] C.A.A. de Carvalho und H.M. Nussenzveig. „Time delay“. In: *Phys. Rep.* 364.2 (2002), S. 83–174. ISSN: 03701573. DOI: [10.1016/S0370-1573\(01\)00092-8](https://doi.org/10.1016/S0370-1573(01)00092-8). URL: <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0370157301000928> (siehe S. 29, 30).
- [64] Leonhard Eisenbud. „The formal properties of nuclear collisions“. Dissertation. Princeton University, 1948 (siehe S. 29).
- [65] M. Büttiker und R. Landauer. „Traversal Time for Tunneling“. In: *Phys. Rev. Lett.* 49.23 (1982), S. 1739–1742. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.49.1739](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.49.1739). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.49.1739> (siehe S. 30).
- [66] Alexandra S. Landsman u. a. „Ultrafast resolution of tunneling delay time“. In: *Optica* 1.5 (2014), S. 343. ISSN: 2334-2536. DOI: [10.1364/OPTICA.1.000343](https://doi.org/10.1364/OPTICA.1.000343). URL: <https://www.osapublishing.org/abstract.cfm?URI=optica-1-5-343> (siehe S. 30).
- [67] Tomáš Zimmermann u. a. „Tunneling Time and Weak Measurement in Strong Field Ionization“. In: *Phys. Rev. Lett.* 116.23 (2016), S. 233603. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.116.233603](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.116.233603). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.116.233603> (siehe S. 30).
- [68] C. Hofmann, A. S. Landsman und U. Keller. „Attoclock revisited on electron tunnelling time“. In: *J. Mod. Opt.* 66.10 (2019), S. 1052–1070. ISSN: 0950-0340. DOI: [10.1080/09500340.2019.1596325](https://doi.org/10.1080/09500340.2019.1596325). URL: <https://www.tandfonline.com/doi/full/10.1080/09500340.2019.1596325> (siehe S. 30, 113).
- [69] S Nagele u. a. „Time-resolved photoemission by attosecond streaking: extraction of time information“. In: *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* 44.8 (2011), S. 081001. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/44/8/081001](https://doi.org/10.1088/0953-4075/44/8/081001). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0953-4075/44/8/081001> (siehe S. 30, 33).
- [70] J M Dahlström, A L’Huillier und A Maquet. „Introduction to attosecond delays in photoionization“. In: *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* 45.18 (2012), S. 183001. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/45/18/183001](https://doi.org/10.1088/0953-4075/45/18/183001). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0953-4075/45/18/183001> (siehe S. 31, 35).
- [71] D. G. Stearns u. a. „Generation of ultrashort x-ray pulses“. In: *Phys. Rev. A* 37.5 (1988), S. 1684–1690. ISSN: 0556-2791. DOI: [10.1103/PhysRevA.37.1684](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.37.1684). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.37.1684> (siehe S. 32).

- [72] Ronnie Shepherd u. a. „Ultrafast x-ray streak camera for use in ultrashort laser-produced plasma research“. In: *Rev. Sci. Instrum.* 66.1 (1995), S. 719–721. ISSN: 0034-6748. DOI: [10.1063/1.1146269](https://doi.org/10.1063/1.1146269). URL: <http://aip.scitation.org/doi/10.1063/1.1146269> (siehe S. 32).
- [73] Eric Constant u. a. „Methods for the measurement of the duration of high-harmonic pulses“. In: *Phys. Rev. A* 56.5 (1997), S. 3870–3878. ISSN: 1050-2947. DOI: [10.1103/PhysRevA.56.3870](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.56.3870). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.56.3870> (siehe S. 32).
- [74] M. Hentschel u. a. „Attosecond metrology“. In: *Nature* 414.6863 (2001), S. 509–513. ISSN: 0028-0836. DOI: [10.1038/35107000](https://doi.org/10.1038/35107000). URL: <http://www.nature.com/articles/35107000> (siehe S. 32).
- [75] J. Itatani u. a. „Attosecond Streak Camera“. In: *Phys. Rev. Lett.* 88.17 (2002), S. 173903. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.88.173903](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.88.173903). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.88.173903> (siehe S. 32).
- [76] R. Kienberger u. a. „Atomic transient recorder“. In: *Nature* 427.6977 (2004), S. 817–821. ISSN: 0028-0836. DOI: [10.1038/nature02277](https://doi.org/10.1038/nature02277). URL: <http://www.nature.com/articles/nature02277> (siehe S. 32).
- [77] E. Goulielmakis u. a. „Direct Measurement of Light Waves“. In: *Science* (80-. ). 305.5688 (2004), S. 1267–1269. ISSN: 0036-8075. DOI: [10.1126/science.1100866](https://doi.org/10.1126/science.1100866). URL: <https://www.science.org/doi/10.1126/science.1100866> (siehe S. 32).
- [78] A. L. Cavalieri u. a. „Attosecond spectroscopy in condensed matter“. In: *Nature* 449.7165 (2007), S. 1029–1032. ISSN: 0028-0836. DOI: [10.1038/nature06229](https://doi.org/10.1038/nature06229). URL: <http://www.nature.com/articles/nature06229> (siehe S. 32).
- [79] M. Schultze u. a. „Delay in Photoemission“. In: *Science* (80-. ). 328.5986 (2010), S. 1658–1662. ISSN: 0036-8075. DOI: [10.1126/science.1189401](https://doi.org/10.1126/science.1189401). URL: <https://science.sciencemag.org/content/328/5986/1658> (siehe S. 32, 33).
- [80] A. S. Kheifets und I. A. Ivanov. „Delay in Atomic Photoionization“. In: *Phys. Rev. Lett.* 105.23 (2010), S. 233002. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.105.233002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.105.233002). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.105.233002> (siehe S. 33).
- [81] M. Isinger u. a. „Photoionization in the time and frequency domain“. In: *Science* (80-. ). 358.6365 (2017), S. 893–896. ISSN: 0036-8075. DOI: [10.1126/science.aao7043](https://doi.org/10.1126/science.aao7043). URL: <https://www.science.org/doi/10.1126/science.aao7043> (siehe S. 33).
- [82] P M Paul u. a. „Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation“. In: *Science* (80-. ). 292.5522 (2001), S. 1689–1692. ISSN: 0036-8075. DOI: [10.1126/science.1059413](https://doi.org/10.1126/science.1059413). URL: <https://science.sciencemag.org/content/292/5522/1689> (siehe S. 34).
- [83] K Klünder u. a. „Probing Single-Photon Ionization on the Attosecond Time Scale“. In: *Phys. Rev. Lett.* 106.14 (2011), S. 143002. DOI: [10.1103/PhysRevLett.106.143002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.106.143002). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.106.143002> (siehe S. 34, 35).
- [84] Martin Huppert u. a. „Attosecond Delays in Molecular Photoionization“. In: *Phys. Rev. Lett.* 117.9 (2016), S. 93001. DOI: [10.1103/PhysRevLett.117.093001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.117.093001). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.117.093001> (siehe S. 35).

- [85] Zhensheng Tao u. a. „Direct time-domain observation of attosecond final-state lifetimes in photoemission from solids“. In: *Science* (80- ). 353.6294 (2016), S. 62–67. ISSN: 0036-8075. DOI: [10.1126/science.aaf6793](https://doi.org/10.1126/science.aaf6793). URL: <https://www.science.org/doi/10.1126/science.aaf6793> (siehe S. 35).
- [86] L. Cattaneo u. a. „Comparison of attosecond streaking and RABBITT“. In: *Opt. Express* 24.25 (2016), S. 29060. ISSN: 1094-4087. DOI: [10.1364/OE.24.029060](https://doi.org/10.1364/OE.24.029060). URL: <https://www.osapublishing.org/abstract.cfm?URI=oe-24-25-29060> (siehe S. 35).
- [87] J Vos u. a. „Orientation-dependent stereo Wigner time delay and electron localization in a small molecule“. In: *Science* (80- ). 360.6395 (2018), S. 1326. DOI: [10.1126/science.aao4731](https://doi.org/10.1126/science.aao4731). URL: <https://www.science.org/doi/10.1126/science.aao4731> (siehe S. 35).
- [88] Andrei Kamalov u. a. „Electron correlation effects in attosecond photoionization of CO<sub>2</sub>“. In: *Phys. Rev. A* 102.2 (2020), S. 023118. ISSN: 2469-9926. DOI: [10.1103/PhysRevA.102.023118](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.102.023118). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.102.023118> (siehe S. 35).
- [89] S. Nandi u. a. „Attosecond timing of electron emission from a molecular shape resonance“. In: *Sci. Adv.* 6.31 (2020), eaba7762. ISSN: 2375-2548. DOI: [10.1126/sciadv.aba7762](https://doi.org/10.1126/sciadv.aba7762). URL: <https://advances.sciencemag.org/lookup/doi/10.1126/sciadv.aba7762> (siehe S. 35).
- [90] Xiaochun Gong u. a. „Asymmetric Attosecond Photoionization in Molecular Shape Resonance“. In: *Phys. Rev. X* 12.1 (2022), S. 011002. ISSN: 2160-3308. DOI: [10.1103/PhysRevX.12.011002](https://doi.org/10.1103/PhysRevX.12.011002). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevX.12.011002> (siehe S. 35).
- [91] L J Zipp, A Natan und P H Bucksbaum. „Probing electron delays in above-threshold ionization“. In: *Optica* 1.6 (2014), S. 361. DOI: [10.1364/OPTICA.1.000361](https://doi.org/10.1364/OPTICA.1.000361). URL: <http://www.osapublishing.org/optica/abstract.cfm?URI=optica-1-6-361> (siehe S. 35, 36, 138).
- [92] S. Beaulieu u. a. „Attosecond-resolved photoionization of chiral molecules“. In: *Science* (80- ). 358.6368 (2017), S. 1288–1294. ISSN: 0036-8075. DOI: [10.1126/science.aao5624](https://doi.org/10.1126/science.aao5624). URL: <https://www.sciencemag.org/lookup/doi/10.1126/science.aao5624> (siehe S. 35).
- [93] Jonas Rist u. a. „Measuring the photoelectron emission delay in the molecular frame“. In: *Nat. Commun.* 12.1 (2021), S. 6657. ISSN: 2041-1723. DOI: [10.1038/s41467-021-26994-2](https://doi.org/10.1038/s41467-021-26994-2). URL: <https://www.nature.com/articles/s41467-021-26994-2> (siehe S. 35).
- [94] M Han u. a. „Attoclock Photoelectron Interferometry with Two-Color Corotating Circular Fields to Probe the Phase and the Amplitude of Emitting Wave Packets“. In: *Phys. Rev. Lett.* 120.7 (2018), S. 73202. DOI: [10.1103/PhysRevLett.120.073202](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.073202). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.120.073202> (siehe S. 36).
- [95] Yudi Feng u. a. „Semiclassical analysis of photoelectron interference in a synthesized two-color laser pulse“. In: *Phys. Rev. A* 100.6 (2019), S. 63411. DOI: [10.1103/PhysRevA.100.063411](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.100.063411). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.100.063411> (siehe S. 36).
- [96] Michael Spanner u. a. „Reading diffraction images in strong field ionization of diatomic molecules“. In: *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* 37.12 (2004), S. L243–L250. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/37/12/L02](https://doi.org/10.1088/0953-4075/37/12/L02). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0953-4075/37/12/L02> (siehe S. 45).

- [97] M Meckel u. a. „Laser-Induced Electron Tunneling and Diffraction“. In: *Science* (80- ). 320.5882 (2008), S. 1478. ISSN: 0036-8075. DOI: [10.1126/science.1157980](https://doi.org/10.1126/science.1157980). URL: <http://science.sciencemag.org/content/320/5882/1478> (siehe S. 45).
- [98] R Murray, W.-K. Liu und M Yu. Ivanov. „Partial Fourier-transform approach to tunnel ionization: Atomic systems“. In: *Phys. Rev. A* 81.2 (2010), S. 23413. DOI: [10.1103/PhysRevA.81.023413](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.81.023413). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.81.023413> (siehe S. 45, 127).
- [99] X. M. Tong, Z. X. Zhao und C. D. Lin. „Theory of molecular tunneling ionization“. In: *Phys. Rev. A* 66.3 (2002), S. 033402. ISSN: 1050-2947. DOI: [10.1103/PhysRevA.66.033402](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.66.033402). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.66.033402> (siehe S. 45).
- [100] J. Muth-Böhm, A. Becker und F. H. M. Faisal. „Suppressed Molecular Ionization for a Class of Diatomics in Intense Femtosecond Laser Fields“. In: *Phys. Rev. Lett.* 85.11 (2000), S. 2280–2283. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.85.2280](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.85.2280). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.85.2280> (siehe S. 45).
- [101] Ryan Murray u. a. „Tunnel Ionization of Molecules and Orbital Imaging“. In: *Phys. Rev. Lett.* 106.17 (2011), S. 173001. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.106.173001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.106.173001). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.106.173001> (siehe S. 45).
- [102] Mingming Liu und Yunquan Liu. „Application of the partial-Fourier-transform approach for tunnel ionization of molecules“. In: *Phys. Rev. A* 93.4 (2016), S. 43426. DOI: [10.1103/PhysRevA.93.043426](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.93.043426). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.93.043426> (siehe S. 45, 127, 130).
- [103] Werner Kutzelnigg. „Friedrich Hund and Chemistry“. In: *Angew. Chemie Int. Ed. English* 35.6 (1996), S. 572–586. ISSN: 0570-0833. DOI: [10.1002/anie.199605721](https://doi.org/10.1002/anie.199605721). URL: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/anie.199605721> (siehe S. 45, 127).
- [104] Martin Clemens Richter. „Ionisation in Zwei-Farben-Laserfeldern: Steuerung von Elektronenwellenpaketen“. Dissertation. Goethe-Universität Frankfurt, 2016. URL: <https://www.atom.uni-frankfurt.de/publications/files/MartinRichter2016.pdf> (siehe S. 49, 51, 55, 56).
- [105] D. E. Spence, P. N. Kean und W. Sibbett. „60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser“. In: *Opt. Lett.* 16.1 (1991), S. 42. ISSN: 0146-9592. DOI: [10.1364/OL.16.000042](https://doi.org/10.1364/OL.16.000042). URL: <https://www.osapublishing.org/abstract.cfm?URI=ol-16-1-42> (siehe S. 51).
- [106] KMLabs. *WyvernTM-500 - High Power Ultrafast Amplifier System Datasheet*. URL: <https://www.kmlabs.com/product/wyvern500/> (siehe S. 51).
- [107] Kevin Henrichs. „Doppelionisation in starken Feldern mit einer Wellenlänge von 400 nm“. Dissertation. Goethe-Universität Frankfurt, 2017. URL: <https://www.atom.uni-frankfurt.de/publications/files/KevinHenrichs2017.pdf> (siehe S. 51, 55, 60).
- [108] Dieter Meschede. *Optik, Licht und Laser*. Wiesbaden: Vieweg+Teubner, 2008. ISBN: 978-3-8351-0143-2. DOI: [10.1007/978-3-8348-9288-1](https://doi.org/10.1007/978-3-8348-9288-1). URL: <http://link.springer.com/10.1007/978-3-8348-9288-1> (siehe S. 53, 54).

- [109] R. Dörner u. a. „Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy: a ‘momentum microscope’ to view atomic collision dynamics“. In: *Phys. Rep.* 330.2-3 (2000), S. 95–192. ISSN: 03701573. DOI: [10.1016/S0370-1573\(99\)00109-X](https://doi.org/10.1016/S0370-1573(99)00109-X). URL: <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S037015739900109X> (siehe S. 55).
- [110] J Ullrich u. a. „Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes“. In: *Reports Prog. Phys.* 66.9 (2003), S. 1463–1545. ISSN: 0034-4885. DOI: [10.1088/0034-4885/66/9/203](https://doi.org/10.1088/0034-4885/66/9/203). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0034-4885/66/9/203> (siehe S. 55).
- [111] M. Krems u. a. „Channel electron multiplier and channelplate efficiencies for detecting positive ions“. In: *Rev. Sci. Instrum.* 76.9 (2005), S. 093305. ISSN: 0034-6748. DOI: [10.1063/1.2052052](https://doi.org/10.1063/1.2052052). URL: <http://aip.scitation.org/doi/10.1063/1.2052052> (siehe S. 56).
- [112] O Jagutzki u. a. „Multiple hit readout of a microchannel plate detector with a three-layer delay-line anode“. In: *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 49.5 (2002), S. 2477–2483. ISSN: 0018-9499. DOI: [10.1109/TNS.2002.803889](https://doi.org/10.1109/TNS.2002.803889). URL: <https://ieeexplore.ieee.org/document/1046770/> (siehe S. 56, 76, 77).
- [113] R. Campargue. „Progress in overexpanded supersonic jets and skimmed molecular beams in free-jet zones of silence“. In: *J. Phys. Chem.* 88.20 (1984), S. 4466–4474. ISSN: 0022-3654. DOI: [10.1021/j150664a004](https://doi.org/10.1021/j150664a004). URL: <https://pubs.acs.org/doi/10.1021/j150664a004> (siehe S. 60).
- [114] M Barr u. a. „A desktop supersonic free-jet beam source for a scanning helium microscope (SHeM)“. In: *Meas. Sci. Technol.* 23.10 (2012), S. 105901. ISSN: 0957-0233. DOI: [10.1088/0957-0233/23/10/105901](https://doi.org/10.1088/0957-0233/23/10/105901). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0957-0233/23/10/105901> (siehe S. 60).
- [115] U. Bischler und E. Bertel. „Simple source of atomic hydrogen for ultrahigh vacuum applications“. In: *J. Vac. Sci. Technol. A Vacuum, Surfaces, Film.* 11.2 (1993), S. 458–460. ISSN: 0734-2101. DOI: [10.1116/1.578754](https://doi.org/10.1116/1.578754). URL: <http://avs.scitation.org/doi/10.1116/1.578754> (siehe S. 61).
- [116] C. Eibl, G. Lackner und A. Winkler. „Quantitative characterization of a highly effective atomic hydrogen doser“. In: *J. Vac. Sci. Technol. A Vacuum, Surfaces, Film.* 16.5 (1998), S. 2979–2989. ISSN: 0734-2101. DOI: [10.1116/1.581449](https://doi.org/10.1116/1.581449). URL: <http://avs.scitation.org/doi/10.1116/1.581449> (siehe S. 61, 62).
- [117] *Estimating the atomic flux, Handbuch h-flux* (siehe S. 62, 63).
- [118] Nils Anders. „Ionisation von atomarem Wasserstoff in starken Laserfeldern“. Masterarbeit. Goethe-Universität Frankfurt, 2021. URL: [https://www.atom.uni-frankfurt.de/publications/files/Anders\\_2021\\_Master.pdf](https://www.atom.uni-frankfurt.de/publications/files/Anders_2021_Master.pdf) (siehe S. 63, 66–72, 81, 96, 99, 101, 102, 104–106, 185, 186, 210).
- [119] M. Hattass u. a. „A  $2\pi$  spectrometer for electron–electron coincidence studies on surfaces“. In: *Rev. Sci. Instrum.* 75.7 (2004), S. 2373–2378. ISSN: 0034-6748. DOI: [10.1063/1.1765764](https://doi.org/10.1063/1.1765764). URL: <http://aip.scitation.org/doi/10.1063/1.1765764> (siehe S. 83, 84).
- [120] N. Bohr. „I. On the constitution of atoms and molecules“. In: *London, Edinburgh, Dublin Philos. Mag. J. Sci.* 26.151 (1913), S. 1–25. ISSN: 1941-5982. DOI: [10.1080/14786441308634955](https://doi.org/10.1080/14786441308634955). URL: <https://www.tandfonline.com/doi/full/10.1080/14786441308634955> (siehe S. 99).

- [121] W. Pauli. „Über das Wasserstoffspektrum vom Standpunkt der neuen Quantenmechanik“. In: *Zeitschrift für Phys. A Hadron. Nucl.* 36.5 (1926), S. 336–363. ISSN: 0939-7922. DOI: [10.1007/BF01450175](https://doi.org/10.1007/BF01450175). URL: <http://link.springer.com/10.1007/BF01450175> (siehe S. 99).
- [122] E. Schrödinger. „Quantisierung als Eigenwertproblem“. In: *Ann. Phys.* 384.4 (1926), S. 361–376. ISSN: 00033804. DOI: [10.1002/andp.19263840404](https://doi.org/10.1002/andp.19263840404). URL: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/andp.19263840404> (siehe S. 99).
- [123] Walter Greiner. *Quantum Mechanics*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2001. ISBN: 978-3-540-67458-0. DOI: [10.1007/978-3-642-56826-8](https://doi.org/10.1007/978-3-642-56826-8). URL: <http://link.springer.com/10.1007/978-3-642-56826-8> (siehe S. 99, 154).
- [124] U. Satya Sainadh u. a. „Attosecond angular streaking and tunnelling time in atomic hydrogen“. In: *Nature* 568.7750 (2019), S. 75–77. ISSN: 0028-0836. DOI: [10.1038/s41586-019-1028-3](https://doi.org/10.1038/s41586-019-1028-3). URL: <http://www.nature.com/articles/s41586-019-1028-3> (siehe S. 100, 112).
- [125] Chuncheng Wang u. a. „Decoding electron tunnelling delay time by embracing wave-particle duality“. In: (2021). arXiv: 2104.06144. URL: <http://arxiv.org/abs/2104.06144> (siehe S. 100).
- [126] J. Wu u. a. „Electron-Nuclear Energy Sharing in Above-Threshold Multiphoton Dissociative Ionization of H<sub>2</sub>“. In: *Phys. Rev. Lett.* 111.2 (2013), S. 023002. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.111.023002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.023002). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.111.023002> (siehe S. 102, 145).
- [127] Richard N. Zare. „Dissociation of H<sub>2</sub><sup>+</sup> by Electron Impact: Calculated Angular Distribution“. In: *J. Chem. Phys.* 47.1 (1967), S. 204–215. ISSN: 0021-9606. DOI: [10.1063/1.1711847](https://doi.org/10.1063/1.1711847). URL: <http://aip.scitation.org/doi/10.1063/1.1711847> (siehe S. 102, 115).
- [128] R M Wood u. a. „Limitations of the axial recoil approximation in measurements of molecular dissociation“. In: *Rev. Sci. Instrum.* 68.3 (1997), S. 1382. DOI: [10.1063/1.1147588](https://doi.org/10.1063/1.1147588). URL: <https://doi.org/10.1063/1.1147588> (siehe S. 102, 115).
- [129] A Rudenko u. a. „Fragmentation dynamics of molecular hydrogen in strong ultrashort laser pulses“. In: *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* 38.5 (2005), S. 487–501. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/38/5/002](https://doi.org/10.1088/0953-4075/38/5/002). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0953-4075/38/5/002> (siehe S. 102).
- [130] Pengqian Wang u. a. „Disentangling the volume effect through intensity-difference spectra: application to laser-induced dissociation of H<sub>2</sub><sup>+</sup>“. In: *Opt. Lett.* 30.6 (2005), S. 664. ISSN: 0146-9592. DOI: [10.1364/OL.30.000664](https://doi.org/10.1364/OL.30.000664). URL: <https://www.osapublishing.org/abstract.cfm?URI=ol-30-6-664> (siehe S. 106).
- [131] Christer Z. Bisgaard und Lars Bojer Madsen. „Tunneling ionization of atoms“. In: *Am. J. Phys.* 72.2 (2004), S. 249–254. ISSN: 0002-9505. DOI: [10.1119/1.1603274](https://doi.org/10.1119/1.1603274). URL: <http://aapt.scitation.org/doi/10.1119/1.1603274> (siehe S. 108).
- [132] Simon Brennecke, Nicolas Eicke und Manfred Lein. „Gouy’s Phase Anomaly in Electron Waves Produced by Strong-Field Ionization“. In: *Phys. Rev. Lett.* 124.15 (2020), S. 153202. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.124.153202](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.124.153202). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.124.153202> (siehe S. 109).

- [133] R. Boge u. a. „Probing Nonadiabatic Effects in Strong-Field Tunnel Ionization“. In: *Phys. Rev. Lett.* 111.10 (2013), S. 103003. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.111.103003](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.103003). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.111.103003> (siehe S. 113).
- [134] Michael Klaiber, Karen Z. Hatsagortsyan und Christoph H. Keitel. „Tunneling Dynamics in Multiphoton Ionization and Attoclock Calibration“. In: *Phys. Rev. Lett.* 114.8 (2015), S. 083001. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.114.083001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.083001). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.114.083001> (siehe S. 113, 114).
- [135] Michael Klaiber und John S. Briggs. „Crossover from tunneling to multiphoton ionization of atoms“. In: *Phys. Rev. A* 94.5 (2016), S. 053405. ISSN: 2469-9926. DOI: [10.1103/PhysRevA.94.053405](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.94.053405). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.94.053405> (siehe S. 114).
- [136] Nils Anders. „Multiphoton-induzierte Ionisation und Dissoziation von Tetrafluormethan im 395 nm Laserfeld“. Bachelorarbeit. Goethe-Universität Frankfurt, 2019. URL: [https://www.atom.uni-frankfurt.de/publications/files/Anders\\_2019\\_Bachelor.pdf](https://www.atom.uni-frankfurt.de/publications/files/Anders_2019_Bachelor.pdf) (siehe S. 115, 210).
- [137] Klaus P. Huber und Gerhard H. Herzberg. „No Title“. In: *NIST Chem. WebBook, NIST Stand. Ref. Database Number 69*. Hrsg. von P.J. Linstrom und W.G. Mallard. Gaithersburg MD, 20899: National Institute of Standards and Technology. Kap. "Constants. DOI: [10.18434/T4D303](https://doi.org/10.18434/T4D303) (siehe S. 115).
- [138] A. Staudte u. a. „Angular Tunneling Ionization Probability of Fixed-in-Space H<sub>2</sub> Molecules in Intense Laser Pulses“. In: *Phys. Rev. Lett.* 102.3 (2009), S. 033004. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.102.033004](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.102.033004). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.102.033004> (siehe S. 115, 116, 120).
- [139] J. Wu u. a. „Understanding the role of phase in chemical bond breaking with coincidence angular streaking“. In: *Nat. Commun.* 4.1 (2013), S. 2177. ISSN: 2041-1723. DOI: [10.1038/ncomms3177](https://doi.org/10.1038/ncomms3177). URL: <http://www.nature.com/articles/ncomms3177> (siehe S. 115, 116, 120, 148).
- [140] A. Giusti-Suzor u. a. „Above-threshold dissociation of H<sub>2</sub><sup>+</sup> in intense laser fields“. In: *Phys. Rev. Lett.* 64.5 (1990), S. 515–518. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.64.515](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.64.515). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.64.515> (siehe S. 116).
- [141] A. Staudte u. a. „Attosecond Stroboscoping of Two-Surface Population Dynamics in Dissociating H<sub>2</sub><sup>+</sup>“. In: *Phys. Rev. Lett.* 98.7 (2007), S. 073003. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.98.073003](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.073003). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.98.073003> (siehe S. 116).
- [142] Y. Hikosaka und J.H.D. Eland. „Photoionization into the dissociation continuum of H<sub>2</sub><sup>+</sup> (X<sub>2</sub>Σ<sub>g</sub><sup>+</sup>) studied by velocity imaging photoionization coincidence spectroscopy“. In: *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena* 133.1-3 (2003), S. 77–86. ISSN: 03682048. DOI: [10.1016/j.elspec.2003.08.005](https://doi.org/10.1016/j.elspec.2003.08.005). URL: <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0368204803001464> (siehe S. 116, 145).
- [143] Arnab Khan u. a. „Orientation-dependent dissociative ionization of H<sub>2</sub> in strong elliptic laser fields: Modification of the release time through molecular orientation“. In: *Phys. Rev. A* 101.2 (2020), S. 023409. ISSN: 2469-9926. DOI: [10.1103/PhysRevA.101.023409](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.101.023409). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.101.023409> (siehe S. 116, 120, 128).

- [144] Maksim Kunitski u. a. „Double-slit photoelectron interference in strong-field ionization of the neon dimer“. In: *Nat. Commun.* 10.1 (2019), S. 1. ISSN: 2041-1723. DOI: [10.1038/s41467-018-07882-8](https://doi.org/10.1038/s41467-018-07882-8). URL: <http://www.nature.com/articles/s41467-018-07882-8> (siehe S. 128, 142–146, 154–156).
- [145] Vladislav V. Serov, Alexander W. Bray und Anatoli S. Kheifets. „Numerical attoclock on atomic and molecular hydrogen“. In: *Phys. Rev. A* 99.6 (2019), S. 063428. ISSN: 2469-9926. DOI: [10.1103/PhysRevA.99.063428](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.99.063428). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.99.063428> (siehe S. 128).
- [146] M. Waitz u. a. „Two-Particle Interference of Electron Pairs on a Molecular Level“. In: *Phys. Rev. Lett.* 117.8 (2016), S. 083002. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.117.083002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.117.083002). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.117.083002> (siehe S. 128, 143).
- [147] M. Waitz u. a. „Imaging the square of the correlated two-electron wave function of a hydrogen molecule“. In: *Nat. Commun.* 8.1 (2017), S. 2266. ISSN: 2041-1723. DOI: [10.1038/s41467-017-02437-9](https://doi.org/10.1038/s41467-017-02437-9). URL: <http://www.nature.com/articles/s41467-017-02437-9> (siehe S. 128).
- [148] Wojciech Grochala. „Atypical compounds of gases, which have been called ‘noble’“. In: *Chem. Soc. Rev.* 36.10 (2007), S. 1632. ISSN: 0306-0012. DOI: [10.1039/b702109g](https://doi.org/10.1039/b702109g). URL: <http://xlink.rsc.org/?DOI=b702109g> (siehe S. 141).
- [149] B L Blaney und G E Ewing. „Van Der Waals Molecules“. In: *Annu. Rev. Phys. Chem.* 27.1 (1976), S. 553–584. ISSN: 0066-426X. DOI: [10.1146/annurev.pc.27.100176.003005](https://doi.org/10.1146/annurev.pc.27.100176.003005). URL: <https://www.annualreviews.org/doi/10.1146/annurev.pc.27.100176.003005> (siehe S. 141).
- [150] B. Ulrich u. a. „Imaging of the Structure of the Argon and Neon Dimer, Trimer, and Tetramer“. In: *J. Phys. Chem. A* 115.25 (2011), S. 6936–6941. ISSN: 1089-5639. DOI: [10.1021/jp1121245](https://doi.org/10.1021/jp1121245). URL: <https://pubs.acs.org/doi/10.1021/jp1121245> (siehe S. 141).
- [151] Fu-Ming Tao. „The use of midbond functions for ab initio calculations of the asymmetric potentials of He–Ne and He–Ar“. In: *J. Chem. Phys.* 98.4 (1993), S. 3049–3059. ISSN: 0021-9606. DOI: [10.1063/1.464131](https://doi.org/10.1063/1.464131). URL: <http://aip.scitation.org/doi/10.1063/1.464131> (siehe S. 141).
- [152] F. Trinter u. a. „Vibrationally Resolved Decay Width of Interatomic Coulombic Decay in HeNe“. In: *Phys. Rev. Lett.* 111.23 (2013), S. 233004. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.111.233004](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.233004). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.111.233004> (siehe S. 141).
- [153] Stefan Zeller u. a. „Imaging the He<sub>2</sub> quantum halo state using a free electron laser“. In: *Proc. Natl. Acad. Sci.* 113.51 (2016), S. 14651–14655. ISSN: 0027-8424. DOI: [10.1073/pnas.1610688113](https://doi.org/10.1073/pnas.1610688113). URL: <http://www.pnas.org/lookup/doi/10.1073/pnas.1610688113> (siehe S. 141).
- [154] Konrad Patkowski u. a. „Accurate ab initio potential for argon dimer including highly repulsive region“. In: *Mol. Phys.* 103.15-16 (2005), S. 2031–2045. ISSN: 0026-8976. DOI: [10.1080/00268970500130241](https://doi.org/10.1080/00268970500130241). URL: <http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/00268970500130241> (siehe S. 141).
- [155] I Velchev, W Hogervorst und W Ubachs. „Precision VUV spectroscopy of Ar I at 105 nm“. In: *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* 32.17 (1999), S. L511–L516. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/32/17/105](https://doi.org/10.1088/0953-4075/32/17/105). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0953-4075/32/17/105> (siehe S. 141).

- [156] P. M. Dehmer und S. T. Pratt. „Photoionization of argon clusters“. In: *J. Chem. Phys.* 76.2 (1982), S. 843–853. ISSN: 0021-9606. DOI: [10.1063/1.443056](https://doi.org/10.1063/1.443056). URL: <http://aip.scitation.org/doi/10.1063/1.443056> (siehe S. 141).
- [157] T.-K. Ha u. a. „The lowest electronic states of Ne<sub>2</sub><sup>+</sup>, Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> and Kr<sub>2</sub><sup>+</sup>: comparison of theory and experiment“. In: *Mol. Phys.* 101.6 (2003), S. 827–838. ISSN: 0026-8976. DOI: [10.1080/0026897031000075624](https://doi.org/10.1080/0026897031000075624). URL: <https://www.tandfonline.com/doi/full/10.1080/0026897031000075624> (siehe S. 141, 142).
- [158] J. Wu u. a. „Steering the Nuclear Motion in Singly Ionized Argon Dimers with Mutually Detuned Laser Pulses“. In: *Phys. Rev. Lett.* 110.3 (2013), S. 033005. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.110.033005](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.033005). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.110.033005> (siehe S. 141, 142, 145).
- [159] Walter J. Stevens u. a. „Theoretical determination of bound–free absorption cross sections in Ar<sub>2</sub><sup>+</sup>“. In: *J. Chem. Phys.* 67.6 (1977), S. 2860. ISSN: 00219606. DOI: [10.1063/1.435153](https://doi.org/10.1063/1.435153). URL: <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jcp/67/6/10.1063/1.435153> (siehe S. 142, 145).
- [160] J. Wu u. a. „Nonadiabatic alignment of van der Waals–force-bound argon dimers by femtosecond laser pulses“. In: *Phys. Rev. A* 83.6 (2011), S. 061403. ISSN: 1050-2947. DOI: [10.1103/PhysRevA.83.061403](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.83.061403). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.83.061403> (siehe S. 142).
- [161] H. Sann u. a. „Delocalization of a Vacancy across Two Neon Atoms Bound by the van der Waals Force“. In: *Phys. Rev. Lett.* 117.26 (2016), S. 263001. ISSN: 0031-9007. DOI: [10.1103/PhysRevLett.117.263001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.117.263001). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.117.263001> (siehe S. 142, 143).
- [162] Howard D. Cohen und U. Fano. „Interference in the Photo-Ionization of Molecules“. In: *Phys. Rev.* 150.1 (1966), S. 30–33. ISSN: 0031-899X. DOI: [10.1103/PhysRev.150.30](https://doi.org/10.1103/PhysRev.150.30). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.150.30> (siehe S. 143).
- [163] James A. R. Samson und R. B. Cairns. „Total Absorption Cross Sections of H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, and O<sub>2</sub> in the Region 550–200 Å“. In: *J. Opt. Soc. Am.* 55.8 (1965), S. 1035. ISSN: 0030-3941. DOI: [10.1364/JOSA.55.001035](https://doi.org/10.1364/JOSA.55.001035). URL: <https://opg.optica.org/abstract.cfm?URI=josa-55-8-1035> (siehe S. 143).
- [164] D. Akoury u. a. „The Simplest Double Slit: Interference and Entanglement in Double Photoionization of H<sub>2</sub>“. In: *Science (80-. )*. 318.5852 (2007), S. 949–952. ISSN: 0036-8075. DOI: [10.1126/science.1144959](https://doi.org/10.1126/science.1144959). URL: <https://www.science.org/doi/10.1126/science.1144959> (siehe S. 143).
- [165] Björn Zimmermann u. a. „Localization and loss of coherence in molecular double-slit experiments“. In: *Nat. Phys.* 4.8 (2008), S. 649–655. ISSN: 1745-2473. DOI: [10.1038/nphys993](https://doi.org/10.1038/nphys993). URL: <http://www.nature.com/articles/nphys993> (siehe S. 143).
- [166] M. S. Schöffler u. a. „Photo-double-ionization of H<sub>2</sub>: Two-center interference and its dependence on the internuclear distance“. In: *Phys. Rev. A* 78.1 (2008), S. 013414. ISSN: 1050-2947. DOI: [10.1103/PhysRevA.78.013414](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.78.013414). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.78.013414> (siehe S. 143).
- [167] Sven Grundmann u. a. „Zeptosecond birth time delay in molecular photoionization“. In: *Science (80-. )*. 370.6514 (2020), S. 339–341. ISSN: 0036-8075. DOI: [10.1126/science.abb9318](https://doi.org/10.1126/science.abb9318). URL: <https://www.sciencemag.org/lookup/doi/10.1126/science.abb9318> (siehe S. 143).

- [168] Rajesh Kumar Kushawaha u. a. „From double-slit interference to structural information in simple hydrocarbons“. In: *Proc. Natl. Acad. Sci.* 110.38 (2013), S. 15201–15206. ISSN: 0027-8424. DOI: [10.1073/pnas.1306697110](https://doi.org/10.1073/pnas.1306697110). URL: <https://pnas.org/doi/full/10.1073/pnas.1306697110> (siehe S. 143).
- [169] Vladislav V. Serov, Vladimir L. Derbov und Tatyana A. Sergeeva. „Interpretation of time delay in the ionization of two-center systems“. In: *Phys. Rev. A* 87.6 (2013), S. 063414. ISSN: 1050-2947. DOI: [10.1103/PhysRevA.87.063414](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.87.063414). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.87.063414> (siehe S. 144).
- [170] Eite Tiesinga u. a. „CODATA recommended values of the fundamental physical constants: 2018“. In: *Rev. Mod. Phys.* 93.2 (2021), S. 025010. ISSN: 0034-6861. DOI: [10.1103/RevModPhys.93.025010](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.93.025010). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.93.025010> (siehe S. 165).
- [171] James W. Cooley und John W. Tukey. „An Algorithm for the Machine Calculation of Complex Fourier Series“. In: *Math. Comput.* 19.90 (1965), S. 297. ISSN: 00255718. DOI: [10.2307/2003354](https://doi.org/10.2307/2003354). URL: <https://www.jstor.org/stable/2003354?origin=crossref> (siehe S. 167).
- [172] *FFT Discrete Fourier transform*. URL: <https://de.mathworks.com/help/matlab/ref/fft.html> (siehe S. 167).

## PUBLIKATIONEN

---

Wissenschaftliche Publikationen mit Erstautorschaft in chronologisch absteigender Reihenfolge:

**Nonadiabatic Strong Field Ionization of Atomic Hydrogen** D. Trabert, N. Anders, S. Brennecke, M.S. Schöffler, T. Jahnke, L.Ph.H. Schmidt, M. Kunitski, M. Lein, R. Dörner, S. Eckart. *Phys. Rev. Lett.* 127, 273201 (2021) [6]

**Angular dependence of the Wigner time delay upon tunnel ionization of H<sub>2</sub>** D. Trabert, S. Brennecke, K. Fehre, N. Anders, A. Geyer, S. Grundmann, M. S. Schöffler, L. Ph. H. Schmidt, T. Jahnke, R. Dörner, M. Kunitski, S. Eckart. *Nat. Comm.* 12, 1697 (2021) [7]

**Spin and Angular Momentum in Strong-Field Ionization** D. Trabert, A. Hartung, S. Eckart, F. Trinter, A. Kalinin, M. Schöffler, L.Ph.H. Schmidt, T. Jahnke, M. Kunitski, R. Dörner. *Phys. Rev. Lett.* 120, 043202 (2018) [34]

Wissenschaftliche Publikationen mit Autorschaft in chronologisch absteigender Reihenfolge:

**Resonance-enhanced x-ray multiple ionization of a polyatomic molecule** X. Li, A. Rudenko, T. Mazza, A. Rörig, N. Anders, Th. M. Baumann, S. Eckart, B. Erk, A. De Fanis, K. Fehre, R. Dörner, L. Foucar, S. Grundmann, P. Grychtol, A. Hartung, M. Hofmann, M. Ilchen, Ch. Janke, G. Kastirke, M. Kircher, K. Kubicek, M. Kunitski, S. Meister, N. Melzer, J. Montano, V. Music, G. Nalin, Y. Ovcharenko, Ch. Passow, A. Pier, N. Rennhack, J. Rist, D. E. Rivas, I. Schlichting, L. Ph. H. Schmidt, Ph. Schmidt, M. S. Schöffler, J. Siebert, N. Strenger, D. Trabert, F. Trinter, I. Vela-Perez, R. Wagner, P. Walter, M. Weller, P. Ziolkowski, A. Czasch, M. Meyer, T. Jahnke, D. Rolles, R. Boll. *Phys. Rev. A* 105, 053102 (2022)

**Photoelectron energy peaks shift against the radiation pressure in strong-field ionization** K. Lin, S. Eckart, A. Hartung, D. Trabert, K. Fehre, J. Rist, L. Ph. H. Schmidt, M. S. Schöffler, T. Jahnke, M. Kunitski, R. Dörner. *Sci. Adv.* 8, 12 (2022)

**Magnetic-Field Effect as a Tool to Investigate Electron Correlation in Strong-Field Ionization** K. Lin, X. Chen, S. Eckart, H. Jiang, A. Hartung, D. Trabert, K. Fehre, J. Rist, L. Ph. H. Schmidt, M. S. Schöffler, T. Jahnke, M. Kunitski, F. He, R. Dörner. *Phys. Rev. Lett.* 128, 113201 (2022)

**X-ray multiphoton-induced Coulomb explosion images complex single molecules** R. Boll, J. M. Schäfer, B. Richard, K. Fehre, G. Kastirke, Z. Jurek, M. S. Schöffler, M. M. Abdullah, N. Anders, T. M. Baumann, S. Eckart, B. Erk, A. De Fanis, R. Dörner, S. Grundmann, P. Grychtol, A. Hartung, M. Hofmann, M. Ilchen, L. Inhester, C. Janke, R. Jin, M. Kircher, K. Kubicek, M. Kunitski, X. Li, T. Mazza, S. Meister, N. Melzer, J. Montano, V. Music, G. Nalin, Y. Ovcharenko, C. Passow, A. Pier, N. Rennhack, J. Rist, D. E. Rivas, D. Rolles, I. Schlichting, L. Ph. H. Schmidt, P. Schmidt, J. Siebert, N. Strenger, D. Trabert, F. Trinter, I. Vela-Perez, R. Wagner, P. Walter, M. Weller, P. Ziolkowski, S.-K. Son, A. Rudenko, M. Meyer, R. Santra, T. Jahnke. *Nat. Phys.* 18, 423–428 (2022)

**Magnetic-Field Effect in High-Order Above-Threshold Ionization** K. Lin, S. Brennecke, H. Ni, X. Chen, A. Hartung, D. Trabert, K. Fehre, J. Rist, X. M. Tong, J. Burgdörfer, L. Ph. H. Schmidt, M. S. Schöffler, T. Jahnke, M. Kunitski, F. He, M. Lein, S. Eckart, R. Dörner. *Phys. Rev. Lett.* 128, 023201 (2022)

- Coulomb explosion imaging of small polyatomic molecules with ultrashort x-ray pulses** X. Li, A. Rudenko, M. S. Schöffler, N. Anders, Th. M. Baumann, S. Eckart, B. Erk, A. De Fanis, K. Fehre, R. Dörner, L. Foucar, S. Grundmann, P. Grychtol, A. Hartung, M. Hofmann, M. Ilchen, Ch. Janke, G. Kastirke, M. Kircher, K. Kubicek, M. Kunitski, T. Mazza, S. Meister, N. Melzer, J. Montano, V. Music, G. Nalin, Y. Ovcharenko, Ch. Passow, A. Pier, N. Rennhack, J. Rist, D. E. Rivas, I. Schlichting, L. Ph. H. Schmidt, Ph. Schmidt, J. Siebert, N. Strenger, D. Trabert, F. Trinter, I. Vela-Perez, R. Wagner, P. Walter, M. Weller, P. Ziolkowski, A. Czasch, D. Rolles, M. Meyer, T. Jahnke, R. Boll. *Phys. Rev. Res.* 4, 013029 (2022)
- Inner-Shell-Ionization-Induced Femtosecond Structural Dynamics of Water Molecules Imaged at an X-ray Free-Electron Laser** T. Jahnke, R. Guillemin, L. Inhesster, S.-K. Son, G. Kastirke, M. Ilchen, J. Rist, D. Trabert, N. Melzer, N. Anders, T. Mazza, R. Boll, A. De Fanis, V. Music, Th. Weber, M. Weller, S. Eckart, K. Fehre, S. Grundmann, A. Hartung, M. Hofmann, C. Janke, M. Kircher, G. Nalin, A. Pier, J. Siebert, N. Strenger, I. Vela-Perez, T. M. Baumann, P. Grychtol, J. Montano, Y. Ovcharenko, N. Rennhack, D. E. Rivas, R. Wagner, P. Ziolkowski, P. Schmidt, T. Marchenko, O. Travnikova, L. Journal, I. Ismail, E. Kukuk, J. Niskanen, F. Trinter, C. Voizzi, M. Devetta, S. Stagira, M. Gisselbrecht, A. L. Jäger, X. Li, Y. Malakar, M. Martins, R. Feifel, L. Ph. H. Schmidt, A. Czasch, G. Sansone, D. Rolles, A. Rudenko, R. Moshhammer, R. Dörner, M. Meyer, T. Pfeifer, M. S. Schöffler, R. Santra, M. Simon, and M. N. Piancastelli. *Phys. Rev. X* 11, 041044 (2021)
- Measuring the photoelectron emission delay in the molecular frame** J. Rist, K. Klyseck, N. M. Novikovskiy, M. Kircher, I. Vela-Perez, D. Trabert, S. Grundmann, D. Tsitsonis, J. Siebert, A. Geyer, N. Melzer, Ch. Schwarz, N. Anders, L. Kaiser, K. Fehre, A. Hartung, S. Eckart, L. Ph. H. Schmidt, M. S. Schöffler, V. T. Davis, J. B. Williams, F. Trinter, R. Dörner, Ph. V. Demekhin, T. Jahnke. *Nat. Commun.* 12, 6657 (2021)
- Photoelectron circular dichroism of O 1s-photoelectrons of uniaxially oriented trifluoromethyloxirane: energy dependence and sensitivity to molecular configuration** G. Nalin, K. Fehre, F. Trinter, N. M. Novikovskiy, N. Anders, D. Trabert, S. Grundmann, M. Kircher, A. Khan, R. Tomar, M. Hofmann, M. Waitz, I. Vela-Perez, G. Kastirke, J. Siebert, D. Tsitsonis, H. Fukuzawa, K. Ueda, J. B. Williams, D. Kargin, M. Maurer, C. Küstner-Wetekam, L. Marder, J. Viehmann, A. Knie, T. Jahnke, M. Ilchen, R. Dörner, R. Pietschnig, P. V. Demekhin, M. S. Schöffler. *Phys. Chem. Chem. Phys.* 23, 17248-17258 (2021)
- Fourfold Differential Photoelectron Circular Dichroism** K. Fehre, N. M. Novikovskiy, S. Grundmann, G. Kastirke, S. Eckart, F. Trinter, J. Rist, A. Hartung, D. Trabert, C. Janke, G. Nalin, M. Pitzer, S. Zeller, F. Wiegandt, M. Weller, M. Kircher, M. Hofmann, L. Ph. H. Schmidt, A. Knie, A. Hans, L. Ben Ltaief, A. Ehresmann, R. Berger, H. Fukuzawa, K. Ueda, H. Schmidt-Böcking, J. B. Williams, T. Jahnke, R. Dörner, M. S. Schöffler, Ph. V. Demekhin. *Phys. Rev. Lett.* 127, 103201 (2021)
- Electric Nondipole Effect in Strong-Field Ionization** A. Hartung, S. Brennecke, K. Lin, D. Trabert, K. Fehre, J. Rist, M. S. Schöffler, T. Jahnke, L. Ph. H. Schmidt, M. Kunitski, M. Lein, R. Dörner, S. Eckart. *Phys. Rev. Lett.* 126, 053202 (2021)
- Strong Differential Photoion Circular Dichroism in Strong-Field Ionization of Chiral Molecules** K. Fehre, S. Eckart, M. Kunitski, C. Janke, D. Trabert, M. Hofmann, J. Rist, M. Weller, A. Hartung, L. Ph. H. Schmidt, T. Jahnke, H. Braun, T. Baumert, J. Stohner, Ph. V. Demekhin, M. S. Schöffler, R. Dörner. *Phys. Rev. Lett.* 126, 083201 (2021)
- Sideband modulation by subcycle interference** S. Eckart, D. Trabert, K. Fehre, A. Geyer, J. Rist, K. Lin, F. Trinter, L. Ph. H. Schmidt, M. S. Schöffler, T. Jahnke, M. Kunitski, R. Dörner. *Phys. Rev. A* 102, 043115 (2020)

- Double Core-Hole Generation in O<sub>2</sub> Molecules Using an X-Ray Free-Electron Laser: Molecular-Frame Photoelectron Angular Distributions** G. Kastirke, M. S. Schöffler, M. Weller, J. Rist, R. Boll, N. Anders, Th. M. Baumann, S. Eckart, B. Erk, A. De Fanis, K. Fehre, A. Gatton, S. Grundmann, P. Grychtol, A. Hartung, M. Hofmann, M. Ilchen, Ch. Janke, M. Kircher, M. Kunitski, X. Li, T. Mazza, N. Melzer, J. Montano, V. Music, G. Nalin, Y. Ovcharenko, A. Pier, N. Rennhack, D. E. Rivas, R. Dörner, D. Rolles, A. Rudenko, Ph. Schmidt, J. Siebert, N. Strenger, D. Trabert, I. Vela-Perez, R. Wagner, Th. Weber, J. B. Williams, P. Ziolkowski, L. Ph. H. Schmidt, A. Czasch, K. Ueda, F. Trinter, M. Meyer, Ph. V. Demekhin, and T. Jahnke. *Phys. Rev. Lett.* 125, 163201 (2020)
- Zeptosecond Birth Time Delay in Molecular Photoionization** S. Grundmann, D. Trabert, K. Fehre, N. Strenger, A. Pier, L. Kaiser, M. Kircher, M. Weller, S. Eckart, L. Ph. H. Schmidt, F. Trinter, T. Jahnke, M. S. Schöffler, R. Dörner. *Science* 370, 6514 (2020)
- Holographic detection of parity in atomic and molecular orbitals** H. Kang, A. S. Maxwell, D. Trabert, X. Lai, S. Eckart, M. Kunitski, M. Schöffler, T. Jahnke, X. Bian, R. Dörner, C. Figueira de Morisson Faria. *Phys. Rev. A* 102, 013109 (2020)
- Revealing the two-electron cusp in the ground states of He and H<sub>2</sub> via quasifree double photoionization** S. Grundmann, V. Serov, F. Trinter, K. Fehre, N. Strenger, A. Pier, M. Kircher, D. Trabert, M. Weller, J. Rist, L. Kaiser, A. Bray, L. Schmidt, J. Williams, T. Jahnke, R. Dörner, M. Schöffler, A. Kheifets. *Phys. Rev. Res.* 2, 033080 (2020)
- Photoelectron Diffraction Imaging of a Molecular Breakup Using an X-ray Free-Electron Laser** G. Kastirke, M. S. Schöffler, M. Weller, J. Rist, R. Boll, N. Anders, Th. M. Baumann, S. Eckart, B. Erk, A. De Fanis, K. Fehre, A. Gatton, S. Grundmann, P. Grychtol, A. Hartung, M. Hofmann, M. Ilchen, Ch. Janke, M. Kircher, M. Kunitski, X. Li, T. Mazza, N. Melzer, J. Montano, V. Music, G. Nalin, Y. Ovcharenko, A. Pier, N. Rennhack, D. E. Rivas, R. Dörner, D. Rolles, A. Rudenko, Ph. Schmidt, J. Siebert, N. Strenger, D. Trabert, I. Vela-Perez, R. Wagner, Th. Weber, J. B. Williams, P. Ziolkowski, L. Ph. H. Schmidt, A. Czasch, F. Trinter, M. Meyer, K. Ueda, Ph. V. Demekhin, and T. Jahnke. *Phys. Rev. X* 10, 021052 (2020)
- Observation of Photoion Backward Emission in Photoionization of He and N<sub>2</sub>** S. Grundmann, M. Kircher, I. Vela-Perez, G. Nalin, D. Trabert, N. Anders, N. Melzer, J. Rist, A. Pier, N. Strenger, J. Siebert, P. V. Demekhin, L. Ph. H. Schmidt, F. Trinter, M. S. Schöffler, T. Jahnke, R. Dörner. *Phys. Rev. Lett.* 124, 233201 (2020)
- Orientation-dependent dissociative ionization of H<sub>2</sub> in strong elliptic laser fields: Modification of the release time through molecular orientation** A. Khan, D. Trabert, S. Eckart, M. Kunitski, T. Jahnke, R. Dörner. *Phys. Rev. A* 101, 023409 (2020)
- Angular streaking in strong field ionization of chiral molecules** K. Fehre, S. Eckart, M. Kunitski, C. Janke, D. Trabert, J. Rist, M. Weller, A. Hartung, M. Pitzer, L. Ph. H. Schmidt, T. Jahnke, R. Dörner, and M. S. Schöffler. *Phys. Rev. Res.* 1, 033045 (2019)
- Magnetic fields alter strong-field ionization** A. Hartung, S. Eckart, S. Brennecke, J. Rist, D. Trabert, K. Fehre, M. Richter, H. Sann, S. Zeller, K. Henrichs, G. Kastirke, J. Hoehl, A. Kalinin, M. S. Schöffler, T. Jahnke, L. Ph. H. Schmidt, M. Lein, M. Kunitski, R. Dörner. *Nat. Phys.* 15, 1222–1226 (2019)
- Link between Photoelectron Circular Dichroism and Fragmentation Channel in Strong Field Ionization** K. Fehre, S. Eckart, M. Kunitski, C. Janke, D. Trabert, J. Rist, M. Weller, A. Hartung, L. Ph. H. Schmidt, T. Jahnke, R. Dörner, M. Schöffler. *J. Phys. Chem. A* 123, 30, 6491–6495 (2019)
- Enantioselective fragmentation of an achiral molecule in a strong laser field** K. Fehre, S. Eckart, M. Kunitski, M. Pitzer, S. Zeller, C. Janke, D. Trabert, J. Rist,

- M. Weller, A. Hartung, L. Ph. H. Schmidt, T. Jahnke, R. Berger, R. Dörner, M. S. Schöffler. *Sci. Adv.* 5:eaau7923 (2019)
- Breakdown of the Spectator Concept in Low-Electron-Energy Resonant Decay Processes** A. Mhamdi, J. Rist, D. Aslitürk, M. Weller, N. Melzer, D. Trabert, M. Kircher, I. Vela-Pérez, J. Siebert, S. Eckart, S. Grundmann, G. Kastirke, M. Waitz, A. Khan, M. S. Schöffler, F. Trinter, R. Dörner, T. Jahnke, Ph. V. Demekhin. *Phys. Rev. Lett.* 121, 243002 (2018)
- Multiphoton double ionization of helium at 394 nm: A fully differential experiment** K. Henrichs, S. Eckart, A. Hartung, D. Trabert, K. Fehre, J. Rist, H. Sann, M. Pitzer, M. Richter, H. Kang, M. S. Schöffler, M. Kunitski, T. Jahnke, R. Dörner. *Phys. Rev. A* 98, 043405 (2018)
- Direct Experimental Access to the Nonadiabatic Initial Momentum Offset upon Tunnel Ionization** S. Eckart, K. Fehre, N. Eicke, A. Hartung, J. Rist, D. Trabert, N. Strenger, A. Pier, L. Ph. H. Schmidt, T. Jahnke, M. S. Schöffler, M. Lein, M. Kunitski, R. Dörner. *Phys. Rev. Lett.* 121, 163202 (2018)
- State-selective dissociation dynamics of an oxygen molecular ion studied with single-harmonic pump and infrared-probe pulses** Y. Malakar, F. Wilhelm, D. Trabert, Kanaka Raju P., X. Li, W. L. Pearson, W. Cao, B. Kaderiya, I. Ben-Itzhak, and A. Rudenko. *Phys. Rev. A* 98, 013418 (2018)
- Subcycle interference upon tunnel ionization by counter-rotating two-color fields** S. Eckart, M. Kunitski, I. Ivanov, M. Richter, K. Fehre, A. Hartung, J. Rist, K. Henrichs, D. Trabert, N. Schlott, L. Ph. H. Schmidt, T. Jahnke, M. S. Schöffler, A. Kheifets, R. Dörner. *Phys. Rev. A* 97, 041402(R) (2018)
- Experimental evidence for selection rules in multiphoton double ionization of helium and neon** K. Henrichs, S. Eckart, A. Hartung, D. Trabert, J. Rist, H. Sann, M. Pitzer, M. Richter, H. Kang, M. S. Schöffler, M. Kunitski, T. Jahnke, R. Dörner. *Phys. Rev. A* 97, 031405(R) (2018)
- Observation of Enhanced Chiral Asymmetries in the Inner-Shell Photoionization of Uniaxially Oriented Methyloxirane Enantiomers** M. Tia, M. Pitzer, G. Kastirke, J. Gatzke, H.-K. Kim, F. Trinter, J. Rist, A. Hartung, D. Trabert, J. Siebert, K. Henrichs, J. Becht, S. Zeller, H. Gassert, F. Wiegandt, R. Wallauer, A. Kuhlins, C. Schober, T. Bauer, N. Wechselberger, P. Burzynski, J. Neff, M. Weller, D. Metz, M. Kircher, M. Waitz, J. B. Williams, L. Ph. H. Schmidt, A. D. Müller, A. Knie, A. Hans, L. B. Ltaief, A. Ehresmann, R. Berger, H. Fukuzawa, K. Ueda, H. Schmidt-Böcking, R. Dörner, T. Jahnke, P. V. Demekhin, M. Schöffler. *Phys. Rev. A* 97, 031405(R) (2017)

## BETREUTE ABSCHLUSSARBEITEN

---

Durch den Autor betreute Abschlussarbeiten in chronologisch absteigender Reihenfolge:

**Ionisation von atomarem Wasserstoff in starken Laserfeldern** Nils Anders. Masterarbeit (2021) [[118](#)]

**Suche nach dem Einfluss des Strahlungsdrucks bei Doppelionisation in starken Laserfeldern** Jonathan Stindl. Bachelorarbeit (2019)

**Multiphoton-induzierte Ionisation und Dissoziation von Tetraflourmethan im 395 nm Laserfeld** Nils Anders. Bachelorarbeit (2019) [[136](#)]

## BEITRÄGE ZU KONFERENZEN

---

**08.2021:** ViCPEAC, Poster ('Angular dependence of the Wigner time delay upon tunnel ionization of H<sub>2</sub>')

**02.2021:** QUTIF International Conference, Vortrag ('Angular dependence of the Wigner time delay upon tunnel ionization of H<sub>2</sub>')

**11./12.2020:** QUTIF Young Researcher Online Meeting, Vortrag ('Angular dependence of the Wigner time delay upon tunnel ionization of H<sub>2</sub>')

**07.2019:** iCPEAC, Deauville, Poster ('Coulomb effects in strong-field ionization of the neon dimer')

**11.2018:** International Symposium on Light Driven Dynamics, Shanghai, Poster ('Spin and Angular Momentum in Strong-Field Ionization')

**09.2017:** QUTIF International Conference, Bad Honnef, Poster ('Spin and Angular Momentum in Strong-Field Ionization')

**09.2016:** ECAMP 12, Frankfurt am Main, studentische Hilfskraft

## FORSCHUNGSaufENTHALTE

---

**02.2020:** BESSY II, Berlin

**06.2019:** BESSY II, Berlin

**03.2019:** Petra III, DESY, Hamburg

**03.2019:** SQS, European XFEL, Hamburg

**02.2019:** BESSY II, Berlin

**09.2018:** Synchrotron SOLEIL, Paris

**05.2018:** BESSY II, Berlin

**04.2018:** Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley

**02.2018:** BESSY II, Berlin

**12.2016:** Petra III, DESY, Hamburg

**10.2016:** Synchrotron SOLEIL, Paris

**06.2016:** BESSY II, Berlin

**04.2016:** Synchrotron SOLEIL, Paris

**10.2015:** Synchrotron SOLEIL, Paris

**04.2015:** Synchrotron SOLEIL, Paris

**07.-09.2014:** J.R. Macdonald Laboratory Atomic, Molecular Optical Physics, Kansas State University, Manhattan