

# Relativistische Rekollisionen in starken Laserfeldern

Michael Klaiber



---

FAKULTÄT FÜR PHYSIK UND ASTRONOMIE  
RUPRECHT-KARLS-UNIVERSITÄT HEIDELBERG

---



INAUGURAL-DISSERTATION  
zur Erlangung der Doktorwürde  
der  
Naturwissenschaftlich-Mathematischen  
Gesamtfakultät  
der Ruprecht-Karls-Universität  
Heidelberg

vorgelegt von  
Diplom-Physiker Michael Klaiber  
geboren in Villingen, Deutschland  
Tag der Disputation: 07.11.2007



# Relativistische Rekollisionen in starken Laserfeldern

Gutachter: Prof. Dr. Christoph H. Keitel  
PD Dr. Robert Moshhammer



## Zusammenfassung

Der relativistische Ionisations-Rekollisionsprozess bei Atomen in starken Laserfeldern wird theoretisch untersucht. Zur analytischen Behandlung des Problems wird eine eichinvariante Version der Strong-Field-Approximation entwickelt und sowohl auf die Above-Threshold-Ionisation (ATI) als auch auf die Erzeugung höherer Harmonischer (HHG) angewendet. Voll-relativistische Berechnungen ihrer Energiespektren zeigen, dass die Rekollision des ionisierten Elektrons mit dem atomaren Kern in konventionellen Laserfeldern im Vergleich zur nicht-relativistischen Beschreibung stark unterdrückt ist. Durch die Modifikation des die Prozesse treibenden Laserfeldes über die zusätzliche Verwendung von Attosekunden-Laserpulszügen in drei unterschiedlichen Konfigurationen kann dieses Problem umgangen und die Rekollision des ionisierten Elektrons im relativistischen Parameterbereich erreicht werden. Über den HHG-Prozess werden so kohärente Strahlung mit Energien bis hin zu 10 MeV und Zeptosekunden- $\gamma$ -Laserpulse zugänglich.

## Abstract

The relativistic ionization-recollision process is investigated theoretically. In order to treat the problem analytically a gauge-invariant version of the strong-field approximation is developed and employed to describe above-threshold ionization (ATI) as well as high-harmonic generation (HHG). Relativistic calculations of the corresponding energy spectra show a strong suppression of the recollision of the ionized electron with the atomic core in conventional laser fields compared to the nonrelativistic approach. Three different proposals based on a modification of the driving laser via the use of attosecond laser pulse trains are presented that circumvent this problem and allow the recollision of the ionized electron in the relativistic regime. In this way coherent radiation with energies up to 10 MeV and zeptosecond  $\gamma$ -ray pulses via the HHG-process become feasible.



Im Rahmen dieser Arbeit entstandene Veröffentlichungen:

- M. Klaiber, K. Z. Hatsagortsyan, and C. H. Keitel, *Above-threshold ionization beyond the dipole approximation*, Phys. Rev. A **71**, 033408 (2005).
- M. Klaiber, K. Z. Hatsagortsyan, and C. H. Keitel, *Gauge-invariant relativistic strong-field approximation*, Phys. Rev. A **73**, 053411 (2006).
- M. Klaiber, K. Z. Hatsagortsyan, and C. H. Keitel, *Relativistic ionization rescattering with tailored laser pulses*, Phys. Rev. A **74**, 051803(R) (2006).
- M. Klaiber, K. Z. Hatsagortsyan, and C. H. Keitel, *Fully relativistic laser-induced ionization and recollision processes*, Phys. Rev. A **75**, 063413 (2007).
- M. Klaiber, K. Z. Hatsagortsyan, and C. H. Keitel, *Zeptosecond  $\gamma$ -ray pulses*, eingereicht (2007), arXiv:0707.2900.
- M. Klaiber, K. Z. Hatsagortsyan, C. Müller, and C. H. Keitel, *Coherent hard x-rays from attosecond pulse train-assisted harmonic generation*, eingereicht (2007), arXiv:0708.3360.



# Inhaltsverzeichnis

<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>1 Grundlegendes</b>	<b>7</b>
1.1 Der nicht-relativistische Parameterbereich . . . . .	8
1.2 Störungstheorie bezüglich des Laserfeldes . . . . .	9
1.2.1 Einphotonenionisation . . . . .	10
1.2.2 Multiphotonenionisation . . . . .	10
1.3 Die Strong-Field-Approximation (SFA) . . . . .	10
1.3.1 Tunnelionisation . . . . .	11
1.3.2 Formalismus der SFA . . . . .	11
1.4 Die Above-Threshold-Ionisation (ATI) . . . . .	13
1.5 Die Erzeugung höherer Harmonischer (HHG) . . . . .	15
1.6 Attosekundenphysik . . . . .	17
<b>2 Die SFA im schwach-relativistischen Parameterbereich</b>	<b>19</b>
2.1 Grobe Abschätzungen zur Dynamik . . . . .	19
2.2 Beschreibung der Dynamik über die Schrödinger-Gleichung inklusive Korrekturtermen . . . . .	21
2.3 ATI im schwach-relativistischen Parameterbereich . . . . .	23
2.4 HHG im schwach-relativistischen Parameterbereich . . . . .	25
2.5 Zusammenfassung . . . . .	27
<b>3 Die eichinvariante relativistische SFA</b>	<b>29</b>
3.1 Motivation . . . . .	30
3.2 Der nicht-relativistische Parameterbereich . . . . .	31
3.3 Der Klein-Gordon-Parameterbereich . . . . .	35
3.4 Der Dirac-Parameterbereich . . . . .	41
3.5 Zusammenfassung . . . . .	43
<b>4 Above-Threshold-Ionisation und Erzeugung höherer Harmonischer im relativistischen Parameterbereich</b>	<b>45</b>
4.1 Above-Threshold-Ionisation . . . . .	45

## Inhaltsverzeichnis

4.1.1	ATI in der SFA basierend auf der Klein-Gordon-Gleichung . . . . .	45
4.1.2	Im adiabatischen Parameterbereich . . . . .	50
4.1.3	Niederenergiespektren und Winkelverteilungen bei ATI . . . . .	51
4.1.4	Hochenergiespektren und Winkelverteilungen bei ATI . . . . .	55
4.1.5	Das Plateau . . . . .	59
4.1.6	Die Cutoff-Energie bei ATI . . . . .	61
4.2	Erzeugung höherer Harmonischer . . . . .	63
4.2.1	HHG in der SFA basierend auf der Klein-Gordon-Gleichung . . . . .	63
4.2.2	HHG-Spektren im relativistischen Parameterbereich . . . . .	65
4.2.3	Die Cutoff-Energie bei HHG . . . . .	65
4.3	Zusammenfassung . . . . .	67
<b>5</b>	<b>Bestehende Vorschläge zur Unterdrückung des relativistischen Drifts</b>	<b>69</b>
5.1	Modifikation des atomaren Systems . . . . .	69
5.1.1	Verwendung antisymmetrischer Orbitale . . . . .	69
5.1.2	Verwendung relativistisch beschleunigter Ionen . . . . .	70
5.1.3	Verwendung von Positronium . . . . .	71
5.2	Modifikation des Laserfeldes . . . . .	72
5.2.1	Gegenläufige Laserfelder . . . . .	72
5.2.2	Gekreuzte Laserpulse . . . . .	73
5.2.3	Miteinbeziehung magnetischer Pulse . . . . .	74
5.3	Zusammenfassung . . . . .	75
<b>6</b>	<b>Relativistische Ionisation und Rekollision in maßgeschneiderten Laserpulsen</b>	<b>77</b>
6.1	Prozedur zur Gewinnung des optimierten Laserpulses . . . . .	78
6.2	ATI in den maßgeschneiderten Pulsen . . . . .	81
6.3	HHG in den maßgeschneiderten Pulsen . . . . .	84
6.4	Einfluss der Form des maßgeschneiderten Pulses auf die Effizienz des Rekollisionsprozesses . . . . .	86
6.5	Klassische Dynamik des Elektrons in den maßgeschneiderten Pulsen . . . . .	91
6.6	Stabilität des HHG-Prozesses unter zufälligen Variationen der optimierten Pulsform . . . . .	93
6.7	Herstellung der maßgeschneiderten Pulse . . . . .	93
6.8	Zusammenfassung . . . . .	96
<b>7</b>	<b>Relativistische HHG in gegenläufigen Attosekunden-Pulszügen</b>	<b>99</b>
7.1	Berechnung der HHG-Emissionsrate . . . . .	99
7.2	Spektren . . . . .	103
7.3	Erzeugung kurzer Pulse . . . . .	107

7.4	Zusammenfassung . . . . .	108
<b>8</b>	<b>HHG in einem starken Laser und einem Attosekunden-Pulszug</b>	<b>111</b>
8.1	Theorie . . . . .	112
8.2	Spektren . . . . .	116
8.3	Zusammenfassung . . . . .	119
	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>121</b>
<b>A</b>	<b>Atomare Einheiten</b>	<b>125</b>
<b>B</b>	<b>Die Sattelpunktmethode</b>	<b>127</b>



# Einleitung

Mit der Entwicklung des Lasers vor nun über 40 Jahren wurde es möglich die Wechselwirkung von Materie mit elektromagnetischer Strahlung auf elementarem Niveau zu untersuchen. Sowohl auf Grund seiner hohen Kohärenz als auch durch die Erzeugung von immer höheren Intensitäten und kürzeren Pulsdauern wurden damit zum einen bekannte physikalische Prozesse experimentell zugänglich und zum anderen neue Phänomene entdeckt. Speziell die Ionisation von Atomen und Molekülen und ihre Folgeprozesse standen und stehen im Mittelpunkt des Interesses. Im Anfangsstadium waren die erreichbaren Laserintensitäten eher gering und die Laserpulse erstreckten sich über sehr viele Zyklen. Der Einfluss des Lasers auf das atomare System konnte deshalb störungstheoretisch behandelt werden. So war der Übergang eines Elektrons von einem gebundenen Zustand in einen Kontinuumszustand im Photonenbild zunächst nur über eine Einphotonenionisation möglich, wobei die Photonenenergie größer als die Ionisationsenergie sein muß. Später wurde durch Anwendung höherer Laserintensitäten auch die Multiphotonenionisation zugänglich, bei der die Anzahl der absorbierten Photonen gerade so groß ist, dass deren Gesamtenergie die Ionisationsenergie übersteigt. Beide Prozesse werden durch die führende Ordnung bezüglich der Störung des Laserfeldes auf das atomare System bestimmt.

Für Intensitäten ab  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> bei suboptischen Frequenzen können höhere Ordnungen in der Störungstheorie nicht mehr vernachlässigt werden. Physikalisch gesprochen können nun also auch mehr als die minimale Anzahl an Photonen, die zur Überwindung der Ionisationsschwelle nötig sind, absorbiert werden. Dieser unter dem Namen *Above-Threshold-Ionisation* (ATI) bekannte Prozess wurde 1979 experimentell entdeckt [1]. Bei einer weiteren Steigerung der Intensitäten bricht die störungstheoretische Behandlung des Ionisationsprozesses zusammen und man betritt den Strong-Field-Parameterbereich, dessen physikalische Beschreibung sich wesentlich unterscheidet. Das Laserfeld ist nun so stark, dass es das atomare Potenzial verformt und es Teilen des Wellenpakets des gebundenen Elektrons möglich ist über eine Tunnelionisation ins Kontinuum zu entweichen. Die Grenze zwischen dem Bereich, in dem die störungstheoretische Beschreibung des Ionisationsprozesses adäquat ist, und dem Strong-Field-Bereich ist durch den Keldysh-Parameter gegeben [2] (wie auch des Weiteren werden atomare Einheiten benutzt, siehe Appendix A):

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}},$$

## EINLEITUNG

wobei  $I_p$  die Ionisationsenergie und  $U_p = \langle A^2/2c^2 \rangle$  die über einen Zyklus gemittelte Oszillationsenergie des Elektrons im Laser, auch ponderomotive Energie genannt, darstellt.  $A$  ist das Vektorpotenzial des Lasers und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit. Für  $\gamma > 1$  findet die Multiphotonenionisation statt, während für  $\gamma < 1$  das Photonenbild nicht mehr angebracht ist und die Tunnelionisation dominiert.  $\gamma$  entspricht dem Verhältnis zwischen der Zeit, die das Elektron zum Tunneln benötigt, und der Laserperiode. Ist nun also die Laserperiode wesentlich größer als die Tunnelzeit, so ist das Laserfeld während des Ionisationsprozesses quasistationär und das Elektron wird sich nach der Ionisation weiter vom Einflussbereich des atomaren Kerns entfernen. Verlässt es nun den Laserfokus ohne weitere Interaktion mit dem atomaren Rumpf, spricht man von direkten Elektronen bzw. direkter Ionisation. Unter bestimmten Anfangsbedingungen und linearer Polarisation des Lasers kann das Elektron aber auch wieder zum atomaren Rumpf zurückkehren und folgende Prozesse auslösen [3]. Zum einen kann es dort rückgestreut werden, dann den Laserfokus verlassen und zum ATI-Spektrum beitragen [4]. Weiterhin kann das zum atomaren Rumpf zurückkehrende Elektron seine im Kontinuum gewonnene Energie nutzen um weitere gebundene Elektronen freizusetzen. Man spricht dann von *Non-Sequential-Double-Ionisation* [5]. Ebenso ist es möglich, dass das aktive Elektron mit dem atomaren Rumpf rekombiniert und seine Energie als hochenergetische Photonen abgibt. Da die Frequenz der so emittierten Strahlung ein Vielfaches der des eingestrahlten Laserfeldes ist, bezeichnet man diesen Prozess als Erzeugung höherer Harmonischer (*high harmonic generation*: HHG) [6]. Dieser faszinierende Vorgang kann als eine Art Transformator von intensivem niedrigfrequenten zu hochfrequentem Laserlicht angesehen werden und erhält deshalb höchstes Interesse sowohl von experimenteller als auch von theoretischer Seite [7]. Mit State-of-the-Art-Techniken wurden so Photonenenergien von ungefähr 1 keV zugänglich [8]. Durch geschickte Überlagerung der emittierten, hochenergetischen Strahlung wurde es außerdem möglich isolierte Laserpulse sowie mehrere aufeinander folgende, sogenannte Züge extrem kurzer Laserpulse im Attosekundenbereich [9, 10] herzustellen. In Zukunft sollen sie zur Untersuchung und Kontrolle von physikalischen Prozessen, die auf dieser Zeitskala ablaufen, z. B. der Elektronendynamik in Atomen [11] oder der Bewegung von Molekülen [12], benutzt werden.

Die theoretische Beschreibung dieser Strong-Field-Prozesse im nicht-relativistischen Parameterbereich ist über die numerische Lösung der Schrödinger-Gleichung des Problems möglich, aber anspruchsvoll (siehe z. B. Ref. [13]). Auf analytischem Gebiet ist die Anwendung der *Strong-Field-Approximation* (SFA) die am weitesten verbreitete Methode zur Bestimmung der Prozessamplituden. Sie besteht in der Annahme, dass bis zum Zeitpunkt der Ionisation das Laserfeld, danach jedoch das atomare Potenzial als Störung betrachtet wird [2, 14]. Die Beschreibung wird dadurch erleichtert, dass im nicht-relativistischen Parameterbereich ausschließlich das elektrische Feld des Lasers und nicht das Laser magnetfeld die Dynamik der Prozesse bestimmt. Das aktive Elektron wird also nur entlang

der Polarisationsrichtung des Lasers beschleunigt und kann deshalb im Fall eines linear polarisierten Lasersfeldes mit einer nicht zu vernachlässigenden Wahrscheinlichkeit wieder zum atomaren Rumpf zurückkehren und die obengenannten Prozesse initiieren.

Weitere analytische Theorien zur Beschreibung der Strong-Field-Prozesse existieren, wie z. B. die Quanten-Orbit-Theorie, die die SFA mit den Feynman-Pfad-Integralen in Verbindung setzt [15, 16] oder die Imaginär-Zeit-Methode (ITM), die auf der WKB-Näherung basiert [17].

Ab Laserintensitäten von etwa  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> bei suboptischen Frequenzen, die mit heutigen Laserquellen einfach zu erreichen sind, ist die typische Geschwindigkeit des Elektrons im Kontinuum ( $\sim E/\omega$  mit dem elektrischen Feld  $E$  des Lasers und seiner Kreisfrequenz  $\omega$ ) nicht mehr klein gegenüber der Lichtgeschwindigkeit  $c$ , und sowohl das Lasermagnetfeld als auch die relativistische Massenverschiebung beginnen die beschriebenen Prozesse zu verändern. Der relativistische Feldstärkeparameter  $\xi$  drückt dieses Verhältnis der Geschwindigkeiten aus und ist somit ein Maß für den relativistischen Charakter der Prozesse:

$$\xi = \frac{E}{\omega c}$$

Im schwach-relativistischen Parameterbereich ( $\xi \approx 0.1$ ) kann dann die Schrödinger-Gleichung inklusive Korrekturtermen bezüglich des Lasermagnetfeldes als Ausgangspunkt zur Beschreibung der Dynamik z. B. des HHG-Prozesses in der SFA gewählt werden [18]-[20]. Für noch größere Intensitäten wurde die SFA basierend auf der Klein-Gordon-Gleichung entwickelt und so sowohl die direkte Ionisation als auch HHG untersucht [21]-[24]. Um außerdem den Einfluss des Elektronenspins auf die Strong-Field-Ionisationsprozesse quantifizieren zu können, wurde die SFA bezüglich der Dirac-Gleichung benutzt [25, 26]. Numerische Untersuchungen der Strong-Field-Prozesse für große Laserfrequenzen existieren ebenfalls [27].

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die dominierende Veränderung der Prozesse beim Eintritt in den relativistischen Parameterbereich die auf das freigesetzte Elektron wirkende Lorentz-Kraft des Lasermagnetfeldes ist. Sie verursacht einen Drift in Laserpropagationsrichtung (von der Größenordnung  $\sim E^2/(c\omega^3)$  pro Halbzyklus), anschaulich durch den Impulsdruck der Photonen erklärbar, der sowohl die Winkelverteilungen der Ionisationsspektren verändert als auch die Ionisations-Rekollisionsprozessraten dramatisch reduziert (siehe Abb. 0.1). Der HHG-Prozess bei Atomen als Quelle von hochenergetischem Laserlicht und ultrakurzen Laserpulsen von experimentellem Hauptinteresse ist damit im relativistischen Parameterbereich mit konventionellen sinusoidalen Laserfeldern nicht zugänglich.

Um dieses Problem zu umgehen und den relativistischen Ionisations-Rekollisionsprozess doch zu ermöglichen bieten sich zwei Möglichkeiten. Zum einen können die Eigenschaften

## EINLEITUNG

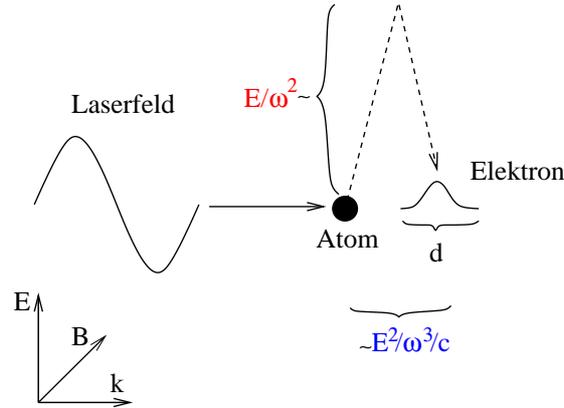


Abbildung 0.1: Bahn des mit verschwindender Geschwindigkeit startenden Elektrons in einem Laserfeld mit elektrischem Feld  $\mathbf{E}$ , Magnetfeld  $\mathbf{B}$  und Wellenvektor  $\mathbf{k}$ . Während die Oszillationsbewegung von der Größenordnung  $E/\omega^2$  ist, beträgt die Driftbewegung pro Halbzzyklus etwa  $E^2/(c\omega^3)$ . Sie kann nun für hinreichend große Feldstärken die Ausdehnung des Wellenpakets  $d \sim 4\sqrt{E}/(\omega\sqrt[4]{2I_p})$  [18, 28] nach einem Halbzzyklus übersteigen, und die Rekollision verhindern.

des atomaren Systems verändert werden [29]-[32] und zum anderen kann das den Prozess treibende Laserfeld modifiziert werden [20],[33]-[36].

Das Ziel dieser Arbeit ist es nun neue Methoden zu entwickeln, die den relativistischen Ionisations-Rekollisionsprozess ermöglichen und so potentielle Quellen für kohärente  $\gamma$ -Strahlung oder ultrakurze Laserpulse darstellen. Im stark-relativistischen Parameterbereich wäre dann sogar die Initiierung von Kernreaktionen durch die Rekollision des zurückkehrenden Elektrons mit dem atomaren Kern denkbar.

Die vorliegende Arbeit ist, wie im Folgenden beschrieben, aufgebaut. In Kapitel 1 werden die Annahmen der für diese theoretische Arbeit fundamentalen Näherung, der Strong-Field-Approximation, in ihrer standardmäßigen Form eingeführt. Als Indikator für den Ionisations-Rekollisionsprozess sollen des Weiteren ATI und HHG vorgestellt werden. Im ersten Schritt auf dem Weg zur voll-relativistischen Beschreibung wird in Kapitel 2 der Ionisations- und Rekollisionsprozess im schwach-relativistischen Bereich über die SFA basierend auf der Schrödinger-Gleichung inklusive relativistischer Korrekturterme untersucht und sowohl ATI-, als auch HHG-Spektren in diesem Parameterbereich berechnet. In Kapitel 3 entwickeln wir eine neue eichinvariante Strong-Field-Approximation, die auch im relativistischen Parameterbereich anwendbar ist und die Frage der richtigen

Eichung in der SFA beantwortet. Sie ist das Fundament für alle weiteren Berechnungen: so z. B. in Kapitel 4 zur voll-relativistischen Beschreibung von ATI und HHG basierend auf der Klein-Gordon-Gleichung in der konventionellen Konfiguration der Wechselwirkung eines atomaren Systems mit einem sinusoidalen Laserfeld. In Kapitel 5 werden die schon bestehenden Vorschläge wie der relativistische Ionisations-Rekollisionsprozess ermöglicht wird, vorgestellt. In den zentralen Kapiteln 6 bis 8 werden drei neue Methoden vorgestellt, die jeweils auf Modifikationen des treibenden Laserfeldes beruhen und in zum Teil noch nicht betrachteten stark-relativistischen Parameterbereichen zum Erfolg führen: In Kapitel 6 unter Zuhilfenahme maßgeschneiderter Laserpulse, in Kapitel 7 durch Anwendung zweier gegenläufiger Attosekunden-Pulse und in Kapitel 8 mittels eines konventionellen IR-Laserfeldes, das von einem Attosekunden-Pulszug (APT) überlagert wird. Im letzten Kapitel wird ein Resümee gezogen und ein Ausblick gegeben.

Abschließend werden nun noch kurz die wichtigsten neuen Erkenntnisse benannt, die aus dieser Arbeit gewonnen werden können. Auf konzeptioneller Ebene ist dies zum einen eine modifizierte Version der SFA, die angewandt auf Strong-Field-Prozesse bei Atomen, eichinvariante Ergebnisse liefert und zum anderen die voll-relativistische Beschreibung von ATI. Auf der anwendungsorientierten Seite werden drei neue Methoden, die den relativistischen Ionisations-Rekollisionsprozess ermöglichen und zum Teil schon heute experimentell umsetzbar sind, vorgeschlagen und quantitativ untersucht. Durch sie werden dann Rekollisionsenergien im Bereich von 50 keV bis zu mehreren MeV mit signifikanten Raten zugänglich so, dass die Erzeugung kohärenter Strahlung mit diesen Energien möglich wird. Außerdem konnte zum ersten Mal die Herstellung ultrakurzer  $\gamma$ -Laserpulse im Zeptosekunden-Bereich theoretisch vorhergesagt werden, die in der  $\gamma$ -Spektroskopie bei Kernen Verwendung finden könnten.



# 1 Grundlegendes

In dieser Arbeit wird die Wechselwirkung von atomaren Systemen mit elektromagnetischen Feldern, genauer einer speziellen Konfiguration von Laserfeldern, untersucht. Die hier betrachteten Laserfelder besitzen Intensitäten von ca.  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> bis  $10^{21}$  W/cm<sup>2</sup>, Pulslängen von einigen 100 as (Attosekunden-Puls) bis zu mehreren ps (kontinuierlicher Laser) und Frequenzen im weichen Röntgen- bis hin zum optischen bzw. suboptischen Bereich. Dieser Parameterbereich ist schon heute oder in naher Zukunft experimentell zugänglich. Wegen der großen Photonenzahlen in den einzelnen Laserpulsen ist eine Quantisierung der korrespondierenden Felder unnötig und die Beschreibung mittels der klassischen Elektrodynamik ist ausreichend. So erfüllt das Potenzial  $A^\mu = (\phi, \mathbf{A})$ , welches das gesamte Laserfeld beschreibt, die klassische Maxwell-Gleichung, die in kovarianter Darstellung gegeben ist durch [37]:

$$\partial^\nu \partial_\nu A^\mu - \partial^\mu \partial_\nu A^\nu = \frac{4\pi}{c} j^\mu, \quad (1.1)$$

wobei  $j^\mu$  die Vierer-Stromdichte, der das Laserfeld erzeugenden Quelle und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit ist. Eine klassische Analyse der Bewegung eines freien Elektrons in einem Laserfeld mit einer Intensität im gegebenen Intensitätsbereich zeigt, dass die Dynamik für einen maximalen Intensitätsparameter ( $10^{21}$  W/cm<sup>2</sup>) relativistischen Charakter annimmt und somit der Ausgangspunkt zur Beschreibung der Wechselwirkung des atomaren Systems mit dem Laserfeld die Dirac-Gleichung in minimaler Kopplung ist [38]:

$$i\partial_t \Psi = \{c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} + \mathbf{A}/c) - \phi + V + \beta c^2\} \Psi, \quad (1.2)$$

wobei  $t$  die Zeit-Koordinate ist,  $\hat{\mathbf{p}}$  der Impuls-Operator,  $\boldsymbol{\alpha}$  und  $\beta$  die entsprechenden Dirac-Matrizen sind und  $\Psi$  den Vierer-Spinor des im Prozess aktiven Elektrons darstellt. Dessen Wechselwirkung mit den restlichen Komponenten des atomaren Systems wurde durch ein effektives Potenzial  $V$  genähert. Diese Annahme entspricht der sogenannten Single-Active-Electron-Approximation, die für den Ionisationsprozess von atomaren Systemen in starken Laserfeldern durch Vergleich von experimentellen mit numerischen Daten gerechtfertigt wurde [39].

## 1.1 Der nicht-relativistische Parameterbereich

Da eine analytische Lösung der Differential-Gleichung (1.2) für das obige Problem nicht möglich ist, müssen weitere Näherungen angestellt werden. Wegen des begrenzten Vorhandenseins von sehr starken Laserintensitäten im Anfangsstadium der Laser-Atom-Wechselwirkungsphysik ist die erste natürliche sowie historisch bedingte Näherung, die Beschränkung der Laserparameter auf den nicht-relativistischen Parameterbereich, der sich für suboptische Frequenzen bis zu Intensitäten von  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> ausdehnt. Die Dirac-Gleichung kann dann mittels einer Foldy-Wouthysen-Transformation bezüglich Termen der Ordnung  $1/c$  entwickelt werden. In nullter Ordnung, was dem nicht-relativistischen Parameterbereich entspricht, ergibt sich dann die bekannte Schrödinger-Gleichung [40]

$$i\partial_t|\Psi\rangle = \{(\hat{\mathbf{p}} + \mathbf{A}/c)^2/2 + V - \phi\}|\Psi\rangle, \quad (1.3)$$

wobei nun die eindimensionale Wellenfunktion  $|\Psi\rangle$  die Dynamik des aktiven Elektrons beschreibt.

Eine wiederum klassische Analyse der Dynamik eines freien Elektrons in einem Laserfeld mit nicht-relativistischen Parametern zeigt weiterhin, dass die typische Ausdehnung der Elektronenbahnen wesentlich geringer ist als die Wellenlänge des Laserfeldes, was nichts anderes bedeutet als dass die räumliche Variation des Laserfeldes während des Ionisationsprozesses vernachlässigt werden kann [15, 41] und die physikalischen Felder, also das elektrische  $\mathbf{E}$  sowie das magnetische Feld  $\mathbf{B}$  des Lasers als ortsunabhängig angenommen werden können. Dies entspricht der sogenannten Dipolnäherung.

Das elektrische und das magnetische Feld des Lasers stehen mit den Potenzialen wie folgt in Beziehung [37]:

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= -\partial_t\mathbf{A}/c - \nabla\phi \\ \mathbf{B} &= \nabla \times \mathbf{A}. \end{aligned} \quad (1.4)$$

Wie in der klassischen Elektrodynamik gezeigt wird, sind nun diese physikalischen Felder invariant unter einer sogenannten Eichtransformation der Potenziale [37]:

$$\mathbf{A}' = \mathbf{A} - \nabla f; \quad \phi' = \phi + \partial_t f. \quad (1.5)$$

Man besitzt also durch die beliebige Funktion  $f$  eine Freiheit über die funktionale Abhängigkeit der Potenziale. In der Dipolnäherung ist dann über  $f = \mathbf{r} \cdot \mathbf{A}$  folgende Darstellung möglich:

$$\mathbf{A}' = 0; \quad \phi' = \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}, \quad (1.6)$$

wobei  $\mathbf{r} = (x, y, z)$  die Ortskoordinaten darstellt. Eingesetzt in Gl. (1.3) ergibt sich dann die Schrödinger-Gleichung in der sogenannten Längeneichung,

$$i\partial_t|\Psi\rangle = \{\hat{\mathbf{p}}^2/2 + V + \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}\}|\Psi\rangle, \quad (1.7)$$

die zur Beschreibung der Wechselwirkung atomarer Systeme mit Laserfeldern im nicht-relativistischen Parameterbereich geeignet ist [42].

Trotz all dieser Näherungen ist unser Problem immer noch nicht analytisch lösbar. Es werden deshalb weitere Näherungen nötig, die im Folgenden, inklusive ihrer Gültigkeitsbereiche und der dazugehörigen physikalischen Modelle vorgestellt werden sollen. Beginnen wollen wir mit einer störungstheoretischen Behandlung der Laser-Atom-Wechselwirkung.

## 1.2 Störungstheorie bezüglich des Laserfeldes

Ausgangspunkt der Störungstheorie bezüglich des Laserfeldes ist eine implizite Darstellung des Zeitentwicklungsoperators der Schrödinger-Gleichung (1.7):

$$U(t, t') = U_a(t, t') - i \int_{t'}^t d\tau U(t, \tau) H_L(\tau) U_a(\tau, t'), \quad (1.8)$$

wobei  $H_L = \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}$  der Wechselwirkungsoperator des aktiven Elektrons mit dem Laserfeld und  $U_a$  der Zeitentwicklungsoperator im atomaren Potenzial ist. Wird nun angenommen, dass das Laserfeld nur eine kleine Störung darstellt, kann Gl. (1.8) über eine Bornsche Reihe bezüglich  $H_L$  entwickelt werden:

$$\begin{aligned} U(t, t') &= U_a(t, t') - i \int_{t'}^t d\tau U_a(t, \tau) H_L(\tau) U_a(\tau, t') \\ &\quad - \int_{t'}^t d\tau \int_{t'}^{\tau} d\tau' U_a(t, \tau) H_L(\tau) U_a(\tau, \tau') H_L(\tau') U_a(\tau', t') + \dots \end{aligned} \quad (1.9)$$

Für die Prozessamplitude eines Übergangs vom gebundenen Ausgangszustand  $|\Phi_a\rangle$  in den Kontinuumszustand  $|\Psi_{\mathbf{p}}^f\rangle$  ergibt sich dann:

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}}^f &= \lim_{t \rightarrow \infty} \langle \Psi_{\mathbf{p}}^f(t) | U(t, t') | \Phi_a(t') \rangle \\ &= \lim_{t \rightarrow \infty} \left( -i \int_{t'}^t d\tau \langle \Psi_{\mathbf{p}}^f(\tau) | H_L(\tau) | \Phi_a(\tau) \rangle \right. \\ &\quad \left. - \int_{t'}^t d\tau \int_{t'}^{\tau} d\tau' \langle \Psi_{\mathbf{p}}^f(\tau) | H_L(\tau) U_a(\tau, \tau') H_L(\tau') | \Phi_a(\tau') \rangle \right) + \dots, \end{aligned} \quad (1.10)$$

wobei  $|\Psi_{\mathbf{p}}^f\rangle$  ein Eigenzustand der Schrödinger-Gleichung ohne Laserfeld mit einer Energie  $\mathbf{p}^2/2$  ist. Hierbei wurde angenommen, dass das Laserfeld für große Zeiten ( $t \rightarrow \infty$ ) verschwindet. Der Term in der zweiten Zeile entspricht der ersten Ordnung, der Term in der dritten Zeile der zweiten Ordnung in der Störungstheorie usw.

### 1.2.1 Einphotonenionisation

Sei nun die Kreisfrequenz des Laserfeldes  $\omega$  größer als das Ionisationspotenzial  $I_p$  des Ausgangszustands:

$$\omega > I_p, \quad (1.11)$$

so kann das ionisierte Elektron über eine Einphotonenionisation freigesetzt werden. Diese kann in erster Ordnung Störungstheorie beschrieben werden:

$$M_{\mathbf{p}}^f = \lim_{t \rightarrow \infty} \left( -i \int_{t'}^t d\tau \langle \Psi_{\mathbf{p}}^f(\tau) | \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(\tau) | \Phi_a(\tau) \rangle \right). \quad (1.12)$$

Die Amplitude hängt also linear von der elektrischen Feldstärke ab. Die Ionisationsrate ist proportional zu  $|M_{\mathbf{p}}^f|^2$  und wächst somit linear mit der Laserintensität.

### 1.2.2 Multiphotonenionisation

Gilt dagegen

$$\omega < I_p, \quad (1.13)$$

kann das Elektron nur über eine Multiphotonenionisation freigesetzt werden, was über höhere Ordnungen der Störungstheorie beschrieben werden kann. Ein  $n$ -Photonenübergang wird somit durch die  $n$ -te-Ordnung der Störungstheorie beschrieben und seine Prozessrate ist proportional zu  $I^n$ , wobei  $I$  die Laserintensität darstellt und  $n\omega > I_p$  gelten muss.

Die Größenordnung des Störoperators  $H_L$  kann über den typischen Radius des gebundenen Elektrons  $a_B = 1/\sqrt{2I_p}$  abgeschätzt werden. Damit die Störungstheorie gerechtfertigt ist, also ein Multiphotonenübergang stattfindet, sollte der Störoperator klein gegenüber der Photonenenergie  $\omega$  sein:

$$H_L/\omega = E a_B/\omega \ll 1. \quad (1.14)$$

Ab einer gewissen Laserintensität ist die Bedingung (1.14) verletzt und die störungstheoretische Beschreibung des Ionisationsprozesses bricht zusammen. Die elektrische Feldstärke des Lasers ist nun so groß, dass sie das atomare Potenzial verformt und das Elektron tunnelionisieren kann. Man betritt dann den Strong-Field-Bereich, der in der Regel über die Strong-Field-Approximation analytisch beschrieben wird.

## 1.3 Die Strong-Field-Approximation (SFA)

Das Prinzip der Strong-Field-Approximation zur Beschreibung des Photoionisationsprozesses von atomaren Systemen in starken Laserfeldern wurde 1964 von Keldysh entwickelt

### 1.3 Die Strong-Field-Approximation (SFA)

und ist die wohl am meisten benutzte Näherung auf diesem Gebiet. Sie beruht auf der Tatsache, dass die Dynamik des aktiven Elektrons bis zum Zeitpunkt der Ionisation vom atomaren Potenzial abhängt, das Laserfeld nur eine Störung darstellt, nach der Ionisation das Elektron in kurzen Zeiten den Einflussbereich des atomaren Rumpfs verlässt und dann das Laserfeld dominiert [2, 14]. Dies lässt sich über eine gemischte störungstheoretische Entwicklung bezüglich dem atomaren Potenzial bzw. dem Laserfeld systematisch darstellen [21]. Die Vorteile der SFA gegenüber anderen Näherungsmethoden für den Ionisationsprozess z.B. der R-Matrix-Floquet-Theorie [43, 44, 45] oder dem Zugang über die quasistationären Quasienergie-Zustände [46] ist ihre Analytizität, ihre relative Einfachheit sowie ihre physikalische Interpretierbarkeit.

#### 1.3.1 Tunnelionisation

Der Prozess startet mit dem Tunneln des Elektrons durch die Potenzialbarriere, die durch das nun starke elektrische Feld des Lasers verformt wird. Die Ionisation findet statt, sobald die Tunnelzeit  $T_t$  wesentlich kleiner als die Laserperiode  $T_L = 2\pi/\omega$  ist. Das Elektron kann sich dann nach der Freisetzung ins Kontinuum weiter vom Einflussbereich des atomaren Rumpfs entfernen. Die weitere Bewegung wird nun vom Laserfeld dominiert. Die Tunnelzeit kann über die typische Geschwindigkeit  $v_a = \sqrt{2I_p}$  und die typische Ausdehnung der Barriere  $d = E/I_p$  abgeschätzt werden:  $T_t = d/v_a$  mit der elektrischen Feldstärke des Lasers  $E$ . Für das Verhältnis von Tunnelzeit zu Laserperiode, also dem Parameter, der den Strong-Field-Bereich markiert, ergibt sich dann der Keldysh-Parameter [2]:

$$\gamma = T_t/T_L = \omega\sqrt{2I_p}/E. \quad (1.15)$$

Man erkennt, dass dieser Parameter äquivalent mit dem in Gl. (1.14) ist. Er stellt also die Grenze zwischen dem Parameterbereich der störungstheoretisch beschrieben wird ( $\gamma \gg 1$ ) und dem Strong-Field-Bereich dar ( $\gamma \ll 1$ ). Für letzteren lässt sich nun der SFA-Formalismus entwickeln.

#### 1.3.2 Formalismus der SFA

Ausgangspunkt ist der Zeitentwicklungsoperator  $U(t, t')$  der Schrödinger-Gleichung (1.7). Ist er gefunden kann die Wellenfunktion des aktiven Elektrons für alle Zeiten angegeben werden und somit alle physikalischen Messgrößen berechnet werden. Eine implizite Darstellung ist über die Dyson-Gleichung möglich, die sowohl bezüglich des atomaren Potenzials  $H_a = V$  als auch über den Laser-Atom-Wechselwirkungsoperator  $H_L(t) = \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}$  ausgedrückt

## 1 Grundlegendes

werden kann:

$$\begin{aligned}
 U(t, t') &= U_a(t, t') - i \int_{t'}^t d\tau U(t, \tau) H_L(\tau) U_a(\tau, t') \\
 U(t, t') &= U_L(t, t') - i \int_{t'}^t d\tau U(t, \tau) H_a U_L(\tau, t'),
 \end{aligned} \tag{1.16}$$

wobei  $U_a$  und  $U_L$  die Zeitentwicklungsoperatoren nur im atomaren Potenzial bzw. ausschließlich im Laserfeld sind. Unter Berücksichtigung der physikalischen Gegebenheiten des Ionisationsprozesses und der Zielsetzung einer störungstheoretischen Beschreibung des Problems erkennt man nun, dass jeweils die zweiten Terme der Dyson-Gleichungen zu den gegebenen Zeiten klein sein müssen. Dies ist der Fall für  $H_L$  solange das Elektron sich im Grundzustand befindet und für  $H_a$  nach der Ionisation, wenn sich das Elektron im Kontinuum befindet. Deshalb ist das Einsetzen der zweiten in die erste Gleichung sinnvoll und ergibt [15]:

$$\begin{aligned}
 U(t, t') &= U_a(t, t') - i \int_{t'}^t d\tau U_L(t, \tau) H_L(\tau) U_a(\tau, t') \\
 &\quad - \int_{t'}^t d\tau \int_{t'}^{\tau} d\tau' U(t, \tau) H_a U_L(\tau, \tau') H_L(\tau') U_a(\tau', t'),
 \end{aligned} \tag{1.17}$$

wobei  $t > \tau > t'$  verwendet wurde. Durch weiteres Einsetzen der zweiten Gleichung in Gl. (1.17) erhält man dann eine störungstheoretische Entwicklung des totalen Zeitentwicklungsoperators [21]. Diese kann man nun auf den Ausgangszustand, der vor der Wechselwirkung der ungestörte Grundzustand  $|\Phi_a(t)\rangle$  ist, anwenden und erhält so unterschiedlich präzise Näherungen der Wellenfunktion des aktiven Elektrons:

$$\begin{aligned}
 |\psi^{(0)}(t)\rangle &= |\Phi_a(t)\rangle \\
 |\psi^{(1)}(t)\rangle &= |\Phi_a(t)\rangle - i \int_{t'}^t d\tau U_L(t, \tau) H_L(\tau) |\Phi_a(\tau)\rangle \\
 |\psi^{(2)}(t)\rangle &= |\Phi_a(t)\rangle - i \int_{t'}^t d\tau U_L(t, \tau) H_L(\tau) |\Phi_a(\tau)\rangle \\
 &\quad - \int_{t'}^t d\tau \int_{t'}^{\tau} d\tau' U_L(t, \tau) H_a U_L(\tau, \tau') H_L(\tau') |\Phi_a(\tau')\rangle,
 \end{aligned} \tag{1.18}$$

usw.. In nullter Ordnung erhält man somit einfach den ungestörten Ausgangszustand, in erster Ordnung einen zusätzlichen Term, der ein ionisiertes Wellenpaket darstellt, in zweiter Ordnung ein weiteres zusätzliches Wellenpaket, dass ionisiert wurde und danach mit dem atomaren Rumpf noch einmal wechselwirkt. Letzteres entspricht der Bornschen Näherung. Diese Entwicklung der Wellenfunktion kann nun benützt werden um den ATI- sowie den HHG-Prozess in der SFA darzustellen.

## 1.4 Die Above-Threshold-Ionisation (ATI)

Der wohl bekannteste Prozess auf dem Feld der Atom-Laser-Wechselwirkungsphysik ist die im Jahre 1979 entdeckte Above-Threshold-Ionisation [1]. Hierbei handelt es sich um die Ionisation eines atomaren Systems bei dem das ionisierte Elektron wesentlich mehr Photonen aufnehmen kann als die minimale Anzahl  $N$ . ATI-Spektren bestehen somit aus mehreren durch die Photonenenergie  $\omega$  getrennten Peaks, beginnend bei der Energie  $N\omega - I_p - U_p$ , wobei die ponderomotive Energie  $U_p$  die mittlere Oszillationsenergie des Elektrons im Laserfeld ist, die zusätzlich zur Ionisationsenergie aufgebracht werden muss. Sie ist gegeben durch  $U_p = \langle \mathbf{A}^2 \rangle / 2c^2$ , wobei  $\mathbf{A}$  das Vektorpotenzial des Lasers darstellt. Die Intensität der Peaks nimmt wie experimentell festgestellt wurde kontinuierlich ab. Einige Jahre später konnte beobachtet werden, dass der Abfall im ATI-Spektrum ab einer gewissen Energie von einem langgestreckten Plateau abgelöst wird, dass bei einer charakteristischen Cutoff-Energie abbricht [4] (siehe Abb. 1.1). Erste Erklärungsversuche waren klassischer Natur [3], später konnte unter Anwendung der SFA eine voll-quantenmechanische Beschreibung geliefert werden [15, 47]. Beide Modelle sollen in diesem Abschnitt kurz vorgestellt werden.

Das klassische Modell teilt den Ionisationsprozess in mehrere Schritte auf (siehe auch

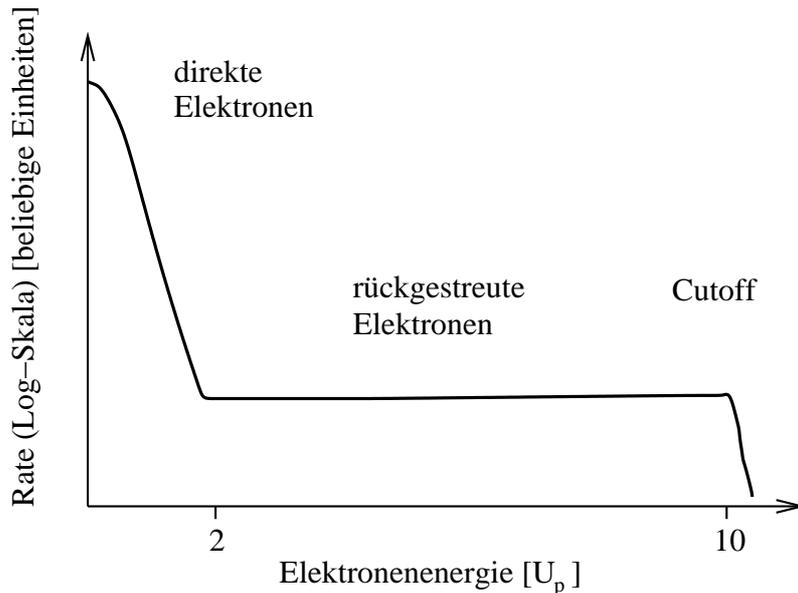


Abbildung 1.1: Schema eines typischen ATI-Energiespektrums im nicht-relativistischen Parameterbereich.

Abb. 1.2). Im ersten Schritt tritt das Elektron zu einer gewissen Zeit am Ort des Atoms ins Kontinuum ein und wird im Fall der direkten Ionisation im Laserfeld beschleunigt und

## 1 Grundlegendes

nach Verlassen des Laserfokuses detektiert. Nimmt man an, dass das Elektron mit verschwindender Geschwindigkeit startet, kann es Energien von 0 bis  $2U_p$  erreichen. Dieser Energiebereich korrespondiert nun genau mit dem Teil des gemessenen Spektrums, das stark abfällt. Dies kann durch den Tunnelionisationsmechanismus erklärt werden, der bei maximaler Laserfeldstärke, also minimalem Vektorpotenzial, also minimaler Emissionsenergie am wahrscheinlichsten ist.

Im Gegensatz zu dem direkten Ionisationsprozess, bei dem die Elektronen den Laserfokus ohne weitere Wechselwirkung mit dem atomaren Rumpf verlassen, ist auch eine Rückkehr zum atomaren Rumpf möglich, klassisch mit einem Drei-Schritte-Modell erklärbar. Der erste Schritt ist wiederum die Tunnelionisation, die das Elektron mit verschwindender Startgeschwindigkeit freisetzt und die Wahrscheinlichkeit der Bahn festlegt. Im zweiten Schritt wird das Elektron durch das Laserfeld, genauer gesprochen im nicht-relativistischen Parameterbereich ausschließlich durch das elektrische Feld des Lasers, in Richtung der Laserpolarisationsachse beschleunigt. Für gewisse Startzeiten ist nach dem Vorzeichenwechsel des elektrischen Feldes auch eine Umkehr der Elektronenbewegung und damit auch eine Rückkehr zum atomaren Rumpf möglich. Dort kann es im letzten Schritt elastisch in unterschiedliche Richtungen gestreut werden und dann wie die direkten Elektronen den Laserfokus verlassen und detektiert werden. Die Rückstreuung am Rumpf entspricht einer Spiegelung des Laserfeldes im Raum, so dass das Elektron effektiv zwei Beschleunigungszyklen durchläuft und somit wesentlich mehr Energie aufnehmen kann als im Fall der direkten Ionisation. Klassisch lässt sich eine maximale Energie von etwa  $10U_p$  ermitteln, die von der gemessenen Cutoff-Energie bestätigt wird. Das Plateau selbst kann wiederum über den Tunnelionisationsprozess erklärt werden. Nur kleine Änderungen in der Ionisationszeit führen schon zu sehr großen Veränderungen in den Endenergien des rückgestreuten Elektrons. Gleichzeitig bedeutet dies aber auch, dass Bahnen zu unterschiedlichen Endenergien nahezu der gleichen Wahrscheinlichkeit zugeordnet werden können, was die Erklärung für die Plateaustruktur im Spektrum ist.

Die quantenmechanische Beschreibung des Ionisationsprozesses erfolgt nun unter Verwendung der Entwicklung der Wellenfunktion in Gl. (1.18). Die ATI-Prozessamplitude für die Emission eines Elektrons mit Endimpuls  $\mathbf{p}$  ist dann gegeben durch die Projektion auf den Kontinuumszustand  $\Psi_{\mathbf{p}}^f(t)$  mit asymptotischen Impuls  $\mathbf{p}$ :

$$M_{\mathbf{p}} = \lim_{t \rightarrow \infty} \langle \Psi_{\mathbf{p}}^f(t) | \Psi(t) \rangle, \quad (1.19)$$

der ebenfalls die Schrödinger-Gl. (1.7) erfüllt. In nullter Ordnung Störungstheorie bezüglich des atomaren Potenzials  $V$  kann der Kontinuumsendzustand durch den Volkov-Zustand  $\Psi_{\mathbf{p}}^V$ , der die Schrödinger-Gleichung ohne atomares Potenzial erfüllt, ersetzt werden. Unter Ausnutzung der Orthogonalität des Grundzustandes bezüglich der Kontinuumszustände,

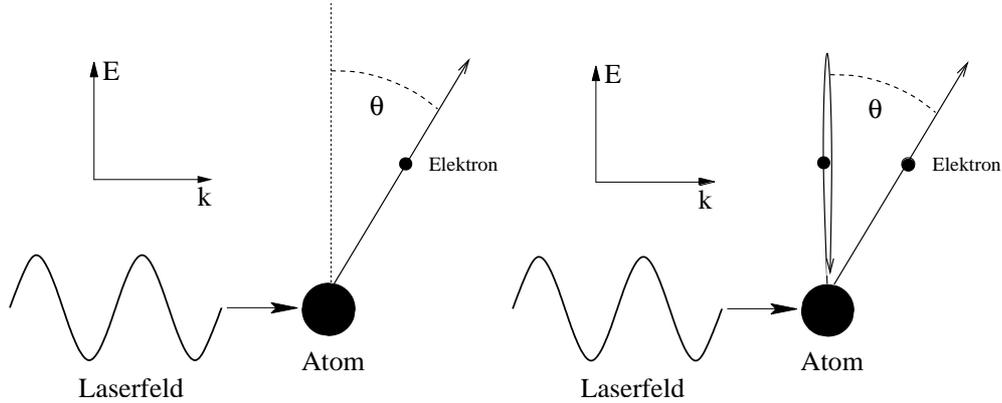


Abbildung 1.2: Schema für den direkten Ionisations- (links) sowie für den Rückstreuungsprozess (rechts) von einem atomaren System in einem starken Laserfeld.  $\mathbf{E}$  und  $\mathbf{k}$  sind die Laserpolarisations- bzw. Laserpropagationsrichtung,  $\theta$  der Emissionswinkel.

erhält man für die Prozessamplitude:

$$M_{\mathbf{p}} = \lim_{t \rightarrow \infty} \left( -i \int_{t'}^t d\tau \langle \Psi_{\mathbf{p}}^V(\tau) | H_L(\tau) | \Phi(\tau) \rangle - \int_{t'}^t d\tau \int_{t'}^{\tau} d\tau' \langle \Psi_{\mathbf{p}}^V(\tau) | H_a U_L(\tau, \tau') H_L(\tau') | \Phi(\tau') \rangle \right). \quad (1.20)$$

Der erste Term beschreibt die direkte Ionisation in der SFA, wogegen der zweite eine zusätzliche Kontaktwechselwirkung des Elektrons mit dem atomaren Rumpf nach der Ionisation berücksichtigt. Eine genauere Untersuchung dieses Ausdrucks, der wie sich zeigen wird den ATI-Prozess zufriedenstellend beschreiben kann, befindet sich in Kapitel 4.

## 1.5 Die Erzeugung höherer Harmonischer (HHG)

In den 80er Jahren wurden bei der Messung des Photonenemissionsspektrum bei der Wechselwirkung von einem Laser mit Atomen mehrere Peaks bei ungeraden Vielfachen der Frequenz des eingestrahlt Laserfeldes gemessen [6]. Weiterhin konnte festgestellt werden, dass sich nach einem anfänglichen Abfall der Intensität bei höheren Energien ein Plateau ausbildet. Dort haben die einzelnen Emissionspeaks nahezu die gleiche Höhe. Das Plateau bricht dann bei einer charakteristischen Energie von ca.  $I_p + 3U_p$ , dem sogenannten Cutoff ab. 1993 konnte wie im ATI-Fall ein einfaches klassisches Modell entwickelt werden (siehe auch Abb. 1.3), bei dem das Elektron nach der Tunnelionisation vom Laser im Kontinuum propagiert wird, Energie aufnimmt, zum atomaren Rumpf zurückkehrt und dort nach

## 1 Grundlegendes

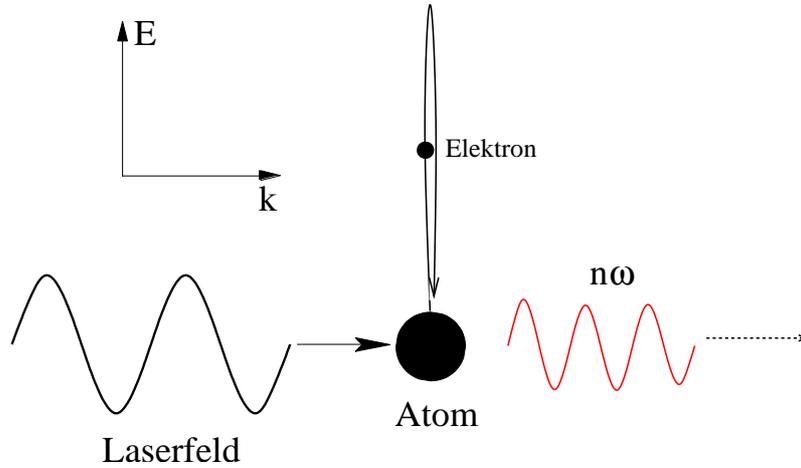


Abbildung 1.3: Schema des HHG-Prozesses bei einem atomaren System in einem starken Laserfeld.  $E$  und  $k$  sind die Laserpolarisations- bzw. Laserpropagationsrichtung des ersten Laserpulses.

Rekombination seine gewonnene Energie als hochenergetische Photonen den sogenannten Höheren Harmonischen (*high-harmonic generation* (HHG)) abgibt. Schon mit diesem einfachen klassischen Modell bei dem die Bewegung des Elektrons im Kontinuum ausschließlich vom Laserfeld beeinflusst wird, konnte die maximale Energie der abgegebenen Strahlung vorhergesagt werden [3].

In der quantenmechanischen Beschreibung ist die Prozessamplitude für die Erzeugung höherer Harmonischer dann durch die Fourier-Transformierte des Dipol-Matrixelements des aktiven Elektrons gegeben [48, 49]:

$$M_n = \int_{-\infty}^{\infty} dt \langle \Psi(t) | x | \Psi(t) \rangle \exp(in\omega t) \quad (1.21)$$

Approximiert man den Zustandsvektor  $|\Psi\rangle$  durch den in der SFA berechneten aus Gl. (1.18) ergibt sich

$$M_n = \int_{-\infty}^{\infty} dt \langle \Phi_a(t) | x | \Psi(t) \rangle \exp(in\omega t) + c.c., \quad (1.22)$$

wobei  $n$  die Ordnung der Höheren Harmonischen darstellt. Hiermit kann nun, wie ausführlicher in Kapitel 4 betrachtet wird das HHG-Emissionsspektrum berechnet werden.

Das hohe Interesse an HHG liegt darin begründet, dass man auf diesem Wege eine kompakte Quelle für kurzwellige Strahlung im XUV-Bereich besitzt, die z. B. in der Plasma-Spektroskopie [50] oder der Röntgen-Fluoreszenz-Analyse [51] verwendet werden kann. Durch Erzeugung von noch kurzwelliger Strahlung wäre sogar Röntgen-Mikroskopie oder

-Brechung auf Labor-Niveau möglich. Eine weitere Anwendung ist die Erzeugung von ultrakurzen Laserpulsen, wenn der HHG-Prozess mit Laserpulsen, die aus wenigen Zyklen bestehen, betrieben wird [10].

## 1.6 Attosekundenphysik

Die Entwicklung kurzer Laserpulse ermöglichte die zeitaufgelöste Untersuchung und Kontrolle physikalischer Prozesse, wobei die Dauer der Pulse in der Größenordnung der Zeitskalen der betrachteten Prozesse liegen muss [52]. So konnte mittels Pikosekunden-Pulsen, die mit der Technik der Modenkopplung erzeugt wurden [53], die Bewegung von Molekülen in Flüssigkeiten gefilmt werden [54]. Noch kürzere Pulse im Femtosekundenbereich wurden über die optische Kompression von Laserpulsen möglich [55]. Mit ihnen gelingt es chemische Reaktionen oder atomare Vibrationen zu betrachten [56]. Durch die Entdeckung des HHG-Prozesses konnte kohärente Strahlung im XUV-Bereich produziert und durch geeignete Filtertechniken so überlagert werden, dass Laserpulse im Attosekundenbereich entstehen [9, 10]. Dies stieß die Tür zur Beobachtung der Elektronenbewegung in Atomen, z. B. beim Auger-Effekt, auf [11]. Die Untersuchungen basieren auf dem Pump-Probe-Prinzip bei dem ein kurzer hochenergetischer XUV-Puls den Prozess anstößt und ein zweiter ebenfalls kurzer, aber niedrigenergetischer Puls mit einer optischen Wellenlänge, der mit dem ersten in einer genau definierten Phasenbeziehung steht, das aktive Elektron abtastet. Die Zukunft verspricht kürzere sowie hochenergetischere Pulse, was eine noch präzisere Beobachtung, Kontrolle und inbegriffene Effizienzsteigerungen von bekannten atomaren Prozessen verspricht. So sagen z. B. Simulationen der Wechselwirkung eines Laserpulses im nahen Infrarot-Bereich, der aus wenigen Zyklen besteht, mit einem überdichten Plasma die Erzeugung von einem Attosekunden-Puls im Extrem-Ultraviolett-Bereich (XUV) mit bisher nicht erreichten relativistischen Intensitäten voraus [57]. Die Attosekundenphysik stellt somit eines der interessantesten und vielversprechensten der heutigen Forschungsgebiete dar.



## 2 Die SFA im schwach-relativistischen Parameterbereich

Als ersten Schritt auf dem Weg zur voll-relativistischen theoretischen Beschreibung des Ionisationsprozesses eines Atoms durch ein linear polarisiertes Laserfeld mit anschließender Rekollision, betrachten wir den schwach-relativistischen Parameterbereich. Letzterer zeichnet sich dadurch aus, dass die typische Geschwindigkeit des aktiven Elektrons gegenüber der Lichtgeschwindigkeit klein aber nicht mehr zu vernachlässigen ist und so sowohl das Magnetfeld des Lasers als auch relativistische Effekte wie die Massenverschiebung einen nicht zu vernachlässigenden Einfluss auf den Prozess gewinnen. Während das Lasermagnetfeld über die Lorentz-Kraft einen Drift des ionisierten Elektrons in Laserpropagationsrichtung induziert und somit die Rekollisionswahrscheinlichkeit deutlich verringert, wird die relativistische Massenverschiebung die kinetische Energie des Elektrons herabsetzen. Als Indikator für den Ionisations-Rekollisionsprozess werden sowohl ATI [58, 59] als auch HHG unter Anwendung der SFA beschrieben.

### 2.1 Grobe Abschätzungen zur Dynamik

Wir wollen im Folgenden den Einfluss der unterschiedlichen relativistischen Effekte abschätzen und dabei zeigen in welchem Bereich die Berücksichtigung von unterschiedlichen Korrekturtermen zur Beschreibung der Dynamik des Prozesses gerechtfertigt ist.

Magnetfeld-Effekte führen zu zwei wesentlichen Veränderungen. Zum einen driftet das ionisierte Elektron auf Grund der Lorentz-Kraft des Lasermagnetfeldes in Laserpropagationsrichtung. Um nun trotzdem zum atomaren Rumpf zurückkehren zu können, muss es mit einem Impuls entgegengesetzt zur Laserpropagationsrichtung starten. Dieser kann klassisch durch  $p_{z0} \simeq c\xi^2$  abgeschätzt werden [18], wobei  $\xi = E_0/(\omega c)$  der relativistische Feldstärkeparameter ist, der das Verhältnis von Elektronengeschwindigkeit im Kontinuum zur Lichtgeschwindigkeit ausdrückt.  $E_0$  ist die Amplitude des elektrischen Feldes des Lasers,  $\omega$  seine Kreisfrequenz und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit. Das Elektron tunnelt also nicht in Richtung der Laserpolarisationsrichtung aus dem atomaren Potenzial, sondern in einem nicht-verschwindenden Winkel zu ihr. In dieser Richtung ist aber nun die Tun-

## KAPITEL 2. SFA im schwach-relativistischen Parameterbereich

nelwahrscheinlichkeit wegen der höheren Barriere verringert. Dieser Effekt ist nicht vernachlässigbar, wenn die Anfangsenergie des Elektrons größer oder vergleichbar mit dem Ionisationspotenzial  $I_p$  ist. Mit der Definition

$$\eta_1 := p_{z0}^2/I_p \simeq c^2\xi^4/I_p. \quad (2.1)$$

führt dies auf  $\eta_1 \gtrsim 1$ . Dies stellt eine notwendige Bedingung für die Berücksichtigung des Lasermagnetfeldes bei den Rekollisionsprozessen dar.

Zum anderen ändert das Lasermagnetfeld die Endenergie des ionisierten Elektrons, das sich nun nicht nur in Polarisationsrichtung bewegt, sondern auch in Propagationsrichtung. Die charakteristische Energie der Bewegung in Polarisationsrichtung ist die ponderomotive Energie  $U_p = c^2\xi^2/4$  des Elektrons im Laserfeld. Analog zu Gl. (2.1) kann nun der Einfluss des Magnetfeldes auf die Energie des Elektrons mit dem Parameter  $\eta_2$ :

$$\eta_2 := p_{z0}^2/U_p \simeq \xi^2. \quad (2.2)$$

abgeschätzt werden.

Die relativistische Massenverschiebung wird durch den Parameter:

$$\eta_3 := U_p/c^2 \simeq \xi^2 \quad (2.3)$$

bestimmt, wobei hier angenommen wurde, dass die kinetische Energie durch die ponderomotive Energie  $U_p$  approximiert werden kann.

Die Ausdehnung des Wellenpakets des Elektrons im Impulsraum direkt nach der Tunnelionisation ist gegeben durch  $\Delta p_0 \sim \sqrt{2E_0}/\sqrt[4]{2I_p}$  [18]. Während der Propagation im Kontinuum dehnt sich das Wellenpaket weiter aus. Mit der Zeitdauer bis zur Rückkehr in die Nähe des atomaren Rumpfes  $t_r \sim 4/\omega$  ergibt sich eine Ausdehnung zu diesem Zeitpunkt von  $\Delta z_s \sim t_r \Delta p_0/\sqrt{2} \sim 4\sqrt{E}/(\omega\sqrt[4]{2I_p})$  [28]. Das Verhältnis der Driftdistanz des Elektrons in Laserpropagationsrichtung  $\Delta z_d \sim E_0^2/(c\omega^3)$  zu dieser Größe ist dann durch folgenden Parameter gegeben:

$$\eta_4 := \frac{\Delta z_d}{\Delta z_s} = \frac{E^{3/2}\sqrt[4]{2I_p}}{4c\omega^2} \quad (2.4)$$

und die Bedingung  $\eta_4 > 1$  stellt eine hinreichende Bedingung für den relativistischen Charakter und die Unterdrückung der Rekollisionsprozesse dar (siehe auch Abb. 0.1).

Die Relevanz von Spin-Effekten wird durch Parameter beschrieben, die proportional zum extrem kleinen Faktor  $\omega/c^2$  sind. Sie sind deshalb im schwach-relativistischen Parameterbereich vernachlässigbar [60].

## 2.2 Beschreibung der Dynamik über die Schrödinger-Gleichung inklusive Korrekturtermen

Hieraus kann dann geschlossen werden, dass für superoptische Laserwellenlängen in der Größenordnung von  $1\ \mu\text{m}$  und Intensitäten ab etwa  $10^{16}\ \text{W}/\text{cm}^2$  hauptsächlich die Magnetfeld- aber auch die Massenverschiebungskorrektur beginnen die Elektronen bzw. Photonenemissionsspektren zu beeinflussen und der Rekollisionsprozess bis etwa zu Intensitäten von etwas weniger als  $10^{17}\ \text{W}/\text{cm}^2$  mit allerdings verminderten Raten vonstatten gehen sollte. Im Folgenden wird dieser Sachverhalt quantenmechanisch beschrieben und über die SFA quantifiziert.

## 2.2 Beschreibung der Dynamik über die Schrödinger-Gleichung inklusive Korrekturtermen

Es soll der Ionisationsprozess eines atomaren Systems in einem linear polarisierten Laserfeld mit Polarisation in  $x$ -, magnetischem Feld in  $y$ -, und Propagation in  $z$ -Richtung für eine moderate Intensität von  $7 \times 10^{16}\ \text{W}/\text{cm}^2$  bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 911\ \text{nm}$  (entspricht einer Kreisfrequenz von  $\omega = 0.05\ \text{a.u.}$ ) betrachtet werden. Der relativistische Feldstärkeparameter beträgt dann ungefähr  $\xi \approx 0.2$ , was den schwach-relativistischen Charakter des Prozesses andeutet. Nach Anwendung der Single-Active-Electron-Approximation [39], beschreiben wir die Dynamik des Elektrons in diesem Regime durch eine  $1/c$ -Entwicklung der Dirac-Gleichung (1.2) für die Spinor-Wellenfunktion  $|\Psi(t)\rangle$  [38]. Wie später gezeigt wird, ist eine Entwicklung des Verhältnisses von Elektronengeschwindigkeit  $v$  zu Lichtgeschwindigkeit  $c$  bis zur zweiten Ordnung gerechtfertigt. Daraus folgt:

$$i \partial_t |\Psi(t)\rangle = H |\Psi(t)\rangle \quad (2.5)$$

mit dem Hamiltonian in der Geschwindigkeitseichung

$$\begin{aligned} H &= H_0 + H_i^V + H_P + H_{kin}^V + H_D + H_{SO}^V \\ H_0 &= \hat{\mathbf{p}}^2/2 + V \\ H_i^V &= \hat{p}_x A(z, t)/c + A(z, t)^2/2c^2 \\ H_P &= \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}/2c \\ H_{kin}^V &= -(\hat{\mathbf{p}} + \mathbf{A}/c)^4/8c^2 \\ H_D &= -\boldsymbol{\nabla} \cdot \mathbf{E}_T/8c^2 \\ H_{SO}^V &= -\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E}_T \times (\hat{\mathbf{p}} + \mathbf{A}/c))/4c^2, \end{aligned} \quad (2.6)$$

wobei  $H_0$  der freie Hamiltonian mit dem atomaren Potenzial  $V$  ist,  $H_i^V$  der Elektron-Laserfeld-Wechselwirkungsoperator,  $\hat{\mathbf{p}} = (\hat{p}_x, \hat{p}_y, \hat{p}_z)$  der Elektronen-Impuls-Operator,

## KAPITEL 2. SFA im schwach-relativistischen Parameterbereich

$\mathbf{A} = A(z, t) \mathbf{e}_x$  das Vektorpotenzial des Laserfeldes,  $H_P$  die Spin-Magnetfeld-Kopplung,  $H_{SO}^V$  die Spin-Bahn-Kopplung,  $\boldsymbol{\sigma} = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z)$  die Pauli-Matrizen,  $\mathbf{E}, \mathbf{B}$  der elektrische und magnetische Feldvektor des Laserfeldes,  $\mathbf{E}_T := \mathbf{E} - \nabla V$  das gesamte elektrische Feld,  $H_{kin}^V$  die relativistische Massenverschiebung und  $H_D$  der Darwin-Term.

Aus Konsistenzgründen wird dann ebenfalls das Vektorpotenzial bis zur zweiten Ordnung in  $1/c$  entwickelt:  $A(z, t) = A(t) + zE(t) - (z^2/2c)\dot{E}(t)$ .

Eine exakte Lösung dieser Differential-Gleichung ist analytisch nicht möglich. Deshalb wird später die konventionelle SFA (siehe Abschnitt 1.3) angewendet. Diese ist allerdings nicht eichinvariant und für den Ionisationsprozess nur in der Längeneichung anwendbar [42, 61] (siehe auch Kapitel 3). Wir führen deshalb die Eichtransformation:  $|\Psi(t)\rangle \rightarrow \exp(iA(t)x/c)|\Psi(t)\rangle$  von der Geschwindigkeits- in die Längeneichung durch. Die Operatoren mit Superindex  $V$  in der Geschwindigkeitseichung in den Gl.en (2.6) werden dann in die entsprechenden Operatoren in der Längeneichung mit Superindex  $L$  transformiert:

$$\begin{aligned} H_i^L(t) &= E(t)x + \frac{\hat{p}_x E(t)z}{c} - \frac{\hat{p}_x \dot{E}(t)z^2}{2c^2} + \frac{E^2(t)z^2}{2c^2} \\ H_{SO}^L &= -\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \times \hat{\mathbf{p}}) / 4c^2 \\ H_{kin}^L &= -\hat{\mathbf{p}}^4 / 8c^2. \end{aligned} \tag{2.7}$$

$H_0, H_P$  und  $H_D$  bleiben unverändert.

Im nächsten Schritt wollen wir die unterschiedlichen Terme in den Gl.en (2.6) bzw. Gl.en (2.7) für den Ionisationsprozess in einem Laserfeld mit relativistischen Feldstärkeparameter  $\xi = 0.2$  abschätzen.  $H_0$  kann dann durch  $H_0 \simeq U_p$  approximiert werden. Eine Abschätzung von  $x, p_x, z, p_z$  (der Koordinaten und Impulse des Elektrons in Laserpolarisations- bzw. propagationsrichtung) führt auf  $x \simeq (c/\omega)\xi, p_x \simeq c\xi, z \simeq (c/\omega)\xi^2, p_z \simeq c\xi^2$  [62], wobei  $\simeq$  'von der Größenordnung von' symbolisiert.

Damit sind wir in der Lage  $H_i^{(1)} := E(t)x \simeq U_p, H_i^{(2)} := p_x E(t)z/c \simeq (\omega z/c) \cdot U_p, H_i^{(3)} := p_x \dot{E}(t)z^2/2c^2 \simeq (\omega z/c)^2 \cdot U_p$  und  $H_i^{(4)} := E^2(t)z^2/2c^2 \simeq (\omega z/c)^2 \cdot U_p$  abzuschätzen. Weiterhin folgt  $H_P \simeq B/2c \simeq \omega\xi, H_{kin}^L \simeq p^4/8c^2 \simeq \xi^2 U_p, H_D^{(1)} \simeq \dot{E}(t)/8c^3 \simeq \xi\omega^2/8c^2$ . Der Term  $H_{SO}$ , der das Laserfeld beinhaltet, kann wegen der  $x$ -Polarisation durch  $|H_{SO}^{(1)}| = |(1/4c^2)E(\sigma_y p_z - \sigma_z p_y)|$  dargestellt werden. Die Elektronenbewegung wird hauptsächlich vom Laserfeld bestimmt und findet in der  $xz$ -Ebene statt, das bedeutet  $p_y \simeq 0$ . Folglich gilt  $|H_{SO}^{(1)}| \simeq |(1/4c^2)E p_z| \simeq \omega\xi^3$ . Der Term, der das Coulomb-Feld in  $H_{SO}$  beinhaltet, kann durch  $|H_{SO}^{(2)}| \simeq |(1/4c^2)E_C p_x|$  abgeschätzt werden, wobei  $p \simeq p_x \simeq c\xi$  verwendet wurde. Das Coulomb-Feld des atomaren Rumpfs  $E_C$  kann durch  $E_C \simeq Ze^2/a_B^2 \simeq I_p/a_B$  abgeschätzt werden, wobei  $a_B$  der Bohr-Radius ist und  $Z$  die Ladung des Ions. Daraus folgt  $|H_{SO}^{(2)}| \simeq \xi I_p c/a_B$ . Im betrachteten Parameterbereich erhalten wir somit  $|H_{SO}^{(1)}| \gg |H_{SO}^{(2)}|$ .

### 2.3 ATI im schwach-relativistischen Parameterbereich

Dies ergibt dann für die Verhältnisse der unterschiedlichen Hamiltonian:

$$\begin{aligned}
H_i^{(1)}/H_0 &\approx 1 \\
H_i^{(2)}/H_0 &\simeq H_{kin}^L/H_0 \simeq \xi^2 \approx 0.03 \\
H_i^{(3)}/H_0 &\simeq H_i^{(4)}/H_0 \simeq \xi^4 \approx 10^{-3} \\
H_P/H_0 &\simeq \omega/(c^2\xi) \approx 2 \times 10^{-5} \\
H_{SO}^L/H_0 &\simeq \max\{\omega\xi/c^2, I_p\lambda_c/c^2\xi a_B\} \approx 5 \times 10^{-7} \\
H_D^{(1)}/H_0 &\simeq \omega^2/(2c^4\xi) \approx 10^{-11}.
\end{aligned} \tag{2.8}$$

Da das atomare Potenzial in der SFA als Störung angesehen wird, ist der Darwin-Term  $H_D^{(2)} = -(1/8c^2)\Delta V(r)$  zu vernachlässigen.

Aus diesen Abschätzungen folgt nun, dass die Korrektur erster Ordnung im Laser-magnetfeld  $H_i^{(2)}$  sowie die relativistische Massenverschiebung  $H_{kin}^L$  einen Einfluss auf das Endergebnis im Prozentbereich haben. Die elektrische Oktupol- sowie die magnetische Quadrupolwechselwirkung ( $H_i^{(3)} + H_i^{(4)}$ ) sind dagegen vernachlässigbar im betrachteten Parameterbereich, da ihr relativer Beitrag im Promille-Bereich liegt. Korrekturen auf Grund der Spin-Magnetfeld- sowie der Spin-Bahn-Kopplung sind noch kleiner und können deshalb ebenfalls vernachlässigt werden. Der Schrödinger-Hamiltonian, der den Prozess demnach hinreichend beschreibt ist also:  $H = \bar{H}_0 + \bar{H}_i$ , wobei  $\bar{H}_0 = H_0 + H_{kin}^L$  und  $\bar{H}_i = H_i^{(1)} + H_i^{(2)}$  gilt.

## 2.3 ATI im schwach-relativistischen Parameterbereich

Die aus dem Hamiltonian  $H = \bar{H}_0 + \bar{H}_i$  folgende Schrödinger-Gleichung kann nun in der SFA gelöst werden. Es wird also der Einfluss des Laserfeldes auf den gebundenen Ausgangszustand sowie der des atomaren Potenzials auf die Bewegung des ionisierten Elektrons im Kontinuum vernachlässigt. Unter Benutzung der Dyson-Gleichung für den Zeitentwicklungsoperator [15] (siehe auch Abschnitt 1.3), kann die ATI-Prozess-Amplitude  $M_{\mathbf{p}}$  inklusive Rückstreuung am atomaren Rumpf für ein Elektron mit Endimpuls  $\mathbf{p}$  wie folgt angegeben werden:

$$M_{\mathbf{p}} = - \int_{-\infty}^{\infty} dt' \int_{-\infty}^{t'} dt'' \langle \Psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t') | V U_L(t', t'') \bar{H}_i(t'') | \Phi_a(t'') \rangle, \tag{2.9}$$

wobei  $|\Phi_a(t)\rangle$  den gebundenen Zustand darstellt.  $|\Psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t)\rangle$  ist der Volkov-Zustand des Elektrons im Laserfeld, der durch folgende Gleichung bestimmt ist:

$$i\partial_t |\Psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t)\rangle = (\hat{\mathbf{p}}^2/2 + H_{kin}^L + \bar{H}_i) |\Psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t)\rangle. \tag{2.10}$$

## KAPITEL 2. SFA im schwach-relativistischen Parameterbereich

Hieraus folgt die Volkov-Wellenfunktion:

$$|\Psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(t)\rangle = |\mathbf{p}(t)\rangle \exp\left(i \int_t^\infty dt' \varepsilon(\mathbf{p}(t'))\right), \quad (2.11)$$

mit der kinetischen Energie  $\varepsilon(\mathbf{p}) = p^2/2 - p^4/8c^2$  inklusive relativistischer Massenverschiebung und dem kinetischen Impuls  $\mathbf{p}(t) = \mathbf{p} + \mathbf{A}(t)/c + \mathbf{T}(p_x, t)$  mit  $\mathbf{T}(p_x, t) = \mathbf{e}_z [p_x A(t)/c^2 + A(t)^2/2c^3]$ .  $U_L(t', t'') = \int d^3\mathbf{w} |\Psi_{\mathbf{w}}^{(V)}(t')\rangle \langle \Psi_{\mathbf{w}}^{(V)}(t'')|$  stellt den Volkov-Zeitentwicklungsoperator dar.

Für die ATI-Amplitude inklusive Rückstreuung ergibt sich dann:

$$M_{\mathbf{p}} = - \lim_{t \rightarrow \infty} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \int_{-\infty}^{t'} dt'' \int d^3\mathbf{q} [\mathcal{M}(\mathbf{q}(t''), t'') \tilde{V}(\mathbf{p}(t'), \mathbf{q}(t')) \times \exp(-i(S(\mathbf{q}, t', t'') + S(\mathbf{p}, t, t')))], \quad (2.12)$$

wobei  $\mathbf{q}(t) = \mathbf{q} + \mathbf{A}(t)/c + \mathbf{T}(p_x, t)$  und  $\mathcal{M}(\mathbf{p}, t) := \langle \mathbf{p} | \bar{H}_i(t) | 0 \rangle$  gilt.  $\tilde{V}(\mathbf{p}, \mathbf{q}) = \langle \mathbf{p} | V | \mathbf{q} \rangle$  ist die Fourier-Transformierte des atomaren Potentials mit Impulseigenzustand  $|\mathbf{q}\rangle$  und  $|0\rangle$  der atomare Grundzustand mit Energie  $-I_p$ .  $S(\mathbf{p}, t, t')$  stellt die quasi-klassische Wirkung dar:

$$S(\mathbf{p}, t', t'') = \int_{t''}^{t'} d\tau (\varepsilon(\mathbf{p}(\tau)) + I_p). \quad (2.13)$$

Für große Wellenlängen ( $U_p > I_p > \omega$ ) kann dann das fünfdimensionale Integral mittels der Sattelpunktmethode standardmäßig berechnet werden (siehe in Anhang B). Das Emissionsspektrum ist bis auf einen konstanten Faktor durch  $|M_{\mathbf{p}}|^2$  gegeben [47]. In Abb. 2.1 wird nun das ATI-Spektrum für Elektronen, die in Richtung der maximalen Cutoff-Energie emittiert werden, in unterschiedlichen Approximationen dargestellt. Das Spektrum berechnet in der Dipolnäherung wird verglichen mit dem inklusive der Lasermagnetfeldkorrektur bzw. der Lasermagnetfeldkorrektur und der relativistischer Massenverschiebung. Wie man erkennt, führt die Berücksichtigung des Lasermagnetfeldes zu einer Verringerung der Plateauhöhe, die man auf den zusätzlichen Drift des Elektrons in Laserpropagationsrichtung zurückführen kann. Weiterhin ist eine Erhöhung der Cutoff-Energie auf die im Ruhesystem des ionisierten Elektrons rot-verschobene Laserfrequenz zurückzuführen, die gleichbedeutend mit einer längeren Wechselwirkungszeit mit dem Laser ist. Dagegen führt die relativistische Massenverschiebung durch die geänderte Energie-Impuls-Relation wiederum zu einer Verringerung der Cutoff-Energie, die den Energiegewinn durch das Lasermagnetfeld allerdings nicht ganz kompensieren kann [58]. Eine ausführlichere Diskussion der unterschiedlichen Eigenschaften des ATI-Spektrums befindet sich in Abschnitt 4.1.

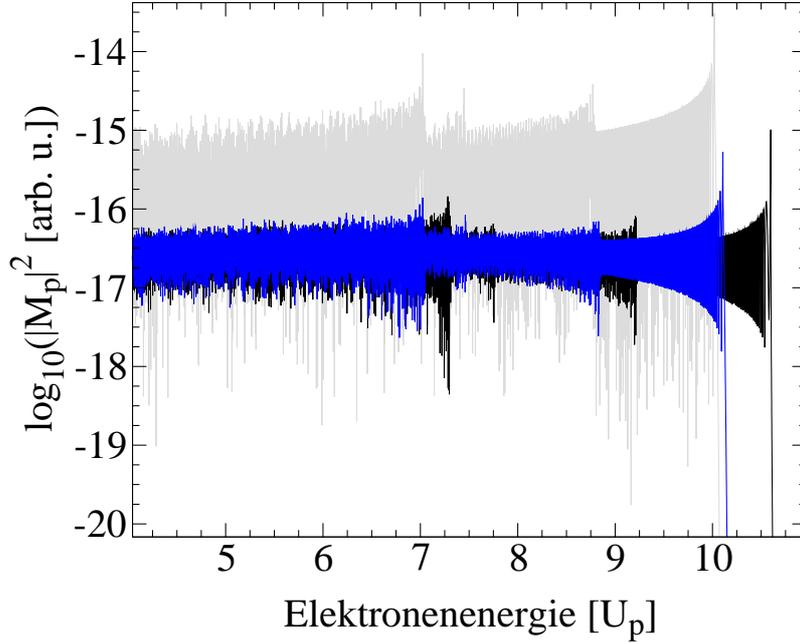


Abbildung 2.1: Photoelektronenspektrum in einem Laserfeld mit einer Kreisfrequenz von  $\omega = 0.05$  a.u. und einer maximalen elektrischen Feldstärke von  $E = 1.4$  a.u. über  $\log_{10}(|M_p|^2)$  aus Gl. (2.12) in beliebigen Einheiten, wobei die Elektronen in Richtung der maximalen Cutoff-Energie emittiert werden. Das Ionisationspotenzial ist  $I_p = 4$  a.u.. Die Elektronenenergie ist in Vielfachen der ponderomotiven Energie  $U_p$  skaliert: (grau) in der Dipolnäherung, (schwarz) mit Magnetfeld-Korrekturen, (blau) mit Magnetfeld-Korrekturen und relativistischer Massenverschiebung.

## 2.4 HHG im schwach-relativistischen Parameterbereich

Das zum atomaren Rumpf zurückkehrende Elektron kann nun nicht nur an diesem gestreut werden, sondern auch mit ihm rekombinieren. Seine im Kontinuum gewonnene Energie gibt es in Form hochenergetischer Photonen ab, deren Energie ein Vielfaches der Photonen des treibenden Laserfeldes ist. Dieser Prozess wird High-Harmonic Generation (HHG) genannt.

Die Prozessrate  $dw_n/d\Omega$  für die Emission eines Photons der Energie  $n\omega$  in den Raumwinkel  $d\Omega$  ist dann wie folgt mit der Fourier-Transformierten des zeitabhängigen Dipol-Matrixelements  $d(t)$  verbunden [49]:

$$dw_n/d\Omega = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{n\omega}{c}\right)^3 \left| \int_0^T dt d(t) \exp(in\omega t) / T \right|^2, \quad (2.14)$$

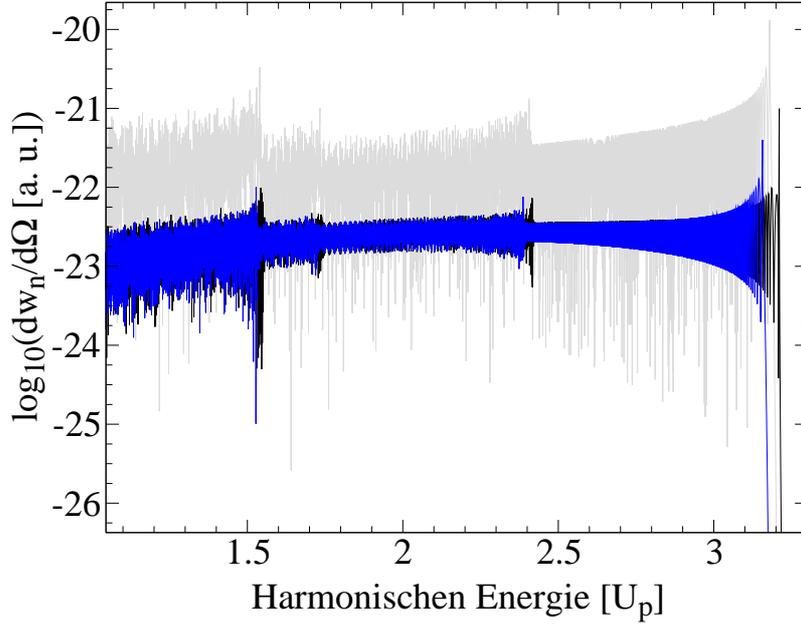


Abbildung 2.2: HHG-Spektrum in einem Laserfeld mit einer Kreisfrequenz von  $\omega = 0.05$  a.u. und einer elektrischen Feldstärke von  $E = 1.4$  a.u. über  $\log_{10}(dw_n/d\Omega)$  aus Gl. (2.14) in beliebigen Einheiten. Das Ionisationspotenzial ist  $I_p = 4$  a.u.. Die Energie der Harmonischen ist in Vielfachen der ponderomotiven Energie  $U_p$  skaliert: (grau) in der Dipolnäherung, (schwarz) mit Magnetfeld-Korrekturen, (blau) mit Magnetfeld-Korrekturen und relativistischer Massenverschiebung.

wobei  $T = 2\pi/\omega$  die Periodendauer des Laserfeldes ist. Das zeitabhängige Dipol-Matrixelement in Laserpolarisationsrichtung ist in der SFA gegeben durch:

$$d(t) = \int_{-\infty}^t dt' \langle \Phi_a(t) | x U_L(t, t') \bar{H}_i(t') | \Phi_a(t') \rangle \quad (2.15)$$

mit dem Volkov-Zeitentwicklungsoperator  $U_L(t, t')$  basierend auf der Schrödinger-Gleichung des Elektrons im Laserfeld inklusive Magnetfeld-Korrektur und relativistischer Massenverschiebung aus Abschnitt 2.3. Die HHG-Prozessrate kann wieder nach Anwendung der Sattelpunktmethode analytisch berechnet werden. Wie im ATI-Fall werden wir die drei Approximationen betrachten: 1) in der Dipolnäherung, 2) basierend auf der Schrödinger-Gleichung inklusive Magnetfeld-Korrekturen, 3) basierend auf der Schrödinger-Gleichung inklusive Magnetfeld-Korrekturen und relativistischer Massenverschiebung. In Abb. 2.2 sind nun die HHG-Spektren in den unterschiedlichen Näherungen im schwach-relativistischen Parameterbereich dargestellt. Man erkennt den Einfluss des

Magnetfeldes durch eine Verringerung der Plateauhöhe und eine leichte Erhöhung der Cutoff-Energie, während der relativistische Masseneffekt ausschließlich die Cutoff-Energie verringert. Eine genauere Analyse der HHG-Spektren befindet sich in Abschnitt 4.2.

## 2.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde analytisch gezeigt, dass Magnetfeld- und relativistische Korrekturen den Ionisations-Rekollisionsprozess im schwach-relativistischen Parameterbereich signifikant beeinflussen. Die wesentlichen Korrekturen sind der durch die Lorentz-Kraft des Magnetfeldes induzierte Drift des Elektrons in Laserpropagationsrichtung sowie die relativistische Massenverschiebung. Ersterer verringert die Rekollisions- und damit die Prozesswahrscheinlichkeit um ca. eine Größenordnung, vergrößert allerdings die Endenergie des rekollidierenden Elektrons im Prozentbereich. Wo hingegen Zweiterer die Endenergie wiederum reduziert. Korrekturen auf Grund der Zitterbewegung und des Elektronenspins spielen eine wesentlich geringere Rolle im betrachteten Parameterbereich. Die angestellten Berechnungen basieren auf der SFA in der Längeneichung. Die Verwendung der Längeneichung zur Beschreibung des atomaren Ionisationsprozesses ist für den nicht-relativistischen Parameterbereich durch Vergleich mit der numerischen Lösung der Schrödinger-Gleichung bestätigt und wird hier im schwach-relativistischen Parameterbereich ohne weitere Rechtfertigung benutzt. Im folgenden Kapitel soll nun die Wahl der Eichung in der relativistischen SFA allgemein analysiert und ein formaler Weg vorgestellt werden, wie man den atomaren Ionisationsprozess in der SFA eichinvariant darstellt und somit das Problem der Wahl der richtigen Eichung in der SFA löst.



### 3 Die eichinvariante relativistische SFA

Die Basis der theoretischen Beschreibung der Ionisation eines Atoms durch ein Laserfeld in dieser Arbeit ist die SFA. Sie erlaubt eine analytische Behandlung des Problems. Im Gegensatz zur exakten Theorie ist die SFA, wie jede Näherung, nicht zwangsläufig eichinvariant [63]. Wie in Ref. [64] gezeigt wurde, können sich die Resultate für die Ionisationswahrscheinlichkeiten, die in unterschiedlichen Eichungen erlangt wurden, sogar wesentlich unterscheiden. Diese Tatsache verlangt nun natürlich eine Untersuchung welche Eichung adäquat ist. Im nicht-relativistischen Parameterbereich existieren mehrere Arbeiten die durch Vergleich der SFA-Resultate mit exakten Ergebnissen den Gebrauch der SFA in der Längeneichung nahe legen. Auf theoretischer Seite ist dies die numerische Lösung der Schrödinger-Gleichung des Ionisationsprozesses eines negativen Ions mit kurzreichweitigem Potenzial [42] sowie die analytische Behandlung der Ionisation aus einem Zero-Range-Potenzial [65], auf experimenteller Seite die Above-Threshold-Ablösung bei dem negativen Ion  $F^-$  [66]. Auch das eher intuitive Bild, vorgestellt in Ref. [67] bestätigt den Gebrauch der Längeneichung: So sind hier, wie schon der Name sagt, große Entfernungen bei der Berechnung des Übergangsmatrixelements wichtig. Dort allerdings spielt das Potenzial des atomaren Kerns keine Rolle, so dass die in der SFA gemachte Ersetzung der Coulomb-Volkov-Zustände durch Volkov-Zustände das Endergebnis nur gering beeinflusst.

Im relativistischen Parameterbereich existieren bis dato weder experimentelle noch theoretische Untersuchungen, die die Frage nach der Wahl der richtigen Eichung in der SFA beantworten könnten. Sie soll in diesem Kapitel beantwortet werden. Grundlage der Argumentation ist die Erkenntnis, dass im nicht-relativistischen Parameterbereich die SFA in der Längeneichung die geeignete Beschreibung des Ionisationsprozesses eines atomaren Systems in einem Laserfeld liefert. Hieraus kann eine eichinvariante SFA entwickelt werden, die die selben Resultate wie die konventionelle SFA in der Längeneichung ergibt. Der Formalismus zur Erlangung dieser eichinvarianten SFA wird auf den relativistischen Parameterbereich unter Berücksichtigung der jetzt relativistischen quantendynamischen Gleichungen angewandt. Diese nun eichinvariante relativistische SFA stimmt im nicht-relativistischen Limes mit den Resultaten basierend auf der SFA in der Längeneichung überein und ihre Verwendung scheint somit gerechtfertigt.

### 3.1 Motivation

Im Folgenden soll die Prozedur zur Erlangung der eichinvarianten SFA plausibel gemacht werden. Hierzu werden die anschaulichen Argumente aus Ref. [42], die den Gebrauch der SFA in der Längeneichung rechtfertigen, noch einmal wiederholt. Die SFA basiert auf zwei Annahmen: 1) Der atomare Grundzustand wird nicht vom Laserfeld beeinflusst. 2) Das freigesetzte Elektron wird nur vom Laserfeld beeinflusst, der Beitrag des atomaren Potentials kann vernachlässigt werden. Dies rechtfertigt die Ersetzung der exakten Kontinuumszustände durch die Volkov-Zustände, die das freie Elektron im Laserfeld beschreiben [68, 69].

Beginnen wir mit dem exakten Ausdruck für die Ionisationsamplitude [15]

$$M_{\mathbf{p}} = -i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \langle \Psi_{\mathbf{p}}(\tau) | H_{int}(\tau) | \Psi_0(\tau) \rangle, \quad (3.1)$$

wobei  $\Psi_{\mathbf{p}}(\tau)$  die exakte Wellenfunktion des Kontinuumszustandes im atomaren Potential und Laserfeld ist.  $\Psi_0(\tau)$  ist der gebundene Ausgangszustand in dem sich das Elektron vor der Wechselwirkung mit dem Laserfeld befindet.  $H_{int}$  ist der Laser-Atom-Wechselwirkungsoperator;  $H_{int} = \mathbf{E} \cdot \mathbf{r} \equiv H_I^{(l)}$  in der Längeneichung, bzw.  $H_{int} = \mathbf{A} \cdot \hat{\mathbf{p}}/c + \mathbf{A}^2/2c^2 \equiv H_I^{(v)}$  in der Geschwindigkeitseichung, mit dem elektrischen Feld des Lasers  $\mathbf{E}$ , seinem Vektorpotential  $\mathbf{A}$ , dem Impulsoperator  $\hat{\mathbf{p}}$  und der Lichtgeschwindigkeit  $c$ . Nach dem Ersetzen der exakten Kontinuumswellenfunktion  $\Psi_{\mathbf{p}}(\tau)$  in (3.1) durch die Volkov-Wellenfunktion  $\Psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(\tau)$  [68, 69] ergibt sich:

$$M_{\mathbf{p}} = -i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \langle \Psi_{\mathbf{p}}^{(V)}(\tau) | H_{int}(\tau) | \Psi_0(\tau) \rangle. \quad (3.2)$$

Diese Amplitude kann wie folgt interpretiert werden [42]: bis zum Zeitpunkt  $t < \tau$  befindet sich das Elektron im ungestörten gebundenen Ausgangszustand  $\Psi_0(t)$ , zum Zeitpunkt  $t = \tau$  wird das Elektron durch die Laser-Atom-Wechselwirkung  $H_{int}(t)$  freigesetzt und dann durch den Volkov-Zustand beschrieben. Nur die Längeneichung ist mit diesem Bild konsistent [42], da nur in dieser Eichung der Zustand  $\Psi_0(t)$  zum Zeitpunkt  $t < \tau$ , wenn das Laserfeld schon angeschaltet ist, gleichzeitig ein Eigenzustand des *physikalischen* Energieoperators des Atoms im Laserfeld [70]

$$\hat{\mathcal{E}} = (\hat{\mathbf{p}} + \mathbf{A}/c)^2/2 + V. \quad (3.3)$$

und ein Eigenzustand des freien Hamiltonian  $H_0 = \hat{\mathbf{p}}^2/2 + V(\mathbf{r})$  ist. Der Grund hierfür ist das Verschwinden des Vektorpotentials  $\mathbf{A} = 0$  in der Längeneichung.  $V$  sei das atomare Potential.

Die exakte Amplitude (3.1) ist eichinvariant, während die Amplitude (3.2) in der SFA dies nicht ist. Dies bedeutet nichts anderes, als dass die konventionelle SFA unterschiedliche

Resultate in den unterschiedlichen Eichungen liefert. Physikalisch kann man diese Tatsache so verstehen, dass die unterschiedlichen Eichungen über die Ersetzung der exakten Wellenfunktion durch die eichungsabhängigen Volkov-Wellenfunktionen unterschiedlichen physikalischen Näherungen entsprechen und dass nur die Längeneichung gleichzeitig die beiden obigen Gültigkeitsvoraussetzungen der SFA erfüllt.

Ein zum Ionisationsprozess verwandtes Problem ist der störungstheoretische Übergang zwischen gebundenen atomaren Zuständen in einem Laserfeld (siehe z.B. [70]-[79]). Dieser soll im Folgenden kurz dargestellt werden. Beschreibt man den atomaren Übergang störungstheoretisch, so wird der gesamte Hamiltonian normalerweise in zwei Teile  $H = H_0 + H_{int}$  aufgespalten, den freien atomaren Hamiltonian  $H_0$  und den Laser-Atom-Wechselwirkungsoperator  $H_{int}$ . Wenn der freie atomare Hamiltonian  $H_0$  als der ungestörte Hamiltonian betrachtet wird und die gestörte Wellenfunktion bezüglich Eigenfunktionen von  $H_0$  entwickelt wird, dann werden die Übergangswahrscheinlichkeiten durch die Matrixelemente des Hamiltonian  $H_{int}$  ausgedrückt. Dieser hängt nun von der Eichung ab und ist in der Längeneichung durch  $H_I^{(l)}$ , in der Geschwindigkeitseichung durch  $H_I^{(v)}$  gegeben. Diese Matrixelemente sind für nicht-resonante Übergänge wieder eichungsabhängig. In [72] wurde dieses Problem gelöst, indem man eine spezielle Basis für die Ausgangs- und Endzustände wählt. Es wird angenommen, dass die Laser-induzierten Übergänge im atomaren System durch Übergänge zwischen Eigenzuständen des *physikalischen* Energieoperators  $\hat{\mathcal{E}}$  aus Gl. (3.3) und nicht zwischen Eigenzuständen des ungestörten Hamiltonian  $H_0$  [70] dargestellt werden. Die Störungstheorie bezüglich der Eigenzustände des physikalischen Energieoperators ist dann eichinvariant und führt auf eichinvariante Übergangsamplituden [79]. Nichtsdestotrotz gibt es einen wichtigen Unterschied zur SFA. Falls das Laserfeld in der Störungstheorie für atomare Übergänge adiabatisch an- und abgeschaltet wird, verschwindet die Eichabhängigkeit der Übergangsamplitude [76, 77], während sie in der SFA bestehen bleibt.

Im Folgenden soll nun die modifizierte eichinvariante SFA, sowohl im nicht-relativistischen Parameterbereich basierend auf der Schrödinger-Gleichung, als auch im relativistischen Parameterbereich basierend auf der Klein-Gordon- bzw. der Dirac-Gleichung entwickelt und damit die direkte Ionisation von atomaren Systemen in starken Laserfeldern beschrieben werden (siehe Abb. 3.1).

## 3.2 Der nicht-relativistische Parameterbereich

Wir betrachten den Ionisationsprozess eines atomaren Systems in einem beliebigen linear polarisierten Laserfeld. Weiterhin wird die Single-Active-Electron-Approximation angewendet, d.h. die Wechselwirkung des freigesetzten Elektrons mit dem atomaren Kern inklusive seiner noch gebundenen Elektronen wird durch ein effektives statisches Short-Range-

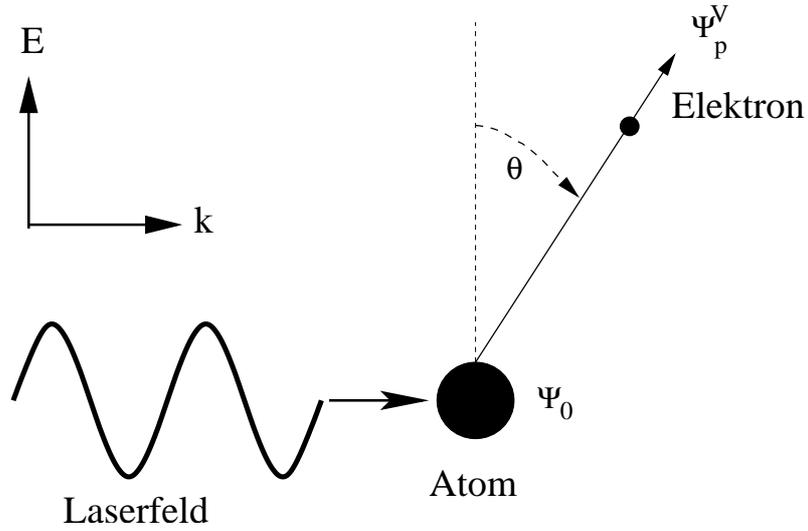


Abbildung 3.1: Schema des Ionisationsprozesses eines Atoms durch ein in  $\mathbf{k}$ -Richtung einlaufendes Laserfeld mit elektrischer Feldstärke  $\mathbf{E}$  in Polarisationsrichtung. Das betrachtete Elektron befindet sich vor der Wechselwirkung im Grundzustand  $\Psi_0$ . Als Endzustand wird der Volkov-Zustand  $\Psi_{\mathbf{p}}^V$  mit Driftimpuls  $\mathbf{p}$  angenommen.  $\theta$  ist der Emissionswinkel.

Potenzial dargestellt [39]. Der Ionisationsprozess wird dann durch die Wellenfunktion des aktiven Elektrons beschrieben, dessen zeitliche Evolution für Laserfelder mit Intensitäten bis zu  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> und suboptischen Frequenzen durch die Schrödinger-Gleichung definiert ist:

$$i\partial_t\Psi = \left\{ (\hat{\mathbf{p}} + \mathbf{A}/c)^2/2 + V - \phi \right\} \Psi, \quad (3.4)$$

wobei  $\phi$  und  $\mathbf{A}$  das skalare und das Vektorpotenzial des Laserfeldes sind.  $V$  ist das atomare Short-Range-Potenzial,  $\hat{\mathbf{p}}$  der Impulsoperator,  $t$  die Zeit. Es sei bemerkt, dass die Eichung im Moment noch nicht festgelegt ist. Weiterhin kann die Dipolnäherung angewendet werden, da die Wellenlänge des Lasers im betrachteten nicht-relativistischen Parameterbereich wesentlich größer ist als die charakteristische Länge der Elektronenbewegung.

Um nun diese Bewegungsgleichung (3.4) analytisch zu lösen wenden wir die SFA an. Dies bedeutet einerseits, dass der Einfluss des Laserfeldes auf den Grundzustand, insbesondere der Stark-Effekt und die Entvölkerung des Grundzustandes, sowie Beiträge von anderen gebundenen Zuständen auf den Prozess nicht berücksichtigt werden. Andererseits wird angenommen, dass das ionisierte Elektron nur noch mit dem Laserfeld wechselwirkt, während das atomare Potenzial vernachlässigt wird.

Die zeitabhängige Wellenfunktion des Atoms im Laserfeld zu einem Zeitpunkt  $t$  während

### 3.2 Der nicht-relativistische Parameterbereich

der Wechselwirkung stellen wir durch eine Überlagerung des ungestörten Grundzustandes mit dem ionisierten Zustand dar:

$$\Psi(t) = \Psi_0(t) + \tilde{\Psi}(t), \quad (3.5)$$

wobei  $\Psi_0(t)$  das Elektron im Grundzustand und  $\tilde{\Psi}(t)$  das ionisierte Elektron beschreibt. Der ionisierte Teil des Zustandes muss vor der Wechselwirkung  $t \rightarrow -\infty$  verschwinden:  $\tilde{\Psi}(t) \rightarrow 0$ . Wie schon erwähnt, soll der Grundzustand in der SFA nicht vom Laserfeld beeinflusst sein,  $\Psi_0(t)$  sollte deshalb ein Eigenzustand des Energieoperators des ungestörten Atoms mit einem negativen Eigenwert  $\varepsilon_0$  sein:

$$\{(\hat{\mathbf{p}} + \mathbf{A}/c)^2/2 + V\} \Psi_0 = \varepsilon_0 \Psi_0. \quad (3.6)$$

Zu einem Zeitpunkt während der Wechselwirkung an dem  $\mathbf{A}(t) \neq 0$  gilt, ist der physikalische Energieoperator nun allerdings nicht identisch mit dem atomaren Hamiltonian  $H_0 = \hat{\mathbf{p}}^2/2 + V$ .

Der Teil der Wellenfunktion, der die Ionisation beschreibt kann im Allgemeinen mittels einer Entwicklung durch Floquet-Eigenzustände des ganzen Hamiltonian dargestellt werden. Hiermit ist es nun möglich den folgenden Ansatz für die gesamte Wellenfunktion anzugeben:

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \Psi_0(\mathbf{r}, t) + \sum_n c_n(t) \Psi_n(\mathbf{r}, t), \quad (3.7)$$

mit  $\Psi_0(\mathbf{r}, t) = \Phi_0(\mathbf{r}, t) \exp(-i\varepsilon_0 t)$ .  $n$  sind die Quantenzahlen der Floquet-Eigenzustände. Die Floquet-Eigenzustände  $\Psi_n(t) = \exp(-i\varepsilon_n t) \Phi_n(\mathbf{r}, t)$  mit der Quasi-Energie  $\varepsilon_n$  und der periodischen Quasi-Energie-Wellenfunktion  $\Phi_n(\mathbf{r}, t)$  (mit der gleichen Periode wie das Laserfeld) sind Eigenzustände des totalen Hamiltonian

$$i\partial_t \Psi_n = \{(\hat{\mathbf{p}} + \mathbf{A}/c)^2/2 + V - \phi\} \Psi_n. \quad (3.8)$$

Die orthonormalen Floquet-Eigenzustände bilden die Menge der möglichen Endzustände des Systems. Im Rahmen der SFA werden diese exakten Floquet-Eigenzustände durch Volkov-Zustände ersetzt was der Vernachlässigung des Einflusses des Atomkerns auf das freigesetzte Elektron entspricht.

Die Schrödinger-Gleichung (3.4) mit dem Ansatz (3.7) führt auf folgenden Ausdruck für die Koeffizienten  $c_n(t)$ :

$$c_n(t) = i \int_{-\infty}^t e^{-i\varepsilon_0 \tau} d\tau \int d^3\mathbf{r} \Psi_n^*(\mathbf{r}, \tau) \{\phi + i\partial_\tau\} \Phi_0(\mathbf{r}, \tau). \quad (3.9)$$

In der Dipolnäherung ist das Vektorpotenzial  $\mathbf{A} = \mathbf{A}(t)$  nicht von den Ortskoordinaten abhängig. Unter dieser Annahme ist Gl. (3.6) durch die Wellenfunktion des gebundenen Zustandes des Elektrons exakt lösbar

$$\Phi_0(\mathbf{r}, t) = \phi_0(\mathbf{r}) \exp(-i\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r}/c), \quad (3.10)$$

### KAPITEL 3. Eichinvariante relativistische SFA

wobei  $\phi_0(\mathbf{r})$  der Eigenzustand des Hamiltonian  $H_0$  ist.

Wenn man nun den Ausdruck für den elektronischen Ausgangszustand (3.10) in Gl. (3.9) einsetzt, die Definition für das elektrische Laserfeld  $\mathbf{E}(t) = -\nabla\phi - \partial_t\mathbf{A}(t)/c$ , die lineare Ortsabhängigkeit von  $\phi$  (resultierend aus der Ortsunabhängigkeit von  $\mathbf{E}$ ) und das Verschwinden des ionisierten Wellenpaketes für  $t \rightarrow -\infty$  benutzt, folgt für die Übergangsamplitude

$$c_n(t) = -i \int_{-\infty}^t d\tau \langle \Psi_n(\tau) | \mathbf{E}(\tau) \cdot \mathbf{r} | \Psi_0(\tau) \rangle. \quad (3.11)$$

Diese Formel für die Übergangsamplitude wurde ohne Festlegung der Eichung hergeleitet. Sie ist mittels der exakten Floquet-Eigenzuständen des totalen Hamiltonian dargestellt und somit immer noch exakt. Es sei bemerkt, dass der Ausdruck in Gl. (3.11) mit der entsprechenden nicht-relativistischen Übergangsamplitude in Ref. [67] (vergleiche mit Eq. (A3) hierin) übereinstimmt. Beide Ausdrücke sind somit eichinvariant und forminvariant unter Eichtransformationen.

Die Anwendung der SFA entspricht nun mathematisch der Ersetzung der exakten Floquet-Eigenzustände des totalen Hamiltonian  $\Psi_n$  durch die Floquet-Eigenzustände des Elektrons im Laserfeld ohne atomares Potenzial, also den nicht-relativistischen Volkov-Wellenfunktionen  $\Psi_{\mathbf{p}}^V$  mit Driftimpuls  $\mathbf{p}$ . Diese erfüllen die Gleichung

$$i\partial_t\Psi_{\mathbf{p}}^V = ((\hat{\mathbf{p}} + \mathbf{A}/c)^2/2 - \phi) \Psi_{\mathbf{p}}^V. \quad (3.12)$$

In der Geschwindigkeitseichung sind die nicht-relativistischen Volkov-Wellenfunktionen explizit gegeben durch

$$\check{\Psi}_{\mathbf{p}}^V(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{\sqrt{(2\pi)^3}} \exp \left\{ i\mathbf{p} \cdot \mathbf{r} + \frac{i}{2} \int_t^\infty d\tau \left( \mathbf{p} + \frac{\check{\mathbf{A}}(\tau)}{c} \right)^2 \right\}. \quad (3.13)$$

Im Limes  $t \rightarrow \infty$  führt dies dann auf ebene Wellen mit Impuls  $\mathbf{p}$ . Weiterhin gilt:

$$\check{\mathbf{A}}(t) \equiv -c \int \mathbf{E}(t) dt. \quad (3.14)$$

Durch eine entsprechende Eichtransformation lässt sich dann der Volkov-Zustand in einer anderen Eichung darstellen.

Die Amplitude für die Emission eines ATI-Elektrons mit Impuls  $\mathbf{p}$  ist gegeben durch:

$$M_{\mathbf{p}} = \lim_{t \rightarrow \infty} c_{\mathbf{p}}(t). \quad (3.15)$$

Unter Ausnutzung von Gl. (3.11) erhält man dann die Ionisationsamplitude in der SFA

$$M_{\mathbf{p}} = -i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \langle \Psi_{\mathbf{p}}^V(\tau) | \mathbf{E}(\tau) \cdot \mathbf{r} | \Psi_0(\tau) \rangle. \quad (3.16)$$

Es sei betont, dass der Ausgangszustand  $\Psi_0(t)$  über Gl. (3.10) als Eigenzustand des physikalischen Energieoperators bestimmt ist. Dasselbe gilt für den Volkov-Zustand.

Die Übergangsamplitude in Gl. (3.9) kann durch eine partielle Integration über die Zeit-Koordinate bezüglich der Volkov-Wellenfunktion und unter Ausnutzung des Komplex-Konjugierten der Gl. (3.13) auf eine gebräuchlichere Form gebracht werden:

$$M_{\mathbf{p}} = -i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \int d^3\mathbf{r} \Psi_0(\mathbf{r}, \tau) \{ \varepsilon_0 - (\hat{\mathbf{p}} - \mathbf{A}(\tau)/c)^2 / 2 \} \Psi_{\mathbf{p}}^{V*}(\mathbf{r}, \tau). \quad (3.17)$$

Für die Übergangsamplitude folgt dann:

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} &= -i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \langle \Psi_{\mathbf{p}}^V(\tau) | V | \Psi_0(\tau) \rangle \\ &= -i \int_{-\infty}^{\infty} dt' \langle \mathbf{p} + \frac{\check{\mathbf{A}}(t')}{c} | V | 0 \rangle e^{-iS(\mathbf{p}, t, t')}, \end{aligned} \quad (3.18)$$

wobei  $\langle \mathbf{p} | V | 0 \rangle$  das Matrixelement des atomaren Potentials ist,  $S(\mathbf{p}, t, t') = \int_{t'}^t d\tau \{ (\mathbf{p} + \check{\mathbf{A}}(\tau)/c)^2 / 2 + I_p \}$  die quasi-klassische Wirkung und  $I_p$  das Ionisationspotential.

Die Ausdrücke für die Übergangsamplitude in den Gl.en (3.16) und (3.18) sind für jede Eichung gültig und damit auch eichinvariant. Weiterhin sei bemerkt, dass sie mit der Ionisationsamplitude übereinstimmt, die mittels der konventionellen SFA in der Längeneichung abgeleitet wurde.

### 3.3 Der Klein-Gordon-Parameterbereich

Falls Spin-Effekte [80] keine Bedeutung haben, kann die Dynamik des ionisierten Elektrons mittels der Klein-Gordon-Gleichung für die Wellenfunktion  $\Psi(\mathbf{x})$  beschrieben werden:

$$\left\{ (i\partial^\mu + A^\mu/c - g^{\mu 0}V/c)^2 - c^2 \right\} \Psi(\mathbf{x}) = 0 \quad (3.19)$$

mit  $\mu \in \{0, 1, 2, 3\}$ .  $A^\mu = (\phi, \mathbf{A})$  ist das Vektorpotential eines beliebigen linear polarisierten Laserfeldes. Die Eichung sei noch nicht festgelegt.  $\mathbf{x} = (ct, x, y, z)$  ist die Raum-Zeit-Koordinate,  $k^\mu = (\omega/c, 0, 0, k)$  der Wellenvektor,  $\omega = ck$  die Kreisfrequenz des Laserfeldes, und  $g^{\mu\nu}$  der metrische Tensor.

Wir gehen gleich vor wie im nicht-relativistischen Fall und verwenden den Ansatz (3.7) für die Wellenfunktion. Die Wellenfunktion des Ausgangszustandes  $\Psi_0 = \Phi_0 \exp(-i \int \varepsilon_0 d\tau)$  ist nun wiederum ein Eigenzustand des physikalischen Energieoperators und im Klein-Gordon-Fall gegeben durch:

$$\{ (\varepsilon_0 - V)^2 / c^2 - (\hat{\mathbf{p}} + \mathbf{A}/c)^2 - c^2 \} \Phi_0(\mathbf{x}) = 0. \quad (3.20)$$

### KAPITEL 3. Eichinvariante relativistische SFA

Wir nehmen an, dass sich das Atom ursprünglich im Grundzustand mit der Grundzustandsenergie  $\varepsilon_0$  befindet. Die Floquet-Eigenzustände  $\Psi_n(t)$  des totalen Hamiltonian erfüllen die Klein-Gordon-Gleichung (3.19).

Einsetzen von Gl. (3.7) in Gl. (3.19) führt nun auf

$$\begin{aligned} \sum_n \{ \dot{c}_n(t) \Psi_n(\mathbf{x}) + 2\dot{c}_n(t) \partial_t \Psi_n(\mathbf{x}) + 2i(V - \phi) \dot{c}_n(t) \Psi_n(\mathbf{x}) \} \\ = \{ (i\partial_t + \phi - V)^2 - (\varepsilon_0 - V)^2 \} \Psi_0(\mathbf{x}), \end{aligned} \quad (3.21)$$

wobei Punkte Zeitableitungen darstellen. Die Projektion der Gl. (3.21) auf einen Zustand  $\Psi_k$  und darauffolgende Zeitintegration unter Ausnutzung der Orthonormalität der Zustände:

$$\int d^3\mathbf{r} \{ i(\Psi_k^* \partial_{ct} \Psi_n - \Psi_n \partial_{ct} \Psi_k^*) - 2(V/c - \phi/c) \Psi_k^* \Psi_n \} = \delta_{kn}, \quad (3.22)$$

liefert für die Übergangsamplitude

$$\begin{aligned} M_n &= i \int d^4\mathbf{x} \Psi_n^*(\mathbf{x}) \{ -\partial_{ct}^2 \Phi_0(\mathbf{x}) + 2i[\varepsilon_0/c + \phi/c - V/c] \partial_{ct} \Phi_0(\mathbf{x}) \\ &+ [i\dot{\varepsilon}_0/c^2 + i\partial_{ct} \phi/c - 2\phi/c^2 (V - \varepsilon_0) + \phi^2/c^2] \Phi_0(\mathbf{x}) \} e^{-i \int \varepsilon_0 d\tau}. \end{aligned} \quad (3.23)$$

Die Übergangsamplituden in der SFA werden dann wieder erlangt, indem man die exakten Floquet-Eigenzustände  $\Psi_n(\mathbf{x})$  in Gl. (3.23) durch Volkov-Wellenfunktionen des Elektrons im Laserfeldes  $\Psi_{\mathbf{p}}^V(\mathbf{x})$  ersetzt:

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} &= i \int d^4\mathbf{x} \Psi_{\mathbf{p}}^{V*}(\mathbf{x}) \{ -\partial_{ct}^2 \Phi_0(\mathbf{x}) + 2i[\varepsilon_0/c + \phi/c - V/c] \partial_{ct} \Phi_0(\mathbf{x}) \\ &+ [i\dot{\varepsilon}_0/c^2 + i\partial_{ct} \phi/c - 2\phi/c^2 (V - \varepsilon_0) + \phi^2/c^2] \Phi_0(\mathbf{x}) \} e^{-i \int \varepsilon_0 d\tau}. \end{aligned} \quad (3.24)$$

Die Volkov-Wellenfunktion wird durch die Klein-Gordon-Gleichung für das Elektron im Laserfeld beschrieben:

$$\{ (i\partial^\mu + A^\mu/c)^2 - c^2 \} \Psi_{\mathbf{p}}^V(\mathbf{x}) = 0. \quad (3.25)$$

In der Geschwindigkeitseichung ergibt sich für die Volkov-Wellenfunktion [21]:

$$\check{\Psi}_{\mathbf{p}}^V(\mathbf{x}) = \frac{\sqrt{c}}{\sqrt{2(2\pi)^3 \varepsilon_{\mathbf{p}}}} \exp \left\{ -i \mathbf{p} \cdot \mathbf{x} + i \int_{\eta}^{\infty} d\tilde{\eta} \frac{(\mathbf{p} + \check{\mathbf{A}}(\tilde{\eta})/2c) \cdot \check{\mathbf{A}}(\tilde{\eta})/c}{\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}} \right\}, \quad (3.26)$$

mit  $\varepsilon_{\mathbf{p}} = \sqrt{c^2 \mathbf{p}^2 + c^4}$ , dem Energie-Impuls-Vektor  $\mathbf{p} = (E_{\mathbf{p}}, \mathbf{p})$ , der Phase des Laserfeldes  $\eta = k^\mu x_\mu \equiv \mathbf{k} \cdot \mathbf{x}$  und  $\check{\mathbf{A}}(\eta)$  definiert in Gl. (3.14).

Eine partielle Integration des Ausdrucks in Gl. (3.23), unter Berücksichtigung von Gl. (3.25), vereinfacht die Ionisationsamplitude auf den folgenden Ausdruck

$$M_{\mathbf{p}} = i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \langle \Psi_{\mathbf{p}}^V(\tau) | V^2/c - 2iV\partial_{ct} - 2\phi V/c | \Psi_0(\tau) \rangle. \quad (3.27)$$

Die Ausdrücke für die Übergangsamplitude in den Gl.en (3.24) und (3.27) sind für jede Eichung gültig. Unter Benutzung der Gleichungen für den Anfangs- und Endzustand (3.20), (3.25) kann weiterhin gezeigt werden, dass die Übergangsamplituden der Gl.en (3.24) und (3.27) invariant sind unter der Eichtransformation:

$$\begin{aligned} \Psi'_0 &= e^{if(\mathbf{x})}\Psi_0; & \Psi_{\mathbf{p}}^{V'} &= e^{if(\mathbf{x})}\Psi_{\mathbf{p}}^V \\ \mathbf{A}' &= \mathbf{A} - \nabla f(\mathbf{x}); & \phi' &= \phi + \partial_t f(\mathbf{x}). \end{aligned} \quad (3.28)$$

Die Ausdrücke für die Übergangsamplituden können weiter vereinfacht werden. Hierzu benötigt man allerdings einen expliziten Ausdruck für den Ausgangszustand. Dieser ist ein Eigenzustand des physikalischen Energieoperators und erfüllt Gl. (3.20), die allerdings nicht exakt gelöst werden kann. Diese Gleichung kann aber vereinfacht werden, indem man den kleinen Parameter: das Verhältnis der Geschwindigkeit  $v_a = Z$  des gebundenen Elektrons zur Lichtgeschwindigkeit  $c$  verwendet, wobei  $Z$  die Ladungszahl des atomaren Ions ist. Am einfachsten lässt sich diese Näherung in der Eichung durchführen, in der der Operator des kanonischen Impulses nicht wesentlich vom Operator des kinetischen Impulses abweicht. Im nicht-relativistischen Grenzfall ist dies die Längeneichung, in der die beiden Operatoren identisch sind. In der relativistischen Beschreibung hat die Göppert-Mayer-Eichung diese Eigenschaft. Sie ist die relativistische Verallgemeinerung der Längeneichung und ist anwendbar auf ebene Wellen.

Benutzt man nun die Göppert-Mayer-Eichung [21, 81]:

$$\tilde{\phi} = -\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}; \quad \tilde{\mathbf{A}} = -c \frac{\mathbf{k}}{\omega} (\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}), \quad (3.29)$$

zur Beschreibung des Prozesses mittels Gl. (3.20), erhält man für die Wellenfunktion  $\tilde{\Phi}_0(\mathbf{x})$  in dieser Eichung:

$$\left\{ \frac{[\varepsilon_0 - V]^2}{c^2} - \left[ \hat{\mathbf{p}} - \frac{\mathbf{k}}{\omega} (\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}) \right]^2 - c^2 \right\} \tilde{\Phi}_0(\mathbf{x}) = 0. \quad (3.30)$$

Im nächsten Schritt werden die unterschiedlichen Terme in Gl. (3.30) für ein Wasserstoffähnliches Atom im moderat-relativistischen Parameterbereich mit einem relativistischen Parameter  $\xi \equiv A_0/c^2 \sim 1$  abgeschätzt, wobei  $A_0$  die Amplitude des Vektorpotenzials ist. Unter Vernachlässigung des Stark-Effekts auf den atomaren Grundzustand kann für seine Energie  $\varepsilon_0 \approx c^2 - I_p$  angenommen werden. Eine grobe Abschätzung für die Koordinaten  $x$ ,

### KAPITEL 3. Eichinvariante relativistische SFA

$z$  und Impulse  $p_x, p_z$  des gebundenen Elektrons in Laserpolarisations- bzw. propagationsrichtung, ergibt  $x \sim z \sim 1/Zc\alpha \sim 1/\sqrt{I_p}$  und  $p_x \sim p_z \sim Zc\alpha \sim \sqrt{I_p}$ . Eine Abschätzung des Vektorpotenzials ergibt:  $\tilde{A} \approx Ex \sim \xi\omega/Z\alpha$ . Das Verhältnis  $\tilde{A}/cp_x \sim \xi\omega/I_p$  ist von der Größenordnung  $10^{-3}$  für die Parameterwahl  $\xi \sim 1$ ,  $\omega \approx 1$  eV und  $Z^2 \approx 10$ . Es ist deshalb gerechtfertigt den kinetischen Impuls durch den kanonischen anzunähern. Präziser, für ein Wasserstoff-ähnliches Atom wie z. B.  $B^{4+}$  mit einem Ionisationspotenzial von  $I_p = 12.5$  a.u., einem Laserfeld mit  $\xi = 0.5$  und einer suboptischen Kreisfrequenz  $\omega = 0.05$  a.u., erhalten wir für die Terme in Gl. (3.30) folgende abgeschätzten Werte:

$$\begin{aligned} O(V/c^2) &\sim I_p/c^2 \sim 7 \times 10^{-4} \\ O(p^2/c^2) &\sim I_p/c^2 \sim 7 \times 10^{-4} \\ O(2(\mathbf{E}\mathbf{r})p_z/c^3) &\sim \xi\omega/c^2 \sim 10^{-6} \\ O((\mathbf{E}\mathbf{r})^2/c^4) &\sim \xi^2\omega^2 I_p/c^2 \sim 4 \times 10^{-7}. \end{aligned} \quad (3.31)$$

Folglich, kann die Gleichung für die Grundzustandswellenfunktion in der Göppert-Mayer-Eichung durch die nicht-relativistische Schrödinger-Gleichung für das Elektron im atomaren Potenzial  $V$  angenähert werden:

$$\{\hat{\mathbf{p}}^2/2 + V + I_p\} \tilde{\Phi}_0(\mathbf{x}) = 0. \quad (3.32)$$

Dies bedeutet nun aber, dass für die Grundzustandswellenfunktion die nicht-relativistische Grundzustandswellenfunktion angegeben werden kann:

$$\tilde{\Phi}_0(\mathbf{x}) = \phi_0(\mathbf{x}) \exp\{-i(c^2 - I_p)t\} \sqrt{c}/\sqrt{2(c^2 - I_p)} \quad (3.33)$$

In jeder anderen Eichung wird die Wellenfunktion des Grundzustandes durch eine Eichtransformation der Funktion  $\tilde{\Phi}_0(\mathbf{x})$  erlangt.

Mit der gefundenen Näherung für den Grundzustand (4.7), kann nun die Ionisationsamplitude vereinfacht werden. Einsetzen in Gl. (3.24) liefert

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} &= i \int d^4x \Psi_{\mathbf{p}}^{V*}(\mathbf{x}) \{(\mathbf{E} \cdot \mathbf{r})^2/c^2 - 2(c^2 - I_p + V)\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}/c^2 - i\omega \mathbf{E}' \cdot \mathbf{r}/c^2\} \Psi_0(\mathbf{x}) \\ &\approx -2i \int d^4x \Psi_{\mathbf{p}}^{V*}(\mathbf{x}) (\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}) \Psi_0(\mathbf{x}), \end{aligned} \quad (3.34)$$

wobei die Striche Ableitungen nach der Laserphase bedeuten.

Analog hierzu ergibt sich für Gl. (3.27):

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} &= i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \langle \Psi_{\mathbf{p}}^V(\tau) | V^2/c - 2V(c^2 - I_p)/c + 2(\mathbf{E} \cdot \mathbf{r})V/c | \Psi_0(\tau) \rangle \\ &\approx -2ic \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \langle \Psi_{\mathbf{p}}^V(\tau) | V | \Psi_0(\tau) \rangle. \end{aligned} \quad (3.35)$$

Der letzte Ausdruck für die Amplitude kann nach einer Koordinatentransformation  $(t, \mathbf{r}) \rightarrow (\eta, \mathbf{r})$  auf die folgende Form gebracht werden

$$M_{\mathbf{p}} = -i \lim_{\eta \rightarrow \infty} \int_{-\infty}^{\infty} d\eta' \frac{c}{\sqrt{\varepsilon_{\mathbf{p}} \omega}} \left\langle \mathbf{p} + \frac{\check{\mathbf{A}}(\eta')}{c} - \frac{\mathbf{k}}{\omega} (\varepsilon_{\mathbf{p}} + I_p - c^2) |V| 0 \right\rangle \exp \{-iS(\mathbf{p}, \eta, \eta')\}, \quad (3.36)$$

wobei  $S(\mathbf{p}, \eta, \eta') = \int_{\eta'}^{\eta} d\tilde{\eta} (\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{p}}(\tilde{\eta}) - c^2 + I_p) / \omega$  die quasi-klassische Wirkung ist und die Energie des Elektrons gegeben ist durch

$$\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{p}}(\eta) = \varepsilon_{\mathbf{p}} + \frac{\omega}{\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}} \left( \mathbf{p} + \frac{\check{\mathbf{A}}(\eta)}{2c} \right) \cdot \frac{\check{\mathbf{A}}(\eta)}{c}. \quad (3.37)$$

Die Ionisationsamplituden in der eichinvarianten SFA (Glen (3.34) - (3.36)) unterscheiden sich von dem Standard-SFA-Ergebnis in der Geschwindigkeitseichung durch einen zusätzlichen Term  $\check{\mathbf{A}}(\eta)/c$  im Argument des Matrixelements  $\left\langle \mathbf{p} + \frac{\check{\mathbf{A}}(\eta')}{c} - \frac{\mathbf{k}}{\omega} (\varepsilon_{\mathbf{p}} + I_p - c^2) |V| 0 \right\rangle$ . Folglich ist das Verhältnis des Faktors vor der Exponentialfunktion zwischen eichinvarianter SFA und konventioneller SFA von der Größenordnung  $\sim p_x / (p_x + \check{A}) \sim \sqrt{U_p / I_p} \sim 1/\gamma$ . Dies folgt aus der genäherten Sattelpunktsbeziehung (Kapitel 4):  $(p_x + \check{A})^2 = 2I_p$ , wobei  $p_x$  von der Größenordnung  $\sqrt{U_p}$  ist, mit  $U_p = \left\langle \check{A}^2 / 2c^2 \right\rangle$ ,  $\kappa = \sqrt{2I_p}$ .  $\gamma \equiv \sqrt{I_p / 2U_p}$  ist der Keldysh-Parameter. Letzterer kann im relativistischen Parameterbereich für Tunnelionisationsprozesse klein sein. Der Parameterbereich für  $\xi$  und  $Z$ , in dem Tunnelionisation des Wasserstoff-ähnlichen Atoms stattfindet, ist in Abb. 3.2 als schattierter Bereich dargestellt. Dieser Bereich wird durch zwei Bedingungen definiert, die erste ist  $\gamma < 1$  und ist äquivalent zu:

$$\xi > \sqrt{2I_p / c^2}. \quad (3.38)$$

Die zweite gibt die obere Laserintensitätsgrenze für die Existenz einer Potenzialbarriere für das zu ionisierende Elektron an. Für noch höhere Intensitäten findet dann Over-the-Barrier-Ionisation statt und die SFA ist nicht mehr anwendbar:

$$\xi < \frac{\lambda}{8\pi a_B Z} \left( \frac{I_p}{c^2} \right)^2, \quad (3.39)$$

wobei  $\lambda$  die Laserwellenlänge und  $a_B$  der klassische Radius des Elektrons ist.

Wie man sehen kann, ist es im relativistischen Parameterbereich tatsächlich möglich Tunnelionisation bei einem kleinen Keldysh-Parameter vorzufinden. Somit kann der Unterschied zwischen den Ergebnissen, berechnet in der eichinvarianten SFA und denen in der konventionellen SFA in der Geschwindigkeitseichung, groß werden.

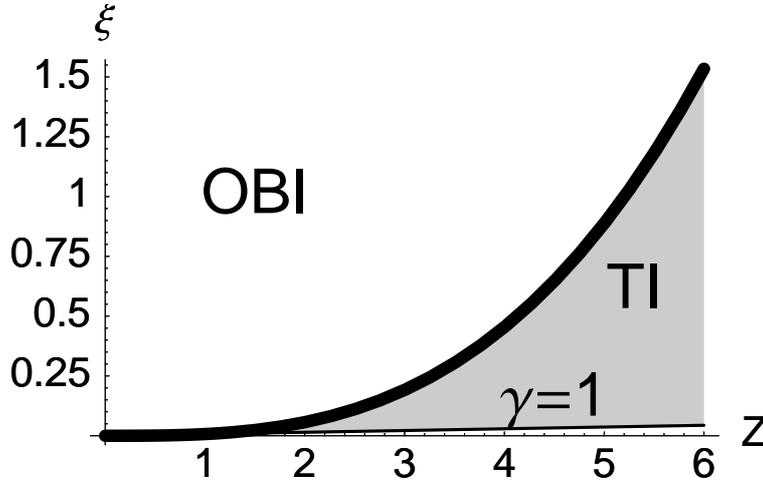


Abbildung 3.2: Darstellung des Parameterbereichs von  $\xi$  und  $Z$  in dem unterschiedliche Ionisationstypen des Wasserstoff-ähnlichen Atoms stattfinden. Die untere dünne Kurve beschreibt die Bedingung  $\gamma = 1$ . Tunnelionisation (TI) findet für Parameter statt, die in der schattierten Region liegen (siehe Gl. (3.38) und Gl. (3.39)), während Over-the-Barrier-Ionisation (OBI) für Parameter oberhalb der dicken Kurve vorliegt.

Um den Unterschied der Vorhersagen für die Ionisationswahrscheinlichkeit bezüglich der unterschiedlichen Versionen der SFA präzisieren zu können, haben wir die direkte Ionisationswahrscheinlichkeit aus Gl. (3.36) numerisch unter Ausnutzung der Sattelpunktmethode (siehe Anhang B) berechnet. Das atomare Potenzial in Gl. (3.36) wird durch Lewenstein's Short-Range-Potenzial ([47]) mit seinen Matrixelementen

$$\langle \mathbf{p} | V | 0 \rangle = \frac{\kappa^{3/2}}{2\pi p}; \quad V_{\mathbf{p}, \mathbf{q}} = \frac{\kappa}{4\pi^2 pq} \quad (3.40)$$

dargestellt.

In Abb. (3.3) werden die Ionisationswahrscheinlichkeiten, berechnet über die eichinvariante SFA (Gl. (3.36)) bzw. über die konventionelle SFA in Geschwindigkeitseichung (Gl. (3.36) mit dem freien atomaren Grundzustand als Ausgangszustand), verglichen. Der Unterschied zwischen den beiden Emissionsraten beträgt bis zu zwei Größenordnungen.

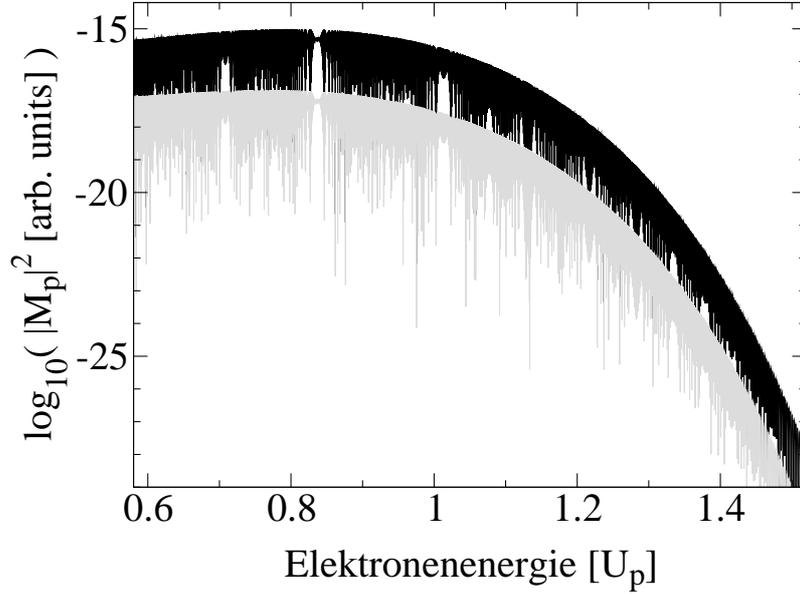


Abbildung 3.3: Photoelektronenspektrum in einem linear polarisierten Laserfeld mit einer Kreisfrequenz von  $\omega = 0.05$  a.u. und einer elektrischen Feldstärke von  $E = 3.4$  a.u. über  $\log_{10}(|M_{\mathbf{p}}|^2)$  aus Gl. (3.36) in beliebigen Einheiten, mit einem Endimpuls  $\mathbf{p} = (p_x, 0, p_z)$  und einem Emissionswinkel  $\theta = \arccos(p_x/p) = 0.18$  bezüglich der Laserpolarisationsrichtung. Das Modell-Potenzial wurde an  $B^{4+}$  angepasst. Die Ionisierungsenergie beträgt also  $I_p = 12.5$  a.u.. Die Elektronenenergie ist in Vielfachen der ponderomotiven Energie  $U_p$  skaliert. Das Photoelektronen-Spektrum in grau wurde mit der konventionellen SFA in der Geschwindigkeitseichung, das in schwarz mit der eichinvarianten SFA berechnet.

### 3.4 Der Dirac-Parameterbereich

In diesem Abschnitt verallgemeinern wir die eichinvariante SFA auf den relativistischen Parameterbereich, der durch die Dirac-Gleichung beschrieben wird:

$$i\partial_t\Psi = \{c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} + \mathbf{A}/c) - \phi + V + \beta c^2\} \Psi, \quad (3.41)$$

wobei  $\boldsymbol{\alpha}$  und  $\beta$  die entsprechenden Dirac-Matrizen sind.

Analog zur Schrödinger-Gleichung und dem Klein-Gordon-Fall, verwenden wir den Ansatz von Gl. (3.7) mit den Floquet-Eigenzuständen  $\Psi_n(\mathbf{x}) = \exp(-i\varepsilon_n t)\Phi_n(\mathbf{x})$  des totalen Hamiltonian, deren Quasi-Energie  $\varepsilon_n$  und den periodischen Quasi-Energie-Zuständen  $\Phi_n(\mathbf{x})$ :

$$i\partial_t\Psi_n = \{c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} + \mathbf{A}/c) - \phi + V + \beta c^2\} \Psi_n. \quad (3.42)$$

### KAPITEL 3. Eichinvariante relativistische SFA

Der Grundzustand  $\Psi_0(\mathbf{x}) = \exp(-i\varepsilon_0 t)\Phi_0(\mathbf{x})$  mit Energie  $\varepsilon_0$  ist ein Eigenzustand des physikalischen Energieoperators:

$$\{c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} + \mathbf{A}/c) + V + \beta c^2\} \Phi_0 = \varepsilon_0 \Phi_0. \quad (3.43)$$

Mittels der Orthonormalität der Floquet-Eigenzustände  $\langle \Phi_n | \Phi_k \rangle = \delta_{nk}$ , erhalten wir folgenden Ausdruck für die Koeffizienten  $c_n(t)$ :

$$c_n = i \int_{-\infty}^t dt \int d\mathbf{r} \Psi_n^\dagger(\mathbf{x}) \{(\phi + i\partial_t) \Phi_0(\mathbf{x})\} e^{-i \int \varepsilon_0 dt}. \quad (3.44)$$

In der SFA wird der exakte Eigenzustand des totalen Hamiltonians  $\Psi_n(\mathbf{x})$  durch den Eigenzustand des Elektrons im Laserfeld, d.h. der relativistischen Volkov-Wellenfunktion  $\Psi_{\mathbf{p}}^V(\mathbf{x})$  [21] ersetzt:

$$i\partial_t \Psi_{\mathbf{p}}^V(\mathbf{x}) = \{c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} + \mathbf{A}/c) - \phi + \beta c^2\} \Psi_{\mathbf{p}}^V(\mathbf{x}). \quad (3.45)$$

Wir erhalten für die Ionisationsamplitude im relativistischen Parameterbereich

$$M_{\mathbf{p}} = -i \int d^4x \Psi_{\mathbf{p}}^{V\dagger}(\mathbf{x}) \{(\phi + i\partial_t) \Phi_0(\mathbf{x})\} e^{-i \int \varepsilon_0 dt}. \quad (3.46)$$

Der explizite Ausdruck für die Amplitude (3.46) kann dann erlangt werden, indem man die Grundzustandswellenfunktion ermittelt. In der Göppert-Mayer-Eichung ergibt sich die quadratische Dirac-Gleichung zu:

$$\left\{ \frac{[\varepsilon_0 - V]^2}{c^2} - \left[ \hat{\mathbf{p}} - \frac{\mathbf{k}}{\omega} (\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}) \right]^2 - c^2 - \boldsymbol{\Sigma} \cdot \mathbf{B} + i\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{E} \right\} \tilde{\Phi}_0(\mathbf{x}) = 0, \quad (3.47)$$

wobei  $\boldsymbol{\Sigma}$  die Spin-Matrix [69] ist,  $\mathbf{E}$  und  $\mathbf{B}$  das elektrische bzw. magnetische Feld des Lasers. Gl. (3.47) unterscheidet sich von der entsprechenden Klein-Gordon-Gleichung (3.30) um die letzten zwei Terme der Spin-Wechselwirkung. Diese zwei Spin-Terme können mit  $\xi\omega$  abgeschätzt werden. Folglich, ergibt sich für das Verhältnis der Spin-Terme zu  $p^2$ :  $\xi\omega/c^2$ . Sie können deshalb ebenso vernachlässigt werden wie die anderen Terme, die proportional zum Laserfeld sind (vgl. Gl. (3.31)). Hieraus folgt, dass die Wellenfunktion für den Ausgangszustand in der Göppert-Mayer-Eichung durch den 4-Spinor des Grundzustands des freien Atoms  $\Phi_0(\mathbf{x})$  angenähert werden kann. Einsetzen dieser Wellenfunktion in Gl. (3.46) liefert für die Ionisationsamplitude:

$$M_{\mathbf{p}} = -i \int d^4x \Psi_{\mathbf{p}}^{V\dagger}(\mathbf{x}) (\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}) \Psi_0(\mathbf{x}). \quad (3.48)$$

Mittels einer partiellen Integration über die Zeit in Gl. (3.46) und unter Verwendung von Gl. (3.45), erhält man:

$$M_{\mathbf{p}} = -i \int d^4x \Psi_{\mathbf{p}}^{V\dagger}(\mathbf{x}) V \Psi_0(\mathbf{x}). \quad (3.49)$$

Die Gl.en (3.48) und (3.49) liefern somit eine eichinvariante Beschreibung des Ionisationsprozesses in der SFA im voll-relativistischen Parameterbereich.

## 3.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die Wahl der Eichung in der relativistischen SFA untersucht. Es wurde also eine relativistische Ionisationsamplitude erforderlich, die mit der konventionellen nicht-relativistischen SFA in der Längeneichung konsistent ist. Dies legte den Gebrauch der Göppert-Mayer-Eichung in der konventionellen relativistischen SFA nahe. Um nun jede Eichung in der relativistischen SFA benutzen zu können, haben wir die Standard-SFA modifiziert und eine eichinvariante Version der relativistischen SFA entwickelt. Als Ausgangszustand wurde hier der Eigenzustand des physikalischen Energieoperators des ungestörten Atoms während der Wechselwirkung mit dem Laserfeld benutzt [82]. Ein Vergleich der eichinvarianten SFA mit der konventionellen SFA in der Geschwindigkeitseichung, basierend auf einer numerischen Berechnung der entsprechenden Ionisationsspektren, ergab Unterschiede von bis zu zwei Größenordnungen im relativistischen Parameterbereich. Dagegen ist die Diskrepanz im schwach-relativistischen und im nicht-relativistischen Bereich eher von geringer Bedeutung. Der nicht-relativistische Limes der erhaltenen Ionisationsamplituden stimmt mit den akzeptierten und numerisch belegten Amplituden der konventionellen nicht-relativistischen SFA in der Längeneichung überein. Die hier ermittelten Amplituden beschreiben den direkten Ionisationsprozess. Im nächsten Kapitel soll nun die Möglichkeit der Rekollision des ionisierten Elektrons mit dem atomaren Kern in der modifizierten SFA berücksichtigt werden, und so ATI einschließlich Rückstreuung sowie der HHG-Prozess beschrieben werden.



# 4 Above-Threshold-Ionisation und Erzeugung höherer Harmonischer im relativistischen Parameterbereich

In diesem Kapitel sollen sowohl die Above-Threshold-Ionisation und als auch die Erzeugung höherer Harmonischer voll-relativistisch über die Klein-Gordon-Gleichung beschrieben werden. Um die Prozessraten analytisch berechnen zu können, wird die im vorherigen Kapitel entwickelte eichinvariante SFA so erweitert, dass sie auch die Rekollision des ionisierten Elektrons mit dem atomaren Rumpf beinhaltet. Es wird dann möglich sein die Energie- sowie die Winkelverteilung der ATI-Elektronen bzw. der HHG-Photonen für lange treibende Laserpulse anzugeben, den Gültigkeitsbereich der schwach-relativistischen Beschreibung zu bestimmen sowie die relativistischen Signaturen der Prozesse zu identifizieren. So wird hauptsächlich das im Gegensatz zum nicht-relativistischen Parameterbereich nun nicht-zuvernachlässigende Lasermagnetfeld die Prozesse verändern, indem es dem Elektron im Kontinuum über die Lorentz-Kraft einen Drift in Laserpropagationsrichtung induziert und so seine Rückkehrwahrscheinlichkeit wesentlich verringert (siehe Abb. 4.1).

## 4.1 Above-Threshold-Ionisation

### 4.1.1 ATI in der SFA basierend auf der Klein-Gordon-Gleichung

Wir betrachten wieder den Ionisationsprozess eines atomaren Systems durch ein linear polarisiertes Laserfeld mit Polarisation in  $x$ -, magnetischem Feld in  $y$ - und Propagation in  $z$ -Richtung für den relativistischen Parameterbereich. Weiterhin wird die Single-Active-Electron-Approximation [39] angewendet. Spin-Effekte spielen bei den betrachteten Ionisationsprozessen eine sehr kleine Rolle, sogar im stark-relativistischen Parameterbereich, wie z. B. in Ref. [83] gezeigt wurde. Wir können uns deshalb auf die Klein-Gordon-Gleichung (vgl. Kap. 3) beschränken um den ATI-Prozess im relativistischen Parameterbereich zu beschreiben. Zur Vollständigkeit wird sie hier noch einmal angegeben:

$$\left\{ (i\partial^\mu + A^\mu/c - g^{\mu 0}V/c)^2 - c^2 \right\} \Psi(\mathbf{x}) = 0, \quad (4.1)$$

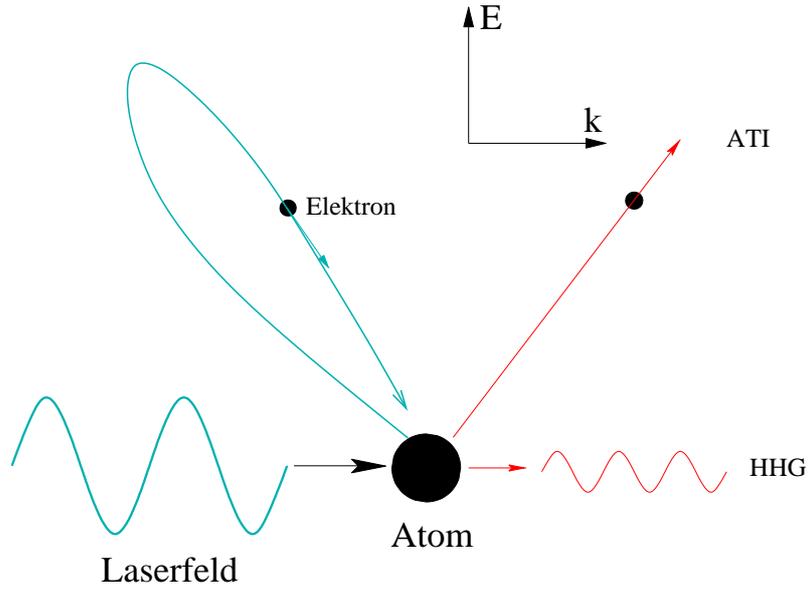


Abbildung 4.1: Schematisches Bild des Ionisationsprozesses eines atomaren Systems in einem Laserfeld mit anschließender Rückstreuung im Falle von ATI bzw. Rekombination im Falle von HHG.  $\mathbf{E}$  und  $\mathbf{k}$  sind die Vektoren in Polarisations- bzw. Propagationsrichtung des Laserfeldes. Das Elektron driftet auf Grund der Lorentz-Kraft des Lasermagnetfeldes in  $\mathbf{k}$ -Richtung und muss deshalb mit einem gegenläufigen Anfangsimpuls starten.

wobei  $\Psi(\mathbf{x})$  die Wellenfunktion des aktiven Elektrons ist,  $A^\mu = (0, \mathbf{A}(\eta))$  das Vektorpotential des Laserfeldes in der Strahlungseichung (d.h.  $\partial_\mu A^\mu = 0$ ),  $c$  die Lichtgeschwindigkeit,  $\mathbf{x} = (ct, x, y, z)$  die Raum-Zeit-Koordinaten,  $\eta = k^\mu x_\mu \equiv \mathbf{k} \cdot \mathbf{x}$  die Phase des Laserfeldes,  $k^\mu = (\omega/c, 0, 0, k)$  sein Wellenvektor,  $\omega = ck$  seine Kreisfrequenz und  $g^{\mu\nu}$  der metrische Tensor.

Gl. (4.1) kann in die Form gebracht werden:

$$(\partial^\mu \partial_\mu + c^2) \Psi(\mathbf{x}) = (V_L + V_A) \Psi(\mathbf{x}) \quad (4.2)$$

mit dem Elektron-Ion-Wechselwirkungsoperator

$$V_A = -2iV/c^2 \partial_t + V^2/c^2 \quad (4.3)$$

und dem Elektron-Laserfeld-Wechselwirkungsoperator

$$V_L = 2i\mathbf{A}(\eta) \cdot \nabla/c - \mathbf{A}(\eta)^2/c^2. \quad (4.4)$$

Die Amplitude  $M_{\mathbf{p}}$ , dass der ATI-Prozess zu einem Elektron mit Impuls  $\mathbf{p}$  führt, ist gegeben

durch:

$$M_{\mathbf{p}} = \lim_{t \rightarrow \infty} (\Psi_{\mathbf{p}}^f, \Psi), \quad (4.5)$$

wobei  $\Psi_{\mathbf{p}}^f(\mathbf{x})$  die Kontinuumszustände der Klein-Gordon-Gleichung im atomaren Potenzial mit asymptotischen Impuls  $\mathbf{p}$  (für  $t \rightarrow \infty$ ) sind. Das Klein-Gordon-Skalarprodukt ist definiert durch  $(f, g) = \int d^3\mathbf{r} f^*(\mathbf{x}) \left( i \overleftrightarrow{\partial}_{ct} - 2V/c \right) g(\mathbf{x})$  [84].

Die Lippmann-Schwinger Gleichung bezüglich der Elektronen-Laserfeld-Wechselwirkung  $V_L$  für die Wellenfunktion  $\Psi(\mathbf{x})$  ist gegeben durch

$$\Psi(\mathbf{x}) = \Phi(\mathbf{x}) + \int d^4\mathbf{x}' G(\mathbf{x}, \mathbf{x}') V_L(\mathbf{x}') \Phi(\mathbf{x}'). \quad (4.6)$$

$\Psi(\mathbf{x})$  erfüllt die Randbedingung  $\lim_{t \rightarrow -\infty} \Psi = \Phi$ , wobei  $\Phi$  der Ausgangszustand des Atoms ist. Er ist ein Eigenzustand des Energieoperators in der Strahlungsgleichung (siehe Ref. [82] und Kap. 3) und kann angenähert werden durch

$$\Phi(\mathbf{x}) = \frac{\phi_0(\mathbf{r})\sqrt{c}}{\sqrt{2(c^2 - I_p)}} \exp \left\{ -i((c^2 - I_p)t + \mathbf{r} \cdot \mathbf{A}/c) \right\} \quad (4.7)$$

mit der nicht-relativistischen Grundzustandswellenfunktion  $\phi_0$ .

Die Benutzung der nicht-relativistischen Wellenfunktion für den gebundenen Zustand ist aus folgendem Grund gerechtfertigt. Die Freisetzung des Elektrons ins Kontinuum findet mittels Tunnelionisation statt. Dies legt aber nun für eine vorgegebene Laserintensität (wir betrachten maximal  $I = 10^{20}$  W/cm<sup>2</sup>) eine untere Grenze für das Ionisationspotenzial des gebundenen Elektrons fest, da sonst Over-the-Barrier-Ionisation dominieren würde [83], [85]. Der Ausgangszustand wäre dann sehr schnell entvölkert und eine Voraussetzung zur Anwendung der SFA verletzt. Für die untere Grenze gilt:

$$I_p[\text{eV}] > \left( \frac{2I[\text{W}/\text{cm}^2]}{10^{11}} \right)^{1/3}. \quad (4.8)$$

Andererseits sollte das Ionisationspotenzial nicht wesentlich größer als dieser Grenzwert sein, da die Ionisationswahrscheinlichkeit sonst sehr klein wird und der ATI-Prozess stark unterdrückt wäre. Somit folgt für die oben angegebene maximale Laserintensität ein Ionisationspotenzial von der Größenordnung von  $I_p \approx 2$  keV  $\ll c^2$ . Dies zeigt klar, dass die Dynamik des gebundenen Elektrons nicht-relativistisch ist. Eine präzisere Bedingung für den nicht-relativistischen Tunnelionisationsprozess ist in Gl. (23) in Ref. [86] gegeben. Dort wird das Verhältnis von nicht-relativistischer zu relativistischer Tunnelwahrscheinlichkeit abgeschätzt durch:

$$w_{NR}/w_R \approx \exp \left\{ -((Z/c)^5/36) \sqrt{I_{sw}/I} \right\} \quad (4.9)$$

## KAPITEL 4. ATI und HHG im relativistischen Parameterbereich

mit der Intensität des Schwinger-Feldes  $I_{sw} = 2.3 \times 10^{29}$  W/cm<sup>2</sup>, der Ladung des Wasserstoff-ähnlichen Ions  $Z$  und  $I_p = c^2(1 - \sqrt{1 - (Z\alpha)^2})$ . Diese Formel zeigt, dass für eine Laserfeldintensität von  $10^{20}$  W/cm<sup>2</sup>, relativistische Effekte in der Tunneldynamik erst an Bedeutung gewinnen, wenn  $Z\alpha \ll 0.15$  gilt, was einem Ionisationspotenzial von mehr als 5 keV entspricht (vgl. Abb. 1 in [87]).

$G(x, x')$  in Gl. (4.6) ist die Green-Funktion der Klein-Gordon-Gl. (4.1) für positive Energien. Sie erfüllt ebenfalls die Lippmann-Schwinger-Gleichung, hier angegeben bezüglich der Elektron-Ion-Wechselwirkung:

$$G(x, x') = G^V(x, x') + \int d^4x'' G(x, x'')V_A(x'')G^V(x'', x') \quad (4.10)$$

mit der Volkov-Green-Funktion der Klein-Gordon-Gleichung im Laserfeld  $G^V(x, x')$  gegeben in Ref. [24]:

$$G^V(x, x') = -i\theta(t - t') \int \frac{c d^3\mathbf{q}}{2\varepsilon_{\mathbf{q}}(2\pi)^3} \exp \left[ -i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{x} - \mathbf{x}') - i \int_{\eta'}^{\eta} d\tilde{\eta} \left( \frac{(\mathbf{q} + \mathbf{A}(\tilde{\eta})/2c) \cdot \mathbf{A}(\tilde{\eta})/c}{\mathbf{k} \cdot \mathbf{q}} \right) \right], \quad (4.11)$$

dem Energie-Impuls-Vektor  $\mathbf{q} = (\varepsilon_{\mathbf{q}}/c, \mathbf{q})$  und  $\varepsilon_{\mathbf{q}} = \sqrt{c^2\mathbf{q}^2 + c^4}$ . Einsetzen von Gl. (4.10) in Gl. (4.6) führt auf

$$\begin{aligned} \Psi(\mathbf{x}) &= \Phi(\mathbf{x}) + \int d^4x' G^V(x, x')V_L(x')\Phi(x') \\ &\quad + \int d^4x' \int d^4x'' \{G(x, x'')V_A(x'')G^V(x'', x')V_L(x')\Phi(x')\}, \end{aligned} \quad (4.12)$$

was immer noch eine exakte Beziehung darstellt. Die Benutzung der SFA impliziert, dass der Einfluss des atomaren Potenzials auf das ionisierte Elektron klein im Vergleich zu dem des Laserfeldes ist. Damit lässt sich das atomare Potenzial in den Endzuständen vernachlässigen und die Ersetzung  $G \rightarrow G^V$  durchführen. Physikalisch bedeutet dies, dass das ionisierte Elektron einmal noch zum Kern zurückkehren kann und mit ihm wechselwirkt.

Es folgt dann für die ATI-Amplitude:

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} &= -i \int d^4x' \Psi_{\mathbf{p}}^V(x')^* V_L(x') \Phi(x') \\ &\quad - i \int d^4x' \int d^4x'' \{ \Psi_{\mathbf{p}}^V(x')^* V_A(x'') G^V(x'', x') V_L(x') \Phi(x') \}, \end{aligned} \quad (4.13)$$

wobei  $\Psi_{\mathbf{p}}^V(x)$  der Klein-Gordon-Volkov-Zustand ist, der das Elektron im Laserfeld in der Strahlungseichung beschreibt:

$$\Psi_{\mathbf{p}}^V(x) = \frac{\sqrt{c}}{\sqrt{2(2\pi)^3\varepsilon_{\mathbf{p}}}} \exp \left[ -i\mathbf{p} \cdot \mathbf{x} + i \int_{\eta}^{\infty} d\tilde{\eta} \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tilde{\eta})/2c) \cdot \mathbf{A}(\tilde{\eta})/c}{\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}} \right]. \quad (4.14)$$

Der Volkov-Zustand geht nach Abschalten des Laserfeldes für  $t \rightarrow \infty$  in eine ebene Welle mit Impuls  $\mathbf{p}$  über. Der erste Term in Gl. (4.13) beschreibt die direkte Ionisation in der SFA, der zweite beinhaltet die zusätzliche Rückstreuung am atomaren Rumpf. Analog zum nicht-relativistischen Vorgehen [15] können wir die Identität  $V_L = -\partial_\mu \partial^\mu + V_L + \partial_\mu \partial^\mu - V_A + V_A$  benutzen und erhalten dann für die Amplitude

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} &= -i \int d^4x' \Psi_{\mathbf{p}}^V(x')^* V_A(x') \Phi(x') \\ &\quad -i \int d^4x' \int d^4x'' \{ \Psi_{\mathbf{p}}^V(x')^* V_A(x') G^V(x', x'') V_A(x'') \Phi(x'') \}. \end{aligned} \quad (4.15)$$

Nun wenden wir die Koordinatentransformation  $(ct', \mathbf{r}') \rightarrow (\eta', \mathbf{r}')$  und  $(ct'', \mathbf{r}'') \rightarrow (\eta'', \mathbf{r}'')$  mit  $\eta' = k^\mu x'_\mu$  und  $\eta'' = k^\mu x''_\mu$  an. Nehmen wir weiterhin an, dass die Laserwellenlänge wesentlich größer ist als die räumliche Ausdehnung des Wellenpakets des ionisierten Elektrons [24], kann die ATI-Amplitude weiter umgeschrieben werden:

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} &\equiv -i \int_{-\infty}^{\infty} d\eta' m(\mathbf{p}, \eta') \exp[i(\varepsilon_{\mathbf{p}} + U_p^{(r)} + I_p - c^2)\eta'/\omega] \\ &= \lim_{\eta \rightarrow \infty} \left\{ -i \int_{-\infty}^{\infty} d\eta' m^D(\mathbf{p}, \eta') \exp(-i S(\mathbf{p}, \eta, \eta')) \right. \\ &\quad \left. -i \int_{-\infty}^{\infty} d\eta' \int_{-\infty}^{\eta'} d\eta'' \int d^3\mathbf{q} m^R(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \eta', \eta'') \exp(-i(S(\mathbf{p}, \eta, \eta') + S(\mathbf{q}, \eta', \eta''))) \right\}, \end{aligned} \quad (4.16)$$

mit  $U_p^{(r)} = U_p/k \cdot \mathbf{p}$  und dem Matrixelement in der SFA

$$m^D(\mathbf{p}, \eta) = \frac{c}{\omega \sqrt{\varepsilon_{\mathbf{p}}}} \langle \mathbf{p} + \frac{\mathbf{A}(\eta')}{c} - \frac{\mathbf{k}}{\omega} (\varepsilon_{\mathbf{p}} + I_p - c^2) | V | 0 \rangle \quad (4.17)$$

und dem Matrixelement für die Rückstreuung

$$m^R(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \eta', \eta'') = \frac{c \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{q}}(\eta')}{\omega^2 \sqrt{\varepsilon_{\mathbf{p}} \varepsilon_{\mathbf{q}}}} \langle \mathbf{p} - \frac{\varepsilon_{\mathbf{p}} \mathbf{k}}{\omega} | V | \mathbf{q} - \frac{\varepsilon_{\mathbf{q}} \mathbf{k}}{\omega} \rangle \langle \mathbf{q} + \frac{\mathbf{A}(\eta')}{c} - \frac{\mathbf{k}}{\omega} (\varepsilon_{\mathbf{q}} + I_p - c^2) | V | 0 \rangle, \quad (4.18)$$

wobei  $\langle \mathbf{p} | V | \mathbf{q} \rangle$  und  $\langle \mathbf{p} | V | 0 \rangle$  die Matrixelemente des atomaren Potentials sind.  $S(\mathbf{p}, \eta, \eta') = \int_{\eta'}^{\eta} d\tilde{\eta} (\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{p}}(\tilde{\eta}) - c^2 + I_p) / \omega$  ist die quasi-klassische Wirkung. Die relativistische Energie des Elektrons im Laserfeld ist gegeben durch:

$$\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{p}}(\eta) = \varepsilon_{\mathbf{p}} + \frac{\omega}{k \cdot \mathbf{p}} (\mathbf{p} + \mathbf{A}(\eta)/2c) \cdot \mathbf{A}(\eta)/c. \quad (4.19)$$

Weiterhin wird angenommen, dass der ATI-Prozess getrieben von einem langem Laserpuls periodisch ist und deshalb ein diskretes Spektrum liefert. Der Integrand  $m(\mathbf{p}, \eta')$

## KAPITEL 4. ATI und HHG im relativistischen Parameterbereich

in dem Ausdruck für die Amplitude in Gl. (4.16) ist somit periodisch und kann in eine Fourier-Reihe entwickelt werden. Die differentielle Ionisationsrate, die Wahrscheinlichkeit der Emission eines Elektrons pro Zeiteinheit in den Bereich des Zustandsraumes  $d^3\mathbf{p}$  am Ort  $\mathbf{p}$ , ist durch folgenden Ausdruck gegeben [67]:

$$dw_{\mathbf{p}} = 2\pi \sum_n |m_n(\mathbf{p})|^2 \omega^2 \delta(\varepsilon_{\mathbf{p}} + U_p^{(r)} + I_p - c^2 - n\omega) d^3\mathbf{p}. \quad (4.20)$$

Dies liefert das Winkel aufgelöste Photoelektronenspektrum:

$$\frac{dw_{\mathbf{p}}}{d\Omega} = 2\pi\omega^2 \frac{p\varepsilon_{\mathbf{p}}}{c^2} |m_{\mathbf{p}}|^2 \quad (4.21)$$

mit dem differentiellen Raumwinkel  $d\Omega$  und

$$\begin{aligned} m_{\mathbf{p}} = & \lim_{\eta \rightarrow \infty} \frac{1}{2\pi} \left\{ \int_{-\pi}^{\pi} d\eta' m^D(\mathbf{p}, \eta') \exp(-iS(\mathbf{p}, \eta, \eta')) \right. \\ & \left. + \int_{-\pi}^{\pi} d\eta' \int_{-\infty}^{\eta'} d\eta'' \int d^3\mathbf{q} m^R(\mathbf{p}, \mathbf{q}, \eta', \eta'') \exp(-i(S(\mathbf{p}, \eta, \eta') + S(\mathbf{q}, \eta', \eta''))) \right\}. \end{aligned} \quad (4.22)$$

### 4.1.2 Im adiabatischen Parameterbereich

Im adiabatischen Parameterbereich ( $U_p \gg I_p \gg \omega$ ) kann das eindimensionale Integral im ersten Term von Gl. (4.16) sowie das fünfdimensionale Integral im zweiten Term mittels der Sattelpunktmethode ausgeführt werden. Die Sattelpunktsbedingungen sind  $\partial_{\eta'} S(\mathbf{p}, \eta, \hat{\eta}') = 0$  bzw.  $\partial_i (S(\tilde{\mathbf{q}}, \tilde{\eta}', \tilde{\eta}'') + S(\mathbf{p}, \eta, \tilde{\eta}')) = 0$  mit  $i \in \{\mathbf{q}, \eta', \eta''\}$ . Die Sattelpunkte für die direkte Ionisation sind dann definiert über:

$$\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{p}}(\hat{\eta}') = c^2 - I_p, \quad (4.23)$$

wobei  $\mathbf{p}$  der Driftimpuls des ionisierten Elektrons und  $\hat{\eta}'$  die Ionisationsphase ist. Für den Fall mit Rückstreuung erhalten wir:

$$\begin{aligned} \tilde{q}_x &= -\frac{\int_{\tilde{\eta}''}^{\tilde{\eta}'} d\tilde{\eta} A(\tilde{\eta})/c}{\tilde{\eta}' - \tilde{\eta}''} \\ \tilde{q}_y &= 0 \\ \tilde{q}_z &= \frac{\tilde{q}_x^2 + q_m^2/2}{\sqrt{c^2 - q_m^2 - \tilde{q}_x^2}} \\ \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{p}}(\tilde{\eta}') &= \tilde{\varepsilon}_{\tilde{\mathbf{q}}}(\tilde{\eta}') \\ \tilde{\varepsilon}_{\tilde{\mathbf{q}}}(\tilde{\eta}'') &= c^2 - I_p, \end{aligned} \quad (4.24)$$

wobei  $\tilde{\mathbf{q}} = \tilde{\mathbf{q}}(\tilde{\eta}', \tilde{\eta}'') = (\tilde{q}_x, \tilde{q}_y, \tilde{q}_z)$  der Driftimpuls des ionisierten Elektrons vor der Rückstreuung ist,  $q_m^2 = -\int_{\tilde{\eta}''}^{\tilde{\eta}'} d\tilde{\eta} \mathbf{A}(\tilde{\eta})^2 / c^2 (\tilde{\eta}' - \tilde{\eta}'')$ , und  $\tilde{\eta}'$ ,  $\tilde{\eta}''$  die Ionisations- bzw. Rückstreuphasen sind. Benutzt man nun die Lösungen der Gl.en (4.23-4.24), kann die Impulsamplitude berechnet werden:

$$\begin{aligned}
 m_{\mathbf{p}} &= \frac{1}{2\pi} \lim_{\eta \rightarrow \infty} \sum_{SP} \left\{ \sqrt{\frac{2\pi i}{\partial_{\eta', \eta'} S(\mathbf{p}, \eta, \hat{\eta}')}} m^D(\mathbf{p}, \hat{\eta}') \exp(-i S(\mathbf{p}, \eta, \hat{\eta}')) \right. \\
 &+ \sqrt{\frac{(2\pi i)^5}{\det(\partial_{ij} S(\tilde{\mathbf{q}}, \tilde{\eta}', \tilde{\eta}'') + \partial_{ij} S(\mathbf{p}, \eta, \tilde{\eta}'))}} \\
 &\left. \times m^R(\mathbf{p}, \tilde{\mathbf{q}}, \tilde{\eta}', \tilde{\eta}'') \exp[-i(S(\tilde{\mathbf{q}}, \tilde{\eta}', \tilde{\eta}'') + S(\mathbf{p}, \eta, \tilde{\eta}'))] \right\}, \quad (4.25)
 \end{aligned}$$

wobei  $SP$  die Menge der Sattelpunkte bezeichnet über die summiert wird. In der Berechnung der Matrixelemente in den Gl.en (4.17) und (4.18) nehmen wir an, dass  $V$  ein Zero-Range-Potenzial [88] ist:

$$V = \frac{2\pi}{\kappa} \delta(\mathbf{r}) \partial_r r \quad (4.26)$$

mit seiner Grundzustandswellenfunktion im Impulsraum

$$\tilde{\phi}_0(\mathbf{p}) = \frac{\sqrt{\kappa}/\pi}{\kappa^2 + p^2}, \quad (4.27)$$

seinen Matrixelementen

$$\begin{aligned}
 \langle \mathbf{p} | V | 0 \rangle &= -\frac{\sqrt{\kappa}}{2\pi} \\
 \langle \mathbf{p} | V | \mathbf{q} \rangle &= 1/4\pi^2 \kappa
 \end{aligned} \quad (4.28)$$

und  $\kappa = \sqrt{2I_p}$ . Die Annahme, dass das Coulomb-Potenzial durch dieses Zero-Range-Potenzial approximiert wird, stellt keine schwerwiegende Näherung dar. Es lässt sich zeigen, dass die ermittelten Ionisations-Amplituden durch einen einfachen Faktor korrigiert und so in Übereinstimmung mit den numerischen Resultaten, die auf einem Coulomb-Potenzial basieren, gebracht werden können [89, 20]. Weiterhin kann die Beschreibung des Rekollisionsprozesses verbessert werden, indem man das zurückkehrende Elektron nicht durch ebene Wellen im Raum, sondern durch Coulomb-Wellen beschreibt [20].

Unter Benutzung der physikalisch relevanten Sattelpunkte [15], kann dann die Amplitude  $m_{\mathbf{p}}$  des ATI-Prozesses berechnet werden.

### 4.1.3 Niederenergiespektren und Winkelverteilungen bei ATI

In diesem Abschnitt werden die Photoelektronenenergiespektren und ihre Winkelverteilungen im relativistischen Parameterbereich untersucht.

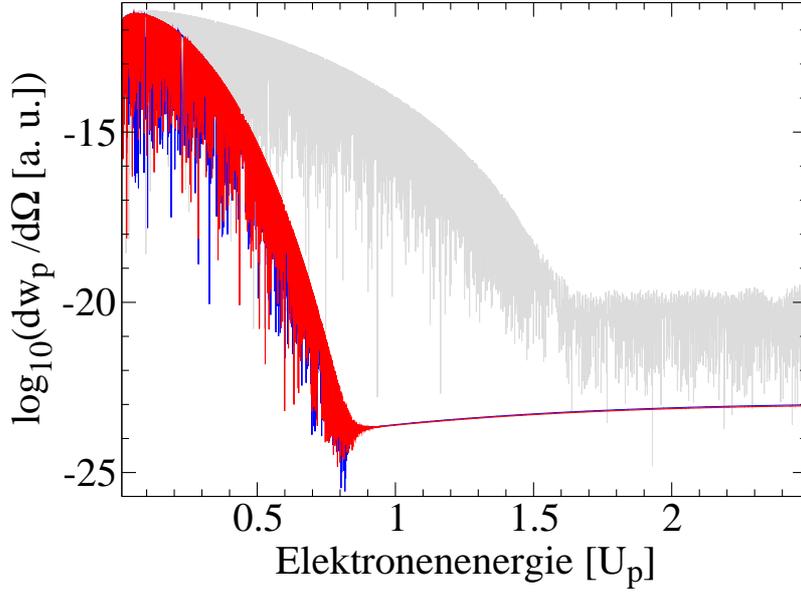


Abbildung 4.2: Niederenergie-Photoelektronenspektrum in Polarisationsrichtung des Lasers mit einer Intensität von  $I = 1.8 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  (entspricht einer elektrischen Feldstärke von 2.2 a.u.) und einer Kreisfrequenz von  $\omega = 0.05$  a.u. mittels  $\log_{10}(dw_{\mathbf{p}}/d\Omega)$  aus Gl. (4.21). Das Modell-Potenzial ist an  $\text{Be}^{3+}$  mit einer Ionisierungsenergie von  $I_p = 8$  a.u. angepasst. Die Elektronenenergie ist in Vielfachen von  $U_p$  skaliert: (grau) in der Dipolnäherung, (blau) mit führenden Magnetfeld- und relativistischen Korrekturen (siehe Ref. [58] und Kap. 2), (rot) Klein-Gordon-Gleichung.

Im nicht-relativistischen Fall besteht das Photoelektronenenergiespektrum aus einem stark abfallenden Niederenergie-Teil bis ca.  $2U_p$ , ausgelöst durch direkt-ionisierte Elektronen und einer langen Plateau-Region mit charakteristischem Cutoff bei einer Energie von ca.  $10U_p$  hervorgerufen durch rückgestreute Elektronen [15]. Im relativistischen Fall werden mehrere Änderungen auftreten.

Das Hauptinteresse wird auf den speziellen Eigenschaften des Rückstreuprozesses im relativistischen Parameterbereich liegen. Um nicht-verschwindende Rückstreuraten erzielen zu können, wählen wir moderat-relativistische Parameter, in Zahlen: eine Laserintensität von  $I = 1.8 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  und eine Kreisfrequenz von 0.05 a.u., was einer Wellenlänge von 911 nm entspricht. In der Tat ist hiermit der relativistische Parameter des Laserfeldes kleiner als eins:  $\xi \equiv E_0/c\omega = 0.33$ . Wir verwenden einen langen Puls mit einem elektrischen Feld der Form  $\mathbf{E}(\eta) = \mathbf{e}_x E_0(\eta) \sin \eta$ , das adiabatisch an- und abgeschaltet wird. Weiterhin wird angenommen, dass der ATI-Prozess durch Tunnelionisation initiiert wird und die

Ionisationsenergie nur wenig über dem Wert (Gl. (4.8)) liegt, der die Grenze zwischen Tunnelionisation und Over-the-Barrier-Ionisation festlegt. Damit ist eine ausreichend hohe Ionisationswahrscheinlichkeit gesichert.

Zu Beginn wollen wir einige Eigenschaften des direkten Ionisationsprozesses besprechen, indem das Niederenergiespektrum und die Winkelverteilung der ionisierten Elektronen berechnet wird. Die voll-relativistischen Resultate mittels der Klein-Gordon-Gleichung, werden mit den Ergebnissen der schwach-relativistischen Theorie basierend auf der Schrödinger-Gleichung inklusive Magnetfeld- und relativistischen Korrekturen [58] verglichen, um so den Gültigkeitsbereich dieser Näherung zu quantifizieren.

Abb. 4.2 zeigt den Niederenergie-Teil des Spektrums für Elektronen, die in Laserpolarisationsrichtung ionisiert werden. Die Berechnung über die Klein-Gordon-Gleichung wird verglichen mit den Resultaten in der Dipolnäherung sowie mit der schwach-relativistischen Theorie. Wie man sehen kann, fällt die relativistische Ionisationsrate schneller ab und das Plateau beginnt bei niedrigeren Energien. Der Grund hierfür ist der durch die Lorentz-Kraft hervorgerufene Drift der ionisierten Elektronen in Laserpropagationsrichtung, der die Emission in Laserpolarisationsrichtung im relativistischen Parameterbereich stark reduziert. Weiterhin gibt die schwach-relativistische Theorie das Spektrum korrekt wieder, da das Verhältnis zwischen Elektronengeschwindigkeit und Lichtgeschwindigkeit im betrachteten Bereich immer noch gering ist.

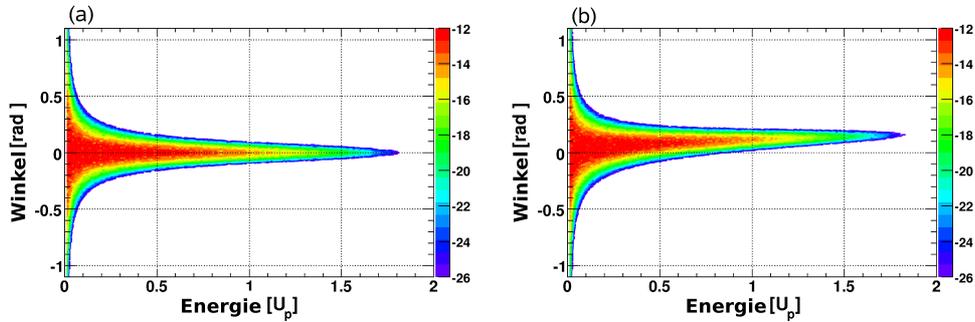


Abbildung 4.3: Spektrum der direkt ionisierten Elektronen in Abhängigkeit von ihrer Endenergie, skaliert in Vielfachen von  $U_p$ , und dem Emissionswinkel  $\theta$ ,  $\phi = 0$ , über  $\log_{10}(dw_p/d\Omega)$  in Gl. (4.21). Die Parameter des Laserfeldes sowie die des atomaren Systems sind identisch mit denen in Abb. 4.2. (a) in der Dipolnäherung, (b) Klein-Gordon-Gleichung.

In Abb. 4.3 ist das Energie und Winkel aufgelöste Spektrum für direkt ionisierte Elektronen im moderat-relativistischen Parameter-Bereich dargestellt. In der nicht-relativistischen Beschreibung ist das Spektrum symmetrisch bezüglich des Emissionswinkels. Emission fin-

det hauptsächlich in Laserpolarisationsrichtung mit kleinen Endenergien statt. Benutzt man die korrekte relativistische Beschreibung des Ionisationsprozesses wird die Verteilung in Laserpropagationsrichtung verschoben und asymmetrisch. Jedoch verändert sich weder die Breite der Energie- noch die der Winkelverteilung. Dies ist richtig, solange die Impulsverbreiterung auf Grund des Laserfeldes nicht-relativistisch ist:  $\delta p_E = \sqrt{3\omega/\gamma^3} \ll c$  [90]. Im Tunnelbereich (an der Grenze zur Over-the-Barrier-Ionisation, definiert durch Gl. (4.8)) ist dies erst für hohe Intensitäten mit  $\xi > 3$  nicht mehr der Fall.

Weiterhin ist der Drift des ionisierten Elektrons in Laserpropagationsrichtung für höhere Energien größer als erwartet (vgl. [91]).

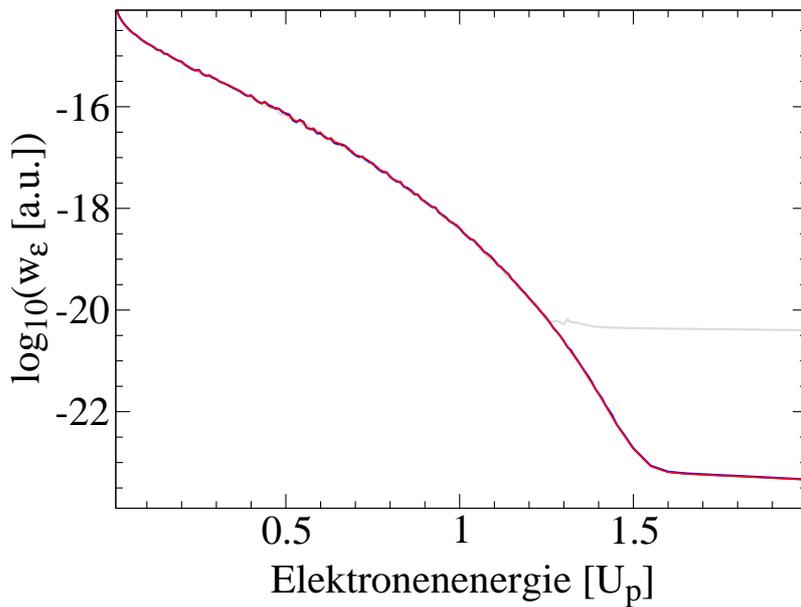


Abbildung 4.4: Niederenergie-Photoelektronenspektrum über  $\log_{10}(w_\epsilon)$  aus Gl. (4.29), integriert über alle Emissionswinkel. Die Parameter des Laserfeldes sowie die des atomaren Systems sind mit denen in Abb. 4.2 identisch. Die Elektronenenergie ist in Vielfachen von  $U_p$  skaliert: (grau) in der Dipolnäherung, (blau) mit den führenden magnetischen und relativistischen Korrekturen [58], (rot) Klein-Gordon-Gleichung.

Die Emissionsrate integriert über alle Richtungen beschreibt die Wahrscheinlichkeit, dass das Atom ein Elektron mit vorgegebener Endenergie  $\epsilon$  pro Zeiteinheit emittiert:

$$w_\epsilon = \int \frac{dw_{\mathbf{p}}}{d\Omega} d\Omega. \quad (4.29)$$

Das Niederenergie-Elektronenspektrum integriert über alle Emissionswinkel wird in Abb. 4.4 gezeigt. Wie man sieht sind die totalen Emissionsraten eines Elektrons mit be-

stimmter Energie in den unterschiedlichen Näherungen, solange die direkte Ionisation dominiert, nahezu gleich. Dies liegt an der immer noch nicht-relativistischen Dynamik des gebundenen Elektrons (vgl. Gl. (4.9) und die folgende Diskussion). Nur die darauffolgende Wirkung des Laserfeldes auf das Elektron unterscheidet sich in den verschiedenen Theorien und führt zu Unterschieden in den Winkelverteilungen. Die totale Rate bezüglich der direkten Ionisation bleibt allerdings in allen drei Fällen unverändert. Die Diskrepanz zwischen den Ergebnissen in der Dipolnäherung und den relativistischen Beschreibungen bei höheren Energien ist auf die Rückstreuung zurückzuführen, die im nächsten Abschnitt ausführlich behandelt wird.

#### 4.1.4 Hochenergiespektren und Winkelverteilungen bei ATI

Die Unterschiede zwischen der relativistischen und der nicht-relativistischen (Dipolnäherung) Beschreibung des Prozesses treten deutlicher hervor, wenn die Rückstreuung eine Rolle spielt.

Abb. 4.5 stellt den Hochenergie-Bereich des Spektrums für Elektronen, die in Richtung der maximalen Cutoff-Energie emittiert werden, dar. Folgende charakteristischen Eigenschaften der Spektren sollen herausgestellt werden:

1) Die Verringerung der Plateauhöhe in der relativistischen Beschreibung: Da das Elektron in Richtung der Propagation des Lasers driftet, muss es mit einer nicht-verschwindenden negativen Geschwindigkeit in dieser Richtung starten. Die Tunnelwahrscheinlichkeit mit nicht-verschwindender Geschwindigkeit ist jetzt aber weniger wahrscheinlich und somit auch die Wahrscheinlichkeit der Rückstreuung verglichen zum nicht-relativistischen Fall. Für das numerische Beispiel in Abb. 4.5 ist die Wahrscheinlichkeit um drei Größenordnungen für niedrige Endenergien und bis zu zehn Größenordnungen für hohe Energien vermindert im Vergleich zum Fall, wenn das Elektron mit Geschwindigkeit Null startet.

2) Das stark-oszillierende Spektrum in der Dipolnäherung, hervorgerufen durch die Interferenz von mindestens zwei quasi-klassischen Bahnen des ionisierten Elektrons, verschwindet im relativistischen Fall. Der Grund hierfür ist, dass zeitlich längere Bahnen wegen der Verbreiterung des Wellenpakets und wegen dem relativistischen Drift an Bedeutung verlieren. Letzteres kann wie folgt erklärt werden. Für lange Bahnen ist die Zeitspanne in der das Lasermagnetfeld auf das ionisierte Elektron wirkt, größer als für kurze Bahnen. Hieraus resultiert ein größerer Drift für lange Bahnen als für die kurze Bahn. Somit wird eine größere Anfangsgeschwindigkeit notwendig, was dann zu einer geringeren Ionisationswahrscheinlichkeit führt. Aus dem selben Grund verschwindet auch die Multi-Plateau-Struktur für relativistische Laserintensitäten und nur der Sattelpunkt mit der kürzesten Zeitspanne zwischen Ionisation und Rückstreuung ist verantwortlich für das Spektrum.

3) Das Plateau ist nicht mehr flach, sondern gekrümmt. Die Krümmung wächst mit

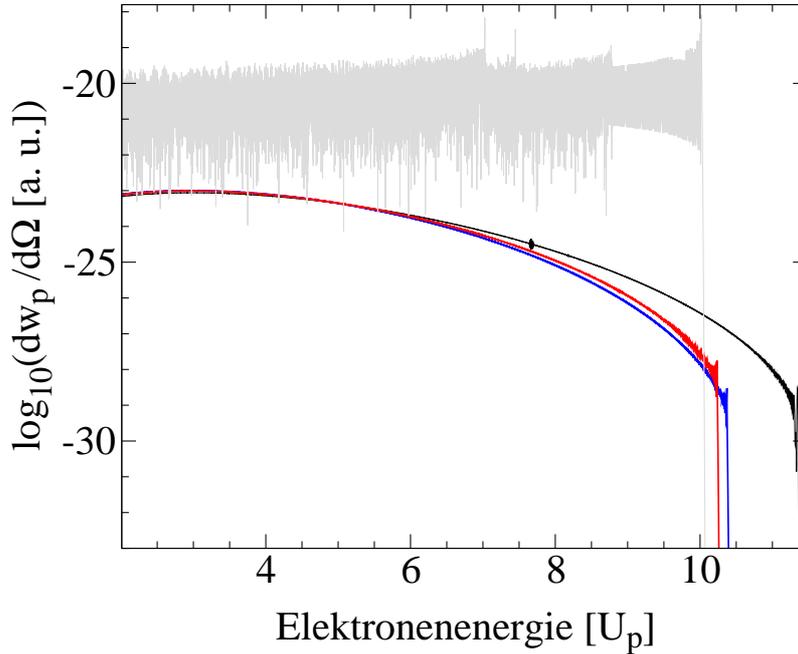


Abbildung 4.5: Photoelektronenspektrum über  $\log_{10}(dw_p/d\Omega)$  in Gl. (4.21), für Elektronen mit Endimpuls in Richtung der maximalen Cutoff-Energie. Die Elektronenenergie ist in Vielfachen von  $U_p$  skaliert: (grau) in der Dipolnäherung, (schwarz) mit führenden Magnetfeld-Korrekturen, (rot) Klein-Gordon-Gleichung, (blau) mit führenden Magnetfeld- und relativistischen Korrekturen [58].

steigender Laserintensität, da sich die rückgestreuten Elektronen mit höherer Energie im Durchschnitt mit höherer Geschwindigkeit bewegen, damit eine größere Lorentz-Kraft erfahren und somit mit geringerer Wahrscheinlichkeit rekombinieren.

4) Die Cutoff-Energie ist hin zu höheren Energien verschoben. Während die zuvor besprochenen Veränderungen des ATI-Prozesses hauptsächlich auf das Lasermagnetfeld zurückzuführen sind, wird diese Eigenschaft des Spektrums auch vom relativistischen Massenschift beeinflusst. Man sieht dies deutlich am Spektrum, dass nur die führende Korrektur im Magnetfeld beinhaltet (vgl. ebenso Kap. 4.1.6).

Das Spektrum, das nur Magnetfeld- und relativistische Korrekturen berücksichtigt ist sowohl qualitativ als auch quantitativ korrekt bis zu Energien von  $7U_p$  (entspricht 87.5 keV im betrachteten Fall mit  $U_p = 12.5$  keV), äquivalent zu Laserintensitäten von  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> bei suboptischen Frequenzen. Korrekturen höherer Ordnung im Lasermagnetfeld und in der relativistischen Massenverschiebung werden besonders wichtig in der Cutoff-Region des Spektrums. Sie sind verantwortlich für die Erhöhung der Emissionsrate

und die Verringerung der Cutoff-Energie. Die Rolle der relativistischen Effekte im Ionisationsprozess mit starken Feldern kann durch folgende Parameter [18, 58] charakterisiert werden:  $\eta_4^2 = (E_a/E)p_{z0}^2/2I_p = \sqrt{2I_p}c\xi^3/\omega/16$  und  $\eta_2 = \xi^2$ , wobei  $p_{z0}$  der kinetische Startimpuls des ionisierten Elektrons ist, der die Rückstreuung ermöglicht (siehe auch Abschnitt 2.1 mit  $\eta_4$  in einer anderen Darstellung).  $E_a$  und  $E$  sind die elektrischen Feldstärken im atomaren System bzw. des Lasers. Der Parameter  $\eta_4$  beschreibt den Einfluss des Drifts, der durch das magnetische Feld induziert wird im Verhältnis zur Ausdehnung des Wellenpakets des aktiven Elektrons. Im betrachteten moderat-relativistischen Bereich (mit einer Kreisfrequenz des Lasers von  $\omega = 0.05$  a.u., einer Laserintensität von  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>,  $\xi = 0.33$ , und einer atomaren Ionisationsenergie von 8 a.u.) mit  $\eta_4 \sim 2.5$ , bedeutet dies, dass der Ionisationsprozess mit anschließender Rückstreuung stark unterdrückt ist. Die schwach-relativistische Theorie mit Magnetfeld-Korrekturen beinhaltet den Drift-Effekt und beschreibt den Prozess zufriedenstellend (vgl. Abb. 4.5). Der Parameter  $\xi^2$  beschreibt den Einfluss der relativistischen Massenverschiebung sowie des Lasermagnetfeldes auf den Energiegewinn des Elektrons. Im betrachteten Regime ist  $\xi^2 \approx 0.1$  ziemlich klein. Deshalb ist die schwach-relativistische Theorie mit führenden relativistischen Massenkorrekturen korrekt für Laserintensitäten bis zu  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>. Für höhere Intensitäten mit  $\xi^2 > 0.1$  werden Korrekturen höherer Ordnung bezüglich des Magnetfeldes und der relativistischen Massenverschiebung wichtiger und sind verantwortlich für den Abfall der Cutoff-Energie und den Anstieg der Emissionsrate bei hohen Energien des ionisierten Elektrons.

Relativistische Merkmale können auch in der Winkelverteilung der rückgestreuten Elektronen identifiziert werden. Es ist zu erwarten, dass der relativistische Drift die Winkelverteilung in Propagationsrichtung des Lasers verschiebt. Tatsächlich deuten die klassischen relativistischen Bewegungsgleichungen das qualitative Verhalten der Winkelverteilung der rückgestreuten Elektronen an. Die Energie und Impulse des Elektrons nach der Rückstreuung zum Zeitpunkt  $\eta$  sind dann (vgl. z.B. [92]):

$$\begin{aligned}
 p_x &= A(\eta)/c - A(\eta_0)/c + p_{x0} \\
 p_z &= \frac{[A(\eta)/c - A(\eta_0)/c + p_{x0}]^2 - p_{x0}^2}{2\Lambda} + p_{z0} \\
 \varepsilon &= c \frac{[A(\eta)/c - A(\eta_0)/c + p_{x0}]^2 - p_{x0}^2}{2\Lambda} + \varepsilon_0,
 \end{aligned} \tag{4.30}$$

wobei  $\varepsilon_0, \mathbf{p}_0$  die Energien und Impulse des Elektrons unmittelbar nach der Rückstreuung sind und  $\Lambda = \Lambda(p_x, p_z) = \varepsilon_{\mathbf{p}}/c - p_z$  gilt. Für die Endenergien und -impulse des Elektrons

## KAPITEL 4. ATI und HHG im relativistischen Parameterbereich

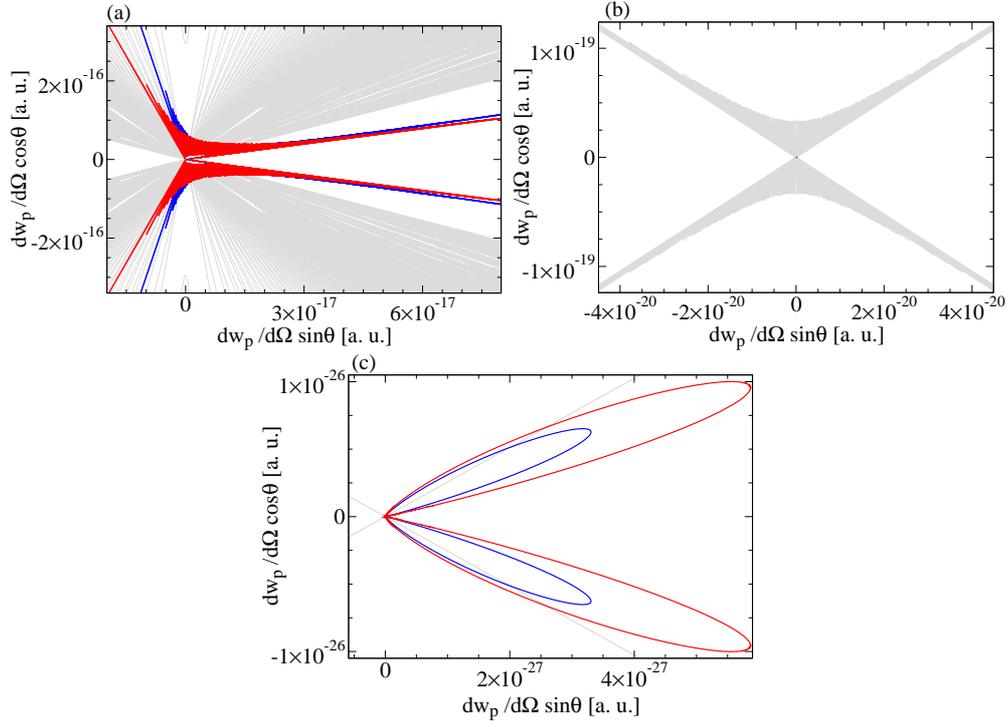


Abbildung 4.6: Polare Abbildungen der Winkelverteilungen für Elektronen mit Endenergien von  $9U_p$ , (a) mit einer Laserintensität von  $7 \times 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>, einer Kreisfrequenz von  $\omega = 0.05$  a.u. (entspricht  $U_p = 200$  a.u.) und einem Ionisationspotenzial von  $I_p = 4$  a.u., (b) und (c) mit denselben Parametern wie in Abb. 4.2: (grau) in der Dipolnäherung, (blau) mit Magnetfeld- und relativistischen Korrekturen, (rot) Klein-Gordon-Gleichung.  $\theta = 0$  entspricht der Emission in die Polarisationsrichtung des Lasers.

ergibt sich:

$$\begin{aligned}
 p_x &= p_{x0} - A(\eta_0)/c \\
 p_z &= \frac{[p_{x0} - A(\eta_0)/c]^2 - p_{x0}^2}{2\Lambda} + p_{z0} \\
 \varepsilon &= c \frac{[p_{x0} - A(\eta_0)/c]^2 - p_{x0}^2}{2\Lambda} + \varepsilon_0.
 \end{aligned} \tag{4.31}$$

Der maximale Rückstreuwinkel lässt sich für eine bestimmte Endenergie  $\varepsilon = \epsilon U_p = \epsilon c^2 \xi^2 / 4$  wie folgt abschätzen. Er wird maximal zu einer festgelegten Endenergie sein, wenn das rückgestreute Elektron eine maximale Energie  $\varepsilon_0 \approx 3U_p = 3c^2 \xi^2 / 4$  hat. Das Feld ist minimal

zum Zeitpunkt der Rückstreuung, d.h.  $A(\eta_0) = -\xi c^2$ . Damit erhalten wir:

$$\begin{aligned} p_x &= p_{x0} + \xi c \\ p_z &= \frac{\epsilon - 3}{4} \xi^2 c + p_{z0}. \end{aligned} \quad (4.32)$$

Der maximale Rückstreuwinkel bezüglich der Polarisationsrichtung des Laser ist durch folgende Gleichung bestimmt:

$$\cos \theta + \frac{\epsilon - 3}{4} \xi \sin \theta = \frac{\sqrt{2} \epsilon - 1 + \epsilon(\epsilon - 3) \xi^2 / 4}{\sqrt{\epsilon} \cdot 4 \sqrt{1 + \epsilon \xi^2 / 8}}. \quad (4.33)$$

Im nicht-relativistischen Fall (Dipolnaherung) mit  $\xi \rightarrow 0$ , gibt es zwei symmetrische Losungen von Gl. (4.33):  $\theta = \pm \theta_d$ , die zwei moglichen Werten fur  $p_z$  entsprechen (weiterhin ist die Winkelverteilung symmetrisch bezuglich der Propagationsrichtung, wie die  $p_x \rightarrow -p_x$ ,  $A(\eta_0) \rightarrow -A(\eta_0)$  Transformation zeigt). Aus Gl. (4.33) im relativistischen Fall folgt dann  $\theta = \pm \theta_d + \delta$ , d.h. der maximale Ruckstreu-Emissionswinkel ist in Laserpropagationsrichtung verschoben (siehe auch Kap. 4.1.6). Im schwach-relativistischen Parameterbereich mit  $\xi \ll 1$ , gilt  $\delta \approx (\epsilon - 3)\xi/4$ .

Abb. 4.6 zeigt das Winkelspektrum der emittierten Elektronen mit einer Endenergie von  $9U_p$  in Polarkoordinaten. Die Berechnungen sind in der Dipolnaherung, inklusive Magnetfeld- und relativistischen Korrekturen bzw. basierend auf der Klein-Gordon-Gleichung fur einen relativistischen Feldstarkeparameter von  $\xi = 0.21$  bzw.  $\xi = 0.33$ , durchgefuhrt worden. Auf Grund der linearen Skalierung der Achsen wird der groe Unterschied zwischen den Emissionsraten deutlich. Dieser ist fur hohere Intensitaten naturlich groer. Weiterhin erkennt man den Drift des Elektrons in Laserpropagationsrichtung. Auerdem werden die charakteristischen Seitenbander, die durch die Ratenerhohung an der Cutoff-Energie entstehen, in Laserpropagationsrichtung verschoben und verschwinden fur das starkere Feld. Das Spektrum mit den Korrekturtermen ist wiederum qualitativ richtig, allerdings nicht quantitativ.

### 4.1.5 Das Plateau

Im Folgenden soll die Plateauhohle im relativistischen Parameterbereich abgeschatzt werden. Die Prozessamplitude der Gl. (4.25) hangt im Wesentlichen von der komplexen Bahn des ruckgestreuten Elektrons ab. Letztere wird durch die Gl.en (4.24), die die Ionisations- bzw. Ruckstreuphasen  $\tilde{\eta}''$ ,  $\tilde{\eta}'$  und den Driftimpuls  $\tilde{\mathbf{q}} = \tilde{\mathbf{q}}(\tilde{\eta}', \tilde{\eta}'')$  der ruckgestreuten Elektronen bestimmen, beschrieben. Diese Gleichungen haben komplexe Losungen, die mittels der Theorie der komplexen Bahnen erklart werden konnen [16]. Der Realteil korrespondiert mit der klassischen Zeit, wahrend der Imaginarteil mit der Wahrscheinlichkeit der Elektronenbahn verbunden ist. Der Imaginarteil der Ionisationsphase bestimmt dann also die Wahrscheinlichkeit des Prozesses und folglich auch die Plateauhohle. Mittels einer

## KAPITEL 4. ATI und HHG im relativistischen Parameterbereich

störungstheoretischen Lösung der Sattelpunktgleichungen (4.24) bezüglich des Ionisationspotenzials und des kinetischen Impulses (das bedeutet:  $I_p/c^2 \ll 1$  und  $\tilde{q}_{z0}/c \ll 1$  mit  $\tilde{q}_{z0}(\eta) = \tilde{q}_z + (\tilde{q}_x A(\eta)/c + A(\eta)^2/2c^2)/\Lambda(\tilde{q}_x, \tilde{q}_z)$ ) kann die Ionisationsphase abgeschätzt werden. Die Sattelpunktgleichungen nullter Ordnung repräsentieren die klassischen relativistischen Bedingungen für die Rückkehr des Elektrons zum atomaren Rumpf: Das Elektron startet zur Phase  $\eta_0''$  mit nicht-verschwindender Geschwindigkeit entgegen der Laserpropagationsrichtung und kehrt zur Phase  $\eta_0'$  zum atomaren Rumpf zurück, wobei  $\mathbf{q}^0 = \tilde{\mathbf{q}}(\eta_0', \eta_0'')$  der relativistische Driftimpuls ist:

$$\begin{aligned}\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{p}}(\eta') &= \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{q}^0}(\eta') \\ q_x^0 + A(\eta'')/c &= 0.\end{aligned}\tag{4.34}$$

Die Lösung der Gl. (4.34) ( $\eta_0', \eta_0''$ ) ist real. Während die Korrektur erster Ordnung der Rückstreuphase real bleibt, wird diejenige der Ionisationsphase komplex mit einem Imaginärteil  $i\sqrt{2I_p - I_p^2/c^2 + q_{zd}(\eta_0'')^2}/|E(\eta_0'')|$ . Dies kann nun in die Impulsamplitude (Gl. (4.25)) eingesetzt und die Wirkung im Exponenten bezüglich der Terme  $q_{zd}(\eta_0'')/c$  und  $I_p/c^2$  entwickelt werden. Man erhält dann einen exponentiellen Dämpfungsfaktor in der ATI-Amplitude:

$$D = \exp\left(-\frac{[2I_p + q_{zd}(\eta_0'')^2]^{3/2}}{3|E(\eta_0'')|}\right),\tag{4.35}$$

wobei wir den kleinen Term  $I_p^2/c^2$  vernachlässigt haben. Das ionisierte Elektron kann nur zum Kern zurückkehren, wenn es mit nicht-verschwindendem Impuls  $q_{z0}$  gegenläufig zur Laserpropagationsrichtung startet. Aus Gl. (4.35) folgt dann, dass die Tunnelwahrscheinlichkeit mit  $q_{z0}(\eta_0'')$  sinkt und damit der Grund für die Verminderung der Plateauhöhe in der relativistischen Theorie gegenüber der Dipolnäherung ist. Im betrachteten moderat-relativistischen Parameterbereich mit einer Laserintensität von  $1.8 \times 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>, einer Kreisfrequenz von  $\omega = 0.05$  a.u., einer Ionisationsenergie von  $I_p = 8$  a.u. und einer Emission in Richtung der maximalen Cutoff-Energie, ergibt sich in nullter Ordnung  $\eta_0'' = -1.3$  für die Ionisationsphase,  $q_{z0}(\eta_0'') = -0.9U_p/c = -3.2$  a.u. für den kinetischen Impuls in Laserpropagationsrichtung und  $|E(\eta_0'')| = 2.2$  a.u. für die elektrische Feldstärke des Lasers zum Ionisationszeitpunkt. Hieraus folgt dann eine Verminderung der relativistischen ATI-Prozesswahrscheinlichkeit am Cutoff gegenüber der nicht-relativistischen um einen Faktor von  $5 \times 10^{-10}$ , was mit Abb. 4.5 übereinstimmt.

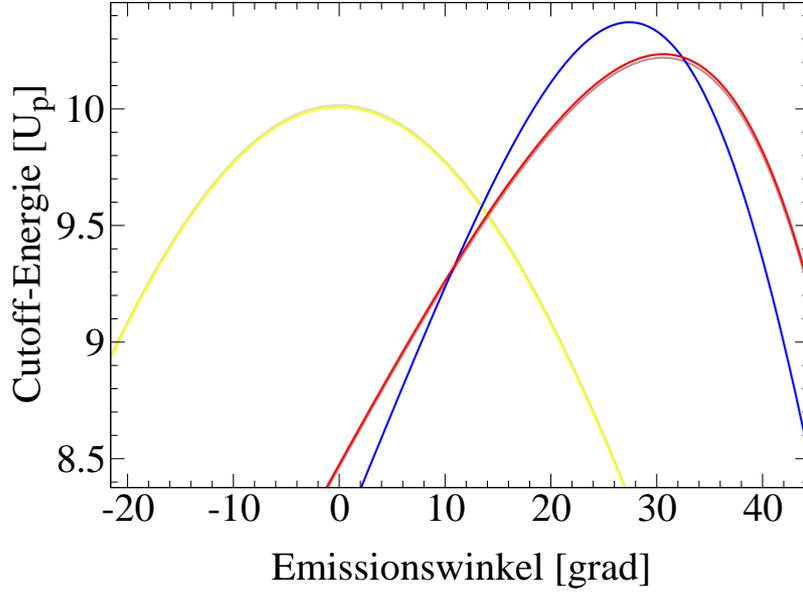


Abbildung 4.7: Cutoff-Energie skaliert in Vielfachen von  $U_p$  in Abhängigkeit vom Emissionswinkel  $\theta = \arctan(p_z/p_x)$ : (blau) mit Korrekturen bezüglich des Magnetfeldes und der relativistischen Massenverschiebung, (rot) Klein-Gordon-Gleichung, (braun) klassisch-relativistisch, stimmt überein mit der roten Kurve, (gelb) klassisch-nicht-relativistisch, (grau) in Dipolnäherung, stimmt überein mit der gelben Kurve. Die Parameter des Laserfeldes sowie des Atoms sind die gleichen wie in Abb. 4.2 ( $U_p = 500$  a.u.).

### 4.1.6 Die Cutoff-Energie bei ATI

Relativistische Signaturen können ebenfalls für das Verhalten der Cutoff-Energie des ATI-Spektrums identifiziert werden. Die Endenergie nach der Ionisation ist

$$\varepsilon^F = \lim_{\eta \rightarrow \infty} \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{p}}(\eta), \quad (4.36)$$

wobei das Laserfeld adiabatisch abgeschaltet wird:  $\mathbf{A}(\infty) = 0$ . Die Cutoff-Energie ist nun definiert durch die Gl.en (4.24) und die zusätzliche Extremalbedingung:

$$\lim_{\eta \rightarrow \infty} d\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{p}}(\eta)/d\eta'' = 0. \quad (4.37)$$

Auf Grund der relativistischen Effekte ist die Winkelverteilung der Elektronen verändert und die maximale Cutoff-Energie, skaliert in  $U_p$ , hängt von der Laserintensität ab. Abb. 4.7 stellt die Abhängigkeit der Cutoff-Energie von dem Emissionswinkel im moderat-relativistischen Regime ( $U_p = 500$  a.u.) für die unterschiedlichen Näherungen dar. Die

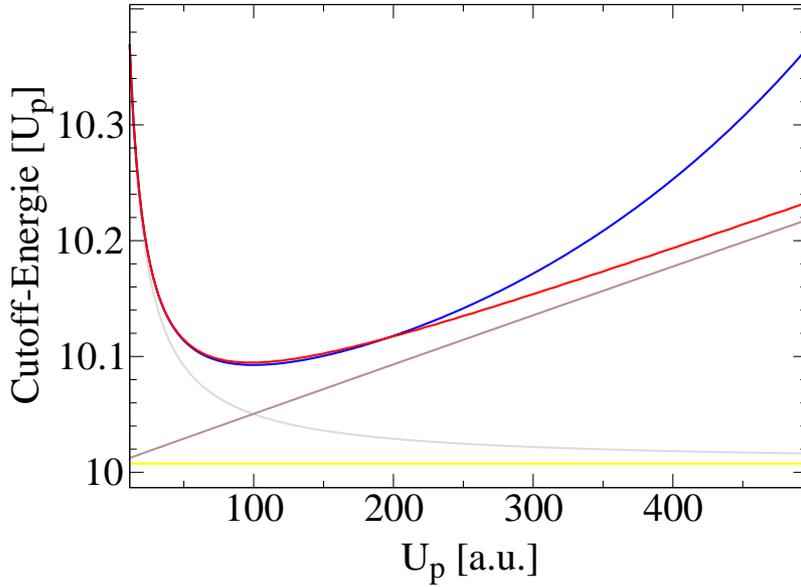


Abbildung 4.8: Maximale Cutoff-Energie skaliert in Vielfachen von  $U_p$  gegen die Laserintensität, dargestellt durch  $U_p$ : (blau) mit Magnetfeld- und relativistischer Massenverschiebungskorrektur, (rot) Klein-Gordon-Gleichung, (braun) klassisch-relativistisch, (grau) in der Dipolnäherung, (gelb) klassisch-nicht-relativistisch. Die Parameter des Laserfeldes wie des Atoms sind die gleichen wie in Abb. 4.2.

Lorentz-Kraft ist der Grund für die Verschiebung der maximalen Cutoff-Energie in Laserpropagationsrichtung und erklärt ebenso die Verschiebung des Winkelspektrums zu einer festen Endenergie in diese Richtung. Z. B. werden die Elektronen mit einer Endenergie von  $9U_p$  in den Winkelbereich zwischen 10 und 45 Grad emittiert. Weiterhin ist die Cutoff-Energie im relativistischen Fall etwas größer als in der nicht-relativistischen Beschreibung, da die sich relativistisch bewegenden Elektronen ein rot-verschobenes Laserfeld spüren. Dies erhöht die Wechselwirkungszeit zwischen Laser und Elektron und somit auch die vom Elektron aufgenommene Energie. Die Berechnungen mit führenden Magnetfeld- und relativistischen Korrekturen überschätzen diesen Effekt, sind aber qualitativ korrekt. Weiterhin sieht man, dass die klassischen Berechnungen für die Cutoff-Energie mit den quantenmechanischen übereinstimmen, sowohl nicht-relativistisch als auch relativistisch. In den klassisch-relativistischen Rechnungen werden Bahnen mit verschwindendem kinetischen Startimpuls in Laserpolarisationsrichtung betrachtet und die Ionisationsenergie  $I_p$  vernachlässigt. Der Effekt der Ionisationsenergie  $I_p$  auf die Cutoff-Energie für große Laserintensitäten ist also klein und der erste Schritt des Prozesses, die Tunnelionisation, hat fast keinen Einfluss auf die Endenergie des ionisierten Elektrons.

Die Cutoff-Energie ist maximal für den Winkel  $\theta_{max}$ , der durch folgende Bedingung festgelegt wird:

$$\frac{\partial \varepsilon^F}{\partial \theta} \Big|_{\theta=\theta_{max}} = 0. \quad (4.38)$$

Abb. 4.8 stellt die Abhängigkeit der maximalen Cutoff-Energie von der Laserintensität dar. Die Korrekturen auf Grund des Lasermagnetfeldes und der relativistischen Massenverschiebung erhöhen die Cutoff-Energie leicht. Weiterhin sieht man, dass die führenden Korrekturen diesen Effekt adäquat mit einem Fehler von einem Promille bis zu ponderomotiven Energien von  $U_p = 300$  a.u. beschreiben.

## 4.2 Erzeugung höherer Harmonischer

### 4.2.1 HHG in der SFA basierend auf der Klein-Gordon-Gleichung

HHG im nicht-relativistischen Parameterbereich wird erfolgreich als Methode zur Erzeugung von XUV-Strahlung [7] angewendet. Noch kurzwelligere Strahlungsquellen werden für verschiedene physikalische Anwendungen benötigt. Es ist somit erstrebenswert den HHG-Prozess auch im relativistischen Bereich zu betreiben um noch höher-energetischere Strahlung zu produzieren. Dies legt eine Erhöhung der Laserintensität nahe. In diesem Abschnitt soll deshalb der HHG-Prozess im relativistischen Parameterbereich beschrieben und verstanden werden.

Fundament der Behandlung des relativistischen HHG-Prozesses ist wiederum die SFA. Sie wird zur Lösung der, die Dynamik des aktiven Elektrons beschreibenden, Klein-Gordon-Gleichung (4.1) verwendet. Das Vorgehen zur Ermittlung der Prozess-Amplitude sieht wie folgt aus: Die Elektron-Wellenfunktion von der Form aus Gl. (4.12) ist eine Lösung der Klein-Gordon-Gleichung. Auf sie wird die SFA angewandt. Die exakte Green-Funktion wird dann also durch die Volkov-Green-Funktion ersetzt ( $G(x, x') \rightarrow G^V(x, x')$ ) und die Wahrscheinlichkeit der harmonischen Photonen störungstheoretisch berechnet, wobei der Wechselwirkungshamiltonian zwischen dem Elektron und dem harmonischen Feld  $V_H$  die Störung darstellt. Auf diesem Wege erhält man die relativistische HHG-Amplitude, basierend auf der Klein-Gordon-Gleichung, wie folgt [24]:

$$M_{\omega_H} = -i \int d^4x' \int d^4x'' \{ \Phi(x')^* V_H(x') G^V(x', x'') V_A(x'') \Phi(x'') \}, \quad (4.39)$$

wobei  $\omega_H$  die Frequenz der Harmonischen ist,  $V_H(x) = -2 \langle 1_H | \mathbf{A}_H(x)/c \cdot (\hat{\mathbf{p}} + \mathbf{A}(\eta)/c) | 0_H \rangle$ ,  $\hat{\mathbf{p}}$  der Impulsoperator des Elektrons,  $\mathbf{A}_H(x) = c\sqrt{2\pi/\omega_H} \hat{\mathbf{e}}_H^* b^\dagger \exp(i\omega_H t - i\mathbf{k}_H \cdot \mathbf{r})$  das Vektorpotenzial des harmonischen Felds in zweiter Quantisierung, mit dem Einheitsvektor in Polarisationsrichtung  $\hat{\mathbf{e}}_H$  und dem harmonischen Photon-Erzeugungsoperator  $b^\dagger$ ;  $|l_H\rangle$  sind die Zustände des harmonischen Feldes mit der Photonenbesetzungszahl  $l$  ( $l = 0, 1$ ). Weiterhin,

#### KAPITEL 4. ATI und HHG im relativistischen Parameterbereich

wenden wir die Integrationsvariablentransformation  $(ct', \mathbf{r}') \rightarrow (\eta', \mathbf{r}')$ ,  $(ct'', \mathbf{r}'') \rightarrow (\eta'', \mathbf{r}'')$  mit  $\eta' = k^\mu x'_\mu$  und  $\eta'' = k^\mu x''_\mu$  an. Mit der Annahme, dass die Laserwellenlänge viel größer ist als die Ausdehnung des Wellenpakets des ionisierten Elektrons, erhalten wir die Emissionsrate für den HHG-Prozess:

$$M_{\omega_H} = \int_{-\infty}^{\infty} d\eta' \int_{-\infty}^{\eta'} d\eta'' \int d^3\mathbf{p} m^H(\mathbf{p}, \eta', \eta'') \exp(-i(S(\mathbf{p}, \eta', \eta'') + (\omega_H/\omega)\eta')), \quad (4.40)$$

wobei  $m^H(\mathbf{p}, \eta', \eta'')$  das HHG-Matrixelement für die Emission in Laserpropagationsrichtung ist. Die Polarisation der emittierten Photonen sei parallel zur Polarisation des treibenden Laserfeldes

$$\begin{aligned} m^H(\mathbf{p}, \eta', \eta'') &= - \sqrt{\frac{2\pi}{\omega_H} \frac{c^2(p_x + A(\eta')/c)}{(2\pi)^{3/2}\varepsilon_{\mathbf{p}}\omega^2}} \left\langle 0 \left| \mathbf{p} + \frac{\mathbf{A}(\eta')}{c} - \frac{\mathbf{k}}{\omega}(\varepsilon_{\mathbf{p}} + I_p - c^2) \right. \right\rangle \\ &\times \left\langle \left. \mathbf{p} + \frac{\mathbf{A}(\eta'')}{c} - \frac{\mathbf{k}}{\omega}(\varepsilon_{\mathbf{p}} + I_p - c^2) \right| V \right| 0 \rangle. \end{aligned} \quad (4.41)$$

Unter Berücksichtigung der Periodizität des HHG-Prozesses in einem langen Laserpuls, d.h. der Periodizität der Funktion  $\int_{-\infty}^{\eta'} d\eta'' \int d^3\mathbf{p} m^H(\mathbf{p}, \eta', \eta'') \exp(-iS(\mathbf{p}, \eta', \eta''))$  in der Variablen  $\eta'$ , kann die HHG-Amplitude wie folgt dargestellt werden:

$$\begin{aligned} M_{\omega_H} &= \sum_n \delta(n\omega - \omega_H)\omega \\ &\times \int_{-\pi}^{\pi} d\eta' \int_{-\infty}^{\eta'} d\eta'' \int d^3\mathbf{p} m^H(\mathbf{p}, \eta', \eta'') \exp(-i(S(\mathbf{p}, \eta', \eta'') + n\eta')). \end{aligned} \quad (4.42)$$

Die Wahrscheinlichkeit der harmonischen Photonenemission pro Zeiteinheit ist gegeben durch:

$$dw_{\omega_H} = \frac{|M_{\omega_H}|^2}{\mathcal{T}} d^3\mathbf{k}_H \quad (4.43)$$

mit der Wechselwirkungszeit  $\mathcal{T}$ . Die differentielle Rate der  $n$ -ten Harmonischen ist:

$$\frac{dw_n}{d\Omega} = n\omega \frac{\omega^2}{c^3} |M_n|^2, \quad (4.44)$$

wobei

$$M_n = \int_{-\pi}^{\pi} d\eta' \int_{-\infty}^{\eta'} d\eta'' \int d^3\mathbf{p} \tilde{m}^H(\mathbf{p}, \eta', \eta'') \exp(-i(S(\mathbf{p}, \eta', \eta'') + n\eta')) \quad (4.45)$$

mit

$$\begin{aligned} \tilde{m}^H(\mathbf{p}, \eta', \eta'') &= - \frac{c^2(p_x + A(\eta')/c)}{(2\pi)^{3/2}\varepsilon_{\mathbf{p}}\omega^2} \left\langle 0 \left| \mathbf{p} + \frac{\mathbf{A}(\eta')}{c} - \frac{\mathbf{k}}{\omega}(\varepsilon_{\mathbf{p}} + I_p - c^2) \right. \right\rangle \\ &\times \left\langle \left. \mathbf{p} + \frac{\mathbf{A}(\eta'')}{c} - \frac{\mathbf{k}}{\omega}(\varepsilon_{\mathbf{p}} + I_p - c^2) \right| V \right| 0 \rangle. \end{aligned} \quad (4.46)$$

Für große Wellenlängen (d.h.  $\omega \ll I_p \ll U_p$ ) ist die Sattelpunktmethode anwendbar (siehe Anhang B). Die Sattelpunktgleichungen lauten

$$\begin{aligned}
 \tilde{p}_x &= -\frac{\int_{\tilde{\eta}''}^{\tilde{\eta}'} d\tilde{\eta} A(\tilde{\eta})/c}{\tilde{\eta}' - \tilde{\eta}''} \\
 \tilde{p}_y &= 0 \\
 \tilde{p}_z &= \frac{\tilde{p}_x^2 + p_m^2/2}{\sqrt{c^2 - p_m^2 - \tilde{p}_x^2}} \\
 \tilde{\varepsilon}_{\tilde{\mathbf{p}}}(\tilde{\eta}') &= n\omega + c^2 - I_p \\
 \tilde{\varepsilon}_{\tilde{\mathbf{p}}}(\tilde{\eta}'') &= c^2 - I_p,
 \end{aligned} \tag{4.47}$$

mit der Ionisations- und Rekombinationsphase  $\tilde{\eta}''$  bzw.  $\tilde{\eta}'$ , und dem Driftimpuls  $\tilde{\mathbf{p}}$ .

### 4.2.2 HHG-Spektren im relativistischen Parameterbereich

Unter Benutzung der standardmäßigen Sattelpunktmethode kann die HHG-Emissionsamplitude berechnet werden. HHG-Spektren im moderat-relativistischen Parameterbereich (bis zu Laserintensitäten von  $3.6 \times 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>,  $\lambda = 800$  nm) sind in [18, 20, 93] berechnet worden, wobei die Schrödinger-Gleichung mit Magnetfeldkorrekturen bzw. in Ref. [24] die Klein-Gordon Gleichung benutzt wurde. Für höhere Intensitäten ist HHG unter Benutzung von sinusförmigen Laserwellen signifikant unterdrückt. Aus diesem Grunde werden wir uns hier nur auf die Beziehungen zwischen den einzelnen Näherungen beschränken. Abb. 4.9 zeigt das HHG-Spektrum im betrachteten moderat-relativistischen Parameterbereich. Wir stellen die gleichen Unterschiede zwischen dem relativistischen und dem in der Dipolnäherung berechneten Spektrum wie im ATI-Fall fest. Weiterhin erkennt man, dass das Modell mit führenden Magnetfeldkorrekturen im betrachteten Parameterbereich gut anwendbar ist. Berücksichtigt man weiterhin den relativistischen Massenverschiebungsterm, verbessert sich die Übereinstimmung mit dem exakten relativistischen Modell (vorallem in der Cutoff Region) wesentlich. Bis zur Mitte des Plateaus, also für Energien der Harmonischen von weniger als  $2U_p$ ) sind beide Näherung nahezu exakt, da die relativistische Massenverschiebung erst für große Elektronenenergien zur Geltung kommt.

### 4.2.3 Die Cutoff-Energie bei HHG

Wir beschließen dieses Kapitel mit einer Untersuchung der Abhängigkeit der Cutoff-Energie von der Laserintensität (siehe Abb. 4.10). Die Magnetfeld-Korrekturen vermindern die

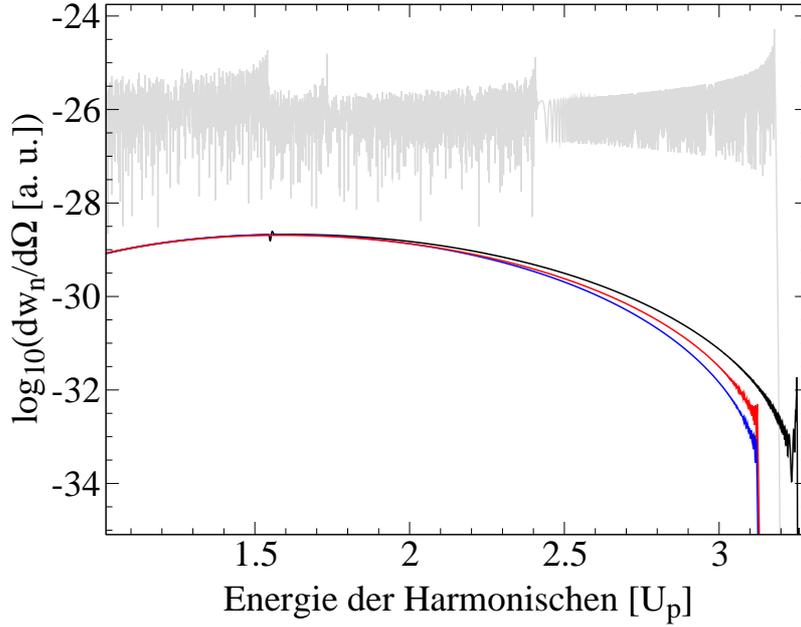


Abbildung 4.9: Energiespektrum der Harmonischen in Laserpropagationsrichtung über  $\log_{10}(dw_n/d\Omega)$  aus Gl. (4.44): (grau) in der Dipolnäherung, (schwarz) mit führenden Magnetfeld-Korrekturen, (blau) mit führenden Magnetfeld- und relativistischen Massenverschiebungstermen, und (rot) unter Berücksichtigung der Klein-Gordon-Gleichung. Die Parameter des treibenden Laserfeldes und des Atoms sind die gleichen wie in Abb. 4.2.

HHG-Wahrscheinlichkeit und erhöhen die Cutoff-Energie [58], während die relativistische Massenverschiebung der Cutoff-Erhöhung entgegenwirkt. Der Effekt der relativistischen Massenverschiebung ist etwas größer und deshalb verringert sich die Cutoff-Energie alles in allem um etwa ein Prozent im moderat-relativistischen Parameterbereich. Wie beim ATI-Prozess hat die Ionisierungsenergie einen nur sehr geringen Einfluss auf die Endenergie des Elektrons wie die klassischen Berechnungen zeigen.

Es ist nun analog zu Ref. [58] möglich die HHG-Cutoff-Energie näherungsweise analytisch anzugeben:

$$\begin{aligned} \omega_H = & I_p + p_x(t'_0)^2/2 - p_x(t'_0)^4/8c^2 + p_z(t'_0)^2/2 \\ & - p_x(t'_0) \frac{2I_p + p_z(t'_0)^2}{E(t'_0)(t'_0 - t''_0)} \end{aligned} \quad (4.48)$$

mit der klassischen Ionisationszeit  $\omega t'_0 = -1.26$ , der klassischen Rekollisionszeit  $\omega t'_0 = 2.83$  und dem kinetischen Impuls  $\mathbf{p}(t) = \tilde{\mathbf{p}} + \mathbf{A}(t)/c + \mathbf{k}/\omega(\tilde{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{A}(t)/c + \mathbf{A}(t)^2/2c^2)$  des ionisierten Elektrons (siehe auch [18]). Im betrachteten moderat-relativistischen Parameterbereich bei

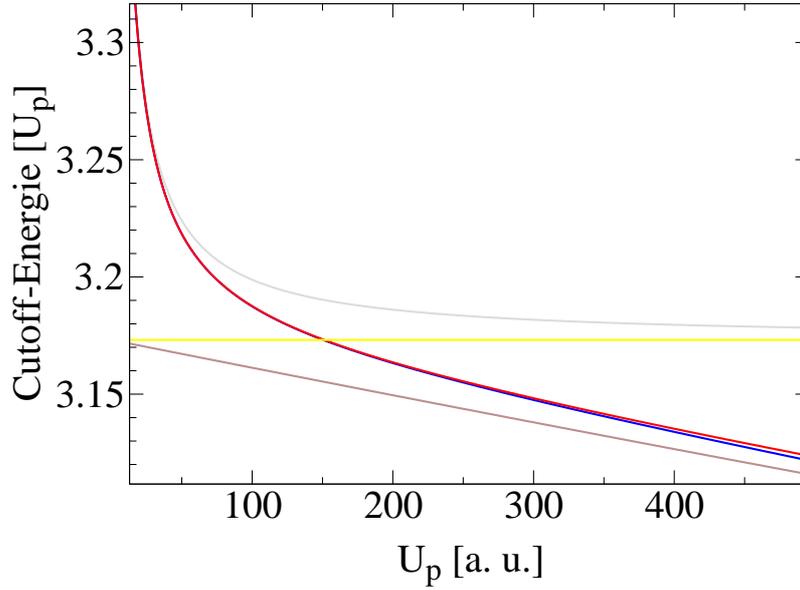


Abbildung 4.10: HHG-Cutoff-Energie, skaliert in Vielfachen von  $U_p$ , in Abhängigkeit von der Laserintensität dargestellt in  $U_p$ : (gelb) klassisch-nicht-relativistisch, (grau) in der Dipolnäherung, (blau) mit Magnetfeld-Korrekturen und relativistischer Massenverschiebung, (rot) Klein-Gordon-Gleichung (braun) klassisch-relativistisch. Die Parameter des Laserfeldes sowie des Atoms sind die gleichen wie in Abb. 4.2.

einer Laserintensität von  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>, einer Kreisfrequenz von  $\omega = 0.05$  a.u. und einem Ionisationspotenzial von  $I_p = 8$  a.u., ergibt sich für den kinetischen Impuls in Richtung der Laserpolarisation zur Rückstreuzeit  $p_x(t'_0) = -56$  a.u. und in Richtung der Laserpropagation  $p_z(t'_0) = 8.6$  a.u.. Der Impuls in Laserpropagationsrichtung zur Ionisationszeit ist  $p_z(t''_0) = -3.0$  a.u. und das elektrische Laserfeld  $E(t''_0) = -2.1$  a.u.. Die ersten zwei Terme von Gl. (4.48) stellen den nicht-relativistischen Cutoff dar, und die drei folgenden die führenden relativistischen Korrekturen, angeordnet nach sinkender Bedeutung. Die Skalierung ist durch folgende Formel gegeben:

$$\begin{aligned} \omega_H &= I_p + 3.2U_p - 5.0U_p^2/c^2 + 2.8U_p^2/c^2 \\ &+ 0.16(0.65U_p^2/c^2 + 2I_p). \end{aligned} \quad (4.49)$$

### 4.3 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die Wechselwirkung von atomaren Systemen mit konventionellen sinusoidalen Laserfeldern voll-relativistisch behandelt. Es wurden Prozessraten für die

#### *KAPITEL 4. ATI und HHG im relativistischen Parameterbereich*

beiden prominentesten Wechselwirkungstypen, die Above-Threshold-Ionisation und die Erzeugung höherer Harmonischer, in der eichinvarianten relativistischen SFA analytisch berechnet. Es konnten sowohl die Energiespektren sowie die Winkelverteilungen angegeben werden und mit der schwach-relativistischen Theorie (siehe Kapitel 2) verglichen werden. Es wurde somit möglich den Gültigkeitsbereich letzterer anzugeben. Er erstreckt sich bis hin zu Laserintensitäten von  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> bei suboptischen Frequenzen. Außerdem konnte der Einfluss der Magnetfeld- sowie der relativistischen Effekte auf die Rückkehrwahrscheinlichkeit sowie auf die maximale Energie der emittierten Elektronen bzw. Photonen angegeben werden. Wichtigster Unterschied zur nicht-relativistischen Beschreibung ist der durch das Lasermagnetfeld induzierte Drift des ionisierten Elektrons in Laserpropagationsrichtung der zu einer starken Verringerung der Prozessraten führt. Eine weitere Erhöhung der Intensität des den Prozess treibenden Laserfeldes zur Erzeugung von Photonen bei HHG mit noch höheren Energien, der experimentell sehr erwünscht wäre, ist deshalb wegen mangelnder Ausbeute zum Scheitern verurteilt. Um dieses Problem zu umgehen, werden in den folgenden Kapiteln Vorschläge vorgestellt, die den Ionisations-Rekollisionsprozess im relativistischen Parameterbereich möglich machen, indem entweder das atomare System oder das treibende Laserfeld geeignet verändert wird.

# 5 Bestehende Vorschläge zur Unterdrückung des relativistischen Drifts

Bisher wurde der von konventionellen sinusoidalen Laserfeldern getriebene Ionisations-Rekollisionsprozess bei Atomen betrachtet. Beim Eintreten in den relativistischen Parameterbereich beginnt der von der Lorentz-Kraft des Lasermagnetfeldes induzierte magnetische Drift des Elektrons in Laserpropagationsrichtung die Rückkehrwahrscheinlichkeit zum atomaren Rumpf stark zu verringern und Folgeprozesse wie HHG oder ATI zu unterdrücken. Um nun die Rückstreuung im ATI- oder Rekombination im HHG-Fall auch für relativistische Laserintensitäten zu ermöglichen, müssen die Eigenschaften des atomaren und oder des Lasersystems modifiziert werden. In der Literatur existieren hierfür mehrere Vorschläge. Sie sollen in diesem Kapitel einschließlich ihrer Vor- und Nachteile kurz vorgestellt werden.

## 5.1 Modifikation des atomaren Systems

### 5.1.1 Verwendung antisymmetrischer Orbitale

Beim konventionellen Ionisations-Rekollisionsprozess befindet sich das aktive Elektron des atomaren Systems in einem symmetrischen Ausgangszustand. Letzterer wurde nun in Ref. [29, 30] durch ein antisymmetrisches Orbital ersetzt und die Auswirkungen auf die Rückkehrwahrscheinlichkeit der ionisierten Elektronen im schwach-relativistischen Parameterbereich untersucht. Experimentell sind solche antisymmetrischen Ausgangszustände z. B. über p-Orbitale bei Atomen oder antisymmetrische  $\Pi$ -Orbitale bei Molekülen zugänglich. Wegen der Antisymmetrie des Ausgangszustandes besitzen die Elektronen immer eine Impulskomponente senkrecht zur Spiegelebene des Orbitals. Ordnet man nun das Atom bzw. Molekül so an, dass die Spiegelebene des Orbitals parallel zur Polarisationsrichtung des treibenden Laserfeldes ist, was experimentell sowohl für Atome [30] wie auch für Moleküle realisierbar ist [94], haben die ionisierten Elektronen immer einen sogenannten Antisymmetrie-Impuls in oder entgegengesetzt zur Laserpropagationsrichtung. Im zweiten

Fall kann dieser nun den Magnetfelddrift im Laser kompensieren und so die Rückkehrwahrscheinlichkeit erhöhen (siehe Abb. 5.1). Folgeprozesse wie HHG werden so im relativistischen Parameterbereich möglich. Der Pluspunkt dieses Vorschlages ist die relativ leichte experimentelle Herstellung des Ausgangssystems. Ein Nachteil ist die Beschränkung auf einen eher schwach-relativistischen Parameterbereich, da für voll-relativistische Parameter extrem hohe Bindungsenergien für die Driftkompensation nötig sind, die dann den Tunnelionisationsprozess unterdrücken. Klassische Abschätzungen deuten maximale Rückkehrenergien des ionisierten Elektrons von 30 keV an.

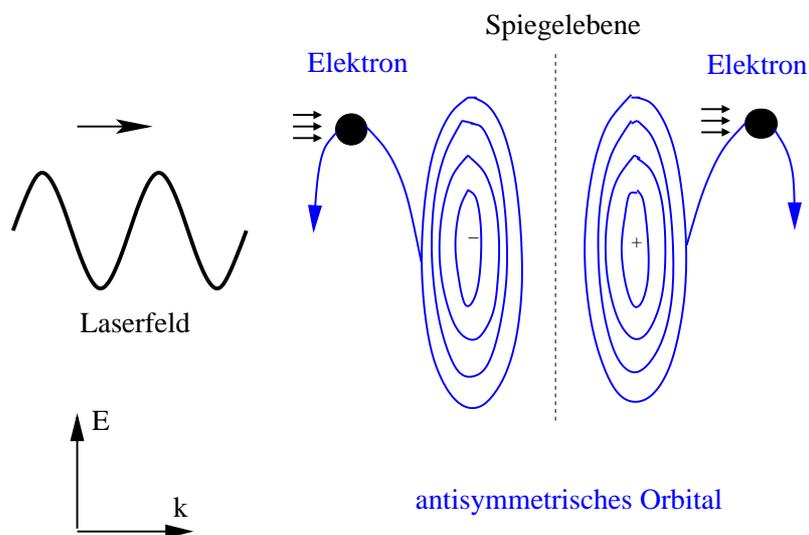


Abbildung 5.1: Schematisches Bild des Ionisationsprozesses eines antisymmetrischen atomaren/molekularen Orbitals in einem Laserfeld.  $\mathbf{E}$  und  $\mathbf{k}$  sind die Vektoren in Polarisations- bzw. Propagationsrichtung des Laserfeldes. Die gestrichelte Linie symbolisiert die Spiegelebene des Orbitals. Der Antisymmetrie-Drift kann nun den Lasermagnetfelddrift im Falle der Ionisation aus dem linken Orbitalteil kompensieren und so die Rückkehr zum atomaren/molekularen Rumpf ermöglichen.

### 5.1.2 Verwendung relativistisch beschleunigter Ionen

Bei diesem Vorschlag wird das ruhende Atom/Ion durch ein auf eine relativistische Geschwindigkeit  $v$  beschleunigtes Ion ersetzt. Ist nun seine Bewegungsrichtung entgegengesetzt zur Propagationsrichtung des treibenden Laserfeldes, so wird die Kreisfrequenz des Lasers vom Laborsystem (L) ins Ruhesystem (R) des Ions über eine Lorentz-

Transformation stark erhöht:

$$\omega_R = \sqrt{\frac{1 + v/c}{1 - v/c}} \omega_L \quad (5.1)$$

Gleichzeitig transformiert sich das elektrische Feld des Lasers:

$$E_R = \sqrt{\frac{1 + v/c}{1 - v/c}} E_L. \quad (5.2)$$

Da der Drift des ionisierten Elektrons in Laserpropagationsrichtung durch folgende Skalierung gegeben ist:

$$\Delta z_R \sim \frac{E_R^2}{c\omega_R^3} = \sqrt{\frac{1 - v/c}{1 + v/c}} \frac{E_L^2}{c\omega_L^3} \sim \sqrt{\frac{1 - v/c}{1 + v/c}} \Delta z_L, \quad (5.3)$$

wird die Rückkehrwahrscheinlichkeit des sich mit einer Geschwindigkeit  $v$  bewegenden Systems gegenüber einem ruhenden erhöht. Außerdem wird die Ausdehnung des Wellenpakets des ionisierten Elektrons wegen der kürzeren Dauer zwischen Ionisation und Rekombination verringert, was positive Auswirkungen auf die Rekombinationswahrscheinlichkeit hat. Alles in allem lassen sich so durch Ionen, die auf relativistische Geschwindigkeiten ( $v/c = 0.998$ ) beschleunigt wurden, Rückkehrenergien von bis zu 50 keV bei signifikanten Raten vorhersagen, wobei ein Laser mit  $E_L \approx 1$  a.u. und  $\omega \approx 0.05$  a.u. angenommen wurde [31]. Die Schwierigkeit dieses Modells z. B. zur Erzeugung höherer Harmonischer liegt in der gleichmäßigen Beschleunigung vieler Ionen. Ist dies nicht der Fall, unterscheidet sich der den Drift bestimmende Lorentz-Faktor für die unterschiedlichen Ionen und deren ausgesendete Strahlung steht in keiner festen Phasenbeziehung untereinander. Dies reduziert die makroskopische Ausbeute stark.

Alternativ hierzu wäre deshalb die Verwendung von Lasern mit den oben berechneten Größen  $E_R$  und  $\omega_R$  im Laborsystem denkbar. Die benötigten Feldstärken und Frequenzen sind allerdings mit heutigen Techniken nicht verwirklichtbar.

### 5.1.3 Verwendung von Positronium

Eine weitere Möglichkeit zur Erhöhung der Rückkehrwahrscheinlichkeit des ionisierten Elektrons ist die Verwendung von Positronium als atomares System. Positronium besteht aus einem Positron und einem Elektron, dass über die Coulomb-Wechselwirkung aneinander gebunden ist. Da die Masse der beiden Teilchen identisch ist, ist der Drift in Laserpropagationsrichtung nach Aufspaltung gleich groß und die beiden Teilchen können effektiv miteinander rekombinieren (siehe Abb. 5.2). Nachteil dieses Vorschlags ist die schwierige Produktion ausreichend vieler Positronium-Atome und der Konkurrenzprozess der Zerstreuung der Teilchen-Anti-Teilchen-Paare [32].

Weiterhin konnte gezeigt werden, dass die Rekollision des Elektron-Positron-Paares mit allerdings geringen Raten zur Erzeugung von Myon-Paaren führt [95].

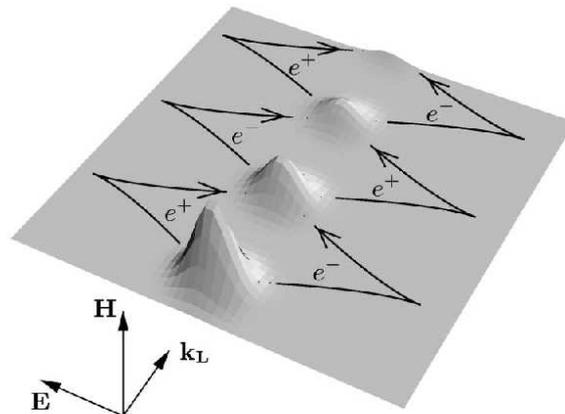


Abbildung 5.2: Schematisches Bild des Ionisationsprozesses von Positronium in einem Laserfeld mit anschließender Rückstreuung. Das gebundene System ist durch die Dichtefunktion dargestellt. Nach der Aufspaltung bewegen sich Elektron  $e^-$  sowie Positron  $e^+$  auf ihren klassischen Bahnen, symbolisiert durch Linien. Wegen ihrer unterschiedlichen Ladung werden die Teilchen durch das elektrische Feld des Lasers  $\mathbf{E}$  in unterschiedliche Richtungen beschleunigt, da ihre Massen allerdings identisch sind, driften sie mit der gleichen Geschwindigkeit in Laserpropagationsrichtung  $\mathbf{k}_L$  und können effektiv rekombinieren.  $\mathbf{H}$  stellt das Lasermagnetfeld dar.

## 5.2 Modifikation des Laserfeldes

### 5.2.1 Gegenläufige Laserfelder

Anstatt die Eigenschaften des atomaren Systems geeignet zu verändern, ist es natürlich auch möglich die Laserkonfiguration so zu modifizieren, dass die Lorentz-Kraft des Lasermagnetfeldes, die den relativistischen Elektronendrift verursacht, reduziert wird. Naheliegender ist somit die Verwendung gegenläufiger Laserwellen mit linearer oder zirkularer Polarisation.

Im Falle von linearer Polarisation der Laser führt dies auf stehende Wellen im elektrischen sowie im magnetischen Feld deren Phasenunterschied  $\pi/2$  beträgt. Hieraus erkennt man,

dass für maximales elektrisches Feld, das Magnetfeld verschwindet und somit dort kein Magnetfelddrift auf das Elektron wirken kann. Leider ist der räumliche Bereich, in dem dies zutrifft, sehr klein. Dies reduziert die Anzahl der Atome für die der Rückkehrprozess des ionisierten Elektrons möglich ist, stark. Weiterhin konnte gezeigt werden, dass für Atome die außerhalb dieses Sektors liegen die Elektronenbewegung chaotischen Charakter annimmt und die Rückkehrwahrscheinlichkeit mit hohen Energien somit nicht nur reduziert, sondern praktisch unmöglich macht [33, 34].

Es liegt deshalb nahe, die Dynamik des Elektrons in zwei gegenläufigen zirkular polarisierten Wellen zu untersuchen. Ist der Polarisationsinn der beiden Wellen gleichartig, sind das elektrische und das magnetische Feld im ganzen Raum parallel zueinander orientiert (siehe Abb. 5.3). Hieraus folgt, dass ein sich in Ruhe befindendes Elektron nur in Richtung des elektrischen Feldes beschleunigt wird, sich also immer parallel zum Magnetfeld bewegt und somit also keinen Drift senkrecht dazu erfährt. Dies sollte den Rückkehrprozess zum Atom begünstigen. Weiterhin konnte mit einer semiklassischen Berechnung der Dynamik des ionisierten Elektrons gezeigt werden, dass das Lasermagnetfeld der Ausdehnung des Wellenpakets entgegenwirkt [35]. Der Nachteil dieses Vorschlags ist die bisher fehlende quantenmechanische Beschreibung und die daraus resultierende Unsicherheit, ob die Dynamik eines Wellenpaket mit endlicher Ausdehnung adäquat durch das klassisch infinitesimal kleine Elektron beschrieben werden kann. Es ist nämlich zu erwarten, dass das Wellenpaket durch Scherkräfte des sich im Raum drehenden elektrischen Feldes zerrissen wird und die Dynamik, wie im Fall von linearer Polarisation, chaotisch wird. Dies hätte sehr negative Auswirkungen auf die Effizienz des Ionisations-Rekollisionsmechanismus.

### 5.2.2 Gekreuzte Laserpulse

Bei diesem Vorschlag handelt es sich um eine den Prozess treibende Laserkonfiguration, die aus zwei unterschiedlich intensiven konventionellen Laserpulsen besteht, deren Propagationsrichtungen senkrecht aufeinander stehen. Die Intensität des starken Pulses befindet sich im relativistischen Bereich, dominiert also den Ionisationsprozess und induziert dem ionisierten Elektron einen Drift in seine Propagationsrichtung. Die Intensität des zweiten Pulses wird so gewählt, dass die auf das freie Elektron wirkende Kraft seines elektrischen Feldes von der Größenordnung der Lorentz-Kraft des Lasermagnetfeldes des starken Pulses ist und wegen der gekreuzten Geometrie die Rekombination mit dem atomaren Kern für gewisse Trajektorien ermöglicht. Wegen der geringen Intensität des schwachen Pulses kann dieser in der Dipolnäherung beschrieben, das Szenario analytisch in der SFA behandelt, und hohe HHG-Raten im 50 keV-Bereich sowie die Erzeugung isolierter Attosekunden-Pulse vorhergesagt werden [20]. Um noch höher-energetische Strahlung zu erreichen, müssten stärkere Laserpulse angewendet werden, die keine analytische Beschreibung mehr erlauben. Wie im Fall mit gegenläufigen Laserfeldern ist zu erwarten, dass die Rückkehrwahrscheinlichkeit

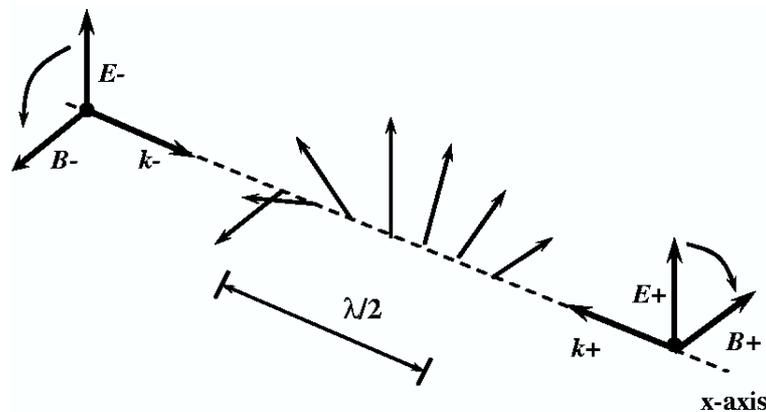


Abbildung 5.3: Schematisches Bild der Laserkonfiguration von zwei gegenläufigen, gleichartig polarisierten Wellen. Das elektrische und das magnetische Gesamtfeld sind parallel zueinander und zeigen in Richtung der Pfeile, die in Laserpropagationsrichtung im Raum rotieren. Die zeitliche Oszillation ist um  $\pi/2$  versetzt.

durch den zunehmend chaotischen Charakter der Dynamik des Elektrons unterdrückt ist.

### 5.2.3 Miteinbeziehung magnetischer Pulse

Für den ultrastark-relativistischen Parameterbereich existiert eine Methode, die den Rekollisionsprozess möglich macht. Sie beruht auf der Anwendung zweier gegenläufiger ultrastarker Laserpulse im Infrarot-Bereich, wobei ein Puls das Elektron vollständig vom Atom ablöst und im Kontinuum propagiert und der zweite gegenläufige Puls das Elektron mit Energien im GeV-Bereich zum atomaren Rumpf zurückbringt. Auf Grund der extrem hohen Intensitäten der Pulse ist die Exkursionsbahn des Elektron sehr groß und sein Wellenpaket wäre zum Rückkehrzeitpunkt stark verbreitet, was die Rekollisionswahrscheinlichkeit reduzieren würde. Deshalb wird zusätzlich zu den Laserpulsen ein starker magnetischer Puls angewendet, der in der Lage ist die Ausdehnung des Wellenpaket umzukehren und so die Rekollisionsrate des aktiven Elektrons mit dem atomaren Rumpf wesentlich vergrößert [36]. Mit diesem Rekollisionschema ergibt sich somit in erster Linie die Möglichkeit Laser-induzierte Kernreaktionen auszulösen. Für den HHG-Prozess scheint diese Methode wegen schwieriger kohärenter Überlagerung der Emission von unterschiedlichen Atomen aber eher weniger geeignet. Weiterhin stellt die Erzeugung der benötigten starken magnetischen Pulse eine experimentelle Herausforderung dar.

## 5.3 Zusammenfassung

Man erkennt, dass das relativistische Ionisations-Rekollisionsproblem noch nicht zufriedenstellend gelöst wurde. Entweder sind die bestehenden Vorschläge experimentell eher schwer zu realisieren oder auf gewisse Parameterbereiche beschränkt. Speziell für den vollrelativistischen Parameterbereich für Rekollisionsenergien über etwa 100 keV werden weitere Modellvorschläge benötigt, die die Rückkehr des Elektrons zum atomaren Rumpf ermöglichen und gleichzeitig experimentell machbar sind. Im Folgenden sollen deshalb drei neue Methoden vorgestellt und quantitativ untersucht werden. Sie beruhen jeweils auf der zusätzlichen Verwendung von Attosekunden-Pulszügen in unterschiedlichen Konfigurationen.



## 6 Relativistische Ionisation und Rekollision in maßgeschneiderten Laserpulsen

Der Ionisations-Rekollisionsprozess kann durch ein quasi-klassisches Drei-Schritte-Modell anschaulich beschrieben werden. Im ersten Schritt tunnelionisiert das treibende Laserfeld das atomare System. Das ionisierte Elektron wird im zweiten Schritt im Kontinuum beschleunigt und kann unter gewissen Anfangsbedingungen wieder zum atomaren Rumpf zurückkehren und dort im letzten Schritt im ATI-Fall rückgestreut werden oder im HHG-Fall mit dem atomaren Ion rekombinieren und die im Kontinuum aufgenommene Energie als Strahlung abgeben. Im nicht-relativistischen Parameterbereich ist die typische Geschwindigkeit des ionisierten Elektrons  $\mathbf{v}$  vernachlässigbar gegenüber der Lichtgeschwindigkeit  $c$ . Die auf das Elektron wirkende Lorentz-Kraft  $\mathbf{F}_L$  des Laserfeldes zeigt deshalb hauptsächlich in Polarisationsrichtung und eine Rückkehr zum atomaren Rumpf ist wahrscheinlich:

$$\mathbf{F}_L = -\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}/c \approx -\mathbf{E}, \quad (6.1)$$

wobei  $\mathbf{E}$  das elektrische Feld und  $\mathbf{B}$  das magnetische Feld des Lasers ist. Diese Annahme ist für konventionelle Laserfelder mit Wellenlängen im  $\mu\text{m}$ -Bereich bis zu Laserintensitäten von  $10^{16} \text{ W/cm}^2$  richtig. Das zurückkehrende Elektron kann somit Energien von einigen keV erreichen. Dies entspricht dann natürlich auch der maximalen Energie der Höheren Harmonischen. Experimentell ist eine Steigerung der Energie der emittierten Strahlung erwünscht, da hiermit z.B. noch kürzere Laserpulse hergestellt oder Prozesstypen, die auf noch kürzeren Zeitskalen ablaufen, untersucht werden können. Der erste Gedanke, wie dies erreicht werden kann, ist eine einfache Erhöhung der Intensität des treibenden Laserfeldes. Man verlässt dann den nicht-relativistischen Parameterbereich und muss in erster Linie Magnetfeldeffekte mitberücksichtigen. In diesem relativistischen Parameterbereich führt die nun gegenüber der Lichtgeschwindigkeit nicht mehr zu vernachlässigende Geschwindigkeit des ionisierten Elektrons über die Lorentz-Kraft des Lasermagnetfeldes zu einem zusätzlichen Drift in Laserpropagationsrichtung. Hiermit ist klar, dass der Wellenpaketschwerpunkt des ionisierten Elektrons den atomaren Rumpf nach einem Zyklus verfehlt und die Rekollisionswahrscheinlichkeit somit deutlich reduziert ist (siehe auch Abb. 0.1).

Produktion von noch hoch-frequenterer HHG-Strahlung ist auf diesem Wege also nicht möglich, wie in Kapitel 4 explizit gezeigt wurde. Ein möglicher Ausweg aus diesem Dilemma soll in diesem Kapitel vorgestellt werden: Dies ist eine geeignete Veränderung der Pulsform weg von konventionellen sinusoidalen Schwingungen hin zu einer den Drift des Elektrons reduzierenden Form, die gleichzeitig eine hohe Rekollisionsenergie ermöglicht. Um dies zu untersuchen wird die relativistische Theorie des Kapitels 4 für ATI und HHG verwendet. Für beide Prozesse werden optimierte Pulsformen gefunden [96].

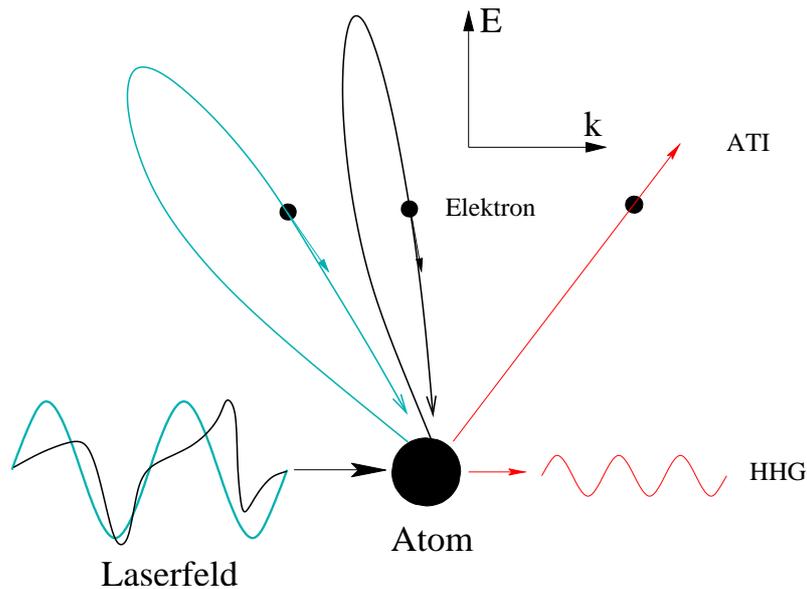


Abbildung 6.1: Unter Verwendung von speziellen, maßgeschneiderten (schwarz), anstatt konventioneller sinusoidaler Laserfelder (grau) soll der Drift des ionisierten Elektrons in Laserpropagationsrichtung wesentlich reduziert werden und so der Ionisations-Rekollisionsprozess im relativistischen Parameterbereich ermöglicht werden.  $\mathbf{E}$  und  $\mathbf{k}$  sind die Vektoren des treibenden Laserfeldes in Polarisations- bzw. Propagationsrichtung.

## 6.1 Prozedur zur Gewinnung des optimierten Laserpulses

Zu Beginn wollen wir die Bahn des ionisierten Elektrons in einem sinusförmigen Laserfeld untersuchen. Nach der Ionisation wird das Elektron vom Laserfeld beschleunigt. Sobald das Vorzeichen der elektrischen Laserfeldstärke wechselt, wird das Elektron wieder abgebremst. Dies bedeutet nun, dass die Endenergie des Elektrons bei der Rückkehr zum atomaren Rumpf, die z. B. in die emittierte HHG-Strahlung umgewandelt wird, nur von

## 6.1 Prozedur zur Gewinnung des optimierten Laserpulses

der dritten und letzten Beschleunigungsphase (vgl. die entsprechenden Abb.en in Kap. 6.2 und 6.3) beeinflusst wird. Die erste Beschleunigungs- bzw. Abbremsphase trägt also nicht zum Energiegewinn des Elektrons bei, aber induziert einen Drift, der für beide Phasen in Laserpropagationsrichtung zeigt. Hiermit ist klar, wie man die Rückkehrwahrscheinlichkeit erhöhen kann ohne bedeutend an Endenergie zu verlieren. Das Laserfeld sollte so verändert, man sagt auch geschneidert werden, dass sich das Elektron während der ersten zwei Phasen mit einer nicht-relativistischen Geschwindigkeit bewegt, also keinen Drift erfährt, und dann durch einen kurzen, starken Laserpuls zum Kern zurückgetrieben wird. Es ist dann zu erwarten, dass der Gesamtdrift in einem solchen geschneiderten Laserfeld bedeutend kleiner ist als in einem konventionellen sinusförmigen, in dem die Zeitspanne der relativistischen Elektron-Bewegung wesentlich größer ist.

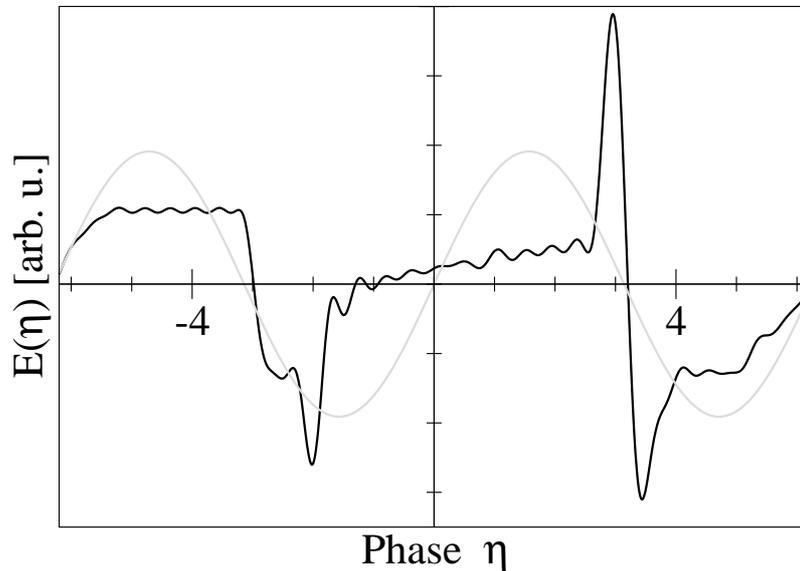


Abbildung 6.2: Elektrisches Feld  $E(\eta)$  (in beliebigen Einheiten) eines maßgeschneiderten Pulses in einer vorläufigen Form (schwarz) verglichen mit einem sinusförmigen Laserfeld (grau) mit der gleichen gemittelten Intensität.

Als nächstes werden wir also versuchen die Pulsform so zu verändern, dass die Rückkehrwahrscheinlichkeit erhöht wird, die Rekollisionsenergie aber unverändert bleibt. Technisch läuft die Optimierung der Pulsform wie folgt ab. Ausgangspunkt ist eine Laserform  $E(t)$ , die den oben angedeuteten Eigenschaften Rechnung trägt. Um eine analytische Darstellung der Funktion  $E(t)$  zu besitzen, wird sie in einer Fourier-Reihe dargestellt:

$$E(t) = \sum_{k=-K}^K c_k \exp(ik\omega_0 t), \quad (6.2)$$

## 6 Relativistische Ionisation und Rekollision in maßgeschneiderten Laserpulsen

mit einer Kreisfrequenz  $\omega_0 = 0.1$  a.u., den Fourier-Koeffizienten  $c_k^* = c_{-k}$  und der Anzahl der verwendeten Harmonischen  $K$ . Als nächstes werden die Fourier-Koeffizienten so verändert, dass sie die Rückkehrwahrscheinlichkeit bei einer gewissen Endenergie des HHG/ATI-Prozesses erhöhen. Praktisch bedeutet dies, dass der Prozess in der SFA beschrieben wird und die Sattelpunktmethode (4.24) angewandt wird. Diese legt zusammen mit der Cutoff-Bedingung (Gl. (4.24)) die Ionisations- und Rückkehrzeiten am Cutoff  $\tilde{\eta}'', \tilde{\eta}', \tilde{\varepsilon}^F$  fest. Der Imaginärteil der Ionisationszeit  $\mathcal{I}m(\tilde{\eta}'')$  ist mit der Ionisationswahrscheinlichkeit verbunden. Für einen festen Driftimpuls bedeutet eine größere Ionisationswahrscheinlichkeit eine größere Rückkehrwahrscheinlichkeit. D.h. nun, dass der Imaginärteil der Ionisationsphase ein Maß für die Prozesswahrscheinlichkeit darstellt. Wir verändern also die Koeffizienten  $c_k$  des Laserfeldes mit dem Ziel den Imaginärteil der Ionisationsphase  $\mathcal{I}m(\tilde{\eta}'')$  zu verkleinern, wobei die Cutoff-Energie festgehalten wird. Ein Zwischenergebnis für die maßgeschneiderte Pulsform wird in Abb. 6.2 gegeben. Das Laserfeld besteht aus einem Puls, der für die Ionisation des Elektrons verantwortlich ist und zwei kurzen Pulsen kurz vor und nach der Rückstreuung, die dem Elektron den Großteil der Energie übertragen. Der erste und der zweite Puls sind ungefähr 500 as voneinander getrennt, der zweite und der dritte 50 as. Weiterhin können einige Eigenschaften des maßgeschneiderten Pulses, die für die Erhöhung der Prozesswahrscheinlichkeit wichtig sind, identifiziert werden: 1) Der Abfall des Laserfeldes nach dem Ionisationszeitpunkt sollte stark sein (je stärker, desto besser). Das Elektron erfährt zu Beginn also nur einen Kick in Polarisationsrichtung. 2) Es sollte danach eine relativ große Zeitspanne (je länger, desto besser) mit einer vergleichbar schwachen Laserfeldstärke folgen. In dieser kann sich das Elektron mit einer nicht-relativistischen Geschwindigkeit (d.h. kleinem Drift) vom atomaren Rumpf entfernen. 3) Hierauf sollten zwei gegensätzlich gerichtete große Pulse folgen, die dem Elektron den Hauptteil der Energie induzieren. Da diese beiden Pulse eine kurze Dauer besitzen, wird der Drift in Laserpropagationsrichtung stark reduziert. Weiterhin sollte der Wechsel der Laserfeldstärke zwischen den beiden Pulsen in der Region der Rückstreuzeit groß sein (je größer, desto besser).

Die wichtigste Eigenschaft des Feldes, die strikt erfüllt sein muss, ist der starke Abfall der Feldstärke nach dem Ionisationszeitpunkt. Dagegen ist die Form der beiden Energie liefernden Pulse relativ unwichtig.

Es ist jetzt möglich eine Pulsform zu finden, die alle benötigten Charakteristika erfüllt und auf Grund eines glatten Frequenz- und Phasenspektrums gleichzeitig relativ einfach herzustellen ist. Dies ist z. B. dann der Fall, wenn das maßgeschneiderte Laserfeld einen Attosekunden-Pulszug (attosecond pulse train: APT) darstellt, dessen Pulse Rechteckform haben (siehe Abb. 6.3).

Im Folgenden betrachten wir den von unserem APT getriebenen ATI-Prozess und vergleichen die Ergebnisse mit denen in konventionellen sinusförmigen Feldern derselben gemittelten Intensität und Grundfrequenz.

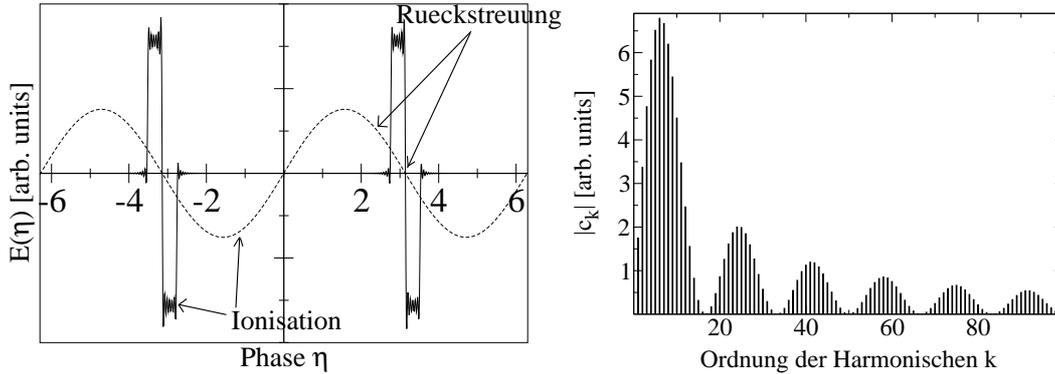


Abbildung 6.3: Der maßgeschneiderte Puls:(a) Vergleich der zeitlichen Abhängigkeit des elektrischen Feldes  $E(\eta)$  (in beliebigen Einheiten) des maßgeschneiderten Pulses (schwarz) mit dem eines sinusförmigen Feldes (strichliert), jeweils mit derselben gemittelten Intensität und einer Kreisfrequenz von  $\omega = 0.1$  a.u.. Die Pulsdauer des APT's ist  $\omega\tau = 0.12\pi$ .(b) Das Frequenz-Spektrum des maßgeschneiderten Pulses  $|c_k|$  (in beliebigen Einheiten). Die Harmonischen des maßgeschneiderten Pulses stehen zueinander in einer linearen Phasenbeziehung.

## 6.2 ATI in den maßgeschneiderten Pulsen

Wir führen nun voll-relativistische Berechnungen des Photoelektronenspektrums in den maßgeschneiderten Pulsen bzw. in einem sinusförmigen Laserfeld durch (Abb. 6.3). Um eine Referenz zu haben, wie gut der Drift des Elektrons durch die maßgeschneiderten Pulse unterdrückt werden kann, berechnen wir das Spektrum ebenfalls in einem sinusförmigen Laserfeld unter Anwendung der Dipolnäherung, in der der Drift nicht berücksichtigt wird. Wie wir sehen werden, erlauben die maßgeschneiderten Pulse (im Folgenden auch kurz mit APT bezeichnet) die Rückstreuung im stark-relativistischen Parameterbereich.

Wir betrachten zuerst den moderat-relativistischen Parameterbereich mit einer Laserintensität von  $1 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>. Um das Integral in Gl. (4.16) ausrechnen zu können, verwenden wir die Sattelpunktmethode, die im Falle des APT's, dessen Frequenzspektrum nicht sehr breit ist ( $K\omega \ll I_p$ ) gerechtfertigt ist. In Abb. 6.4 ist das dazugehörige Spektrum dargestellt. Die maßgeschneiderten Pulse liefern ATI-Raten, die um etwa 10 Größenordnungen größer sind als die mit einem konventionellen sinusförmigen Feld im relativistischen Regime. Die nicht-relativistischen Berechnungen sind zwar nicht gerechtfertigt für die angenommenen Parameter, werden allerdings als Referenz für den idealen Ionisations-Rückstreuprozess verwendet. Das Spektrum mittels den maßgeschneiderten Pulsen hat große Ähnlichkeit zu nicht-relativistischen Spektren. Es existiert ebenso ein flaches, stark oszillierendes Plateau

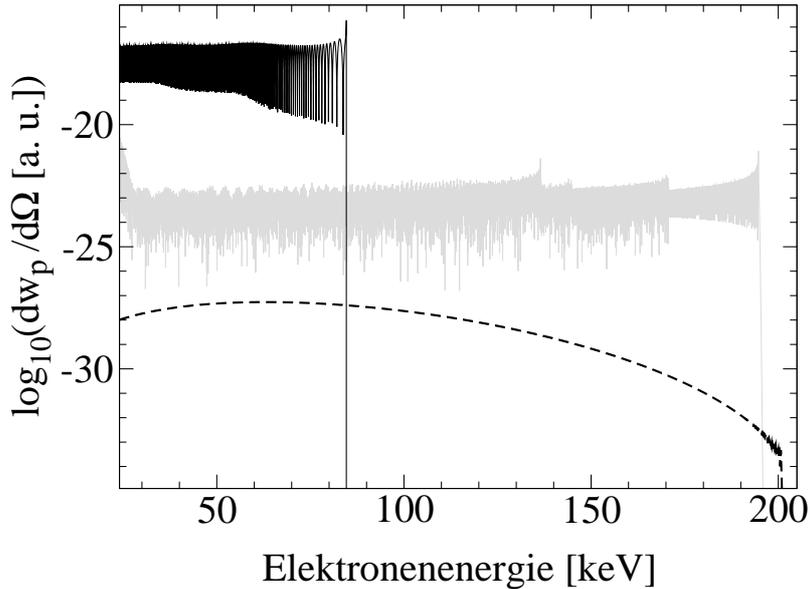


Abbildung 6.4: Photoelektronenspektrum über  $\log_{10}(dw_p/d\Omega)$  in Gl. (4.21), mit Endimpuls in Richtung der maximalen Cutoff-Energie für ein atomares System mit Ionisationspotenzial  $I_p = 18$  a.u. in einem Laserfeld mit gemittelter Intensität von  $1 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> und einer Kreisfrequenz  $\omega = 0.1$  a.u.: (grau) in der Dipolnäherung mit einem sinusförmigen Feld, (strichliert) Klein-Gordon-Gleichung und einem sinusförmigen Feld, (schwarz) Klein-Gordon-Gleichung und dem maßgeschneiderten Puls.

anstatt eines gekrümmten, nicht-oszillierenden. Die Fluktuationen im Spektrum resultieren von der Interferenz der zwei kürzesten Bahnen. Beiträge von Bahnen mit mehrfacher Rückkehr zum atomaren Rumpf, die im nicht-relativistischen Fall möglich sind, sind in den maßgeschneiderten Pulsen sehr unwahrscheinlich. Deshalb gibt es keine Multiplateau-Struktur. Der Cutoff des Spektrums liegt bei 70 keV, wesentlich niedriger als im sinusförmigen Feld. In den maßgeschneiderten Pulsen erhalten wir Rückstreuraten, die sogar höher sind als die basierend auf der Dipolnäherung. Die Differenz beträgt durchschnittlich sechs Größenordnungen.

Abb. 6.5a) stellt die Bahn des ionisierten Elektrons in den maßgeschneiderten Pulsen bzw. im sinusförmigen Feld dar. Wie man sieht ist die räumliche Ausdehnung der Bahn im APT wesentlich geringer als im konventionellen Feld, obwohl beide gemittelten Intensitäten identisch sind. Dies deutet auf eine niedrigere mittlere Geschwindigkeit im modifizierten Feld hin, die die gewünschte Drift-Reduktion bewirkt. Weiterhin sieht man, dass die Emissionsrichtung des Elektrons bei der Ionisation in den maßgeschneiderten Pulsen

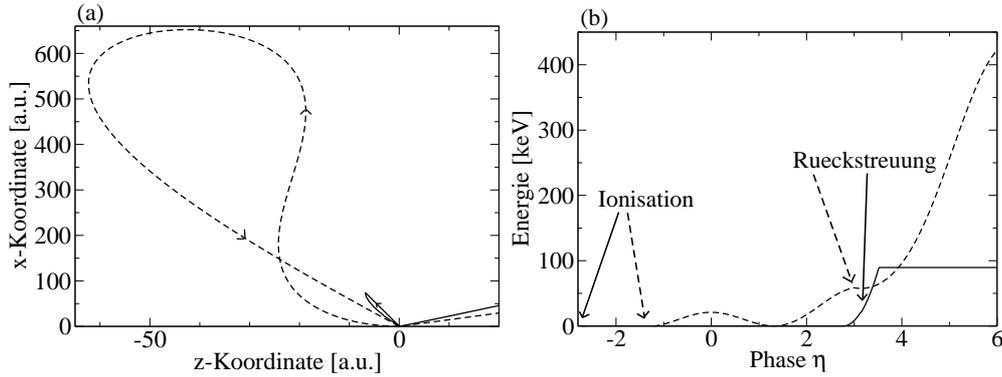


Abbildung 6.5: (a) Bahn und (b) kinetische Energie für ein ATI-Cutoff-Elektron im maßgeschneiderten Laserfeld (schwarz) und im sinusförmigen Feld (gestrichelt), jeweils mit einer gemittelten Laserintensität von  $1 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>.  $x$  und  $z$  sind die Polarisations- bzw. Propagationsrichtung des Laserfeldes. Das Elektron wird zur Phase -1.31 im Sinus-Feld ionisiert und kehrt zur Phase 3.00 zum Kern zurück. Im maßgeschneiderten Feld sind die entsprechenden Werte -2.79 und 3.14.

wesentlich mehr in Laserpolarisationsrichtung zeigt als im sinusförmigen Feld. Dies zeigt wiederum, dass eine geringere Startgeschwindigkeit gegen die Laserpropagationsrichtung und damit eine höhere Ionisations- also auch höhere Rückstreurate als im konventionellen Feld möglich ist. In Zahlen ausgedrückt ergibt sich ein Anfangsimpuls von  $-0.26$  a.u. im APT gegenüber  $-4.7$  a.u. in der sinusförmigen Welle. Außerdem ist zu bemerken, dass die elektrische Feldstärke zum Zeitpunkt der Ionisation im APT bei  $-11.5$  a.u. liegt, also wesentlich größer ist als im sinusförmigen Feld mit  $-5.2$  a.u.. Dies ist der Grund für das höhere Plateau im Fall des APT's gegenüber dem sinusförmigen Feld in der Dipolnäherung.

In Abb. 6.5b) stellen wir die Energie des Cutoff-Elektrons auf seiner Bahn dar. Während die Energie in der sinusförmigen Welle oszilliert, gewinnt das Elektron in den maßgeschneiderten Pulsen seine Energie hauptsächlich kurz vor und nach der Rückstreuung. Seine Energie im Moment der Rückstreuung ist ungefähr ein Drittel der Endenergie.

Das Hochenergie-ATI-Spektrum im voll-relativistischen Bereich für eine Laserintensität von  $1 \times 10^{19}$  W/cm<sup>2</sup> wird in Abb. 6.6 gezeigt. Das Ergebnis der Rechnungen ist qualitativ das gleiche wie für den moderat-relativistischen Bereich, allerdings sind die quantitativen Unterschiede größer. Der relativistische Rückstreuprozess im Sinus-Feld hat keine Bedeutung mehr. Weiterhin liegen die Raten im maßgeschneiderten Puls immer noch fünf Größenordnungen über denen im Sinus-Feld in der Dipolnäherung. Endenergien der Elektronen von 1 MeV werden für die betrachteten Parameter möglich.

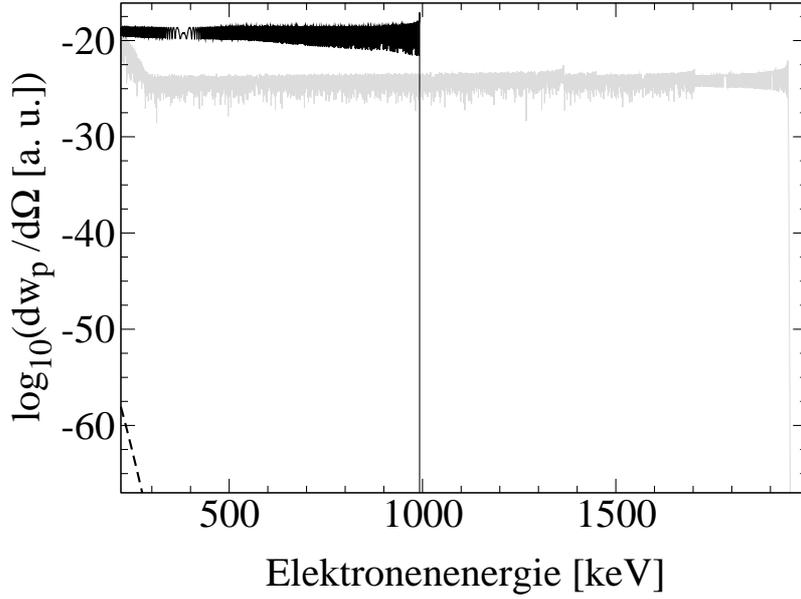


Abbildung 6.6: Photoelektronenspektrum über  $\log_{10}(dw_p/d\Omega)$  in Gl. (4.21), für Elektronen mit Endimpuls in Richtung der maximalen Cutoff-Energie. Die angewandte Laserintensität ist  $1 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$ , das Ionisationspotenzial  $I_p = 38$  a.u.: (grau) in der Dipolnäherung im Sinus-Feld, (strichliert) Klein-Gordon-Gleichung im Sinus-Feld, (schwarz) Klein-Gordon-Gleichung und den maßgeschneiderten Pulsen.

### 6.3 HHG in den maßgeschneiderten Pulsen

Unter Benutzung der maßgeschneiderten Laserpulsform kann die Rekombinationswahrscheinlichkeit mit dem atomaren Rumpf wesentlich vergrößert werden und somit kurzwellige Höhere Harmonische hergestellt werden. Die Optimierung der Pulsform wird analog zum ATI-Fall durch Analyse der Sattelpunktsbedingungen (4.47) inklusive der Cutoff-Gleichung erreicht:

$$\frac{d\tilde{\varepsilon}_{\tilde{\mathbf{p}}}(\eta')}{d\eta''} = 0, \quad (6.3)$$

für die Ionisations-, Rekombinationsphase  $\tilde{\eta}'$ ,  $\tilde{\eta}''$ , und die Ordnung des harmonischen Photons  $\tilde{n}$ . Wie zu erwarten war, kann der in Kap. 6.1 ermittelte optimierte Puls für ATI auch für HHG benutzt werden, da in beiden Fällen der Prozess bis zur Rückkehr zum atomaren Rumpf optimiert wurde. Das bedeutet, dass wir den APT aus Abb. 6.3 benutzen werden um HHG im relativistischen Parameterbereich berechnen zu können. Nach der Untersuchung des ATI-Prozesses für Intensitäten von bis zu  $1 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$  betrachten wir nun

den stark-relativistischen Parameterbereich mit einer Laserintensität von  $1 \times 10^{20}$  W/cm<sup>2</sup> für HHG.

In Abb. 6.7 werden die HHG-Spektren im stark-relativistischen Parameterbereich dargestellt. Das durch die maßgeschneiderten Pulse erzeugte Spektrum in Laserpropagationsrichtung wird mit einem sinusförmigen Laserfeld, das nicht-relativistisch behandelt wird, verglichen. Die HHG-Raten über die maßgeschneiderten Pulse sind vergleichbar oder sogar höher als die mit dem Sinus-Feld für Energien der emittierten Strahlung von bis zu 1.5 MeV. Das Spektrum mit sinusförmigem Feld, berechnet über die adäquate Klein-Gordon-Gleichung ist über 30 Größenordnungen geringer und wird nicht dargestellt.

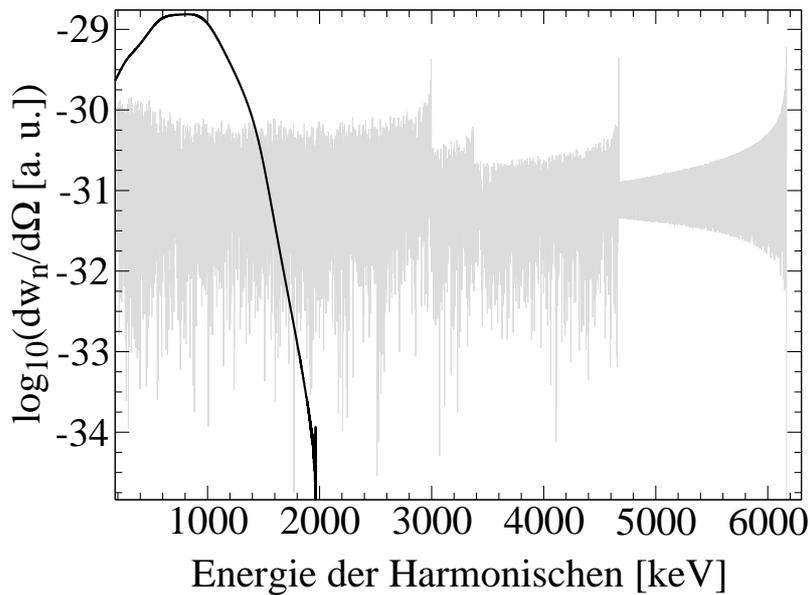


Abbildung 6.7: HHG-Spektrum in Laserpropagationsrichtung über  $\log_{10}(dw_n/d\Omega)$  aus Gl. (4.44), als Funktion der harmonischen Energie mit einer Laserintensität von  $1 \times 10^{20}$  W/cm<sup>2</sup>: (grau) in der Dipolnäherung und einem sinusförmigen Feld, (schwarz) Klein-Gordon-Gleichung und dem maßgeschneiderten Puls. Das Spektrum mit der Klein-Gordon-Gleichung und einem sinusförmigen Feld ist viele Größenordnungen kleiner und wird nicht dargestellt. Die Ionisationsenergie ist angepasst an die Grenze zur Over-the-Barrier-Ionisation und beträgt  $I_p = 82$  a.u..

In Abb. 6.8a) wird die Bahn des Elektrons, das die Harmonische mit der Cutoff-Energie produziert, in den maßgeschneiderten Pulsen mit der Bahn im sinusförmigen Feld verglichen. Wie man sieht, startet das Elektron in den maßgeschneiderten Pulsen mit einer viel geringeren Geschwindigkeit gegen die Laserpropagationsrichtung und rekombiniert trotz-

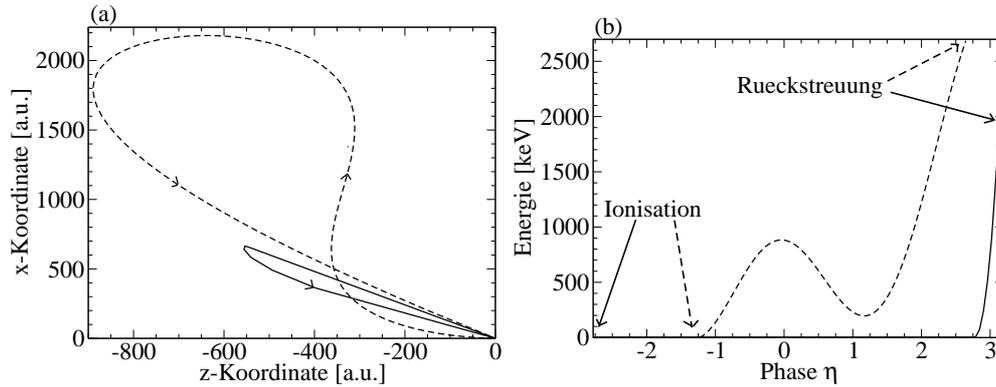


Abbildung 6.8: (a) Bahn und (b) kinetische Energie des Elektrons, das die HHG-Strahlung am Cutoff produziert; (schwarz) im maßgeschneiderten Puls (gestrichelt) im sinusförmigen Feld, jeweils mit einer gemittelten Intensität von  $1 \times 10^{20}$  W/cm<sup>2</sup>. Das Elektron wird zu einer Phase von -1.24 im Sinus-Feld, bzw. von -2.78 im maßgeschneiderten Puls ionisiert und kehrt zur Phase von 2.64 im Sinus-Feld bzw. 3.14 im maßgeschneiderten Puls zurück.  $x$  und  $z$  sind die Laserpolarisations- bzw. propagationsrichtung.

dem mit dem atomaren Rumpf. Außerdem ist die räumliche Ausdehnung der Bahn in den maßgeschneiderten Pulsen wesentlich geringer als im sinusförmigen Feld, obwohl beide Felder dieselbe gemittelte Intensität besitzen. Dies deutet auf eine geringere mittlere Geschwindigkeit des Elektrons in den maßgeschneiderten Pulsen und damit auf einen reduzierten Drift hin.

In Abb. 6.8b) ist die Energie des HHG-Cutoff-Elektrons auf seiner Bahn in den maßgeschneiderten Pulsen bzw. im Sinus-Feld mit jeweils der gleichen gemittelten Intensität dargestellt. Man sieht, dass das Elektron seine Energie in den maßgeschneiderten Pulsen erst kurz vor der Rückkehr zum atomaren Rumpf erhält und sich somit nur kurz mit einer relativistischen Geschwindigkeit bewegt. Dadurch wird der relativistische Drift des Elektrons im Vergleich zum Sinus-Feld massiv verringert.

## 6.4 Einfluss der Form des maßgeschneiderten Pulses auf die Effizienz des Rekollisionsprozesses

Der APT ist durch vier Parameter charakterisiert: die Anzahl der Harmonischen, die den Attosekunden-Puls aufbauen (im Folgenden kurz als harmonischen Inhalt bezeichnet), die Zeitdauer der Pulse im Zug, die Zeitdauer zwischen den einzelnen Pulsen im Zug (äqui-

#### 6.4 Einfluss der Form des maßgeschneiderten Pulses auf die Effizienz des Rekollisionsprozesses

valent zur Grundfrequenz des Zuges) und die maximale Feldstärke des Pulses (die mit der Intensität verknüpft ist). In diesem Abschnitt werden wir nun die Effizienz des HHG-Prozesses in Abhängigkeit dieser Parameter untersuchen: 1) des harmonischen Inhalts des APT's bei einer festen Pulsdauer, Grundfrequenz und Intensität 2) der Pulsdauer bei einem festen harmonischen Inhalt, einer festen Grundfrequenz und Intensität 3) der Grundfrequenz bei einem festen harmonischen Inhalt, einer festen maximalen Feldstärke und Pulsdauer.

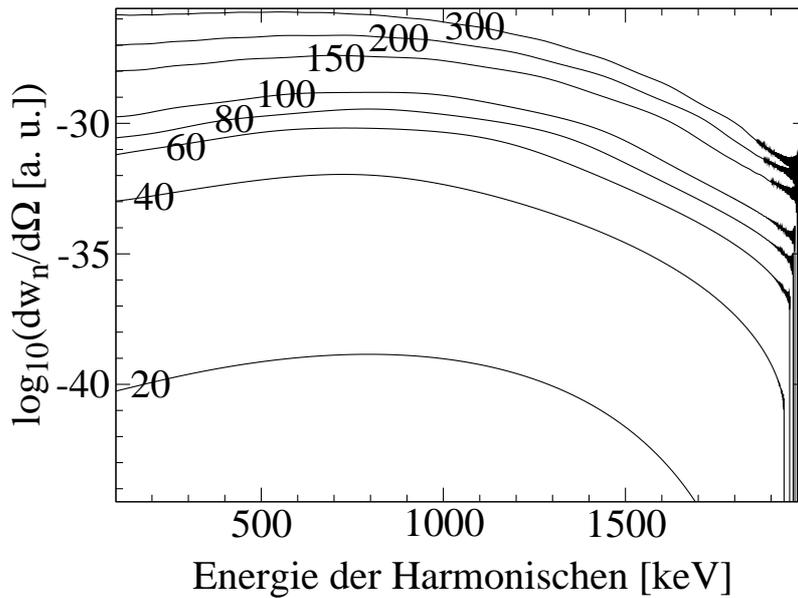


Abbildung 6.9: HHG-Rate über  $\log_{10}(dw_n/d\Omega)$  aus Gl. (4.44), als Funktion der Energie der Harmonischen in einem maßgeschneiderten APT mit einer Intensität von  $1 \times 10^{20}$  W/cm<sup>2</sup> und einer Grundkreisfrequenz von  $\omega = 0.1$  a.u.. Der APT wird aus 20, 40, 60, 80, 100, 120, 150, 200, und 300 Harmonischen der Grundfrequenz aufgebaut. Das Ionisationspotenzial ist  $I_p = 82$  a.u..

Zu Beginn wollen wir untersuchen, wie wichtig die unterschiedlichen Harmonischen sind, die den maßgeschneiderten Puls aufbauen. Die Grundfrequenz des APT, die die Zeitdauer zwischen den aufeinanderfolgenden Pulsen bestimmt, wird festgehalten. Weiterhin wird die Pulsdauer nicht variiert. Folglich ist die charakteristische Frequenz, die die Pulsdauer bestimmt, ebenso fest. Aus Abb. 6.3b) kann für diesen Fall eine charakteristische Frequenz von ca.  $20\omega$  bestimmt werden. Wir verändern nun die Anzahl der Hügel im Spektrum des APT's, behalten aber die Form des Spektrums (wie in Abb. 6.3b)) bei. Die Vergrößerung der Anzahl der benutzen Harmonischen zum Herstellen des Pulses entspricht einer Annäherung der Pulsform an ein Rechteck. Das Ergebnis der Berechnung der HHG-Spektren für

maßgeschneiderte Pulse mit unterschiedlichem harmonischen Inhalt wird in Abb. 6.9 dargestellt.

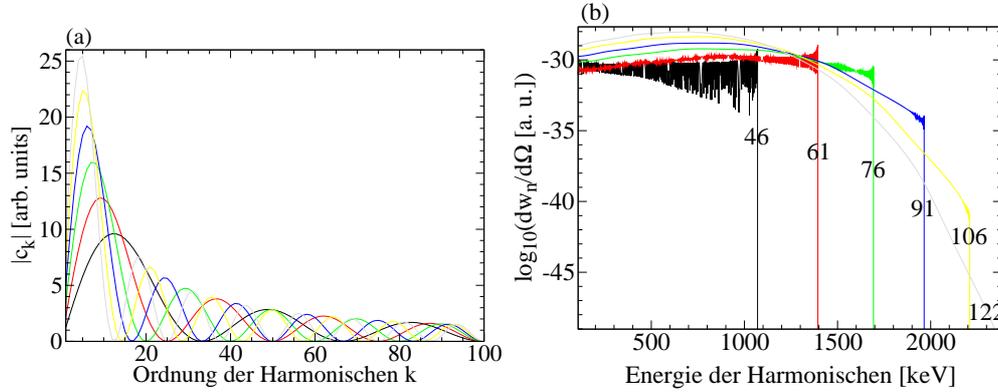


Abbildung 6.10: Abhängigkeit der HHG-Rate von der Pulsdauer im APT: (a) Frequenz-Spektrum des APT's für unterschiedliche Pulslängen im Zug:  $(2\pi/\omega)(k/100)$ , wobei  $k$  die Anzahl der Hügel darstellt. (b) Das resultierende HHG-Spektrum über  $\log_{10}(dw_n/d\Omega)$  aus Gl. (4.44), als Funktion der Energie der emittierten Harmonischen für die unterschiedlichen maßgeschneiderten Pulse. Die gemittelte Laserintensität ist  $1 \times 10^{20} \text{ W/cm}^2$ . Das Ionisationspotenzial liegt knapp oberhalb der Grenze zur Over-the-Barrier-Ionisation.

Je mehr die Pulsform einem Rechteck ähnelt (d.h. je größer die Anzahl der angewandten Harmonischen bei einer festen Pulsdauer und einer festen Grundfrequenz), desto größer ist die HHG-Rate und die Cutoff-Energie. Während der Anstieg der Cutoff-Energie eher klein ist, ist der Anstieg der HHG-Rate enorm. So führt z.B. eine Verdopplung des harmonischen Inhalts von 20 auf 40 auf einen Energiegewinn von nur 13%, während die HHG-Ausbeute sich um mehr als 7 Größenordnungen erhöht. Dies bedeutet, dass die HHG-Rate sehr sensibel gegenüber der Feinstruktur des APT's ist, die durch den harmonischen Inhalt des maßgeschneiderten Puls bestimmt ist. Dagegen ist die maximale Energie des Elektrons hauptsächlich durch die Pulsdauer bestimmt. Während die ersten 20 Harmonischen die grobe Form des APT's, speziell die Pulsdauer im Zug, und damit die Energie festlegen, die das Elektron gewinnen kann, stellen die energetisch höheren Harmonischen sicher, dass das Elektron effektiv mit dem atomaren Rumpf rekombinieren kann. Weiterhin sieht man, dass maßgeschneiderte Pulse, die aus 100 Harmonischen aufgebaut sind, für den benötigten Zweck ausreichen. Die Anwendung von einer noch größeren Anzahl von Harmonischen hat dann nur noch einen eher kleinen Effekt auf die Emissionsrate.

Die Tendenz, dass die Verwendung eines größeren harmonischen Inhalts des APT's zu

#### 6.4 Einfluss der Form des maßgeschneiderten Pulses auf die Effizienz des Rekollisionsprozesses

einer erhöhten Rekombinationswahrscheinlichkeit und einer höheren Energieaufnahme des Elektrons führt, ist intuitiv verständlich. Ein APT mit einem großen harmonischen Inhalt ähnelt einem Zug von Rechteckpulsen. In diesem Fall existieren fast keine Oszillationen des Laserfeldes mehr, die dann Oszillationen der Elektronenbewegung auslösen können, die nun wiederum zu einem nicht erwünschten relativistischen Drift führen. Weiterhin ist der Abfall des Laserfeldes nach der Ionisation so scharf, dass es für das Elektron unmöglich ist in dieser Zeit eine relativistische Geschwindigkeit zu erlangen und somit in Laserpropagationsrichtung zu driften.

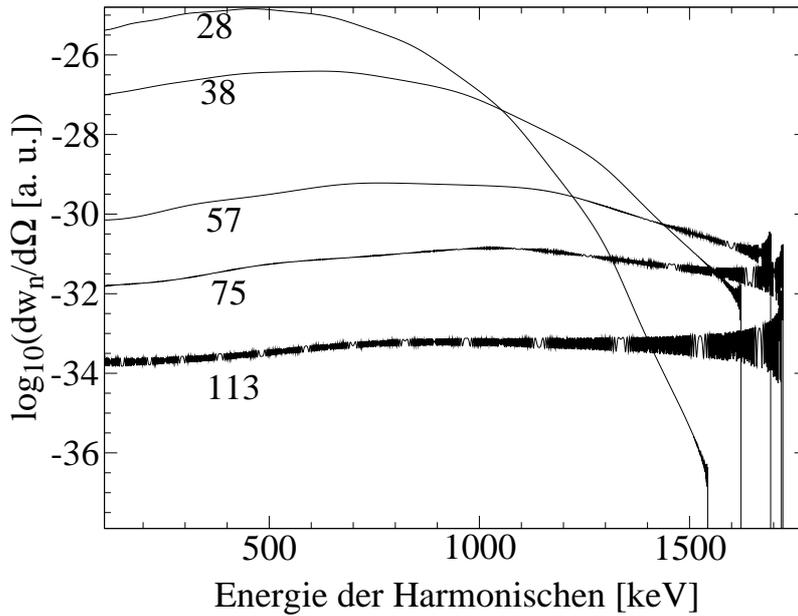


Abbildung 6.11: HHG-Rate über  $\log_{10}(dw_n/d\Omega)$  aus Gl. (4.44), als Funktion der Harmonischen Energie unter Benutzung des maßgeschneiderten APT's, bestehend aus Pulsen mit einer Breite von 3.1 a.u. und einer Zeitdauer zwischen den Pulsen von 28, 38, 57, 75, bzw. 113 a.u.. Die maximale elektrische Feldstärke des Lasers ist auf 140 a.u. festgelegt. Das Ionisationspotenzial liegt bei  $I_p = 82$  a.u..

Als nächstes soll die Abhängigkeit der HHG-Rate von der Dauer der Pulse im APT untersucht werden. In Abb. 6.10 vergleichen wir HHG-Spektren, produziert durch APT's mit maßgeschneiderter Form und einer Grundfrequenz von 0.1 a.u. für unterschiedliche Pulsdauern im Zug. Der harmonische Inhalt des APT's sei auf  $K = 100$  festgelegt. Die Anzahl der Hügel im Frequenzspektrum des Pulses gibt die Pulsdauer im Zug an. Die gemittelte Laserintensität sei  $1 \times 10^{20}$  W/cm<sup>2</sup>, und das Ionisationspotenzial ist so gewählt, dass sie knapp über der Grenze zwischen Over-the-Barrier- und Tunnelionisation liegt.

## 6 Relativistische Ionisation und Rekollision in maßgeschneiderten Laserpulsen

Wie man sieht, skaliert die Cutoff-Energie auf Grund der Zunahme der Beschleunigungsphase ungefähr linear mit der Breite des Pulses. Die HHG-Rate am Cutoff fällt mit steigender Pulsdauer deutlich ab. Im Fall einer kurzen Pulsdauer, findet die Ionisation zu einem Zeitpunkt statt, die näher am Ende des Pulses liegt. Folglich hat der Impuls entgegen der Laserpropagationsrichtung, der für die Rekollision notwendig ist, einen kleineren Wert (siehe auch Kap. 6.5 weiter unten). Die Spektren, die aus APT's mit breiteren Pulsen resultieren, sind weniger oszillierend und stärker gekrümmt, was den stärkeren relativistischen Charakter des Prozesses signalisiert. Wenn man nun weiterhin maßgeschneiderte Pulse mit unterschiedlichen Pulsdauern, aber so angepassten Intensitäten, die einen konstanten Cutoff liefern, vergleicht, sieht man dass für kleinere Energien größere Pulsdauern, für Energien am Cutoff allerdings kurze Pulsdauern zu bevorzugen sind.

Zum Abschluss wollen wir noch die Abhängigkeit der HHG-Rate von der Zeitdauer zwischen den Pulsen im APT untersuchen. In Abb. 6.11 vergleichen wir HHG-Spektren, die durch APT's mit maßgeschneiderten Pulsen (der harmonische Inhalt sei jeweils  $K = 100$ , die Pulsdauer 3.1 a.u.) produziert werden, deren Grundfrequenz (gleichbedeutend mit der Zeitdauer zwischen den Pulsen) variiert wird. Die maximale elektrische Laserfeldstärke wird auf 140 a.u. festgelegt. Wie man erkennen kann, ist die Cutoff-Energie mit sich verkleinernder Zeitspanne nur schwach abfallend. Grund hierfür ist die Tatsache, dass sich das Elektron in einer kürzeren feldfreien Zeitspanne weniger weit vom atomaren Rumpf entfernen kann, und deshalb auf seinem Rückweg weniger Energie vom Laserfeld aufnehmen kann. Weiterhin sieht man, dass der relativistische Charakter des Prozesses, erkennbar an der Stärke der Oszillationen des Spektrum und der Krümmung des Plateaus, mit abnehmender feldfreier Zeitspanne zunimmt. Dies liegt daran, dass die Bewegung des Elektrons in APT's mit kurzen feldfreien Zeiträumen zu größeren Anteilen relativistisch ist als für APT's mit langen feldfreien Zeiträumen (siehe auch Kap. 6.5). Die HHG-Rate am Cutoff steigt zuerst mit länger werdenden Zeitdauern (von 28 a.u. bis 57 a.u.) zwischen den Pulsen im Zug, um dann für noch größere Zeitdauern (von 57 a.u. bis 113 a.u.) wieder zu sinken. Grund hierfür ist die Überlagerung zweier gegenläufiger Effekte: auf der einen Seite der sich abschwächende relativistische Charakter des Prozesses, resultierend in einem geringeren Drift, und auf der anderen Seite die größere Verbreiterung des ionisierten Wellenpaketes für größere feldfreie Zeiträume zwischen den Pulsen. Zusammenfassend, können wir die Zeitdauer von ungefähr einer Femtosekunde (50 a.u.) zwischen den Pulsen im Zug, das entspricht einer Grundkreisfrequenz von 0.1 a.u., angeben, die eine möglichst hohe HHG-Rate im MeV-Bereich ermöglicht. Die relativistischen Effekte, der Energiegewinn und die Verbreiterung des Wellenpaketes des ionisierten Elektrons halten sich dann die Waage.

## 6.5 Klassische Dynamik des Elektrons in den maßgeschneiderten Pulsen

Um den Ionisations-Rekollisionsprozess in einem starken Feld mit den maßgeschneiderten Pulsen besser zu verstehen, betrachtet wird die Dynamik eines Elektrons in einem Modell-APT analytisch. Letzterer besteht aus einer Sequenz von Rechteck-Pulsen von der Dauer  $\tau$ , getrennt durch eine feldfreie Zeitregion  $T$  (siehe Abb. 6.12). Die Elektronen-Bahnen werden nun mittels der klassischen relativistischen Bewegungsgleichungen analysiert und so die Energie zum Rückkehrzeitpunkt abgeschätzt.

Das Vektorpotenzial des Laserfeldes (siehe Abb. 6.12) kann dann dargestellt werden durch:

$$\mathbf{a}(\eta) = \hat{\mathbf{e}}_x \xi \times \begin{cases} -\eta & , 0 \leq \eta \leq \eta_1 \\ -\eta_1 & , \eta_1 \leq \eta \leq \eta_1 + 2\pi \\ \eta - 2\eta_1 - 2\pi & , \eta \geq \eta_1 + 2\pi \end{cases} \quad (6.4)$$

wobei  $\mathbf{a}(\eta) = \mathbf{A}(\eta)/c^2$ ,  $\xi = A_0/c^2$ ,  $\eta = \omega(t - z/c)$  gilt. Die  $x$ - und  $z$ -Achsen sind in Laserpolarisations- bzw. propagationsrichtung gerichtet. Die Ionisation findet zum Zeitpunkt  $\eta_0 = 0$  statt, die feldfreie Region beginnt bei  $\eta_1$  und endet bei  $\eta_1 + 2\pi$ .

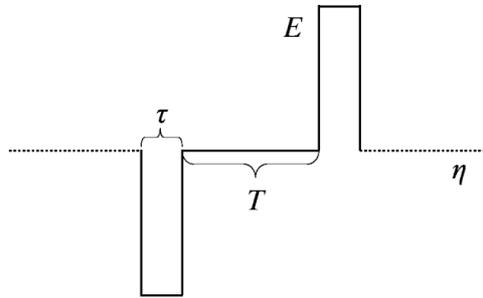


Abbildung 6.12: Der Modell-APT besteht aus einem Zug von Rechtecken mit abwechselnder Orientierung, der den maßgeschneiderten APT von Abb. 6.3 imitieren und so die Dynamik des ionisierten Elektrons in diesem Laserfeld analytisch beschreibbar machen soll.

Das Elektron wird mit verschwindender transversaler, aber negativer longitudinaler Geschwindigkeit ionisiert, so dass eine Rückkehr zum atomaren Rumpf möglich wird. Folglich benutzen wir die Gl.en (4.30) mit  $p_{x0} = 0$ . Die Wahrscheinlichkeit des Elektrons mit nichtverschwindender Geschwindigkeit  $p_{z0}$  aus dem Atom zu tunneln, sinkt exponentiell mit wachsendem Impuls  $p_{z0}$  [18]. Deshalb kann die Unterdrückung des relativistischen Drifts an einem Abfall des  $p_{z0}$ -Wertes erkannt werden.

## 6 Relativistische Ionisation und Rekollision in maßgeschneiderten Laserpulsen

Die Elektron-Koordinaten im betrachteten Fall sind gegeben durch (siehe z.B. [97]):

$$\begin{aligned} x &= x_0 + \frac{c^2}{\omega} \int_{\eta_0}^{\eta} \frac{d\eta'}{\Lambda} [a(\eta) - a(\eta_0)], \\ z &= z_0 + \frac{c}{\omega} \int_{\eta_0}^{\eta} \frac{d\eta'}{\Lambda} \left\{ p_{z0} + c^2 \frac{[a(\eta_0) - a(\eta)]^2}{2\Lambda} \right\}. \end{aligned} \quad (6.5)$$

Benutzt man nun die explizite Form des Vektorpotenzials aus Gl. (6.4), ergibt sich für die Elektron-Koordinaten:

$$\begin{aligned} x - x_0 &= \frac{\xi}{\omega} \frac{c^2}{\Lambda} \left\{ \eta_1^2 + \eta_1 2\pi - \frac{(\eta_2 - \eta_1)^2}{2} \right\}, \\ z - z_0 &= \frac{c}{\omega} \frac{p_{z0}}{\Lambda} (\eta_1 + \eta_2 + 2\pi) + \frac{\xi^2}{\omega} \frac{c^3}{2\Lambda^2} \left\{ \frac{2\eta_1^3}{3} + 2\pi\eta_1^2 + \frac{(\eta_2 - \eta_1)^3}{3} \right\}, \end{aligned} \quad (6.6)$$

wobei  $\eta_2$  die Rekollisionsphase  $\eta_r = \eta_2 + \eta_1 + 2\pi$  bestimmt, bei der dann  $x = x_0$  und  $z = z_0$  gilt. Die erste dieser Bedingungen ergibt

$$\eta_2 - \eta_1 = \sqrt{2(\eta_1^2 + 2\pi\eta_1)}, \quad (6.7)$$

und die zweite bestimmt  $p_{z0}$ :

$$p_{z0} = -\frac{c^2}{2\Lambda} a_0^2 \frac{\left[ \frac{2\eta_1^3}{3} + 2\pi\eta_1^2 + \frac{(\eta_2 - \eta_1)^3}{3} \right]}{(\eta_1 + \eta_2 + 2\pi)}. \quad (6.8)$$

Unter Berücksichtigung der Definition für  $\eta_1$  und  $\eta_2$  gilt:

$$\eta_1, \eta_2, |\eta_2 - \eta_1| \leq \omega\tau. \quad (6.9)$$

Wenn nun  $\omega\tau \ll 2\pi$  gilt, folgt:

$$\eta_2 - \eta_1 \approx \sqrt{4\pi\eta_1}. \quad (6.10)$$

Aus dieser Bedingung kann nun der maximale Wert für die Rekombinationsphase  $\eta_1$  des ionisierten Elektrons bestimmt werden:

$$\eta_1^{max} = \frac{\pi\tau^2}{T^2}. \quad (6.11)$$

Hiermit folgt für den longitudinalen Startimpuls des ionisierten Elektrons, das zum atomaren Rumpf zurückkehrt:

$$p_{z0}^{(APT)} = -c \frac{2\pi^2}{3} \xi^2 \frac{\tau^3}{T^3} = -\frac{\pi}{3} \frac{\bar{I}}{c^2} \tau^2. \quad (6.12)$$

## 6.6 Stabilität des HHG-Prozesses unter zufälligen Variationen der optimierten Pulsform

Der Energiegewinn des zurückkehrenden Elektrons in einem APT (4.30) ist dann gegeben durch

$$\Delta\varepsilon^{(APT)} = 2\pi^2 c^2 \xi^2 \frac{\tau^2}{T^2} = \frac{\pi \bar{I} \tau T}{c}, \quad (6.13)$$

wobei  $\bar{I} = cE_0^2 2\tau / 4\pi T$  die gemittelte Laserintensität ist. Man kann nun den Energiegewinn und den longitudinalen Startimpuls (als Maß für die Bedeutung des relativistischen Drifts) des zurückkehrenden Elektrons in dem APT mit den korrespondierenden Größen in einem sinusförmigen Laserfeld mit derselben gemittelten Intensität vergleichen. Im sinusförmigen Laserfeld gilt:

$$\begin{aligned} \Delta\varepsilon^{(L)} &\approx \frac{3c^2 \xi^2}{4} \approx \frac{3IT^2}{2\pi c}, \\ p_{z0}^{(L)} &\approx -c \frac{\xi^2}{4} \approx -\frac{IT^2}{2\pi c^2} \end{aligned} \quad (6.14)$$

mit der Laserintensität  $I = cE_0^2 / 8\pi$ . Der Vergleich ergibt

$$\begin{aligned} \frac{\Delta\varepsilon^{(APT)}}{\Delta\varepsilon^{(L)}} &\approx \frac{2\pi^2}{3} \frac{\tau}{T} \\ \frac{p_{z0}^{(APT)}}{p_{z0}^{(L)}} &\approx \frac{2\pi^2}{3} \left(\frac{\tau}{T}\right)^2 \end{aligned} \quad (6.15)$$

und zeigt somit, dass eine im Verhältnis zur Laserperiode  $T$  eher kurze Pulsdauer ( $\tau$ ) den longitudinalen Impuls und damit auch den relativistischen Drift bedeutend verringert. Der Energieverlust auf Grund der kürzeren Pulsdauer fällt dagegen weniger stark ins Gewicht.

## 6.6 Stabilität des HHG-Prozesses unter zufälligen Variationen der optimierten Pulsform

In diesem Abschnitt wollen wir die Frage beantworten wie robust die Erhöhung der HHG-Rate mittels maßgeschneiderter Pulse ist. Hierzu untersuchen wir die Stabilität des HHG-Prozesses gegenüber Variationen der Form des maßgeschneiderten Pulses. Die Form der Pulse wird verändert, indem man die spektralen Komponenten zufällig verändert. Variationen der Absolutwerte der spektralen Komponenten des Pulses von ungefähr 5 Prozent (siehe Abb. 6.13) oder der Phasen von ungefähr  $\pi/100$  (siehe Abb. 6.14) führen zu Änderungen in den Emissionsraten von maximal einer Größenordnung.

## 6.7 Herstellung der maßgeschneiderten Pulse

Mittels der, in den vorherigen Abschnitten durchgeführten Analyse des Ionisations-Rekollisionsprozesses in maßgeschneiderten Pulsen, haben wir die Anforderungen ermit-

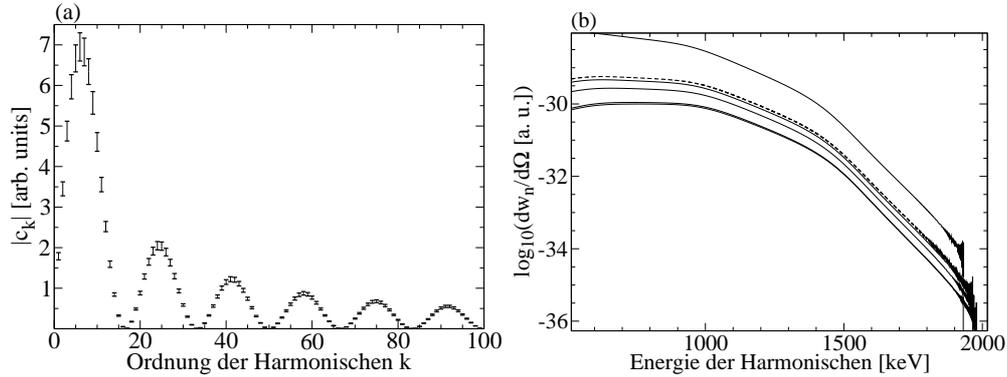


Abbildung 6.13: (a) Die Variation der Absolutwerte der spektralen Komponenten des APT's mit einer Pulsdauer von  $0.12\pi/\omega$  und einer Grundfrequenz von  $\omega = 0.1$  a.u. wird dargestellt. Die zufällige Variation der optimierten Werte beträgt maximal 5 Prozent. (b) Die resultierende HHG-Emissionsrate über  $\log_{10}(dw_n/d\Omega)$  aus Gl. (4.44), als Funktion der harmonischen Energie für fünf unterschiedliche, zufällig variierte APT's, jeweils mit einer Intensität von  $1 \times 10^{20}$  W/cm<sup>2</sup>. Die strichlierte Kurve bezieht sich auf den ungestörten maßgeschneiderten Puls. Das Ionisationspotenzial ist  $I_p = 82$  a.u.. Der APT wird jeweils aus 100 Harmonischen aufgebaut.

telt, die an den maßgeschneiderten Puls gestellt werden müssen, damit der Prozess im relativistischen Parameterbereich möglich wird. Das maßgeschneiderte Laserfeld sollte ein APT mit einer Grundkreisfrequenz von 0.1 a.u. (entspricht einer Laserperiode von ca. 1 fs), einer Pulsdauer von ca. 50 as und einer gemittelten Intensität von  $1 \times 10^{19}$  W/cm<sup>2</sup> sein. Die Form der Attosekunden-Pulse sollte einem Rechteck nahe kommen, das durch etwa die ersten 40 bis 60 Harmonischen ausreichend dargestellt werden kann. Hiermit sind alle benötigten Parameter des maßgeschneiderten Laserfeldes festgelegt.

Die Hauptschwierigkeit in der experimentellen Realisierung dieser Art von Pulsen ist die Kombination zweier extremer Eigenschaften: ein Pulszug, aufgebaut aus Attosekunden-Pulsen mit hoher Intensität. Nur wenige Laboratorien sind seit einiger Zeit in der Lage Attosekunden-Pulszüge [10] zu produzieren. Die Herstellung basiert auf dem HHG-Prozess in Gasen mit weiterem Filtern der Harmonischen und Umformen der Pulse. Leider ist es mit dieser Methode nicht möglich hohe Intensitäten zu erzeugen. Dies liegt daran, dass die Effizienz des Mechanismus klein ist, maximal von der Größenordnung  $10^{-5}$ , und die treibende Laserintensität auf die nicht-relativistische Ionisationsregion beschränkt ist. Deshalb muss nach alternativen Methoden zur Produktion von intensiven APT's Ausschau gehalten werden. Die Wechselwirkung von intensiven Lasern mit Plasmen scheinen der er-

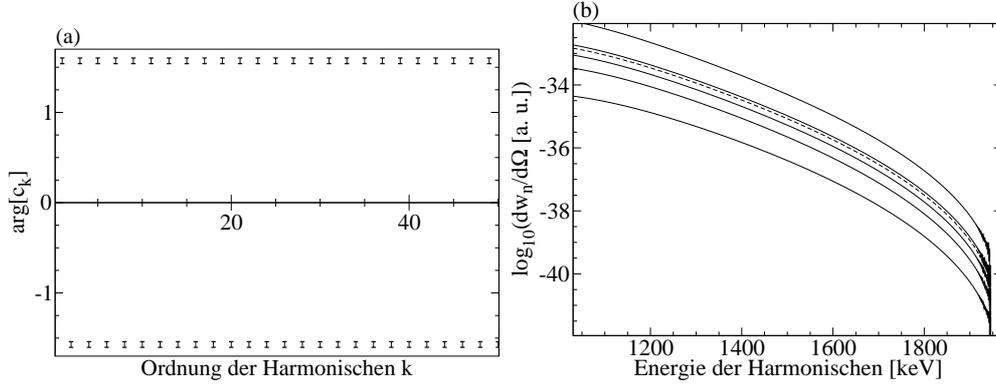


Abbildung 6.14: (a) Die Variation der Phasen der spektralen Komponenten des APT's mit einer Pulsdauer im Zug von  $0.12\pi/\omega$  und einer Grundfrequenz von  $\omega = 0.1$  a.u. wird dargestellt. Die zufällige Variation der optimalen Werte beträgt maximal  $\pi/100$ . (b) Die resultierenden HHG-Spektren über  $\log_{10}(dw_n/d\Omega)$  aus Gl. (4.44), als Funktion der harmonischen Energie für fünf unterschiedlich variierte APT's, jeweils mit einer Intensität von  $1 \times 10^{20}$  W/cm<sup>2</sup>. Die strichlierte Kurve bezieht sich auf den ungestörten Puls. Der APT wird jeweils aus 50 Harmonischen aufgebaut.

folgsversprechenste Weg zur Herstellung von intensiven APT's zu sein. Zum einen ist ein Plasma das ideale Medium, wenn starke Laserfelder betrachtet werden, da keine Grenzen auf Grund des Ionisationsprozesses existieren. Weiterhin entstehen im relativistischen Bereich der Wechselwirkung neue Nicht-Linearitäten. Zum einen wird die Dynamik der Elektronen für  $\xi > 1$  nicht-linear. Zum anderen treten in mit starken Laserfeldern wechselwirkenden, überdichten Plasmen (vor allem an der Grenze zwischen Vakuum und Plasma) hohe Feld- sowie Teilchendichtegradienten auf, die sich sehr günstig auf die nicht-lineare Transformation des einfallenden Laserfeldes auswirken. Abgesehen von diesen günstigen Grundvoraussetzungen des Plasmas als Medium für die Konversion von starken Laserfeldern in APT's sind kürzlich zwei neue Typen der Wechselwirkung von starken Laserfeldern mit Plasmen entdeckt worden, die die Produktion der benötigten APT's ermöglichen können. Sie sollen im Folgenden kurz vorgestellt werden.

Der erste Wechselwirkungstyp wird das Sliding-Mirror-Regime genannt. Hierbei wechselwirkt ein relativistisch starkes Laserfeld mit einer dünnen Plasmaschicht [98]. Das Plasma ist so dicht, dass sogar für starke Laserfelder die Verschiebung des Elektrons in Laserpropagationsrichtung vernachlässigbar ist. Dies ist der Fall, wenn folgende Bedingung erfüllt ist:  $\epsilon_p \approx \xi$ , wobei  $\epsilon_p \equiv \pi(n/n_{cr})(L/\lambda)$  gilt,  $n$  die Plasma-Dichte ist,  $n_{cr} = m\omega/4\pi e^2$  die kritische Plasmadichte,  $L$  die Dicke der Plasmaschicht,  $\omega$  und  $\lambda$  die Laserkreisfrequenz bzw.

-wellenlänge. Wie man aus der Bedingung erkennt, benötigt man hohe Dichten, dünne Schichten und starke Laserfelder für diesen Prozesstyp. Die Harmonischen werden sowohl im reflektierten als auch im transmittierten Licht erzeugt. Im zweiten Fall haben sie sogar eine feste lineare Phasenbeziehung und bilden deshalb APT's. Da somit kein weiteres spektrales Filtern nötig ist, ist die Effizienz der APT-Erzeugung erhöht, wie PIC-Simulationen in Ref. [98] gezeigt haben. Sie liegen im Prozentbereich. Die charakteristische Frequenz des HHG-Spektrums für diesen Prozesstyp ist durch  $\omega_{cr} = \xi\omega$  gegeben und definiert die minimale Zeitdauer der Pulse im APT. Für unseren APT würden wir also ein treibendes Laserfeld mit einem relativistischen Feldstärkeparameter von  $\xi \approx 20$  benötigen.

Der zweite Prozesstyp, der die Produktion der benötigten APT's in Aussicht stellt, ist das sogenannte  $\lambda^3$ -Regime der Laserfeld-Reflexion an überdichten Plasmaoberflächen [99]. Die Nicht-Linearität des Prozesses basiert hauptsächlich auf den hohen Gradienten des Feldes und der Teilchendichte an der Plasmaoberfläche. Wie PIC-Simulationen gezeigt haben, können hiermit isolierte Attosekunden-Pulse mit einer hohen Effizienz von ungefähr 10% erzeugt werden. Man kann nun diese Halbzyklen-Pulse zu einer Folge von Pulsen kombinieren, die den Voraussetzungen unseres APT's genügen. Es werden allerdings noch gründlichere Untersuchungen benötigt, ob die Anforderungen an den harmonischen Inhalt, die Pulsdauer und andere Parameter in diesem Regime wirklich erfüllt werden können. Außerdem sind diese Prozesstypen noch nicht experimentell bestätigt. Unter Berücksichtigung des schnellen Fortschritts auf dem Feld der Laser-Plasma-Wechselwirkung und der Tatsache, dass die Produktion von noch intensiveren Laserpulsen [100] vorhergesagt wird, erscheint die Herstellung unserer APT's in naher Zukunft als realistisch.

## 6.8 Zusammenfassung

Da der Ionisations-Rekollisionsprozess im relativistischen Parameterbereich stark unterdrückt ist, haben wir hier eine neue Methode vorgestellt, die dieses Problem umgeht. Sie basiert auf der Anwendung von starken maßgeschneiderten Pulsen in der Form eines APT's an Stelle konventioneller sinusförmiger Felder als treibendes Laserfeld des ATI- bzw. HHG-Prozesses im relativistischen Parameterbereich. Durch die speziell gewählte Form der Attosekunden-Pulse kann der ausschlaggebende Drift des ionisierten Elektrons in Laserpropagationsrichtung bei trotzdem noch hohen Endenergien wesentlich verringert werden, und somit der relativistische Ionisations-Rekollisionsprozess ermöglicht werden. Dies konnte ebenfalls durch eine klassische, analytische Berechnung des Prozesses bestätigt werden. Mit dem ermittelten maßgeschneiderten APT wurden dann ATI- und HHG-Spektren berechnet. Weiterhin wurde der Einfluss der den maßgeschneiderten Puls definierenden Parameter auf die Effizienz des Ionisations-Rekollisionsprozesses untersucht und die optimalen Werte für die Grundfrequenz von 0.1 a.u., die Pulsdauer von 50 as, den harmonischen Inhalt

von 40 – 60, und die Intensität von  $10^{19}$  W/cm<sup>2</sup> ermittelt. Hiermit lassen sich Rekollisionsenergien von 200 keV bei optimalen Raten erzielen. Die vorgestellte Methode erlaubt also die Erzeugung hochenergetischer Harmonischer im Röntgenbereich. Weiterhin wäre es bei noch anspruchsvollerer Optimierung der Pulse und höheren Intensitäten denkbar, dass das zurückkehrende, hochenergetische Elektron im Atomkern nukleare Reaktionen auslöst. Der Nachteil dieser Methode zur Reduktion des relativistischen Drifts ist die schwierige Herstellung der maßgeschneiderten Pulszüge. Durch die Verwendung zweier gegenläufiger APT's soll im nächsten Kapitel dieses Problem abgeschwächt werden und gleichzeitig die Effizienz des Rekollisionsprozesses gesteigert werden.



# 7 Relativistische HHG in gegenläufigen Attosekunden-Pulszügen

In diesem Kapitel wollen wir eine weitere Methode vorstellen, wie der relativistische Ionisations-Rekollisionsprozess bei atomaren Systemen durch eine Veränderung der Laserkonfiguration ermöglicht wird. Anstelle eines konventionellen sinusoidalen Laserfeldes sollen gegenläufige, linear polarisierte Attosekunden-Pulszüge (APT's) verwendet werden, die den HHG-Prozess treiben. Durch ihre entgegengesetzte Propagationsrichtung wird es unter bestimmten Bedingungen möglich sein den für die Effizienz des HHG-Prozesses so entscheidenden Drift des ionisierten Elektrons nahezu vollständig aufzuheben und so hohe Prozessraten für Harmonische mit Energien im MeV-Bereich zu erreichen. Durch Überlagerung der emittierten Harmonischen wird die Erzeugung von  $\gamma$ -Pulsen mit Pulslängen im Zeptosekunden-Bereich möglich [101]. Diese könnten in der zeitaufgelösten Kernspektroskopie Verwendung finden.

## 7.1 Berechnung der HHG-Emissionsrate

Wir betrachten also im Folgenden den HHG-Prozess getrieben von zwei gegenläufigen, linear polarisierten Attosekunden-Pulszügen (APT's), dargestellt in Abb. 7.1.

Im Gegensatz zu Ref. [96] (siehe auch Kapitel 6) werden keine Ansprüche an die Form der Pulse gestellt. Die einzelnen Pulse haben eine Dauer von etwa 300 as und werden aus weniger als 20 Harmonischen aufgebaut (Abb. 7.2). Es gibt nun zwei unterschiedliche Arten wie der HHG-Prozess vonstatten geht. In dem einen Fall wird das Elektron von dem einen APT ionisiert und in diesem Puls bis zu seinem Ende beschleunigt, und dann von dem anderen gegenläufigen Puls zum Atomkern zurückgetrieben. Das Elektron bewegt sich also immer nur in einem der beiden Pulszüge. Im anderen Fall wirken beide Pulszüge gleichzeitig auf das Elektron. Welcher dieser Fälle eintritt, hängt vom Ort des Atoms ab. Den unterschiedlichen Prozesstypen können also unterschiedliche Raumbereiche zugeordnet werden, in denen sie stattfinden. Nur im ersten Szenario kann das Elektron mit einer nicht-verschwindenden Wahrscheinlichkeit zum Kern zurückkehren. Dies kann mittels einer klassischen Berechnung der Bahnen in den APT's gezeigt werden. Hierzu wurden die

## 7 Relativistische HHG in gegenläufigen Attosekunden-Pulszügen

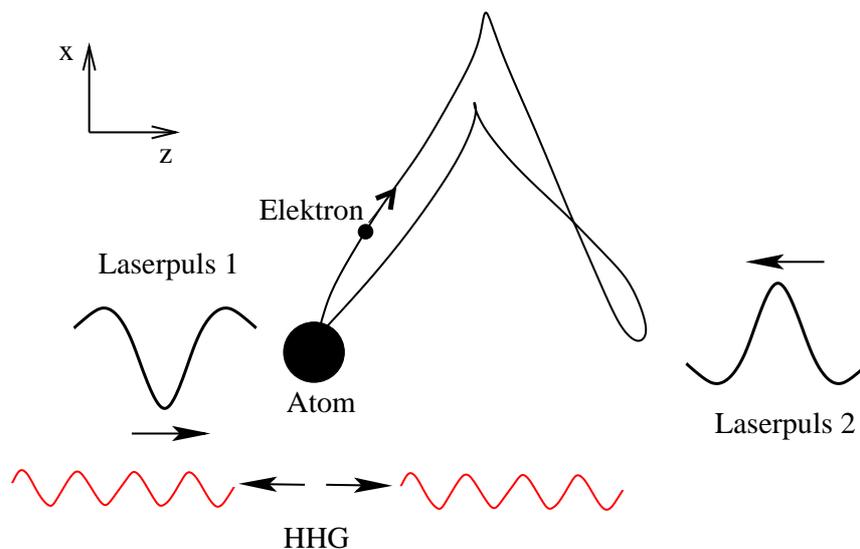


Abbildung 7.1: Unter Benutzung zweier gegenläufiger APT's an Stelle eines sinusförmigen Laserfeldes, wird der Gesamtdrift des ionisierten Elektrons in  $z$ -Richtung wesentlich verringert und das Elektron kann selbst im relativistischen Parameterbereich effizient mit dem atomaren Rumpf rekombinieren.  $x$  und  $z$  sind die Laserpolarisations- bzw. Laserpropagationsrichtung des ersten Pulses.

relativistischen Bewegungsgleichungen numerisch gelöst [37]:

$$\begin{aligned}\gamma\ddot{x} &= -E(z,t)(1 - (\dot{x}/c)^2) + B(z,t)\dot{z}/c \\ \gamma\ddot{z} &= \dot{x}/c(E(z,t)\dot{z}/c - B(z,t)),\end{aligned}\quad (7.1)$$

wobei  $\gamma = 1/\sqrt{1 - (\dot{x}/c)^2 - (\dot{z}/c)^2}$  gilt.  $E(z,t)$  und  $B(z,t)$  sind das elektrische bzw. magnetische Gesamtfeld der Laserkonfiguration. Mit den Anfangsbedingungen für die Elektron-Koordinaten und -Geschwindigkeiten in Laserpolarisations- bzw. propagationsrichtung  $x(t_0) = 0$ ,  $z(t_0) = z_0$ ,  $\dot{x}(t_0) = 0$  und  $\dot{z}(t_0) = 0$  kann für unterschiedliche Startzeiten  $t_0$  und Positionen des Atoms  $z_0$  bezüglich der Propagationsachse der minimale Abstand des Elektrons vom atomaren Rumpf nach Ablauf einer bestimmten Zeit ermittelt werden. Außerdem lässt sich die dazugehörige Geschwindigkeit des Elektrons darstellen. Man erkennt nun, dass das freigesetzte Elektron nur im ersten Szenario mit einer signifikanten Energie in die Nähe des atomaren Rumpfs zurückkehrt, also eine hohe Rekombinationswahrscheinlichkeit besitzt und den HHG-Prozess im relativistischen Parameterbereich ermöglicht [102].

Es wäre ebenso denkbar anstatt zweier gegenläufiger APT's, zwei gegenläufige sinusförmige Wellen, die dann eine räumlich stehende Welle bilden, zu verwenden um den HHG-Prozess

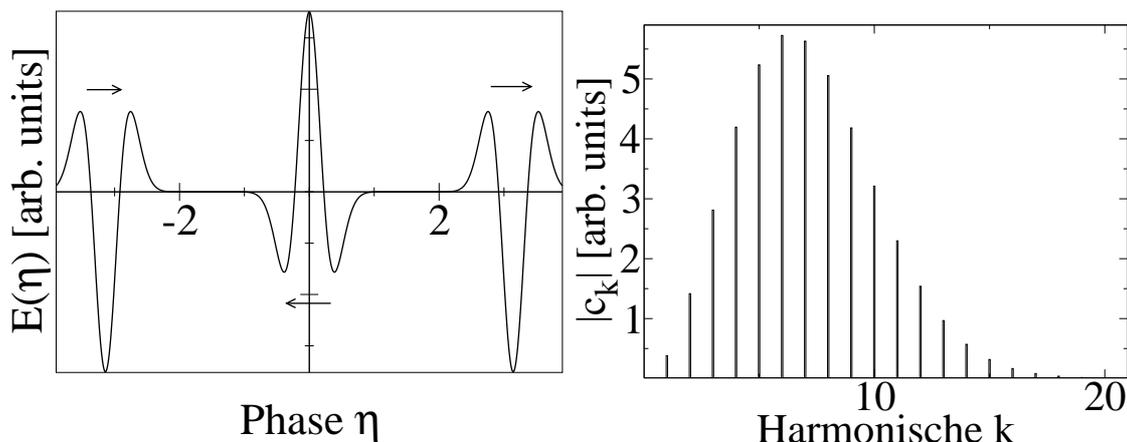


Abbildung 7.2: a) Phasenabhängigkeit des elektrischen Feldes  $E(\eta)$  der gegenläufigen APT's. Die Grundfrequenz (äquivalent zur Wiederholungsrate der Pulse im Zug) ist  $\omega = 0.05$  a.u.. Die Richtung der Propagation der Pulse ist durch die Pfeile gekennzeichnet. b) Frequenz-Spektrum  $|c(k)|$  eines APT's. Die einzelnen Komponenten stehen in einer linearen Phasenbeziehung.

zu treiben. Dies führt allerdings zu keinem Erfolg, da die Elektronenbahnen im relativistischen Parameterbereich unbeständig sind, chaotischen Charakter besitzen, und der Phasenbereich der Ionisation für den das Elektron mit einer signifikanten Energie zum Kern zurückkehren kann, sehr klein ist. Aus demselben Grunde spielt deshalb auch der zweite Prozessstyp in zwei gegenläufigen APT's keine Rolle für die Erzeugung höherer Harmonischer (siehe auch Abschnitt 5.2.1).

Wir wollen nun den ersten Prozessstyp des HHG-Prozesses in zwei gegenläufigen APT's theoretisch beschreiben. Hierzu betrachten wir ein atomares System, das sich im Koordinatenursprung befindet und mit zwei gegenläufigen, linear polarisierten APT's im relativistischen Parameterbereich wechselwirkt. Ausgangspunkt der Berechnungen ist die Klein-Gordon-Gleichung für das im Prozess aktive Elektron im treibenden Laserfeld. Zur analytischen Lösung dieser Gleichung wird die SFA angewendet. Die Pulse in den unterschiedlichen Zügen werden durch ihre Vektorpotenziale  $\mathbf{A}_1(\mathbf{x}) = A(t_d + \eta_1)\mathbf{e}_x$  und  $\mathbf{A}_2(\mathbf{x}) = -A(\eta_2)\mathbf{e}_x$  definiert, wobei  $\eta_1 = t - z/c$  bzw.  $\eta_2 = t + z/c$  die Phasen der Pulse,  $\mathbf{x} = (ct, \mathbf{r})$  die Raum-Zeit-Koordinaten sind,  $t_d$  den Zeitverzug zwischen den Pulsen darstellt,  $c$  die Lichtgeschwindigkeit und  $\mathbf{e}_x$  der Einheitsvektor in Polarisationsrichtung des ersten Pulses ist. Die HHG-Prozess-Amplitude in der SFA unter Anwendung der Single-Active-Electron-

## 7 Relativistische HHG in gegenläufigen Attosekunden-Pulszügen

Approximation ist dann durch folgenden Ausdruck (in atomaren Einheiten) gegeben [39]:

$$M_n = -i \int d^4x' \int d^4x'' \{ \Phi(x')^* V_H(x') G(x', x'') V_A(x'') \Phi(x'') \}, \quad (7.2)$$

wobei  $n$  die Ordnung der Harmonischen ist,  $V_H(x) = -2\mathbf{A}_H(x)/c \cdot (\hat{\mathbf{p}} + \mathbf{A}_g(x)/c)$ ,  $V_A(x) = -2iV/c^2 \partial_t + V^2/c^2$ ,  $V$  das atomare Potenzial,  $\hat{\mathbf{p}}$  der Impulsoperator des Elektrons,  $\mathbf{A}_g = \mathbf{A}_1 + \mathbf{A}_2$  das Vektorpotenzial des gesamten Laserfeldes in der Strahlungseichung,  $\mathbf{A}_H(x)$  das Matrixelement des Vektorpotenzial des Harmonischen Feldes in zweiter Quantisierung für einen Ein-Photonen-Emissionsprozess,  $\Phi(x)$  die Grundzustandswellenfunktion, die ein Eigenzustand des Energieoperators in der Strahlungseichung ist [82] (siehe auch Kapitel 3). In Gl. (7.2) stellt  $G(x', x'')$  die Green-Funktion der Klein-Gordon-Gleichung für ein Elektron im Feld beider APT's dar. Wie schon erwähnt soll das erste Szenario, in dem immer nur maximal ein Puls auf das Wellenpaket des aktiven Elektrons wirkt, betrachtet werden. Ohne Beschränkung der Allgemeinheit wird der Prozess durch den ersten Puls via Ionisation gestartet und dann vom zweiten Puls vollendet. Die Green-Funktion der Klein-Gordon-Gleichung im Feld beider APT's kann dann mit Hilfe der Klein-Gordon-Volkov Green-Funktion in einem einzigen Laserfeld  $G_i^V(x', x'')$  [24] wie folgt dargestellt werden:

$$G^V(x, x') = i \int d^3\mathbf{r}^B G_2^V(x, x^B) \overleftrightarrow{\partial}_{ct^B} G_1^V(x^B, x') \quad (7.3)$$

mit der Raum-Zeit-Koordinate  $x^B = (ct^B, \mathbf{r}^B)$  zu einer Zeit  $t^B$  bei der das Elektron den ersten Laserpuls schon verlassen hat, der zweite allerdings noch nicht auf das Elektron wirkt. Nach der Transformation der Integrationsvariablen  $\{\eta' = t' - \hat{\mathbf{k}}_2 \cdot \mathbf{r}'/c, \eta'' = t'' - \hat{\mathbf{k}}_1 \cdot \mathbf{r}''/c\}$  und unter Berücksichtigung der Tatsache, dass die Ausdehnung des Wellenpakets des ionisierten Elektrons wesentlich kleiner als die Pulslänge des Lasers ist, kann die HHG-Amplitude für die Emission in Laserpropagationsrichtung des zweiten Pulszuges durch folgendes fünfdimensionale Integral dargestellt werden:

$$\begin{aligned} M_n &= \int_{-\infty}^{\infty} d\eta' \int_{-\infty}^{\eta'} d\eta'' \int d^3\mathbf{p} m^H(\mathbf{p}, \eta', \eta'') \\ &\times \exp \left\{ -i \left[ S_2(\mathbf{p}, \eta', t^B + z_0^B/c) + S_1(\mathbf{p}, t^B - z_0^B/c, \eta'') + 2(\varepsilon_{\mathbf{p}} - c^2 + I_p)z_0^B/c - n\omega\eta' \right] \right\} \end{aligned} \quad (7.4)$$

mit dem Matrixelement:

$$\begin{aligned} m^H(\mathbf{p}, \eta', \eta'') &= -\frac{c^2(\mathbf{p} + \mathbf{A}_2(\eta')/c) \cdot \hat{\mathbf{e}}_H}{\varepsilon_{\mathbf{p}}} \tilde{\phi}_0^*(\mathbf{p} + \mathbf{A}_2(\eta')/c - \hat{\mathbf{k}}_2(\varepsilon_{\mathbf{p}} + I_p - c^2)/c) \\ &\times \langle \mathbf{p} + \mathbf{A}_1(\eta'')/c - \hat{\mathbf{k}}_1(\varepsilon_{\mathbf{p}} + I_p - c^2)/c | V | 0 \rangle. \end{aligned} \quad (7.5)$$

$\hat{\mathbf{e}}_H$  ist die Polarisationsrichtung des emittierten Photons,  $\tilde{\phi}_0$  die Fourier-Transformierte der Grundzustandswellenfunktion,  $I_p$  das Ionisationspotenzial,  $S_i(\mathbf{p}, \eta, \eta')$  =

$\int_{\eta'}^{\eta} d\tilde{\eta} (\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{p},i}(\tilde{\eta}) - c^2 + I_p)$  die quasi-klassische Wirkung,  $\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{p},i}(\eta) = \varepsilon_{\mathbf{p}} + \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}_i(\eta)/2c) \cdot \mathbf{A}_i(\eta)/c}{\Lambda_i(\mathbf{p})}$  die Elektronenenergie im Laserfeld,  $\Lambda_i(\mathbf{p}) = \varepsilon_{\mathbf{p}}/c^2 - \hat{\mathbf{k}}_i \cdot \mathbf{p}/c$ ,  $\mathbf{p} = (\varepsilon_{\mathbf{p}}/c, \mathbf{p})$  der Energie-Impuls-Vektor,  $\varepsilon_{\mathbf{p}} = \sqrt{c^4 + c^2 \mathbf{p}^2}$ ,  $\hat{\mathbf{k}}_i$  der Einheitsvektor in Laserpropagationsrichtung. Die Koordinate des Schwerpunkts des Elektronenwellenpaketes in Laserpropagationsrichtung des ersten Pulses zur Zeit  $t^B$  ist implizit gegeben durch:

$$z_0^B = \int_{\eta'_1}^{t^B - z_0^B/c} d\tilde{\eta} \left( \frac{p_z}{\Lambda_1(\mathbf{p})} + \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}_1(\tilde{\eta})/2c) \cdot \mathbf{A}_1(\tilde{\eta})/c}{c\Lambda_1(\mathbf{p})^2} \right). \quad (7.6)$$

Im betrachteten Fall gilt  $K\omega \ll I_p$ , wobei  $K$  die größte Frequenzkomponente der Attosekunden-Pulse ist und  $\omega$  die Grundkreisfrequenz. Das Integral in Gl. (7.4) kann dann über die Sattelpunktmethode berechnet werden.

## 7.2 Spektren

In Abb. 7.3a) wird das HHG-Spektrum im Fall von zwei gegenläufigen APT's (mit Pulsen wie in Abb. 7.2a)) dargestellt. Es wird zum einen mit dem Spektrum verglichen, das man erhält, wenn man die Dipolnäherung auf den betrachteten Fall anwendet. Weiterhin vergleichen wir es mit dem Spektrum, das durch die maßgeschneiderten Pulse (siehe Kap. 6 und [96]) erzeugt wird, sowie mit dem Spektrum, das aus zwei kopropagierenden APT's resultiert. Das Ergebnis in der Dipolnäherung dient als Referenz für den idealen Ionisations-Rekollisionsprozess, da hier der parasitäre Einfluss des Lasermagnetfeldes vernachlässigt wird. Wie man sieht, können im betrachteten stark-relativistischen Parameterbereich bei einer elektrischen Laserfeldstärke von  $E_0 = 88$  a.u. und einer Laserkreisfrequenz von  $\omega = 0.05$  a.u. höhere Harmonische mit einer Energie von 1 MeV mit optimaler Effizienz erzeugt werden, wie der Vergleich mit den Resultaten in der Dipolnäherung im Cutoff-Bereich zeigt. Außerdem ist eine wesentliche Verbesserung von über zwei Größenordnungen zu den Resultaten mittels den maßgeschneiderten Pulsen zu erkennen. Das Spektrum, das durch zwei kopropagierende Pulse erzeugt wird und sehr geringe HHG-Raten liefert, zeigt weiterhin, dass die Optimierung der Pulsform bei der Verwendung von nur einem APT unbedingt nötig ist um den Rekollisionsprozess in diesem Parameterbereich zu ermöglichen (siehe Abb. 7.3a)).

Die Abhängigkeit der HHG-Spektren von dem zeitlichen Abstand zwischen den Pulsen wird in Abb. 7.3b) analysiert. Die einzelnen Spektren sind durch ein gebogenes Plateau, das mit einem scharfen Cutoff endet, charakterisiert. Die Krümmung nimmt mit kürzeren Pulsabständen zu, während dagegen die Oszillation der Spektren, die auf die Interferenz

## 7 Relativistische HHG in gegenläufigen Attosekunden-Pulszügen

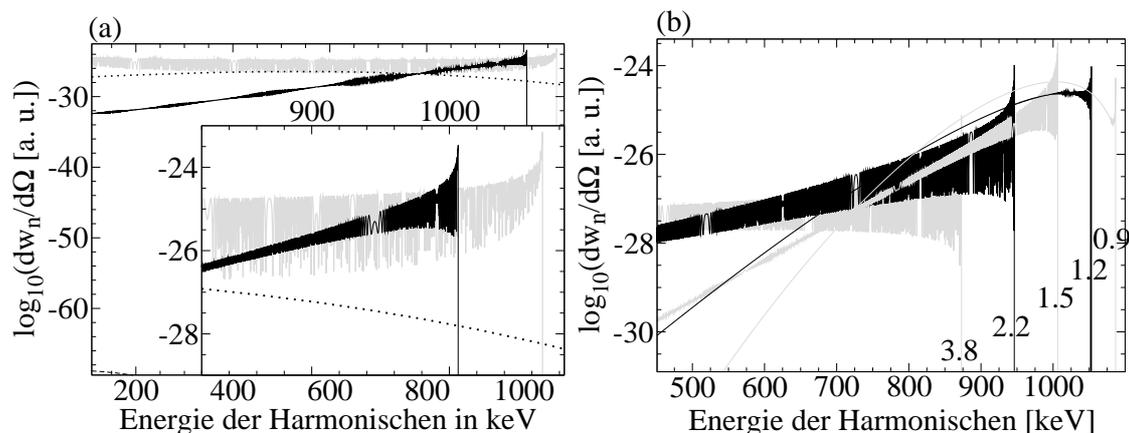


Abbildung 7.3: HHG-Rate in Laserpropagationsrichtung mittels gegenläufiger APT's als Funktion der Energie der Harmonischen ( $dw_n/d\Omega$  ist die Emissionswahrscheinlichkeit der  $n$ -ten Harmonischen pro Zeiteinheit und Raumwinkel  $\Omega$ ) mit einer elektrischen Amplitude der Pulse  $E_0 = 88$  a.u. (entspricht einer maximalen Intensität von  $6 \times 10^{20}$  W/cm<sup>2</sup>) und einem Ionisationspotenzial von  $I_p = 63$  a.u.: a) (schwarz) zwei gegenläufige APT's über die Klein-Gordon-Gleichung, (grau) zwei gegenläufige APT's in der Dipolnäherung, (strichliert) zwei kopropagierende APT's über die Klein-Gordon-Gleichung, (punktiert) maßgeschneiderter APT aus Kapitel 6 über die Klein-Gordon-Gleichung,  $\omega = 0.05$  a.u.. Das Fenster in der rechten unteren Ecke zeigt den Bereich der Cutoff-Energie vergrößert. b) HHG-Spektren für unterschiedliche Wiederholungsraten der Pulse in den APT's. Die Zeitdauer zwischen den Pulsen ist 0.9, 1.2, 1.5, 2.2 bzw. 3.8 fs. Dies entspricht einem  $\omega$  von 0.08, 0.065, 0.05, 0.035 bzw. 0.02 a.u.

von Beiträgen zweier unterschiedlicher Elektronenbahnen zurückzuführen ist, zunimmt. Diese beiden Eigenschaften deuten den zunehmenden relativistischen Charakter des HHG-Prozesses für kürzere Zeitabstände an. Man erkennt dies auch am Startimpuls, der die Rekollision möglich macht (Abb. 7.4a)). Je größer der zeitliche Abstand zwischen den Pulsen ist, desto mehr Raum für seine Ausbreitung steht dem freigesetzten Elektron zur Verfügung, was dazu führt, dass die Ionisation zu einem späteren Zeitpunkt, also bei einer größeren elektrischen Laserfeldstärke stattfinden kann (siehe Abb. 7.4b)). Dies erklärt zum einen die erhöhte HHG-Rate (am Cutoff) sowie zum anderen die geringere Cutoff-Energie. Letztere kann auf die längere Beschleunigungsphase des Elektrons weg vom atomaren Rumpf zurückgeführt werden. Beide Abhängigkeiten schwächen sich mit zunehmender Distanz zwischen den Pulsen ab. Abgesehen von den beschriebenen quasi-klassischen Charakteri-

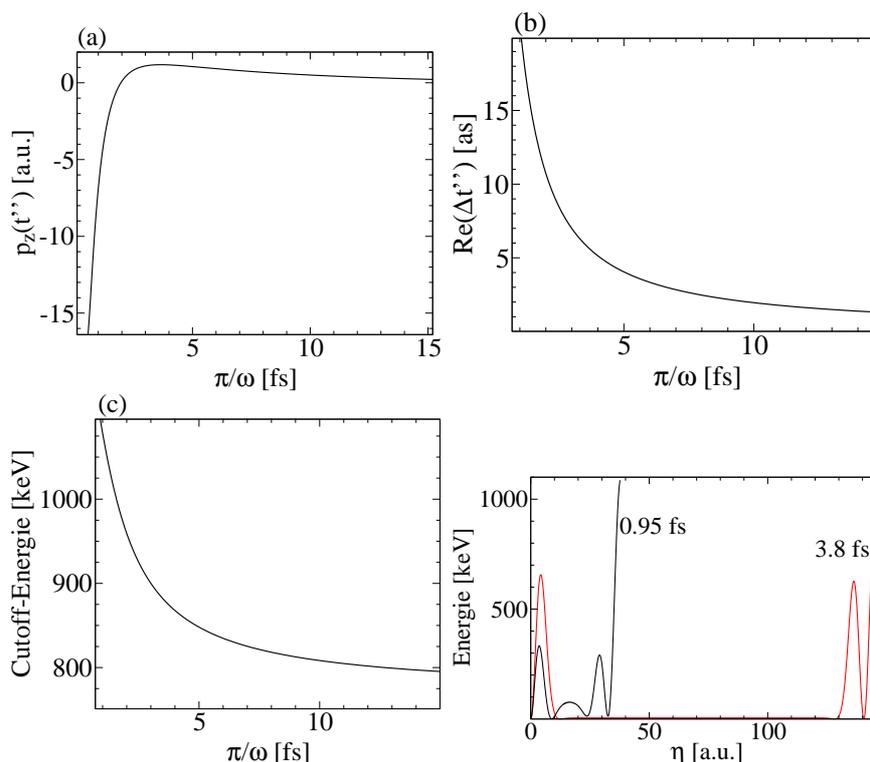


Abbildung 7.4: (a) Abhängigkeit des kinetischen Startimpulses des Cutoff-Elektrons  $p_z$  vom Abstand zwischen den Laserpulsen; (b) Abhängigkeit der Zeitdauer zwischen Ionisation und Pulsmaximum vom Abstand zwischen den Pulsen; (c) Abhängigkeit der Cutoff-Energie vom Abstand zwischen den Pulsen; (d) kinetische Energie des ionisierten Cutoff-Elektrons auf seiner Bahn im Kontinuum, bei einem Pulsabstand von 0.9 fs (schwarze Kurve) und 3.8 fs (rote Kurve).  $E_0 = 88$  a.u. und  $I_p = 63$  a.u. ( $\text{Mg}^{10+}$ ).

stika, wird der HHG-Prozess noch von der Verbreiterung des Wellenpaketes des ionisierten Elektrons auf dessen Bahn im Kontinuum beeinflusst. Je länger der Abstand zwischen den Laserpulsen, desto länger der Weg des Elektrons und somit desto größer ist die Ausdehnung des Wellenpakets zum Rückkehrzeitpunkt, was die Rekombinationswahrscheinlichkeit und somit die HHG-Rate verringert. Dieser quantenmechanische Effekt kann die Erhöhung der HHG-Rate für größere Zeiträume zwischen den Pulsen invertieren.

Der HHG-Prozessstyp mittels gegenläufiger APT's kann nun prinzipiell auch für noch größere Feldstärken betrachtet werden. In Abb. 7.5 untersuchen wir den ultrastark-relativistischen Parameterbereich mit einer maximalen Laserfeldstärke von  $E_0 = 325$  a.u. und unterschiedlichen Grundkreisfrequenzen. In diesem Parameterbereich verlässt das io-

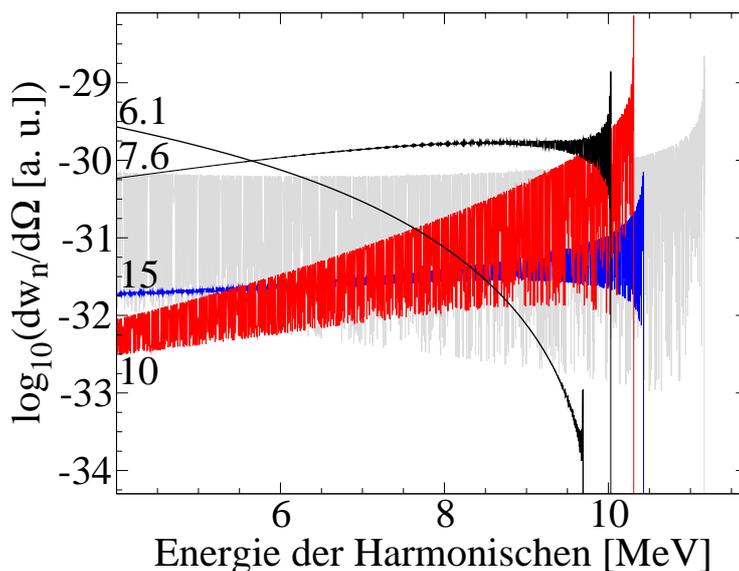


Abbildung 7.5: HHG-Rate in Laserpropagationsrichtung mittels gegenläufiger APT's für unterschiedliche Pulsabstände, verglichen mit dem Spektrum, dass in der Dipolnäherung mit einer Grundkreisfrequenz von  $\omega = 0.0075$  a.u. erhalten wurde (grau). Die Abstände zwischen den Pulsen sind ungefähr 6.1, 7.6, 10 bzw. 15 fs. Dies entspricht einer jeweiligen Grundkreisfrequenz von 0.0125, 0.01, 0.0075, bzw. 0.005 a.u.. Weiterhin gilt:  $E_0 = 325$  a.u. und  $I_p = 150$  a.u. ( $\text{Ar}^{16+}$ ).

nierte Elektron den ersten Laserpuls nur sehr langsam. Das HHG-Szenario, dass mit unseren Berechnungen beschreibbar ist, beruht auf der Annahme, dass das ionisierte Elektron immer nur maximal mit einem Laserpuls aus einem der beiden APT's wechselwirkt. Dies erklärt die im Vergleich zum stark-relativistischen Parameterbereich geringeren Grundkreisfrequenzen. Somit lassen sich dann Harmonische von bis zu 10 MeV mit optimalen Raten erzeugen, wie der Vergleich mit den Resultaten in der Dipolnäherung mit einer Grundkreisfrequenz von  $\omega = 0.0075$  a.u. zeigt. Der einzig limitierende Faktor bezüglich der Effizienz des Prozesses ist die Verbreiterung des Wellenpaketes, der durch das größere elektrische Feld und die geringere Grundkreisfrequenz deutlich stärker als im stark-relativistischen Parameterbereich zu Tage tritt. Durch Anwendung zusätzlicher magnetischer Pulse mit hohen, bisher noch nicht realisierbaren Feldstärken kann dieses Problem gelöst und die Ausdehnung des Wellenpaketes reduziert werden. Dies verspricht eine weitere Optimierung des HHG-Prozesses (siehe Ref. [36]).

Des Weiteren wird die Abhängigkeit des HHG-Spektrums von dem Abstand zwischen den Pulsen in diesem Parameterbereich untersucht. Man erkennt, dass die Effizienz des Pro-

zesses am Cutoff für kürzere Abstände stark abnimmt und weiterhin eine Umkehr der Cutoff-Energie-Abhängigkeit im Vergleich zum stark-relativistischen Parameterbereich eintritt. Letztere ist auf den stärker-relativistischen Charakter des Prozesses zurückzuführen. Unter Berücksichtigung der zusätzlichen Verbreiterung des Wellenpakets, lässt sich ein optimaler Pulsabstand von etwa 8 fs bestimmen. Somit lassen sich dann Harmonische mit Energien von bis zu 10 MeV herstellen, deren Raten bis auf den limitierenden Faktor der Wellenpaketsverbreiterung optimal sind.

Es sei noch einmal bemerkt, dass die Verwendung einer stehenden Welle anstatt zweier gegenläufiger APT's in diesem stark-relativistischen Parameterbereich keinen Erfolg verspricht. Die klassischen Bahnen des Elektrons in der stehenden Welle sind äußerst unstetig und nur ein sehr kleiner Bereich von Anfangsbedingungen (gleichbedeutend mit dem Anteil von Atomen im Raum) führt zur Rückkehr des Elektrons mit nicht-verschwindenden Energien [33]. Außerdem ist zu erwarten, dass das Wellenpaket durch die hohen Kräfte, die auf es wirken, zerrissen wird, die Wellenpaketsdynamik chaotischen Charakter annimmt und alles in allem der HHG-Prozess stark unterdrückt sein wird.

## 7.3 Erzeugung kurzer Pulse

Ein Teil des Spektrums der erzeugten Harmonischen kann nun zur Erzeugung von sehr kurzen Laserpulsen benutzt werden. Wie man in Abb. 7.3b) an der Abwesenheit von Interferenzstrukturen erkennen kann, existieren für gewisse Pulsabstände Spektren, die nur von einer Bahn signifikant bestimmt werden. Diese Tatsache ist für die Erzeugung kurzer Pulse von großem Vorteil, da keine Filtertechniken benutzt werden müssen um Beiträge von mehreren Bahnen, die durch ihren jeweils unterschiedlichen Chirp die Pulsdauer verlängern, zu entfernen. Im stark-relativistischen Parameterbereich mit einer elektrischen Feldstärke von  $E_0 = 88$  a.u. und einer Grundkreisfrequenz von 0.8 a.u. kann mittels einer quasi-klassischen Analyse eine Veränderung der Rekollisionsphase von  $\Delta\eta_1 \approx 0.035$  bei einer Variation der Harmonischen Energie von 100 keV ermittelt werden (siehe Abb. 7.6).

Das elektrische Feld des erzeugten Pulses für ein Rechteck-Fenster der spektralen Breite  $\Delta n$  kann dann grob abgeschätzt werden durch::

$$E_{atto}(\eta) \sim \sum_n^{n+\Delta n} \Re \{ \exp(in(\eta - \eta_{1,n})) \}, \quad (7.7)$$

mit seiner Phase  $\eta$  und der Rekombinationsphase  $\eta_{1,n}$  zur Harmonischen Energie  $n$ . Hieraus lässt sich dann ein ideales Fenster  $\Delta n$  von einigen keV ermitteln, das einen möglichst kurzen Puls von etwa 1 as ergeben sollte. Benutzt man nun also eine Fensterfunktion  $g(n) = 1/\sqrt{2/\pi}/\Delta n \exp(2((n - n_0)/\Delta n)^2)$  mit einer Fensterbreite  $\Delta n$ , die 4 keV entspricht

## 7 Relativistische HHG in gegenläufigen Attosekunden-Pulszügen

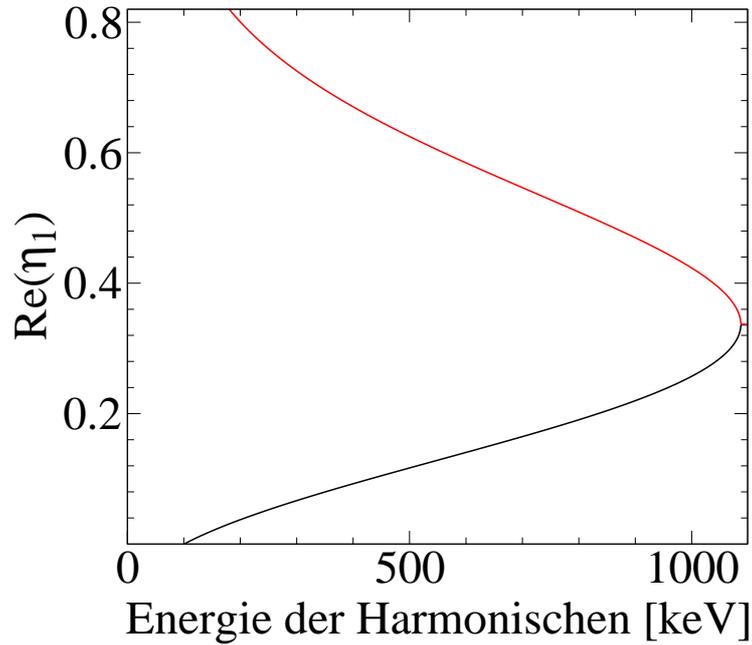


Abbildung 7.6: Abhängigkeit der Rekombinationsphase von der Harmonischen Energie. Das treibende Laserfeld hat ein elektrisches Feld von  $E_0 = 88$  a.u.. Die Zeitdauer zwischen den Pulsen der APT's beträgt 0.9 fs.

bei einer Harmonischen Energie  $n_0$  von 1 MeV, ergibt sich für den Puls ein elektrisches Feld [103]

$$E_{atto}(\eta) \sim \sum_{n_0-2\Delta n}^{n_0+2\Delta n} \Re \{g(n)M_n \exp(in\eta)\} \quad (7.8)$$

mit einer FWHM von 0.9 as (siehe Abb. 7.7). Solche kurzen Pulse könnten in der zeitaufgelösten Kernspektroskopie Verwendung finden, wobei sie allerdings eher schwach sind. Benutzt man eine Wechselwirkungslänge von 10 cm, einen Wirkungsquerschnitt von 10 mm<sup>2</sup> und eine atomare Dichte von 10<sup>16</sup> cm<sup>-3</sup> ergibt sich, dass sich nur einige wenige Photonen in einem Puls befinden. Durch die Kürze der Pulse folgt allerdings ein durchaus großer spektraler Photonenfluss von 10<sup>20</sup> Photonen/s/mm<sup>2</sup>.

## 7.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde gezeigt, dass der HHG-Prozess bei einem atomaren System mittels zweier gegenläufiger APT's im stark-relativistischen Parameterbereich getrieben werden kann. Harmonische mit Energien von bis zu 10 MeV können bei Raten hergestellt werden,

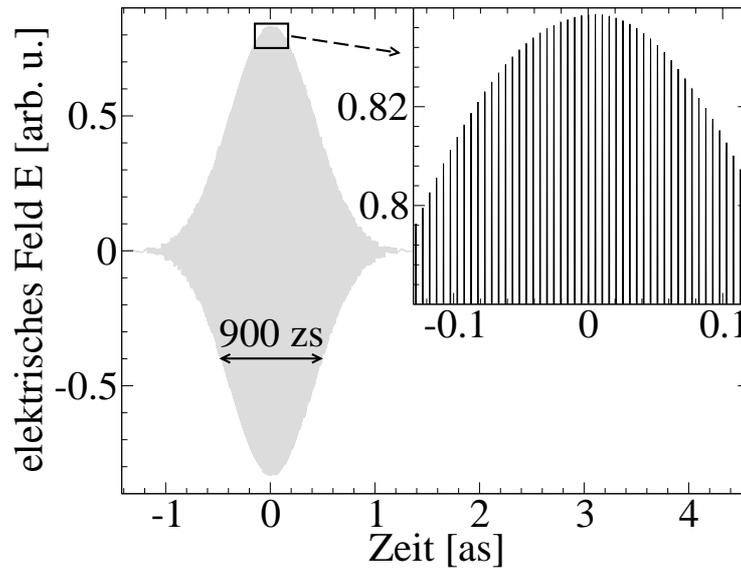


Abbildung 7.7: Zeitabhängigkeit des durch ein Gauss-Fenster bei 1000 keV und einer Breite von 4 keV generierten Pulses. Das treibende Laserfeld hat ein elektrisches Feld von  $E_0 = 88 \text{ a.u.}$ . Die Zeitdauer zwischen den Pulsen der APT's beträgt 0.9 fs.

die an die Ergebnisse in der Dipolnäherung, also ohne Berücksichtigung des störenden Lasermagnetfeldes, heranreichen. Weiterhin konnten für die Effizienz des Prozesses optimale Repetitionsraten der APT's ermittelt werden. Außerdem wurde gezeigt, dass der HHG-Prozess nur in Raumbereichen effizient stattfindet, in denen das Elektron auf seinem Weg im Kontinuum immer nur einen der beiden APT's spürt. Hieraus folgt dann, dass die Anwendung einer stehenden Welle zur Erzeugung höherer Harmonischer in diesem Parameterbereich scheitert und nur das hier besprochene Szenario Erfolg verspricht. Die Erzeugung solcher APT's mit ihren hohen Intensitäten und den kurzen Pulsdauern ist anspruchsvoll, erscheint aber durch Fortschritte auf dem Gebiet der Wechselwirkung von starken Laserfeldern mit überdichten Plasmen in naher Zukunft möglich zu sein [98, 99]. Speziell die geringen Anforderungen an die Pulsform, stellen einen Vorteil gegenüber der Methode der maßgeschneiderten Pulse dar. Weiterhin wurde die Produktion von ultrakurzen Laserpulsen im Zeptosekunden-Bereich mittels der in diesem Kapitel erzeugten HHG-Strahlung theoretisch belegt.



## 8 HHG in einem starken Laser und einem Attosekunden-Pulszug

Mit den neuesten experimentellen Techniken, basierend auf dem HHG-Prozess, lassen sich Attosekunden-Pulse mit extrem ultravioletten (XUV-) Frequenzen herstellen, deren Pulsdauern im Größenordnungsbereich von 100 as liegen [10]. Indem solche Pulse in Form von Pulszügen mit einem konventionellen Laserfeld mit einer Frequenz im infraroten (IR-) Bereich überlagert werden und mit dem Gesamtfeld der Ionisations-Rekollisionsprozess getrieben wird, können sowohl HHG als auch ATI im nicht-relativistischen Parameterbereich beeinflusst werden [104]. So erhöhen die Attosekunden-Pulse bei Ankunft am atomaren System die Ionisationswahrscheinlichkeit über einen Einphotonen-Prozess signifikant und legen die Ionisationsphase fest. Das IR-Feld hingegen dominiert dann die weitere Propagation des ionisierten Elektrons im Kontinuum. Durch Veränderung der Phasenbeziehung zwischen dem Attosekunden-Pulszug und dem IR-Feld können dann z. B. die Prozessraten und maximalen Energien bei HHG oder ATI kontrolliert werden.

Im relativistischen Parameterbereich ist es nun ebenso denkbar, dass eine geeignete Überlagerung eines Attosekunden-Pulszuges (APT's) mit einem konventionellen Laserfeld den Ionisations-Rekollisionsprozess deutlich verändert und die Rückkehr des aktiven Elektrons zum atomaren Rumpf möglich macht. Hierzu sollte der APT allerdings nicht nur die Ionisationsphase festlegen, sondern zusätzlich dem Elektron beim Ionisationsprozess einen Impuls induzieren, der den folgenden Magnetfelddrift im IR-Feld kompensieren kann. Das durch den Einphotonen-Prozess freigesetzte Elektron besitzt eine gewisse Ausgangsenergie:

$$\varepsilon_0 = \omega_X - I_p, \quad (8.1)$$

die durch die XUV-Photonenenergie  $\omega_X$  und die Ionisierungsenergie  $I_p$  festgelegt ist. Sind nun die beiden Felder gekreuzt angeordnet, kann die Polarisationsrichtung des APT's in Propagationsrichtung des IR-Feldes zeigen und der Anfangsimpuls, hervorgerufen durch den APT, dem Laserdrift entgegenwirken (siehe Abb. 8.1). Eine vollständige Kompensation sollte auftreten, wenn die Anfangsenergie von der Größenordnung der Driftenergie  $\varepsilon_D$  ist, die über den relativistischen Feldstärkeparameter  $\xi$  abgeschätzt werden kann [15, 83]:

$$\varepsilon_D \sim \xi^4 c^2 \quad (8.2)$$

mit der Lichtgeschwindigkeit  $c$ .

Im Folgenden soll nun der relativistische Ionisations-Rekollisionsprozess getrieben von einem IR-Laserfeld gekreuzt mit einem APT betrachtet werden. Als Indikator werden HHG-Raten in der SFA für den moderat-relativistischen Parameterbereich berechnet und es kann eine signifikante Erhöhung der Effizienz des Prozesses durch eine Miteinbeziehung des APT's im Vergleich zum Fall ohne festgestellt werden.

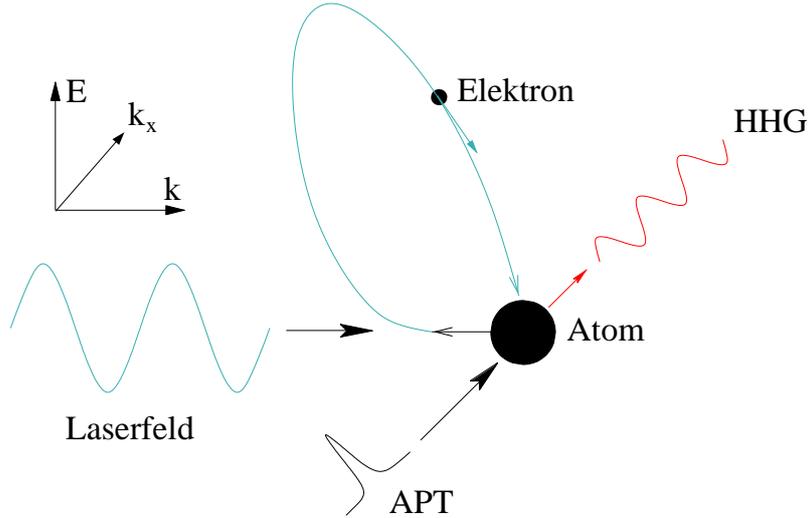


Abbildung 8.1: Schema des HHG-Prozesses bei einem atomaren System in einem gekreuzten System von einem IR-Laserfeld und einem APT, wobei letzterer den Prozess über die Ionisation startet.  $\mathbf{E}$  und  $\mathbf{k}$  sind die IR-Laserpolarisations- bzw. Laserpropagationsrichtung,  $\mathbf{k}_x$  ist die Propagationsrichtung des APT's.

## 8.1 Theorie

Wir betrachten die Wechselwirkung eines atomaren Systems mit einer Überlagerung von einem IR-Laserfeld mit einem APT. Das in  $z$ -Richtung propagierende Laserfeld sei über sein Vektorpotenzial  $\mathbf{A}(\eta) = \mathbf{e}_x E_0 / (\omega c) \cos(\eta)$  definiert, mit seiner Phase  $\eta = \omega t - z/c$ , der Amplitude des dazugehörigen elektrischen Feldes  $E_0$ , der Kreisfrequenz  $\omega$ , den Raum-Zeit-Koordinaten  $\mathbf{x} = (ct, x, y, z)$  und dem Einheitsvektor in Polarisationsrichtung  $\mathbf{e}_x$ . Der APT bestehe aus gaussförmigen Pulsen, die in  $y$ -Richtung propagieren und ein elektrisches Feld  $\mathbf{E}_X(y, t) = \mathbf{e}_z E_{X0} g(y, t) \sin(\omega_X(t - y/c))$  besitzen, mit dem Einheitsvektor  $\mathbf{e}_z$  in Polarisationsrichtung, der maximalen elektrischen Feldstärke  $E_{X0}$ , seiner Kreisfrequenz  $\omega_X$  und der gaussförmigen Pulsfunktion  $g(y, t) = \exp(-2[(t - y/c - t_0)/\tau]^2)$ , wobei  $t_0$  den

Zeitunterschied zwischen IR-Feld und APT am Ort des atomaren Systems im Ursprung und  $\tau$  die Breite des Pulses darstellt. Die Wiederholungsrate der AP's sei doppelt so groß wie die IR-Laserfrequenz.

Ausgangspunkt der Beschreibung ist wiederum die Klein-Gordon-Gleichung des atomaren Systems in der Single-Active-Electron-Näherung im IR-Laserfeld und dem APT in der Strahlungseichung:

$$(\partial^\mu \partial_\mu + c^2) \Psi(\mathbf{x}) = (V_L + V_X + V_A + V_H) \Psi(\mathbf{x}) \quad (8.3)$$

mit dem Elektron-Ion-Wechselwirkungsoperator

$$V_A = -2iV/c^2 \partial_t + V^2/c^2, \quad (8.4)$$

wobei  $V$  das atomare Potenzial darstellt, dem Elektron-Laserfeld-Wechselwirkungsoperator

$$V_L = 2i\mathbf{A}(\eta) \cdot \nabla/c - \mathbf{A}(\eta)^2/c^2, \quad (8.5)$$

dem Elektron-APT-Wechselwirkungsoperator

$$V_X = 2i\mathbf{A}_X(\eta) \cdot \nabla/c - \mathbf{A}_X(\eta)^2/c^2 \quad (8.6)$$

und dem Wechselwirkungsoperator zwischen dem Elektron und den erzeugten Harmonischen

$$V_H(\mathbf{x}) = -2 \langle 1_H | \mathbf{A}_H(\mathbf{x})/c \cdot (\hat{\mathbf{p}} + \mathbf{A}_g(\eta)/c) | 0_H \rangle, \quad (8.7)$$

wobei  $\mathbf{A}_H(\mathbf{x}) = c\sqrt{2\pi/\omega_H} \hat{\mathbf{e}}_H^* b^\dagger \exp(i\omega_H t - i\mathbf{k}_H \cdot \mathbf{r})$  das Vektorpotenzial des harmonischen Feldes in zweiter Quantisierung, mit dem Einheitsvektor in Polarisationsrichtung  $\hat{\mathbf{e}}_H$  und dem harmonischen Photon-Erzeugungoperator  $b^\dagger$ , ist.  $|l_H\rangle$  sind die Zustände des harmonischen Feldes mit der Photonenbesetzungszahl  $l$  ( $l = 0, 1$ ),  $\hat{\mathbf{p}}$  der Impulsoperator und  $\mathbf{A}_g = \mathbf{A} + \mathbf{A}_X$ , wobei  $\mathbf{A}_X$  das Vektorpotenzial des APT's ist.  $\omega_H$  ist die Frequenz der Harmonischen und  $\mathbf{k}_H$  ihr Wellenvektor.

Die HHG-Prozess-Amplitude in der SFA ist über Verwendung von Gl. (3.34) in Kapitel 3 durch folgenden Ausdruck (in atomaren Einheiten) gegeben:

$$M_n = -i \int d^4x' \int d^4x'' \{ \Phi(\mathbf{x}')^* V_H(\mathbf{x}') G_L^V(\mathbf{x}', \mathbf{x}'') [\mathbf{r}'' \cdot (\mathbf{E} + \mathbf{E}_X)(\mathbf{x}'')] \Phi(\mathbf{x}'') \}, \quad (8.8)$$

mit  $\mathbf{E} = -\partial_t \mathbf{A}/c$ . Physikalisch kann Gleichung (8.8) durch zwei unterschiedliche Ionisationsprozesse interpretiert werden. Zum einen kann der IR-Laser über eine Tunnelionisation den HHG-Prozess initiieren (entspricht dem Term mit  $\mathbf{E}$ ). Zum anderen kann der hochfrequente Attosekunden-Puls über einen Einphotonenübergang das Elektron freisetzen (entspricht dem Term mit  $\mathbf{E}_X$ ). Die weitere Propagation mit anschließender Rekombination

## 8 HHG in einem starken Laser und einem Attosekunden-Pulszug

wird dann wieder in beiden Fällen vom IR-Laserfeld dominiert. Hierbei wurde ausgenutzt, dass für den APT die Dipolnäherung anwendbar ist:  $E_{X0}/(\omega_X c) \ll 1$ ,  $a_B \ll c/\omega_X$  mit dem klassischen Radius  $a_B$  des Elektrons im Atom. Außerdem kann mittels einer klassischen Abschätzung gezeigt werden, dass die Bewegung des ionisierten Elektrons im Kontinuum nur durch das IR-Laserfeld bestimmt wird und somit die Green-Funktion der Klein-Gordon-Gleichung im gesamten Feld durch die Klein-Gordon-Volkov-Green-Funktion im IR-Laserfeld  $G_L^V(x', x'')$  [24] approximiert werden kann. Weiterhin sei  $\Phi(x)$  die Grundzustandswellenfunktion, die ein Eigenzustand des Energieoperators in der Strahlungseichung ist [96] (siehe auch Kapitel 3).

Die differentielle Ionisationsrate der  $n$ -ten Harmonischen ist dann wiederum gegeben durch:

$$\frac{dw_n}{d\Omega} = n \left(\frac{\omega}{c}\right)^3 |M_n|^2, \quad (8.9)$$

wobei die HHG-Amplitude für die  $n$ -te Harmonische bezüglich des APT's weiter umgeschrieben werden kann:

$$M_{X,n} = \int_{-\pi}^{\pi} d\eta' \int_{-\infty}^{\eta'} d\eta'' \int d^3\mathbf{p} \tilde{m}^H(\mathbf{p}, \eta', \eta'') \exp(-i(S(\mathbf{p}, \eta', \eta'') + \omega_X \eta''/\omega + n\eta')) \quad (8.10)$$

mit dem Matrixelement

$$\begin{aligned} \tilde{m}_X^H(\mathbf{p}, \eta', \eta'') &= - \frac{c^2(p_x + A(\eta')/c)}{(2\pi)^{3/2} \varepsilon_{\mathbf{p}} \omega^2} \left\langle 0 \left| \mathbf{p} + \frac{\mathbf{A}(\eta')}{c} - \frac{\mathbf{k}}{\omega} (\varepsilon_{\mathbf{p}} + I_p - c^2) \right. \right\rangle \\ &\times \left\langle \mathbf{p} + \frac{\mathbf{A}(\eta'')}{c} - \frac{\mathbf{k}}{\omega} (\varepsilon_{\mathbf{p}} + I_p - c^2) \left| \mathbf{r}'' \cdot \mathbf{E}_X \right| 0 \right\rangle. \end{aligned} \quad (8.11)$$

Im Folgenden soll nun untersucht werden, ob durch eine geeignete Wahl des APT's der im relativistischen Parameterbereich unterdrückte HHG-Prozess mit dem IR-Laserfeld alleine, signifikant verstärkt werden kann.

Hierzu betrachten wir die klassischen Bewegungsgleichungen im IR-Laserfeld und berechnen für gegebene Rekombinationsenergien die Abhängigkeit zwischen der Startenergie und dem Startzeitpunkt (siehe Abb. 8.2). Man erwartet für diejenigen Trajektorien eine signifikante Wahrscheinlichkeit, die zu einem Zeitpunkt starten, an denen sich der Attosekunden-Puls am Ort des atomaren Systems befindet. So erkennt man in Abb. 8.2, z. B. dass die Harmonische mit 41 keV verstärkt wird, wenn der Attosekunden-Puls einen Phasenverzug von ca. 1.2 rad. besitzt und die Anfangsenergie  $\omega_X - I_p$  bei ca. 3.5 a.u. oder höher liegt. Diese Werte für die Parameter des APT's können nun in der folgenden quantenmechanischen Berechnung als Ausgangspunkt zur Ermittlung der optimalen Parameter benutzt werden. Wie sich herausstellen wird, sagt diese klassische Analyse des Prozesses letztere bereits gut vorher.

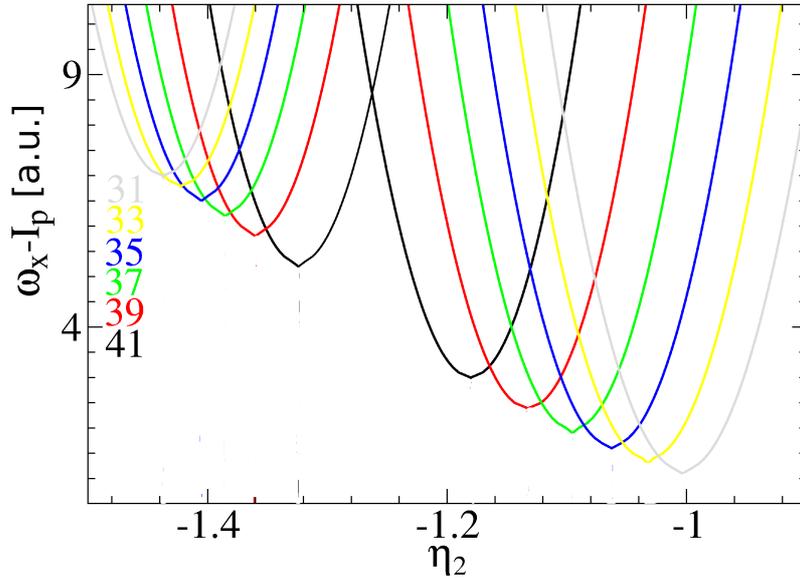


Abbildung 8.2: Abhängigkeit der Anfangsenergie  $\varepsilon_0 = \omega_X - I_p$  aufgetragen gegen die Ionisationsphase  $\eta_2$  für Rekombinationsenergien von 31, 33, 35, 37, 39 und 41 keV in einem sinusoidalen Laserfeld mit  $U_p = 500$  a.u. und einer Kreisfrequenz von  $\omega = 0.05$  a.u..

Das Integral in Gl. (8.11) wird wieder mit Hilfe der Sattelpunktmethode berechnet. Diese liefert für den Fall, dass das IR-Feld das Elektron ionisiert, die aus Gl. (4.47) in Kapitel 4 bekannten Sattelpunktgleichungen. Bei der Ionisation über den APT ergibt sich auf Grund der Oszillation innerhalb des kurzen Pulses eine Änderung für die Sattelpunktgleichung, die die Energierhaltung bei der Ionisation festlegt:

$$\varepsilon_{\mathbf{p}}(\eta'') - c^2 = -I_p + \omega_X. \quad (8.12)$$

Diese drückt aus, dass das Elektron durch ein hochenergetisches Photon des APT's ionisiert wird und deshalb zusätzlich dessen Energie absorbiert. Die Idee ist nun, dass diese Energie den Drift des ionisierten Elektrons in IR-Laserpropagationsrichtung kompensiert und so die Rückkehr zum atomaren Rumpf ermöglicht. Es ist anschaulich klar, dass dies der Fall ist, wenn die Polarisationsrichtung des APT's, die für die nicht-relativistische Photoionisation ( $\omega_X \ll c^2$ ) in Emissionsrichtung des Elektrons bei der Ionisation zeigt, entgegen der Propagationsrichtung des Lasers angeordnet ist.

## 8.2 Spektren

In Abb. 8.3 wird über Gl. (8.9) das HHG-Spektrum eines atomaren Systems mit einem Ionisationspotenzial von  $I_p = 5.5$  a.u. in einem moderat-relativistischen Laserfeld ( $\xi \approx 0.33$ ) und einem APT mit experimentell realisierbaren Parametern, d.h. einer maximale Feldstärke von 0.01 a.u., einer Pulsdauer von 100 as, einem Phasenverzug von 1.2 rad. sowie einer Trägerfrequenz von  $\omega_X = 9$  a.u. berechnet. Für letztere wurde der minimale Wert angenommen, der immer noch den klassischen Bedingungen für die Driftkompensation aus dem vorhergehenden Paragraphen genügt. Es werden zwei Szenarien betrachtet: 1) Ionisation mittels dem APT mit anschließender Propagation im Laserfeld und HHG-Emission in APT-Propagationsrichtung, 2) Ionisation und Propagation durch das Laserfeld und HHG-Emission in Laserpropagationsrichtung. Es werden unterschiedliche Näherungen angewendet. Im ersten Fall wird ein APT mit gaussförmigen Pulsen wie oben dargestellt oder mit Delta-Pulsen der Form  $E_X(t) = E_{X0}\tau\delta(t - t_0)$  wie in Ref. [104] betrachtet. Der zweite Fall wird sowohl voll-relativistisch über die Klein-Gordon-Gleichung als auch in der Dipolnäherung beschrieben. Letztere dient als Referenz für die optimal erreichbaren Prozessraten. Wie man erkennt, ist der HHG-Prozess, der nur von dem IR-Feld allein getrieben wird, stark unterdrückt, für Energien von 40 keV nahezu 6 Größenordnungen. Er kann deshalb nicht zur Erzeugung kohärenter Strahlung mit diesen Energien benutzt werden. Die zusätzliche Überlagerung eines APT's mit geeigneten Parametern führt dagegen im Vergleich zu einer Erhöhung der Raten um bis zu 5 Größenordnungen und ermöglicht so die Erzeugung höherer Harmonischer mit signifikanten Intensitäten und Energien von 40 keV. Die Beschreibung über Delta-Pulse ist in diesem Parameterbereich nicht gerechtfertigt, da die Bedingung  $\omega_X\tau \ll 1$  [105] verletzt ist, führt allerdings zu ähnlichen Ergebnissen wie die korrekte Berechnung der Prozessrate mittels gaussförmiger Pulse. Es sei bemerkt, dass die unterschiedlichen HHG-Emissionsrichtungen in den Fällen 1) und 2) sicherstellen, dass die von unterschiedlichen Atomen emittierte Strahlung in einer festen Phasenbeziehung steht, die konstruktive Interferenz erlaubt.

Im Folgenden wollen wir die Stabilität der Erhöhung der HHG-Raten durch die zusätzliche Verwendung eines APT's bei Veränderung seiner Parameter untersuchen. Beginnen wollen wir mit der Variation des Phasenverzugs des APT's bezüglich des IR-Feldes in Abb. 8.4a). Man erkennt, dass die HHG-Raten bei einer Variation von 0.15 rad. in der Phase nahezu konstant bleiben, während eine Variation von 0.3 rad. zu einer starken Verringerung führt. Dies kann mit der Pulslänge der AP's  $\omega\tau = 0.2$  begründet werden. Eine Variation des Phasenverzuges der von dieser Größenordnung oder kleiner ist, verändert das elektrische Feld des APT's zum Startzeitpunkt der Trajektorien mit hohen Endenergien und somit auch ihre Wahrscheinlichkeit nur wenig. Für noch größere Phasenverzüge ist die Ionisationswahrscheinlichkeit für die wichtigen Trajektorien wegen des geringeren elektrischen Feldes zu diesem Zeitpunkt dagegen wesentlich geringer und der HHG-Prozess

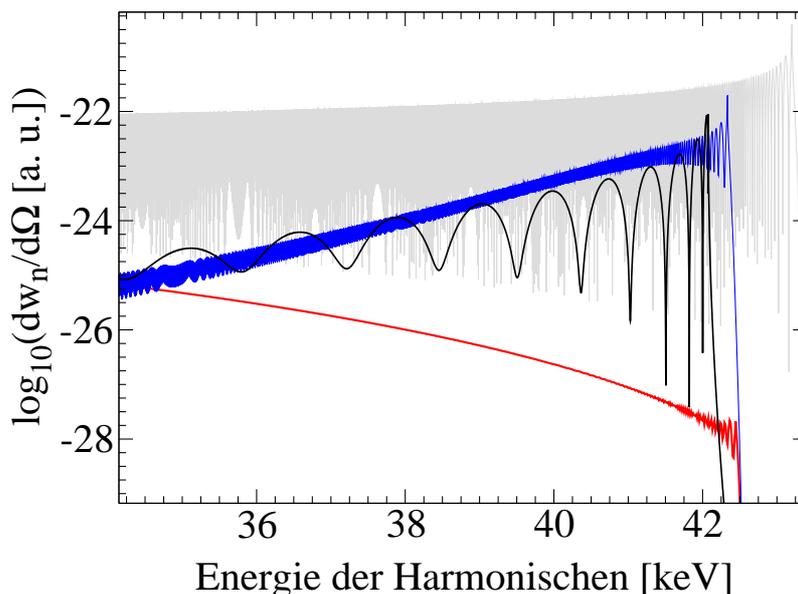


Abbildung 8.3: HHG-Spektrum über  $dw_n/d\Omega$  in Gl. (8.8) eines atomaren Systems mit Ionisationspotenzial  $I_p = 5.5$  a.u. ( $\text{Be}^{2+}$ ), in einem IR-Laserfeld mit einer maximalen elektrischen Feldstärke von  $E_0 = 2.2$  a.u. und einer Kreisfrequenz  $\omega = 0.05$  a.u.: (grau) in der Dipolnäherung, (rot) voll-relativistisch über die Klein-Gordon-Gleichung; und zusätzlich in einem APT mit maximaler elektrischer Feldstärke  $E_{X0} = 0.01$  a.u., einer Trägerfrequenz  $\omega_X = 9$  a.u., einem Phasenverzug  $-1.2$  rad. und einer Pulslänge  $\tau = 4$  a.u.: (schwarz) mit gaussförmigen Pulsen, (blau) mit Delta-Pulsen.

ist unterdrückt.

Des Weiteren variieren wir die Trägerfrequenz  $\omega_X$  des APT's für den ermittelten optimalen Phasenverzug zwischen den Feldern (Abb. 8.4b)). Man erkennt, dass die Raten für zu geringe Trägerfrequenzen bezüglich Gl. (8.1) klein sind. Der APT induziert dem Elektron bei der Ionisation also eine zu geringe Anfangsenergie, die den darauffolgenden relativistischen Laserdrift nicht kompensieren kann. Für größere Werte von  $\omega_X$  von etwa 9 a.u. ist dies nicht mehr der Fall und der HHG-Prozess kann mit signifikanter Wahrscheinlichkeit auch für Cutoff-Harmonische ablaufen. Dies bestätigt ebenfalls die klassische Analyse in Abb. 8.2. Sie sagt weiterhin voraus, dass bei steigender Trägerfrequenz erst zwei dann vier klassisch mögliche Trajektorien zum Spektrum beitragen. Auch diese Tatsache kann an den unterschiedlichen Oszillationsmustern der Spektren abgelesen werden. Während die niederfrequente Oszillation auf ein Paar sehr ähnlicher Trajektorien zurückzuführen ist, ergibt die Überlagerung mit einem zweiten Paar eine hochfrequente Oszillation (siehe auch Abb. 8.5

## 8 HHG in einem starken Laser und einem Attosekunden-Pulszug

mit geeigneten Parametern). Außerdem erkennt man einen Abfall der Raten für höhere Trägerfrequenzen. Dies ist durch das, die Ionisation beschreibende Dipol-Matrixelement bezüglich des APT's, begründet. Dieses wird mit steigenden Startenergien, also größeren Trägerfrequenzen geringer. Unter Berücksichtigung der angegebenen Charakteristika lässt sich dann eine optimale Trägerfrequenz von 9 a.u. ermitteln, wobei eine Erhöhung von einigen a.u. nur geringe Auswirkungen auf die Effizienz des Prozesses hat.

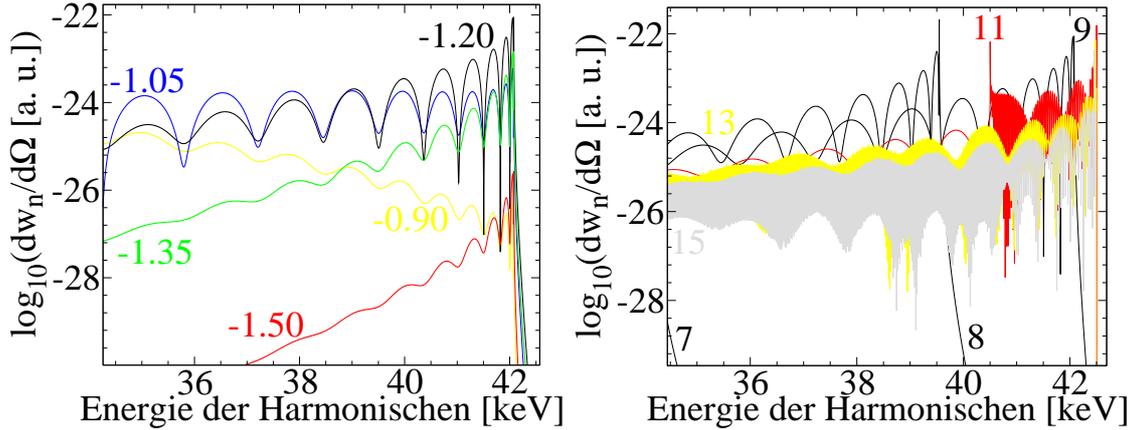


Abbildung 8.4: HHG-Spektrum über  $dw_n/d\Omega$  in Gl. (8.8) eines atomaren Systems mit Ionisationspotenzial  $I_p = 5.5$  a.u. in einem IR-Laserfeld mit maximaler Feldstärke  $E_0 = 2.2$  a.u. und Kreisfrequenz  $\omega = 0.05$  a.u. und einem APT mit maximaler elektrischer Feldstärke  $E_{X0} = 0.01$  a.u. und einer Pulslänge  $\tau = 4$  a.u.. a) Mit einer Trägerfrequenz von  $\omega_X = 9$  a.u. und unterschiedlichen Phasenverzügen von  $-1.50$ ,  $-1.35$ ,  $-1.20$ ,  $-1.05$  bzw.  $-0.90$  rad. zwischen den Feldern. b) Mit einem Phasenverzug von  $-1.20$  rad. zwischen den Feldern und unterschiedlichen Trägerfrequenzen von 7, 8, 9, 11, 13 bzw. 15 a.u..

Das hohe Interesse am HHG-Prozess ist hauptsächlich damit begründet, dass die emittierte Strahlung kohärent überlagert werden kann und so die Erzeugung von ultrakurzen Laserpulsen möglich wird. Im Folgenden soll nun auch der hier betrachtete Ionisations-Rekollisionsprozess unter diesem Gesichtspunkt untersucht werden. Um möglichst intensive Laserpulse erlangen zu können, betrachten wir das Spektrum mit den oben ermittelten optimalen Parametern. Analog zum vorangehenden Kapitel kann die Abhängigkeit der Rekombinationsphase von der Energie der Harmonischen benutzt werden um eine ideale Fensterbreite von ca. 150 eV abzuschätzen. Benutzt man dann ein gaussförmiges Fenster mit dieser Fensterbreite nahe am Cutoff, können Laserpulse mit Pulsdauern von ca. 10 as hergestellt werden. Es sei bemerkt, dass im Gegensatz zum Fall mit zwei gegenläufigen

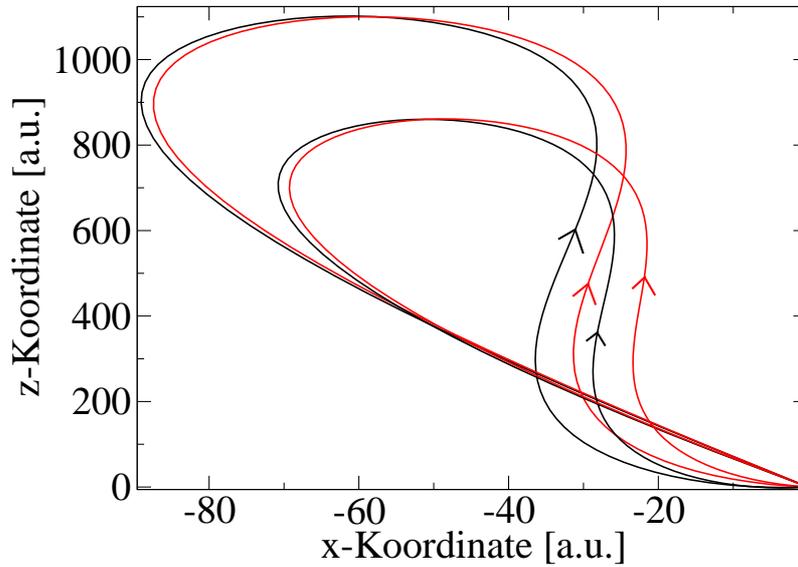


Abbildung 8.5: Es sind die vier Bahnen im Laserfeld mit  $E_0=2.2$  a.u. und  $\omega = 0.05$  a.u. mit einer Endenergie von  $3U_p$  dargestellt. Die Ionisation erfolgt über den APT mit einer Trägerfrequenz von 15 a.u. und den weiteren Parametern wie in Abb. 8.4b).

APT's hier zwei Trajektorien zum Spektrum beitragen, was prinzipiell negative Auswirkungen auf die Pulslänge und -form hat. Wegen der sehr großen Ähnlichkeit der beiden Bahnen ist dieser Effekt allerdings nicht signifikant (siehe Abb. 8.5).

### 8.3 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde der relativistische Ionisations-Rekollisionsprozess an Hand von HHG betrachtet. Als treibendes Laserfeld wurde eine gekreuzte Überlagerung eines konventionellen IR-Laserfeldes mit einem Attosekunden-Pulszug benutzt. Über eine klassische Analyse der Dynamik des ionisierten Elektrons im Gesamtfeld konnten die für die Effizienz des Prozesses optimalen Parameter des APT's angegeben und über die SFA HHG-Spektren im moderat-relativistischen Parameterbereich ermittelt werden. Im Gegensatz zur konventionellen Konfiguration nur mit sinusoidalen Laserfeldern sind die Prozessraten signifikant erhöht und die Erzeugung von kohärenter Strahlung mit Energien von bis zu 50 keV in einem schon heute verwirklichtbaren Lasersystem wird möglich. Durch eine Überlagerung von Teilen des Spektrums wird die Erzeugung von Attosekunden-Pulsen möglich. Über den HHG-Prozess ist dann also eine Transformation des einlaufenden APT's in einen auslaufenden APT möglich, wobei sich die Pulsdauern um einen Faktor 10 verringern und die

8 HHG in einem starken Laser und einem Attosekunden-Pulszug

Trägerfrequenzen um einen Faktor 100 erhöhen.

# Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde die Ionisation eines atomaren Systems mit anschließender Rekollision des freigesetzten Elektrons im relativistischen Parameterbereich theoretisch untersucht. Speziell die damit verbundenen Folgeprozesse, die Above-Threshold-Ionisation (ATI) einschließlich Rückstreuung und die Erzeugung höherer Harmonischer (HHG), zurückführbar auf die Rekombination des Elektrons mit dem atomaren Rumpf, standen im Mittelpunkt des Interesses.

Die Basis der analytischen Beschreibung der Prozesse war die Strong-Field-Approximation (SFA). Sie wurde in ihrer standardmäßigen Form in Kapitel 1 im nicht-relativistischen Parameterbereich vorgestellt. Damit wurde es möglich Prozessraten für die nicht-relativistische Above-Threshold-Ionisation sowie die Erzeugung höherer Harmonischer anzugeben.

In Kapitel 2 wurde der schwach-relativistische Parameterbereich untersucht. Auf Grund der höheren Intensitäten konnte die typische Geschwindigkeit des aktiven Elektrons gegenüber der Lichtgeschwindigkeit nicht mehr vernachlässigt werden und die die Dynamik der Prozesse beschreibende Schrödinger-Gleichung musste durch relativistische Korrekturterme ergänzt werden. Über eine klassische Analyse der Dynamik konnte die Signifikanz der unterschiedlichen relativistischen Effekte für den betrachteten Parameterbereich abgeschätzt werden und die Korrekturen auf Grund des Lasermagnetfeldes sowie der relativistischen Massenverschiebung als die dominierenden identifiziert werden. Spin-Effekte oder die Zitterbewegung spielen dagegen keine Rolle. Die Schrödinger-Gleichung mit den entscheidenden Korrekturtermen konnte in der SFA gelöst werden, wobei die für nicht-relativistische Ionisationsprozesse übliche und durch die Literatur gerechtfertigte Längeneichung benutzt wurde. So ließen sich dann die Prozessraten und damit die Energiespektren sowohl für ATI als auch für HHG angeben. Der Hauptunterschied zu den nicht-relativistischen Spektren ist eine Absenkung des für Rekollisionsprozesse typischen Plateaus. Diese drückt eine Verringerung der Rückkehrwahrscheinlichkeit des freien Elektrons zum atomaren Rumpf aus, die durch den von der Lorentz-Kraft des Lasermagnetfeldes induzierten Elektronendrift in Propagationsrichtung begründet ist. Auf Grund dieses Drifts ist es nur noch Teilen des Wellenpakets des Elektrons möglich zum atomaren Rumpf zurückzukehren, während der Schwerpunkt und somit der Hauptanteil

## ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK

des Wellenpakets ihn verfehlt. Weiterhin erkennt man an den Spektren, dass die maximal erreichbaren Energien der emittierten Elektronen bzw. Photonen gegenüber der nicht-relativistischen Berechnung leicht verschoben sind, was auf den gewachsenen Einfluss des Lasermagnetfeldes sowie auf die relativistische Massenverschiebung zurückgeführt werden konnte.

Mit dem Ziel einer voll-relativistischen Beschreibung des Ionisations-Rekollisionsprozesses musste die SFA genauer untersucht werden. Da sie eine nicht-eichinvariante Theorie ist, also für unterschiedliche Eichungen unterschiedliche Ergebnisse liefert, stellte sich die bisher nur im nicht-relativistischen Parameterbereich beantwortete Frage: *Welche Eichung ist für die Berechnung relativistischer Ionisationsprozesse in der SFA bei Atomen die geeignete?* Hierzu wurde in Kapitel 3 zuerst die nicht-relativistische SFA so modifiziert, dass sie eichinvariant wird, und dieser Formalismus auf die relativistische Beschreibung übertragen. Diese nun eichinvariante relativistische SFA stimmt mit der konventionellen SFA in der Göppert-Mayer-Eichung überein und beantwortet die oben gestellte Frage.

Basierend auf dieser eichinvarianten SFA konnte dann in Kapitel 4 sowohl der ATI- als auch der HHG-Prozess voll-relativistisch beschrieben werden. Es wurden die Energie- sowie Winkelspektren der emittierten Elektronen bzw. Photonen untersucht. Wie schon in Kapitel 2 dominierte der Einfluss des Lasermagnetfeldes alle Veränderungen der Spektren gegenüber der nicht-relativistischen Beschreibung. Speziell die Verringerung der Rekollisionswahrscheinlichkeit des freien Elektrons mit dem atomaren Rumpf trat noch stärker zu Tage als im schwach-relativistischen Parameterbereich und machte sowohl die Rückstreuung bei ATI als auch HHG unmöglich. Da letzterer Prozess als Quelle kohärenter hochenergetischer Strahlung dient, wurde das Interesse im weiteren Teil der Arbeit auf die Frage gerichtet, wie der Rekollisionsprozess auch im relativistischen Parameterbereich ermöglicht werden kann und so die erwünschten Folgeprozesse in einem neuen, höheren Energiebereich auszulösen vermag. Die Beantwortung dieser Frage war gleichzeitig das Ziel dieser Abhandlung.

In Kapitel 5 wurden die schon bestehenden und in der Literatur beschriebenen Vorschläge, wie der relativistische Drift des Elektrons im Kontinuum verringert und so die Rückkehrwahrscheinlichkeit signifikant erhöht werden kann, vorgestellt. Sie beruhen jeweils auf veränderten Eigenschaften des verwendeten atomaren Systems bzw. der Konfiguration des treibenden Laserfeldes. Da all diese Vorschläge Nachteile besitzen, experimentell noch nicht realisiert wurden und zu erwarten ist, dass sie nur in eher moderat-relativistischen Parameterbereichen zum Erfolg führen, war die Präsentation weiterer Methoden gerechtfertigt und erwünscht.

Der erste neue Vorschlag beruhte auf der Veränderung der Form des Laserfeldes weg von konventionellen sinusförmigen Pulsen hin zu maßgeschneiderten (Kapitel 6). Über eine klassische Analyse konnte gezeigt werden, dass ein Attosekunden-Pulszug (APT), dessen Pulse die Form von Rechtecken haben, geeignet ist, den relativistischen Drift des Elektrons im Kontinuum stark zu reduzieren und so die Erzeugung höherer Harmonischer mit Energien bis zu einem 1 MeV zu ermöglichen. Weiterhin konnten die für die Rekollision optimalen Parameter des APT's bestimmt werden. Außerdem wurde die Stabilität des HHG-Prozesses unter zufälligen Variationen der Pulsform des Lasers untersucht und Grenzen angegeben. Das Kapitel wurde abgeschlossen mit einer Diskussion über die experimentelle Realisierbarkeit des maßgeschneiderten APT's. Es stellte sich heraus, dass die Herstellung des APT's über die Wechselwirkung von sehr intensiven Lasern mit Plasmaoberflächen in naher Zukunft zwar schwierig, aber möglich sein sollte.

Um nun die experimentell anspruchsvolle Optimierung der Pulsform des APT's umgehen zu können, wurde in Kapitel 7 eine weitere Methode vorgestellt, die zwei gegenläufige, nicht weiter bearbeitete APT's verwendet, die den relativistischen Ionisations-Rekollisionsprozess bei Atomen treiben. Unter gewissen Anfangsbedingungen war es dann möglich, dass ein APT die Ionisation auslöst und das Elektron vom atomaren Rumpf weg trägt, während der zweite auf Grund seiner entgegengesetzten Propagationsrichtung den Drift kompensiert und das freie Elektron so effektiv mit dem atomaren Rumpf rekombinieren lässt. Mittels dieser Anordnung wurden Rekollisionsenergien von mehreren MeV möglich, die zur Erzeugung von höheren Harmonischen mit diesen Energien und nahezu optimalen Raten führten. Mittels einer kohärenten Überlagerung der emittierten Harmonischen konnten erstmalig ultrakurze  $\gamma$ -Pulse im Zeptosekunden-Bereich, die in der Gamma-Spektroskopie bei Kernen Verwendung finden könnten, theoretisch vorhergesagt werden.

Im dritten und letzten Vorschlag zur relativistischen Driftkompensation wurde der Ionisations-Rekollisionsprozess, getrieben von einer gekreuzten Anordnung eines Infrarot-Laserfeldes und einem XUV-APT's, untersucht (Kapitel 8). Die grundlegende Idee war in diesem Fall, dass das Elektron durch den APT über einen Einphotonenübergang ionisiert wird und so einen Anfangsimpuls erhält, der dem Drift, induziert durch das Lasermagnetfeld, entgegenwirkt und die Rückkehr des Elektrons zum atomaren Rumpf ermöglicht. HHG als Indikator des Ionisations-Rekollisionsprozesses konnte dann wieder zur Erzeugung kurzer Laserpulse im 10 as Bereich mit Energien von 40 keV benutzt werden. Im Gegensatz zu den zwei vorhergehenden Methoden ist diese Laserkonfiguration schon jetzt experimentell zugänglich.

Die grundlegenden neuen Ergebnisse dieser theoretischen Arbeit waren somit die Ent-

## ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK

wicklung einer eichinvarianten SFA, die die Ionisationsprozesse bei Atomen bis hin zum voll-relativistischen Parameterbereich konsistent beschreibt, und es ermöglichte den relativistischen Ionisations-Rekollisionsprozess analytisch zu untersuchen. Wie sich herausstellte ist letzterer, getrieben mit sinusförmigen Laserfeldern, sehr unwahrscheinlich und seine konventionelle Konfiguration verlangte Modifikationen. Es wurden deshalb drei neue Methoden vorgestellt, die in unterschiedlichen bis hin zu stark-relativistischen Parameterbereichen erfolgreich waren. Mit ihnen wurde dann die Erzeugung von hochenergetischer kohärenter Strahlung und ultrakurzen Pulsen realisierbar.

Es sollen nun noch kurz weitere mögliche Untersuchungen und offene Fragestellungen angesprochen werden, die mit dem Thema dieser Arbeit verknüpft sind. Dies ist sicherlich die Bestätigung der eichinvarianten SFA im relativistischen Parameterbereich. Dies könnte zum einen über eine numerische Lösung der, die Dynamik des Ionisationsprozesses bei Atomen beschreibenden quantenmechanischen Gleichungen, sprich der Klein-Gordon-Gleichung oder der Dirac-Gleichung, geschehen, zum anderen durch experimentelle Messung von Ionisationsraten für geeignete Parameter. Ebenso verlangen alle vorgestellten Methoden zur Driftkompensation eine experimentelle Umsetzung. Speziell der Vorschlag über zwei gegenläufige zirkular polarisierte Laserfelder den relativistischen Ionisations-Rekollisionsprozess zu ermöglichen, benötigt eine quantenmechanische Beschreibung. Weiterhin wäre die Untersuchung einer Kombination der unterschiedlichen Methoden, so z. B. einer Modifikation des atomaren Systems bei gleichzeitiger Veränderung des Laserfeldes, denkbar. Unter der Annahme, dass die Unterdrückung des relativistischen Drifts mittels zweier gegenläufiger APT's bis hin zu Energien von 10 MeV nahezu vollständig gelungen ist, ist der die Rekombinationswahrscheinlichkeit letzte begrenzende Faktor die Ausdehnung des Wellenpakets. Um diese zu reduzieren oder vielleicht sogar umzukehren, bestehen bisher experimentell nur schwer zu realisierende Vorschläge.

# A Atomare Einheiten

In dieser Arbeit werden, wenn nicht ausdrücklich anders ausgezeichnet, die atomaren Einheiten, *atomic units* (a.u.), verwendet. Dieses Einheitensystem ist so gewählt, das folgende physikalischen Konstanten als Grundeinheiten der Länge, Masse, Ladung und der Wirkung den Wert 1 annehmen:

$$\alpha_0 = m_e = e_0 = \hbar = 1. \quad (\text{A.1})$$

Hierbei bezeichnen  $\alpha_0$  den Bohrschen Radius,  $m_e$  ist die Masse des Elektrons,  $e_0$  die Ladung des Positrons und  $\hbar$  die um den Faktor  $2\pi$  reduzierte Planck-Konstante  $h$ . Für die in dieser Abhandlung auftretenden physikalischen Größen liefert die folgende Tabelle die Umrechnung:

physikalische Größe	Atomare Einheit [a.u.]	sonst übliche Einheit
Energie $\varepsilon$	1	27.2 eV
Dielektrizitätskonstante $4\pi\varepsilon_0$	1	$\frac{10^7}{c^2}$ Am/Vs
elektrische Feldstärke $E$	1	$5.14 \times 10^9$ V/cm
Intensität $I$	1	$6.44 \times 10^{15}$ W/cm <sup>2</sup>
Lichtgeschwindigkeit $c$	137	$3.00 \times 10^8$ m/s
Zeit $t$	1	$24.2 \times 10^{-18}$ s
Länge $\alpha_0$	1	$52.9 \times 10^{-12}$ m

Die Beziehung zwischen der Amplitude der elektrischen Feldstärke  $E_0$  eines linear polarisierten Laserfeldes, angegeben in atomaren Einheiten, und der Laserintensität  $I$  in W/cm<sup>2</sup>

## A Atomare Einheiten

wird ebenso oft benötigt und lautet:

$$I[\text{W}/\text{cm}^2] = 3.51 \times 10^{16} (E_0[\text{a.u.}])^2. \quad (\text{A.2})$$

Eine weitere nützliche Formel ist die Beziehung zwischen der Laserintensität  $I$  und der ponderomotiven Energie  $U_p$ :

$$U_p[\text{eV}] = 0.0934 I[\text{W}/\text{cm}^2] (\lambda[\text{m}])^2, \quad (\text{A.3})$$

wobei  $\lambda$  die Laserwellenlänge darstellt.

## B Die Sattelpunktmethode

Die in der SFA ermittelten Prozess-Amplituden  $M$  für ATI sowie HHG können durch  $n$ -dimensionale Integrale der Form

$$M = \int d^n \mathbf{x} g(\mathbf{x}) \exp(-i S(\mathbf{x})) \quad (\text{B.1})$$

angegeben werden, wobei über den ganzen  $n$ -dimensionalen Raum integriert wird.  $g$  stellt ein Matrixelement dar, dessen Abhängigkeit von der Integrationsvariablen  $\mathbf{x}$  im Vergleich zur schnell oszillierenden Funktion  $S(\mathbf{x})$  nur schwach ist. Eine analytische Berechnung dieser Integrale ist in den in dieser Arbeit betrachteten Fällen nicht möglich. Da die numerische Behandlung vor allem bei den mehrdimensionalen Integralen, die in Folge der Rekollision des ionisierten Elektrons auftreten, sehr anspruchsvoll ist, wenden wir die *Sattelpunktmethode* an [106]. Dies ist eine Näherung, die analytische Ausdrücke für das Integral in Gl. (B.1) liefert und in dem vorgegebenen adiabatischen Parameterbereich zufriedenstellende Ergebnisse liefert. Sie soll nun kurz heuristisch vorgestellt werden.

Wie schon erwähnt, variiert die Funktion im Exponenten und somit auch der Exponentialfaktor im Integranden von Gl. (B.1) sehr stark in der Integrationsvariablen. Es wird deshalb angenommen, dass die Hauptbeiträge zum Integral von Umgebungen der Extrempunkte der Funktion  $S$  im Exponenten stammen. Diese sogenannten Sattelpunkte  $SP = \mathbf{x}_0$  werden durch die Bedingung

$$\partial_{\mathbf{x}} S(\mathbf{x}_0) = 0 \quad (\text{B.2})$$

definiert. In der Umgebung der Sattelpunkte approximiert man  $S(\mathbf{x}) = S(\mathbf{x}_0) + \partial_{ij} S(\mathbf{x}_0)(x_i - x_{0,i})(x_j - x_{0,j})$  mit  $\mathbf{x} = (x_1, \dots, x_n)$ ,  $\mathbf{x}_0 = (x_{0,1}, \dots, x_{0,n})$ ,  $i, j \in \{1, \dots, n\}$ . Unter der Voraussetzung, dass sich  $g$  langsam verändert, kann dann in der Umgebung des Sattelpunktes  $g(\mathbf{x}) = g(\mathbf{x}_0)$  gesetzt werden. Hieraus folgt für Gl. (B.1)

$$M \approx \sum_{SP} g(\mathbf{x}_0) \exp(-i S(\mathbf{x}_0)) \int d^n \mathbf{x} \exp(-i \partial_{ij} S(\mathbf{x}_0)(x_i - x_{0,i})(x_j - x_{0,j})), \quad (\text{B.3})$$

wobei über alle Sattelpunkte  $SP$  von  $S$  summiert wurde. Da die Matrix  $(\partial_{ij} S(\mathbf{x}_0))$  symmetrisch ist, existiert eine Matrix  $A = (A_{ij})$  mit  $\partial_{ij} S(\mathbf{x}_0) = A_{ik} A_{jk}$ , wobei über  $k \in \{1, \dots, n\}$

## B Die Sattelpunktmethode

summiert wurde. Weiterhin gilt  $\det A_{ij} = (\det \partial_{ij} S(\mathbf{x}_0))^{1/2}$ . Mit der Integrationsvariablen-Transformation  $\mathbf{y} = A(\mathbf{x} - \mathbf{x}_0)$  ergibt sich dann für das Integral aus Gl. (B.3)

$$M \approx \sum_{SP} g(\mathbf{x}_0) \exp(-iS(\mathbf{x}_0)) / (\det \partial_{ij} S(\mathbf{x}_0))^{1/2} \int d^n \mathbf{y} \exp(-i y^2), \quad (\text{B.4})$$

wobei  $y = |\mathbf{y}|$  gilt. Das verbliebene Integral ist bekannt [107]. Als Endergebnis, das in den Berechnungen der Prozess-Amplituden benutzt wird, erhält man:

$$M \approx \sum_{SP} g(\mathbf{x}_0) \exp(-iS(\mathbf{x}_0)) \left( \frac{(2\pi i)^n}{\det \partial_{ij} S(\mathbf{x}_0)} \right)^{1/2}. \quad (\text{B.5})$$

# Literaturverzeichnis

- [1] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, and N. K. Rahman, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1127 (1979).
- [2] L. V. Keldysh, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **47**, 1945 (1964) [*Sov. Phys. JETP* **20**, 1307 (1965)].
- [3] P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993); K.C. Kulander *et al.*, *NATO Advanced Studies* **316**, 95 (1993).
- [4] P. H. Bucksbaum, M. Bashkansky, R. R. Freeman, T. J. McIlrath, and L. F. DiMauro, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 2590 (1986); G. G. Paulus, W. Nicklich, Huale Xu, P. Lambropoulos, and H. Walther, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2851 (1994).
- [5] S. Augst *et al.*, *J. Opt. Soc. Am. B* **8**, 858 (1991); B. Walker *et al.*, *Phys. Rev. A* **48**, R894 (1993).
- [6] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, and C. K. Rhodes, *J. Opt. Soc. Am. B* **4**, 595 (1987); M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray and C. Manus, *J. Phys. B* **21**, L31 (1988).
- [7] T. Brabec and F. Krausz, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545 (2000); A. L'Huillier, D. Descamps, A. Johansson, J. Norin, J. Mauritsson, and C.-G. Wahlström, *Eur. Phys. J. D* **26**, 91 (2003).
- [8] J. Seres, E. Seres, A. J. Verhoef, G. Tempea, C. Streli, P. Wobrauschek, V. Yakovlev, A. Scrinzi, C. Spielmann and F. Krausz, *Nature* **433**, 596 (2005).
- [9] Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovacev, R. Taïeb, B. Carre, H. G. Muller, P. Agostini, P. Salières, *Science* **302**, 1540 (2003); P. Tzallas, D. Charalambidis, N. A. Papadogiannis, K. Witte1 and G. D. Tsakiris, *Nature (London)* **426**, 267 (2003).
- [10] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Auge, Ph. Balcou, H. G. Muller, P. Agostini, *Science* **292**, 1689 (2001); S. A. Aseyev, Y. Ni, L. J. Frasinski, H. G. Muller, and M. J. J. Vrakking, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 223902 (2003); R. López-Martens, K. Varjú, P. Johnsson, J. Mauritsson, Y. Mairesse, P. Salières, M. B. Gaarde, K. J.

## Literaturverzeichnis

- Schafer, A. Persson, S. Svanberg, C. Wahlström, and A. L'Huillier, Phys. Rev. Lett. **94**, 033001 (2005).
- [11] M. Drescher *et al.*, Nature **419**, 803 (2002); S. X. Hu and L. A. Collins, Phys. Rev. Lett. **96**, 073004 (2006); M. Uiberacker, *ibid.* **446**, 627 (2007); P. B. Corkum and F. Krausz, Nature Phys. **3**, 381 (2007).
- [12] M. Lein, Phys. Rev. Lett. **94**, 053004 (2005); S. Baker *et al.*, Science **312**, 424 (2006).
- [13] H. G. Muller and F.C. Kooiman, Phys. Rev. Lett. **81**, 1207 (1998); R. Wihle *et al.*, Phys. Rev. A **67**, 063405 (2003).
- [14] F. H. M. Faisal, J. Phys. B **6**, L89 (1973); H. R. Reiss, Phys. Rev. A **22**, 1786 (1980); Prog. Quantum Electron. **16**, 1 (1992). D. G. Lappas and P. L. Knight, Comments At. Mol. Phys. **33**, 237 (1997).
- [15] W. Becker *et al.*, Adv. in At. Mol. Opt. Phys. **48**, 35 (2001).
- [16] R. Kopold, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 3831 (2000); Optics Com. **179**, 39-5 (2000).
- [17] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and M. V. Terentyev, Zh. Exp. Theor. Fiz. **50**, 1393 (1966); **51**, 309 (1966) [Sov. Phys. JETP **23**, 924 (1966); *ibid.* **24**, 207 (1967)]; V. S. Popov *et al.*, JETP Lett. **66**, 229 (1997); V. D. Mur *et al.*, JETP **87**, 433 (1998); V. P. Krainov, Opt. Expr. **2**, 1268 (1997); J. Phys. B **32**, 1607 (1999); **36**, L169 (2003); J. Ortner and V. M. Rylyuk, Phys. Rev. A **61**, 033403 (2000); J. Ortner, J. Phys. B **33**, 383 (2000); V. P. Krainov and A. V. Sofronov, Phys. Rev. A **69**, 015401 (2004).
- [18] M. W. Walser, C. H. Keitel, A. Scrinzi, and T. Brabec, Phys. Rev. Lett. **85**, 5082 (2000).
- [19] M. Dammasch, M. Dörr, U. Eichmann, E. Lenz, and W. Sandner, Phys. Rev. A **64**, 061402(R) (2001).
- [20] C. C. Chirilă, C. J. Joachain, N. J. Kylstra, and R. M. Potvliege, Phys. Rev. A **66**, 063411 (2002).
- [21] H. R. Reiss, Phys. Rev. A **42**, 1476 (1990).
- [22] D. P. Crawford and H. R. Reiss, Phys. Rev. A **50**, 1844 (1994).
- [23] D. P. Crawford and H. R. Reiss, Opt. Expr. **2**, 289 (1998).
- [24] D. B. Milošević, S. Hu, and W. Becker, Phys. Rev. A **63**, 011403(R) (2001); Laser Phys. **12**, 389 (2002).

- [25] H. R. Reiss, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 574 (1990).
- [26] F. H. M. Faisal and S. Bhattacharyya, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 053002 (2004).
- [27] C. H. Keitel and P. L. Knight, *Phys. Rev. A* **51**, 1420 (1995); U. W. Rathe, C. H. Keitel, M. Protopapas, and P. L. Knight, *J. Phys. B* **30**, L531 (1997); S. X. Hu and C. H. Keitel, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4709 (1999); *Phys. Rev. A* **63**, 053402 (2001); C. J. Joachain and N. J. Kylstra, *Laser Phys.* **11**, 212 (2001); S. X. Hu and C. H. Keitel, *Phys. Rev. A* **63**, 053402 (2001); A. Maquet and R. Grobe, *J. Mod. Phys.* **49**, 2001 (2002); J. S. Roman, L. Roso, and L. Playa, *J. Phys. B* **36**, 2253 (2003); C. J. Joachain, N. J. Kylstra, and R. M. Potvliege, *J. Mod. Optics* **50**, 313 (2003); G. R. Mocken, and C. H. Keitel, *J. Comp. Phys.* **199**, 558 (2004).
- [28] M. Verschl and C. H. Keitel, *Laser Physics* **15**, 1 (2005).
- [29] R. Fischer, M. Lein, and C. H. Keitel, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 143901 (2006).
- [30] R. Fischer, M. Lein, and C. H. Keitel, *J. Phys. B* **40**, F113 (2007).
- [31] G. Mocken and C. H. Keitel, *J. Phys. B* **37**, L275 (2004); C. C. Chirilă, C. J. Joachain, N. J. Kylstra, and R. M. Potvliege, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 243603 (2004).
- [32] B. Henrich, K. Z. Hatsagortsyan, and C. H. Keitel, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 013601 (2004).
- [33] N. J. Kylstra, R. A. Worthington, A. Patel, P. L. Knight, J. R. Vázquez de Aldana, and L. Roso, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1835 (2000).
- [34] V. D. Taranukhin, *Laser Phys.* **10**, 330 (2000); V. D. Taranukhin and N. Yu. Shubin, *Quant. Electron.* **31**, 179 (2000).
- [35] N. Milosevic, P. B. Corkum, and T. Brabec, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 013002 (2004).
- [36] M. Verschl and C. H. Keitel, *Euro. Phys. Lett.* **77**, 64004 (2007); *J. Phys. B* **40**, F69 (2007).
- [37] J. D. Jackson, *Klassische Elektrodynamik*, de Gruyter, Berlin (1983).
- [38] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Relativistic Quantum Theory*, Pergamon, Oxford (1965).
- [39] M. Dörr *et al.*, *Phys. Rev. A* **41**, 558 (1990); H. Rottke *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 404 (1990); M. J. Nandor *et al.*, *Phys. Rev. A* **60**, R1771 (1999); A. Scrinzi *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 706 (1999).
- [40] F. Schwabl, *Advanced Quantum Mechanics*, Springer, Berlin (1999).

## Literaturverzeichnis

- [41] W. Becker *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **4**, 743 (1987).
- [42] D. Bauer *et al.*, Phys. Rev. A **72**, 023415 (2005).
- [43] P. G. Burke, P. Francken, and C. J. Joachain, Europhys. Lett. **13**, 617 (1990); J. Phys. B **24**, 761 (1991).
- [44] M. Dörr *et al.*, J. Phys. B **28**, 4481 (1995).
- [45] H. W. van der Hart, J. Phys. B **29**, 3059 (1996).
- [46] B. Borca *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 133001 (2001).
- [47] M. Lewenstein *et al.*, Phys. Rev. A **51**, 1495 (1995).
- [48] M. Lewenstein *et al.*, Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994).
- [49] D. B. Milosevic *et al.*, Phys. Rev. A **66**, 063417 (2002).
- [50] W. Theobald *et al.*, Phys. Rev. Lett. **77**, 298 (1996).
- [51] M. Schnürer, C. Strelt, P. Wobrauschek, M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, and F. Krausz, Phys. Rev. Lett. **85**, 3392 (2000).
- [52] T. Brabec and F. Krausz, Rev. Mod. Phys. **72**, 545 (2000).
- [53] M. DiDomenico, J. Appl. Phys. **35**, 2870 (1964).
- [54] T. Baumert *et al.*, *Femtosecond Chemistry*, VCH, Weinheim (1995).
- [55] T. Sizer, J. D. Kafka, I. N. Duling, C. W. Gabel, and G. A. Mourou, IEEE J. Quantum Electron. **19**, 506 (1983); W. J. Tomlinson, R. H. Stolen, and C. V. Shank, J. Opt. Soc. Am. B **1** **2**, 139 (1984).
- [56] A. Mokhtari *et al.*, Nature **348**, 225 (1990); T. Ergler *et al.*, Phys. Rev. Lett. **97**, 103004 (2006).
- [57] G. Tsakiris *et al.*, New J. Phys. **8**, 19 (2006); **9** 218 (2007); M. Geissler *et al.*, New J. Phys. **9**, 218 (2007).
- [58] M. Klaiber, K. Z. Hatsagortsyan, and C. H. Keitel, Phys. Rev. A **71**, 033408 (2005).
- [59] M. Klaiber, *Diplom-Arbeit*, Theoretische Quantendynamik, Universität Freiburg (2004).

- [60] M. W. Walser and C. H. Keitel, *J. Phys. B* **33**, L221 (2000); M. W. Walser, D. J. Urbach, K. Z. Hatsagortsyan, S. X. Hu and C. H. Keitel, *Phys. Rev. A* **65**, 043410 (2002).
- [61] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Quantum Mechanics. Nonrelativistic Theory*, Pergamon, Oxford (1965).
- [62] E. S. Sarachik and G. T. Schappert, *Phys. Rev. D* **1**, 2738 (1970).
- [63] R. R. Schlicher, W. Becker, J. Bergou, and M. O. Scully, in *Quantum Electrodynamics and Quantum Optics*, edited by A. O. Barut, Vol. 10 of NATO Adv. Study Inst., Ser. B: Physics (Plenum, N.Y., 1984).
- [64] R. Burlon, C. Leone, F. Trombetta, and G. Ferrante, *Nuovo Cim. D* **9**, 1033 (1987); S. Beiser, M. Klaiber, I. Yu. Kiyani, *Phys. Rev. A* **70**, 011402(R) (2004).
- [65] M. V. Frolov, N. L. Manakov, E. A. Pronin, and A. F. Starace, *Phys. Rev. Lett.*, **91** 053003 (2003); *J. Phys. B* **36**, L419 (2003).
- [66] I. Yu. Kiyani and H. Helm, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 183001 (2003); B. Bergues *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 263002 (2005); *Phys. Rev. A* **75**, 063415 (2007).
- [67] G. F. Gribakin and M. Yu. Kuchiev, *Phys. Rev. A* **55**, 3760 (1997).
- [68] D. M. Volkov, *Z. Phys.* **94**, 250 (1935); J. Bergou and S. Varro, *J. Phys. A* **13**, 2823 (1980); Y. I. Salamin, *J. Phys. A* **26**, 6067 (1993).
- [69] V. B. Berestetskii, E. M. Lifshitz, and L. P. Pitaevskii, *Quantum Electrodynamics* (Butterworth Heinemann, Oxford, 2002).
- [70] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu and F. Laloe, *Quantum Mechanics* (Herman/Wiley, Paris, 1977).
- [71] W. E. Lamb, Jr., *Phys. Rev.* **85**, 259 (1952).
- [72] K.-H. Yang, *Ann. Phys. (N.Y.)* **101**, 62 (1976).
- [73] D. H. Kobe and A. L. Smirl, *Am. J. Phys.* **46**, 624 (1978).
- [74] G. Grynberg and E. Giacobino, *J. Phys. B* **12**, L93 (1979).
- [75] C. Leubner and P. Zoller, *J. Phys. B* **13**, 3613 (1980).
- [76] J. Bergou, *J. Phys. B* **16**, L647 (1983).
- [77] W. E. Lamb, Jr., R. R. Schlicher and M. O. Scully, *Phys. Rev. A* **36**, 2763 (1987).

*Literaturverzeichnis*

- [78] K. Rzażewski and R. W. Boyd, *J. Mod. Opt.* **51**, 1137 (2004).
- [79] M. O. Scully, *Quantum Optics* (Cambridge University press, Cambridge, 1997).
- [80] F. H. M. Faisal and S. Bhattacharyya, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 053002 (2004).
- [81] H. R. Reiss, *Phys. Rev. A* **19**, 1140 (1979).
- [82] M. Klaiber, K. Z. Hatsagortsyan, and C. H. Keitel, *Phys. Rev. A* **73**, 053411 (2006).
- [83] Y. Salamin, S. X. Hu, K. Z. Hatsagortsyan, and C. H. Keitel, *Phys. Rep.* **427**, 41 (2006).
- [84] J. D. Bjorken, S. D. Drell, *Relativistic Quantum Mechanics* (McGraw-Hill, New York, 1998), p.189.
- [85] S. Augst *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 2212 (1989).
- [86] V. S. Popov, B. M. Karnakov and V. D. Mur, *JETP Lett.* **79**, 262 (2004).
- [87] N. Milošević, V. P. Krainov, and T. Brabec, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 193001 (2002); *J. Phys. B* **35**, 3515 (2002).
- [88] W. Becker, S. Long, and J. K. McIver, *Phys. Rev. A* **50**, 1540 (1994).
- [89] V. P. Krainov, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 425 (1997).
- [90] V. P. Krainov, *Opt. Express* **2**, 268 (1998); S. P. Goreslavsky and S. V. Popruzhenko, *Opt. Express* **2**, 271 (1998); V. P. Krainov, *J. Phys B* **32**, 1607 (1999); *ibid*, **36**, L169 (2003); V. P. Krainov and A. V. Sofronov, *Phys. Rev. A* **69**, 015401 (2004).
- [91] V. P. Krainov and S. P. Roshupkin, *J. Opt. Soc. Am. B* **9**, 1231 (1992).
- [92] Y. I. Salamin and F. H. M. Faisal, *Phys. Rev. A* **54**, 4383 (1996).
- [93] N. J. Kylstra *et al.*, *J. Phys. B* **34**, L55 (2001).
- [94] H. Stapelfeldt *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 543 (2003); F. Rosca-Pruna *et al.*, *J. Chem. Phys.* **116**, 6567 (2002); J. J. Larson *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2470 (2000).
- [95] C. Müller, K. Z. Hatsagortsyan, C. H. Keitel, *Phys. Rev. D* **74**, 074017 (2006).
- [96] M. Klaiber, K. Z. Hatsagortsyan, and C. H. Keitel, *Phys. Rev. A* **74**, 053803 (2006); **75**, 063413 (2007).
- [97] Y. I. Salamin, *Phys. Rev. A* **56**, 4910 (1997).

- [98] A. S. Pirozhkov, S. V. Bulanov, T. Zh. Esirkepov, M. Mori, A. Sagisaka, and H. Daido, *Phys. Plasmas* **13**, 013107 (2006).
- [99] N. M. Naumova, J. A. Nees, I. V. Sokolov, B. Hou, and G. A. Mourou, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 063902 (2004); S. Gordienko, A. Pukhov, O. Shorokhov, and T. Baeva, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 115002 (2004), G. Tsakiris *et al.*, *New J. Phys.* **8**, 19 (2006); B. Dromey *et al.*, *Nature Phys.* **2**, 456 (2006).
- [100] [http://loa.ensta.fr/Extreme\\_Light\\_Infrastructure/EliWeb1.html](http://loa.ensta.fr/Extreme_Light_Infrastructure/EliWeb1.html): Proposal for a European extreme light infrastructure (ELI).
- [101] M. Klaiber, K. Z. Hatsagortsyan, and C. H. Keitel, arXiv:0707.2900.
- [102] M. Klaiber, K. Z. Hatsagortsyan, and C. H. Keitel, to be published.
- [103] K. J. Schafer and K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 638 (1997).
- [104] K. J. Schafer *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 023003 (2004); A. Bandrauk, S. Chelkowski and S. Goudreau, *J. Mod. Phys.* **52**, 411 (2005); C. Figueira de Morisson Faria *et al.*, *Phys. Rev. A* **74**, 053416 (2006).
- [105] D. Dimitrovski *et al.*, *Phys. Rev. A* **72**, 043411 (2005).
- [106] G. B. Arfken and H. J. Weber, *Mathematical Methods for Physicists*, Academic Press, San Diego.
- [107] I. N. Bronstein *et al.*, *Taschenbuch der Mathematik*, Verlag Harri Deutsch, Frankfurt (1997).



## Danksagung

Mein Dank geht an:

- meine Eltern und meine Schwester für ihre dauernde Unterstützung in allen Lebenslagen
- Christoph Keitel für die gute Organisation und Themenwahl meiner Promotion, für den großen Freiraum, den ich in dieser Zeit hatte und die Hilfe während einer Durststrecke
- Ganz viel davon, geht an Karen, der mir die größte Hilfe in allen physikalischen und mathematischen Fragen war und ohne den das alles nicht halb so gut geworden wäre
- Frank W. für seine Freundschaft und seinen Humor
- Paul, Alex und Julian für ein großartiges Jahr 2006
- John Briggs for his hospitality
- Henrik fürs Aufpassen auf mich
- Bob Dylan
- P. Brunner, dem Fachmann in Computer-Fragen
- Martina und Vera, den Sekretärinnen
- Carsten für eine Kollaboration, die Spass gemacht hat
- Darko für unzählige Happy Hours



# Erklärung

Diese Arbeit ist von mir selbstständig verfasst worden, und ich habe keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt.

Michael Klaiber, August 2007

