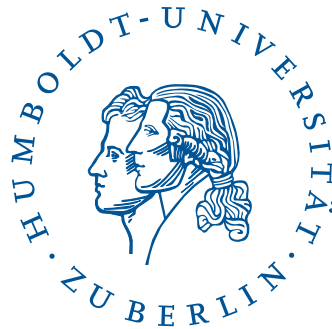


# Untersuchung einer Ursache für Ionisationsminderung von Helium in starken Laserfeldern



Bachelorarbeit in Physik  
eingereicht am Institut für Physik der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen  
Fakultät  
der Humboldt-Universität zu Berlin

von  
Dorian Daimer  
geboren am 02.07.1994 in Kopavogur, Island

1. Gutachter: Prof. Dr. Alejandro Saenz
2. Gutachter: Prof. Dr. Igor Sokolov

eingereicht am: 22.09.2015

Bei einer numerischen Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung für Heliumatome in starken Laserfeldern wurde festgestellt, dass die Ionisationsrate einiger Rydbergzustände bei steigender Pulsdauer stagniert oder in einigen Fällen sogar sinkt. Dieses Verhalten widerspricht der Intuition, da dem Atom bei steigender Pulsdauer mehr Energie zugeführt wird und die Ionisationsrate zunehmen sollte. Die Abnahme der Ionisationsrate lässt sich vermutlich auf die Fourierbreite des Pulses im Energie-raum zurückführen. In dieser Arbeit wurden Zweiphotonenprozesse ausgehend von Rydbergzuständen von Helium im Rahmen der niedrigsten Ordnung der Störungstheorie (lowest order perturbation theory; LOPT) und eines Modells mit einem aktiven Elektron (single-active-electron approximation; SAE) betrachtet. Die untersuchten Prozesse werden im Rahmen der Arbeit als 'runter-hoch' bzw. 'hoch-runter' bezeichnet. Dabei handelt es sich um Prozesse, bei denen Ausgangs- und Endzustand gleich sind. Außerdem wurde Ionisation aus dem Grundzustand untersucht und dabei auch Photonenabsorption im Kontinuum (above-threshold ionization; ATI) berücksichtigt. Die numerische Behandlung erfolgt im Rahmen einer B-Spline-Basis und basiert auf Fortran Programmen zur Berechnung der Ionisationsrate von effektiven Einelektronenatomen. Einige Tests der verwendeten Programme werden diskutiert und die aufgetretenen Probleme beschrieben. Außerdem wird die weitere Vorgehensweise kurz erläutert.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2. Modell</b>	<b>4</b>
2.1. Modell mit einem aktiven Elektron (SAE) . . . . .	4
2.2. Zweiphotonenprozesse in niedrigster Ordnung Störungstheorie (LOPT)	5
2.3. Dipolnäherung des Strahlungsfeldes . . . . .	7
2.4. Normierung der Kontinuumszustände . . . . .	9
<b>3. Numerische Berechnung</b>	<b>11</b>
3.1. B-Spline Basis . . . . .	11
3.1.1. Definition und Eigenschaften von B-Splines . . . . .	12
3.1.2. Lösung der zeitunabhängigen Schrödingergleichung . . . . .	14
3.2. Extrapolationsmethode zur Behandlung von above-threshold ionisation (ATI) . . . . .	15
<b>4. Ergebnisse</b>	<b>21</b>
<b>5. Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>25</b>
<b>A. Anhang</b>	<b>26</b>
A.1. Atomare Einheiten . . . . .	26
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>27</b>

# Abbildungsverzeichnis

1.1. Grad der Ionisation von Heliumatomen in Abhängigkeit von der Pulsdauer des Lasers und der Laserintensität. Der Ausgangszustand ist durch die Hauptquantenzahl $n = 15$ und die Drehimpulsquantenzahl $l = 12$ charakterisiert. Die Wellenlänge der Photonen beträgt $\lambda = 800$ nm. Es wurde ein $\cos^2$ -Puls verwendet. Die Grafik wurde von A. Saenz zur Verfügung gestellt. . . . .	2
3.1. Kompletter Satz aus 11 B-Splines der Ordnung $k = 4$ mit der Knotensequenz $\{x_i\} = \{0, 0, 0, 0, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 8, 8, 8\}$ (entnommen aus [3]).	13
3.2. Quadrat der Zweiphotonenübergangsamplitude in S-Zustände für Ionisation aus dem Grundzustand in Abhängigkeit von der Photonenenergie. Dargestellt sind sowohl Längen- als auch Geschwindigkeitseichung (rot bzw. schwarz). . . . .	17
3.3. Quadrat der Zweiphotonenübergangsamplitude in D-Zustände für Ionisation aus dem Grundzustand in Abhängigkeit von der Photonenenergie. Dargestellt sind sowohl Längen- als auch Geschwindigkeitseichung (rot bzw. schwarz). . . . .	18
3.4. Dargestellt sind die verallgemeinerten Wirkungsquerschnitte (Glg. 3.2.5) über der Photonenenergie. Links sind die Ergebnisse der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Rechnungen dargestellt. Die rechte Grafik wurde aus [29] entnommen, um die Daten vergleichen zu können. . . .	19

## Tabellenverzeichnis

4.1. Zweiphotonenamplituden für $l=0$ Ausgangszustände. . . . .	22
4.2. Zweiphotonenamplituden für $l=1$ Ausgangszustände und Zwischenzustände mit $l' = 2$ . . . . .	23
4.3. Zweiphotonenamplituden für $l=1$ Ausgangszustände und Zwischenzustände mit $l' = 0$ . . . . .	23
4.4. Zweiphotonenamplituden für $l=1$ Ausgangszustände. . . . .	24

# 1. Einleitung

Multiphotonenabsorption gehört zu den Phänomenen, die zuerst theoretisch vorhergesagt wurden [18]. Mitte der Zwanziger Jahre des 20. Jahrhunderts entwickelten Schrödinger (1926) und Dirac (1926) die erste Ordnung der Störungstheorie und verwendeten diese zur Beschreibung von Einphotonenabsorptionsprozessen. Desweiteren diskutierte Dirac bereits erste Anwendungsmöglichkeiten der zweiten Ordnung der Störungstheorie. So verwendete er die zweite Ordnung der Störungstheorie zur Beschreibung der Streuung von Photonen an Elektronen. Dabei handelt es sich um einen Zweiphotonenprozess. Erst 1931 bemerkte Maria Göppert-Mayer [20], dass die zweite Ordnung der Störungstheorie neben der Streuung auch den Prozess der Zweiphotonenabsorption beschreiben kann. Bei der Zweiphotonenabsorption geben zwei Photonen gleichzeitig ihre Energie an das Atom ab. Nach der Arbeit von Göppert-Mayer wurde schnell klar, dass höhere Ordnungen der Störungstheorie die Beschreibung von Multiphotonenabsorptionsprozessen erlauben. Die Ordnung der Störungstheorie stimmt dabei immer mit der Zahl der absorbierten Photonen überein. Bis zur Entdeckung des Lasers in den 1960ern waren experimentelle Untersuchungen von Multiphotonenprozessen unmöglich, weshalb auch das theoretische Interesse zurück ging. Zweiphotonenabsorption wurde erstmals 1961 bei Laserexcitation eines  $\text{CaF}_2:\text{Eu}^{2+}$  von Wolfgang Kaiser und C.B.G. Garrett [26] beobachtet. Mit der Entwicklung der ersten Laser wurde Multiphotonenanregung und -ionization wieder ein gesteigertes Interesse sowohl von Theoretikern als auch von Experimentatoren zuteil. In den folgenden Jahrzehnten wurden immer höhere Laserleistungen bei immer kürzeren Pulsdauern erreicht und somit zunehmend Multiphotonen Prozesse beobachtbar. So konnten zum Beispiel Messungen der Zweiphotonenionization von Alkali- und Erdalkalimetallen die theoretischen Vorhersagen bezüglich der totalen Wirkungsquerschnitte sowie der Winkelverteilungen der emittierten Elektronen bestätigen [27]. Multiphotonen Spektroskopie trug zur Identifikation der angeregten Zustände der Alkalimetalle [21] bei und verdeutlichte den Einfluss des AC-Stark Effekts auf die atomaren Energielevel. Der AC-Stark Effekt beschreibt die Verschiebung und Aufspaltung atomarer Energieniveaus unter dem Einfluss eines zeitlich veränderlichen elektromagnetischen Feldes (typischerweise sind Laserfelder gemeint). Die Erzeugung hoher Harmonischer (high harmonic generation; HHG) ist ebenfalls ein Multiphotonenprozess, der zum Beispiel bei der Erzeugung von Attosekunden-Laserpulsen Anwendung findet. Dabei werden Elektronen zunächst ins Kontinuum angehoben und Rekombinieren nach der Umkehr des Laserfeldes mit endlicher Wahrscheinlichkeit strahlend mit dem Atom. Dieser Prozess erzeugt Licht höherer Energie und Frequenz als der Ausgangspuls.

Motiviert wurde die vorliegende Arbeit durch bisher unveröffentlichte Berechnungen (von A. Saenz und Y. Vanne) des Ionisationsgrades von Rydbergzuständen des Heli-

## 1. Einleitung

umatoms in intensiven Laserpulsen. Diese Rechnungen wurden im Rahmen eines Modells mit einem aktiven Elektron durchgeführt. Dabei wurde das selbe Modellpotential wie in dieser Arbeit verwendet (siehe Abschnitt 2.1). Es wurde die zeitabhängige Schrödingergleichung numerisch gelöst. Die Rechnungen zeigen, dass der Ionisationsgrad für einige der untersuchten Rydbergzustände mit steigender Pulsdauer abnimmt. Dieses Verhalten ist beispielhaft in Abbildung 1.1 dargestellt.

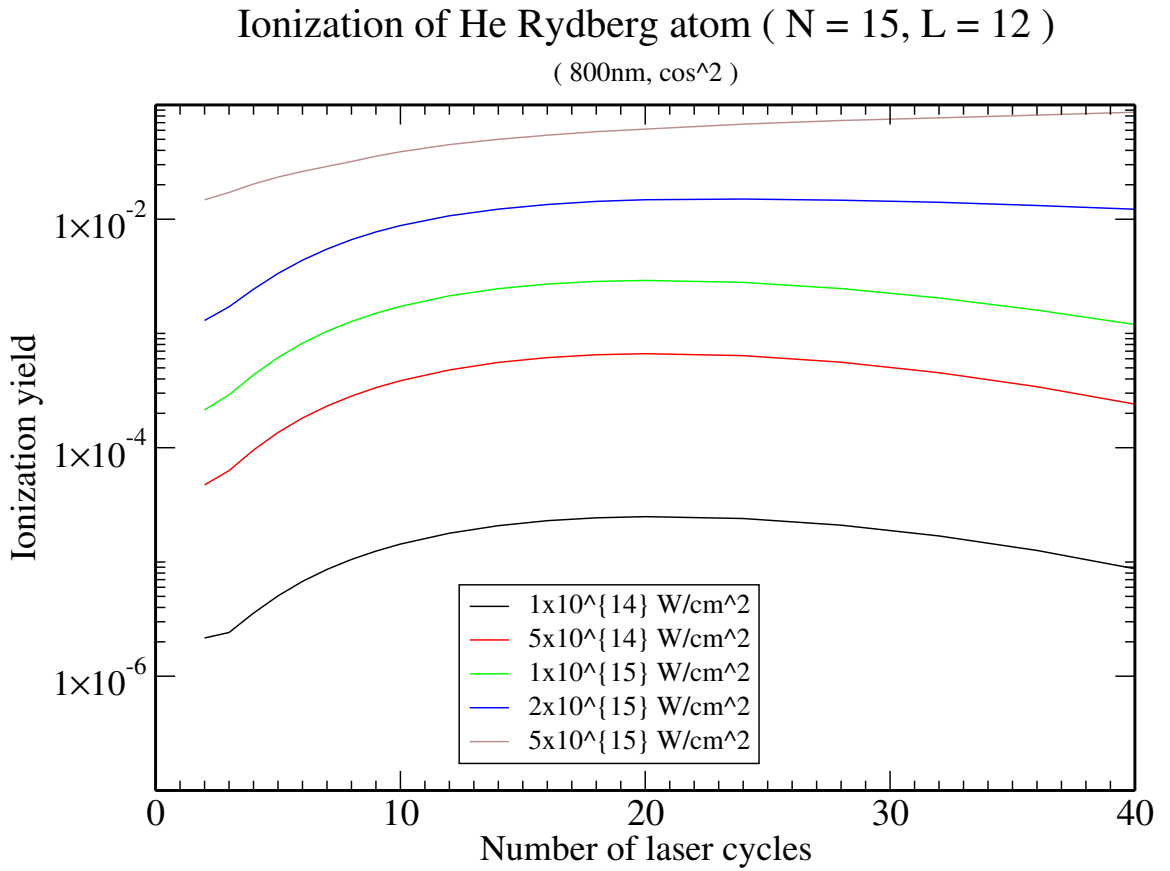


Abbildung 1.1.: Grad der Ionisation von Heliumatomen in Abhängigkeit von der Pulsdauer des Lasers und der Laserintensität. Der Ausgangszustand ist durch die Hauptquantenzahl  $n = 15$  und die Drehimpulsquantenzahl  $l = 12$  charakterisiert. Die Wellenlänge der Photonen beträgt  $\lambda = 800$  nm. Es wurde ein  $\cos^2$ -Puls verwendet. Die Grafik wurde von A. Saenz zur Verfügung gestellt.

## 1. Einleitung

Man sieht, dass der Ionisationsgrad für alle bis auf die höchste Pulsintensität mit steigender Pulsdauer (Zahl der Laserzyklen) abnimmt. Bei der höchsten untersuchten Laserintensität ( $5 \times 10^{15} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ ) scheint eine Sättigung aufzutreten. Diese Effekte widersprechen der Intuition, da dem Atom mit steigender Pulsdauer mehr Energie zugeführt wird und folglich der Ionisationsgrad ansteigen sollte. Die Daten lassen sich vermutlich mit der Fourierbreite des Laserpulses erklären. Je länger die Pulsdauer desto kleiner die Breite des Pulses im Energieraum. Wird die Breite im Energieraum schmaler als der energetische Abstand zur Kontinuums Grenze, so nimmt die Ionisation ab.

Ziel dieser Arbeit ist die Untersuchung des oben beschriebenen Effekts im Rahmen eines störungstheoretischen Modells, um zu überprüfen ob die Ionisationsminderung bei steigender Pulsdauer bereits in diesem einfachen Modell auftritt.

Es werden Zweiphotonenprozesse in Helium im Rahmen der niedrigsten Ordnung der Störungstheorie (zweite Ordnung) untersucht. Für das Heliumatom wird ein effektives Einelektronenmodell (SAE) verwendet. Dadurch vereinfacht sich das Problem erheblich, da statt eines Dreikörperproblems lediglich ein Zweikörperproblem gelöst werden muss. Außerdem werden Effekte wie die Elektron-Elektron-Wechselwirkung ausschließlich über das verwendete Modellpotential berücksichtigt. Dennoch ist eine analytische Lösung der relevanten Schrödinger-Gleichung nicht möglich und die Lösung erfolgt numerisch. Die numerische Berechnung erfolgt mit einem Fortran Programmpaket der Arbeitsgruppe 'Moderne Optik' der Humboldt-Universität zu Berlin (AMO). Das Programmpaket basiert auf der Darstellung der atomaren Orbitale durch B-Spline-Funktionen in einer sphärischen Box.

Im zweiten Kapitel dieser Arbeit wird das verwendete Modellpotential vorgestellt, die Zweiphotonenamplitude in niedrigster Ordnung Störungstheorie abgeleitet sowie eine kurze Einführung in die Dipolnäherung gegeben. Das dritte Kapitel widmet sich den wichtigsten Aspekten der Implementierung des verwendeten Modells ausgehend von dem Programmpaket. Dabei wird besonders auf die Boxdiskretisierung mittels B-Splines eingegangen. Außerdem wird die Extrapolationsmethode, die zur Behandlung von Photonenabsorption im Kontinuum (ATI) implementiert wurde, vorgestellt. Im vorletzten Kapitel werden Zweiphotonenprozesse ausgehend von Rydbergzuständen untersucht und der dominierende Prozess bestimmt. Abschließend werden die bisherigen Ergebnisse zusammengefasst und ein Ausblick auf noch offen gebliebene Fragen gegeben.



## 2. Modell

In diesem Kapitel wird das Modell vorgestellt, welches zur Berechnung der Zweiphotonenprozesse im Heliumatom verwendet wurde. Das Heliumatom wird dabei durch einen festen Kern und ein einzelnes aktives Elektron beschrieben. Der Einfluss des Elektronen Spins auf die Energieniveaus wird nicht berücksichtigt. Es wird folglich ausschließlich Parahelium betrachtet. Alle Rechnungen erfolgen in der niedrigsten Ordnung der Störungstheorie (LOPT). Da ausschließlich Zweiphotonenprozesse betrachtet werden, genügt die Störungstheorie zweiter Ordnung. Die Eigenzustände des ungestörten Atoms werden aus einer diskreten B-Spline-Basis in einer radialen Box gebildet. Die Kontinuumszustände werden renormiert um physikalischen Zuständen zu entsprechen. Für den Fall, dass bereits das erste Photon zu einem Übergang in einen Kontinuumszustand führt, wird eine Extrapolationsmethode verwendet, um die in der Störungstheorie auftretenden Pole zu handhaben. Die Wechselwirkung mit dem Laserfeld wird in der Dipolnäherung behandelt. Im folgenden werden die einzelnen Aspekte des Modells sowie die gemachten Näherungen detaillierter erläutert. Es werden atomare Einheiten verwendet, wenn nicht anders angegeben (siehe Abschnitt 4.1).

### 2.1. Modell mit einem aktiven Elektron (SAE)

Modell mit einem aktiven Elektron beruhen auf der Annahme, dass elektromagnetische Strahlung vom Infrarot bis in den UV-Bereich typischer Weise nur mit einem einzelnen Elektron stark wechselwirkt [8]. Derartige Modell sind damit für Alkalimetalle und negative Ionen intuitiv verständlich, da hier das Valenzelektron außerhalb der geschlossenen Schalen liegt. Die Anwendungsmöglichkeiten von SAE-Modellen sind jedoch viel größer, da sie generell einsetzbar sind, solange die Wahrscheinlichkeit einer gleichzeitigen Mehrfachanregung im betrachteten System gering ist. Durch eine geeignete Wahl des Modellpotentials lassen sich eine Vielzahl von Multielektronensystemen beschreiben. Effekte wie die Elektron-Elektron-Wechselwirkung werden lediglich implizit im verwendeten Modellpotential berücksichtigt. Das SAE-Modell ist damit die einfachste Erweiterung des Modells wasserstoffähnlicher Atome auf Mehrlektronenatome. Im Rahmen des SAE-Modells wird für das zu untersuchende Atom ein effektives Potential konstruiert, welches nur von einer Koordinate (Abstand des aktiven Elektrons vom Rumpfkern) abhängt. Dabei wird das Potential so gewählt, dass die Grundzustandsenergie sowie die Energien der angeregten Zustände des Valenzelektrons in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Werten des Atoms sind. Bei der Verwendung von diskreten Basissätzen werden die Orbitale des aktiven Elektrons in einem Potential konstruiert, welches zu dem im Grundzustand fixierten

## 2. Modell

Ion korrespondiert. Es wird in dieser Arbeit also konkret das  $\text{He}^{1+}$ -Ion im Grundzustand mit einem Valenzelektron betrachtet. Das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Modellpotential

$$V(r) = -\frac{1}{r} \left[ 1 + \frac{\alpha}{|\alpha|} e^{\left(\frac{-2r}{|\alpha|^2}\right)} \right] \quad (2.1.1)$$

hat nur einen Parameter  $\alpha$  [11].  $r$  beschreibt den Abstand des Elektrons vom  $\text{He}^{1+}$  Kern. Als Wert für  $\alpha$  wurde  $\alpha = 0,8791$  verwendet, um als Ionisierungsenergie  $I = 24,5874$  eV zu erhalten. Dieser Wert entspricht dem ersten Ionisationspotential von Helium. Das Modellpotential erfüllt für  $r \rightarrow \infty$  die Bedingung  $V(r) \rightarrow -\frac{1}{r}$  und verhält sich damit im Unendlichen wie das Coulomb-Potential eines einfach geladenen Atoms. Eine ausführliche Diskussion des Modellpotentials und seiner Anwendbarkeit bei der Beschreibung von Heliumatomen findet sich in [28].

### 2.2. Zweiphotonenprozesse in niedrigster Ordnung Störungstheorie (LOPT)

In der gängigen Beschreibung der Atom-Licht-Wechselwirkung im Rahmen der Quantenchemie wird das Strahlungsfeld als klassische monochromatische Welle mit zeitlich konstanter Amplitude aufgefasst, während die Atome quantenmechanisch beschrieben werden. Die zeitabhängige Störungstheorie eignet sich im Fall geringer Intensitäten (dabei ist die elektrische Feldstärke klein verglichen mit der elektrischen Feldstärke des atomaren Feldes) für die Beschreibung der Elektronenbewegung im Atom [12]. Im folgenden wird ein Ausdruck für Zweiphotonenprozesse in niedrigster Ordnung Störungstheorie (2. Ordnung) abgeleitet. Ausgangspunkt der nachfolgenden Beschreibung ist die zeitabhängige, nicht relativistische Schrödingergleichung

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\psi\rangle = (\hat{H}_0 + \hat{V}(t) |\psi\rangle). \quad (2.2.1)$$

Dabei bezeichnet

$$\hat{H}_0 = -\frac{\Delta}{2} + V_{\text{eff}} \quad (2.2.2)$$

den zeitunabhängigen Einteilchen-Hamiltonoperator des ungestörten Systems mit dem effektiven Potential  $V_{\text{eff}}$  (siehe Abschnitt 2.1) und  $\hat{V}(t)$  die zeitabhängige Störung durch das Strahlungsfeld.  $|\psi\rangle$  beschreibt die zeitabhängige Wellenfunktion des Systems. In Längeneichung hat die Störung die folgende Gestalt (siehe Abschnitt 2.3):

$$\hat{V}(t) = \vec{E}(t) \cdot \hat{r} \quad (2.2.3)$$

mit dem zeitabhängigen elektrischen Feld  $\vec{E}(t)$ . Das Strahlungsfeld oszilliere dabei mit der durch die Photonen gegebene Frequenz  $\omega$  und mit konstanter Amplitude. Da die Wellenfunktionen  $|\psi_{nl}\rangle$  des ungestörten Hamiltonoperators ein vollständiges Orthonormalsystem bilden, lassen sich die Lösungen der obigen Schrödingergleichung in den Lösungen des ungestörten Systems entwickeln.  $n$  und  $l$  bezeichnen dabei die

## 2. Modell

Haupt- und die Drehimpulsquantenzahl des Zustandes. Die magnetische Quantenzahl  $m$  wird in allen Betrachtungen unterdrückt, da sie keinen Einfluss auf die Energie der Zustände hat und bei Dipolübergängen mit linear polarisiertem Licht für alle Zustände gleich ist (siehe Abschnitt 2.3). In zeitabhängiger Notation ergibt sich [10]:

$$|\psi(t)\rangle = \sum_{n,l} a_{nl}(t) e^{-i\omega_{nl}t} |\psi_{nl}\rangle \quad (2.2.4)$$

mit den zu bestimmenden Entwicklungskoeffizienten  $a_{nl}(t)$  und einer energie- und zeitabhängigen Phase  $e^{-i\omega_{nl}t}$ . Die  $|\psi_{nl}\rangle$  erfüllen alle die zeitunabhängige Schrödingergleichung des ungestörten Atoms zum Energieeigenwert  $E_{nl} = \omega_{nl}$

$$\hat{H}_0 |\psi_n\rangle = E_{nl} |\psi_{nl}\rangle. \quad (2.2.5)$$

Zum Zeitpunkt  $t_0$  befindet das System sich in einem Eigenzustand  $|\psi_{il_i}\rangle$  des ungestörten Systems und die Störung wird eingeschaltet. Gesucht ist nun die Wahrscheinlichkeit, dass sich das System zu einem späteren Zeitpunkt in einem anderen Eigenzustand des ungestörten Systems  $e^{i\omega_{fl_f}t} |\psi_{fl_f}\rangle$  befindet. Setzt man (2.2.4) in (2.2.1) ein so ergibt sich

$$i \sum_{n,l} \dot{a}_{nl}(t) e^{-i\omega_{nl}t} |\psi_{nl}\rangle = \sum_{n,l} a_{nl} e^{-i\omega_{nl}t} \hat{V}(t) |\psi_{nl}\rangle. \quad (2.2.6)$$

Durch Projektion auf den Endzustand  $e^{i\omega_{fl_f}t} |\psi_{fl_f}\rangle$  und Ausnutzung der Orthonormiertheit der  $\psi_{nl}$  erhält man für die zeitabhängigen Koeffizienten

$$i \dot{a}_{fl_f} = \sum_{n,l} V_{fl_f nl} e^{-i(\omega_{nl} - \omega_{fl_f})t} a_{nl} \quad (2.2.7)$$

mit

$$V_{fl_f nl} = \langle \psi_{fl_f} | \hat{V}(t) | \psi_{nl} \rangle \quad (2.2.8)$$

Gleichung (2.2.7) löst man durch Integration in der Zeit. Da die rechte Seite auch von der gesuchten Funktion abhängt, geht man bei der Lösung iterativ vor und ersetzt in jedem neuen Schritt den im Integranden stehenden Entwicklungskoeffizienten  $a_{nl}(t')$  durch das Ergebnis des vorherigen Schrittes [10].

$$\begin{aligned} a_{fl_f}(t) &= a_{fl_f}(t_0) - i \int_{t_0}^t \sum_{n,l} V_{fl_f nl} e^{-i(\omega_{nl} - \omega_{fl_f})t'} a_{nl}(t') dt' \\ &= a_{fl_f}(t_0) - i \int_{t_0}^t \sum_{n,l} V_{fl_f nl} e^{-i(\omega_{nl} - \omega_{fl_f})t'} a_{nl}(t') dt' \\ &\quad + (-i)^2 \int_{t_0}^t \sum_{n,l} V_{fl_f nl} e^{-i(\omega_{nl} - \omega_{fl_f})t'} dt' \times \int_{t_0}^{t'} \sum_{k,l} V_{nl_n kl} e^{-i(\omega_{kl} - \omega_{nl_n})t''} a_{kl}(t'') dt'' \\ &= \dots \end{aligned} \quad (2.2.9)$$

Die Glieder der sich so ergebenden Reihe teilt man nach der Anzahl der enthaltenen Übergangsmatrixelemente ( $V_{ml_m nl_n}$ ) in Ordnungen ein. Jedes Übergangsmatrixelement ist in diesem Fall als Austausch eines Photons zu interpretieren. Das Glied

## 2. Modell

n-ter Ordnung beschreibt also die n-fache Wechselwirkung über Photonenaustausch des Systems mit der Störung. Ab dem Glied zweiter Ordnung treten Zwischenzustände auf. Diese Zwischenzustände werden als virtuelle Zwischenzustände bezeichnet, da sie extrem kurzlebig und nicht beobachtbar sind [10]. Normalerweise dominieren die Glieder nullter und erster Ordnung die Reihe doch bei hohen Lichtintensitäten können nichtlineare Glieder die dominierenden Faktoren werden. Im Rahmen dieser Arbeit werden Zweiphotonenprozesse untersucht, deshalb studieren wir im folgenden nur das Glied zweiter Ordnung. Durch Integration und Betragsquadratbildung ergibt sich aus dem Entwicklungskoeffizienten die Übergangswahrscheinlichkeit

$$W_{fi}^{(2)} = |M_{fi}^{(2)}|^2 = |a_{fi}(t \rightarrow \infty)|^2 = \left| \sum_{n,l} \frac{\langle \psi_{fl_f} | \vec{\epsilon} \vec{r} | \psi_{nl} \rangle \langle \psi_{nl} | \vec{\epsilon} \vec{r} | \psi_{il_i} \rangle}{E_{il_i} - E_{nl} + \omega} \right|^2 \quad (2.2.10)$$

Dabei sind aufgrund der Energieerhaltung nur solche Endzustände möglich, die sich vom Ausgangszustand um zwei Photonenenergien  $\omega$  unterscheiden. Dies gilt natürlich nur solange bei dem Prozess zwei Photonen gleicher Energie verwendet werden. Ist dies nicht der Fall so muss die Energiedifferenz von Anfangs- und Endzustand gleich der Summe der beiden Photonenenergien sein. Die Verstimmung  $E_{il_i} - E_{nl} + \omega$  ergibt sich aus der Integration der zeitabhängigen Phasen und der Zeitabhängigkeit der Störung. Im Allgemeinen ist auch die Amplitude des Strahlungsfeldes zeitabhängig, da aufgrund der hohen Intensitätsanforderungen gepulste Laser verwendet werden. Jedoch ist die typische Pulslänge im Bereich von einigen Femtosekunden. Die charakteristische Zeitskala des Heliumatoms ist hingegen in der Größenordnung von 100 Attosekunden und es ist daher in guter Näherung möglich, eine konstante Amplitude anzunehmen [10]. Der selben Argumentation folgend wird die obere Grenze bei der Zeitintegration in (2.2.10) ins Unendliche verschoben. Die untere Grenze der Integration kann auf  $-\infty$  gesetzt werden, da die Störung erst ab dem Zeitpunkt  $t = t_0$  aktiv ist und zu früheren Zeiten den Wert Null hat. Dies erlaubt eine einfachere Lösung des Integrals. Die Anzahl der in (2.2.10) auftretenden Zwischenzustände wird durch die Dipolauswahlregeln (siehe Abschnitt 2.3 Glg. 2.3.11) stark beschränkt.

### 2.3. Dipolnäherung des Strahlungsfeldes

Für die quantenmechanische Beschreibung der Wechselwirkung des Atoms mit einem Laserfeld müsste streng genommen nicht nur das Laserfeld quantisiert werden, sondern auch die Erzeugung eines quantisierten Feldes durch Relaxionen im Atom berücksichtigt werden. Relaxionseffekte werden im Rahmen dieser Arbeit jedoch nicht berücksichtigt. Für die Beschreibung eines intensiven Laserpulses genügt ein klassisches elektromagnetisches Feld, welches den Maxwell-Gleichungen genügt. Ein geeignetes Modell für den Laserpuls ist also durch das Vektorpotential

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} \vec{A}_0(t) \left( e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t + \phi_0)} + e^{-i(\vec{k}\vec{r} - \omega t + \phi_0)} \right) \quad (2.3.1)$$

gegeben. Die Trägerwelle breitet sich mit Frequenz  $\omega$  in  $\vec{k}$ -Richtung aus. Die ganze Beschreibung erfolgt in Coulomb-Eichung ( $\text{div} \vec{A} = 0$ ), sodass sich die elektrischen und

## 2. Modell

magnetischen Felder über

$$\vec{E} = -\frac{\partial}{\partial t}\vec{A} - \text{grad}(\Phi_{ext}) \quad \vec{B} = \text{rot}\vec{A} \quad (2.3.2)$$

berechnen lassen. Der Amplitudenvektor  $\vec{A}_0(t) = A_0\vec{e}f_{\text{env}}(t)$  beinhaltet die Amplitude  $A_0$ , den Polarisationsvektor  $\vec{e}$  und die Einhüllende des Pulses  $f_{\text{env}}(t)$ . Durch Modellierung des Vektorpotentials  $\vec{A}(r, t)$  und der Einhüllenden  $f_{\text{env}}(t)$  ist es möglich, die physikalischen Anforderungen

$$\vec{E}(t = -\infty) = \vec{E}(t = \infty) = 0 \quad \int_{-\infty}^{\infty} \vec{E}(t)dt = 0 \quad (2.3.3)$$

zu erfüllen [14]. Im folgenden wird ausschließlich ein linear in z-Richtung polarisiertes Laserfeld betrachtet ( $\vec{e} = \vec{e}_z$ ). Im Rahmen der Dipolnäherung wird  $\vec{k}\vec{r} \leq kr \ll 1$  verwendet. Das bedeutet, dass die Laserwellenlänge viel größer als die natürliche Längenskala des Atoms ist. In diesem Fall beträgt die Laserwellenlänge  $\lambda = 800\text{nm}$ , die typische Orbitalausdehnung des Heliums hingegen nur wenige Angström. Selbst die niedrigen Rydbergorbitale, die im Rahmen dieser Arbeit untersucht werden haben nur Orbitalausdehnungen von wenigen Nanometern. Die Orbitalausdehnung lässt sich über  $r_n = n^2 a_0$  abschätzen. Dies ist der Ausdruck für den Radius des Orbitals im Rahmen des Bohr'schen Atommodells mit der Hauptquantenzahl  $n$  und dem bohrschen Radius  $a_0$  (siehe Abschnitt 4.1). Das Vektorpotential vereinfacht sich damit zu

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = A_0\vec{e}_z f_{\text{env}}(t) \cos(\phi_0 - \omega t). \quad (2.3.4)$$

In der Dipolnäherung ist das Vektorpotential ortsunabhängig. Dies gilt folglich auch für das elektrische und magnetische Feld. Wird die Dipolnäherung zur Beschreibung der Wechselwirkung benutzt, so werden oft zwei von der Coulomb-Eichung verschiedene Eichungen, Geschwindigkeitseichung (Subskript V) und Längeneichung (Subskript L), für das Vektorpotential verwendet. Das Vektorpotential in Längen- bzw. Geschwindigkeitseichung ergibt sich durch Addition eines Gradientenfeldes [3],  $\vec{A}' = \vec{A} + \nabla\chi$ , zu

$$\vec{A}_L = \vec{A} - \nabla(\vec{A}\vec{r}) \quad (2.3.5)$$

$$\vec{A}_V = \vec{A} - \nabla\left(\frac{1}{2}\int^t A^2(\vec{r}, t')dt'\right). \quad (2.3.6)$$

Im Rahmen der Dipolnäherung ergibt sich aufgrund der Ortsunabhängigkeit des Vektorpotentials  $\vec{A}_V = \vec{A}(t)$  und  $\vec{A}_L(t) = 0$ . Der in Abschnitt 2.2 verwendete Wechselwirkungsoperator  $\hat{V}(t)$  hat in Dipolnäherung daher abhängig von der Eichung die folgende Form [1]:

$$\hat{V}_V(t) = -\vec{A}(t)\hat{p} \quad (2.3.7)$$

$$\hat{V}_L(t) = \vec{E}(t)\hat{r}. \quad (2.3.8)$$

## 2. Modell

Aus der Gestalt des Wechselwirkungsoperators lassen sich die Auswahlregeln für die Matrixelemente  $\langle n_2, l_2, m_2 | \hat{V}(t) | n_1, l_1, m_1 \rangle$  ableiten. Die Auswahlregeln sind für beide Eichungen gleich, da

$$(E(n_2, l_2) - E(n_1, l_1)) \langle n_2, l_2, m_2 | \hat{r} | n_1, l_1, m_1 \rangle = i \langle n_2, l_2, m_2 | \hat{p} | n_1, l_1, m_1 \rangle \quad (2.3.9)$$

gilt. Diese Beziehung ergibt sich aus der Kommutatorbeziehung [9]

$$[\hat{H}, \hat{r}] = -i\hat{p}. \quad (2.3.10)$$

Die Auswahlregeln lassen sich durch eine Entwicklung des Vektorpotentials (2.3.4) in Kugelflächenfunktionen bestimmen. Dies ist jedoch zeitaufwändig, weshalb hier nur das Ergebnis angegeben wird. Eine genaue Ableitung findet sich zum Beispiel in [19]. Berücksichtigt man nur, wie oben angenommen, eine lineare Polarisation in z-Richtung so ergeben sich als Auswahlregeln für nicht verschwindende Matrixelemente

$$\Delta l = \pm 1 \quad \Delta m = 0. \quad (2.3.11)$$

Bei anderer Polarisation bzw. unter Berücksichtigung des  $\vec{B}$ -Feldes ergeben sich die allgemeinen Auswahlregeln [9]

$$\Delta l = \pm 1 \quad \Delta m = 0, \pm 1. \quad (2.3.12)$$

## 2.4. Normierung der Kontinuumszustände

Die Eigenzustände des ungestörten Atoms werden in einer diskreten B-Spline Basis bestehend aus 402 B-Splines der Ordnung 9 entwickelt (siehe Abschnitt 3.1.2). Dadurch ergeben sich diskrete Orbitale, deren Zahl von der Zahl der verwendeten B-Splines abhängt. Die niedrigsten gebundenen Zustände ( $E < 0$ ) stellen in guter Näherung physikalische Eigenzustände des Atoms da. Die höher liegenden gebundenen Zustände stellen Pseudozustände aus der unendlichen Mannigfaltigkeit der Rydbergzustände dar. Die Zustände mit positiver Energie repräsentieren ein 'diskretes' Kontinuum [4,15]. Dieses beginnt oberhalb der Ionisationsgrenze und reicht bis zu einer maximalen Energie, die von der Zahl der verwendeten B-Splines abhängt. Es ist darauf zu achten, dass die maximale Energie für die durchzuführenden Rechnungen ausreicht. Die maximale Energie unter Verwendung der obigen Basis beträgt mehrere Millionen Rydberg. Dies liegt daran, dass mit 402 B-Splines pro l-Wert sehr viele Orbitale verwendet werden. Eine große Zahl von B-Splines erlaubt eine gute Repräsentation des Kontinuums, da eine hohe Zustandsdichte erreicht wird. Aufgrund der Diskretisierung stimmt die Normierung der Kontinuumszustände nicht mit der von physikalischen Kontinuumszuständen überein. Um die diskreten Kontinuumszustände physikalisch sinnvoll verwenden zu können, ist es deshalb notwendig, die Normierung zu verändern [4]. Im Rahmen des verwendeten Programmpakets wurden zwei verschiedene Renormierungsmethoden verwendet. Der erste Renormierungsfaktor berechnet sich aus der Zustandsdichte während der zweite sich aus dem Anpassen der Wellenfunktion an ihr

## 2. Modell

asymptotisches Verhalten berechnet. Dabei wird die Wellenfunktion für große  $r$  an die Wellenfunktion eines freien Elektrons in einem Coulomb-Potential angepasst. Beide Verfahren führen im interessanten Energiebereich knapp oberhalb der Ionisationsgrenze zu Ergebnissen, die um weniger als 1 % voneinander abweichen. Erst bei Energien von etwa 50 Hartree weichen die beiden Methoden voneinander ab. Solche Energien werden jedoch nicht annähernd erreicht. Es wurde für die Auswertung immer mit der Renormierung über die Zustandsdichte gearbeitet.

Alle Eigenzustände mit Energie  $E_i$ , für die  $E_i > 0$  gilt, werden mit der Zustandsdichte  $\rho(E_i)$  nach

$$\Psi_{E_i}^{\text{Norm}} = \rho^{\frac{1}{2}}(E_i) \Psi_{E_i} \quad (2.4.1)$$

normiert [1]. Die Zustandsdichte  $\rho(E_i)$  bei der Energie  $E_i$  wird dabei in guter Näherung durch

$$\rho(E_i) = \frac{2}{E_{i+1} - E_{i-1}} \quad (2.4.2)$$

beschrieben [1,13]. Der Index  $i$  bezieht sich dabei auf die Hauptquantenzahl des Zustands. Die obigen Formeln gelten nur für feste Werte von  $l$ .

## 3. Numerische Berechnung

Zunächst werden kurz die in die Rechnungen eingehende Parameterwerte und die verwendeten Programme angegeben. Dann wird die Verwendung von B-Splines zur Berechnung der Ein-Elektronen-Orbitale erläutert (siehe Abschnitt 3.1). Anschließend wird eine Extrapolationsmethode zur Behandlung der Divergenzen in der Zweiphotonenamplitude bei Photonenabsorptionen im Kontinuum beschrieben und verwendet um Zweiphotonenionisationsraten aus dem Grundzustand zu berechnen. Für alle Berechnungen wurden 402 B-Splines der Ordnung 9 pro  $l$ -Wert verwendet. Die Kernladung wurde in Übereinstimmung mit den Überlegungen in Abschnitt 2.1 zu  $Z_{\text{Kern}} = 1$  festgelegt. Der maximale Boxradius beträgt  $r_{\text{max}} = 200 a_0$  (mit Bohr-Radius  $a_0$ ). Das sinusoidale Gitter, auf dem die numerischen Integrationen und Differentiationen durchgeführt wurden, besteht aus 5000 Punkten. Für die Berechnung der Ionisationsraten wurden Photonen mit Energien  $12 \text{ eV} \leq \omega \leq 45 \text{ eV}$  verwendet. Dabei kommt es ab  $\omega = 24,5784 \text{ eV}$  zu Absorption im Kontinuum. Bei den Berechnungen der Übergangsraten von Rydbergzuständen wurden Photonen mit  $\omega = 1,55 \text{ eV}$  verwendet. Für alle Rechnungen wurden Drehimpulsquantenzahlen zwischen null und zwei berücksichtigt. Die Programme zur Auswertung der Ein-Elektronen-Orbitale im Rahmen der verwendeten B-Spline Basis (fchfbs.f und bspwf.f) wurden von X. Tang geschrieben. Das Programm onedpo.f berechnet die Dipolmatrixelemente für Ein-Elektronen Atome. Zur Renormierung der Kontinuumszustände (siehe Abschnitt 2.4) wird das Programm onorm.f verwendet. Diese beiden Programme wurden von A. Saenz implementiert. Die Berechnung der Multiphotonenamplitude erfolgt mit lopto.f, geschrieben von E. Cormier. lopto.f ist auf Ionisationsprozesse ausgelegt und wurde für die Untersuchung der Rydbergzustände entsprechend verändert.

### 3.1. B-Spline Basis

In diesem Abschnitt wird die Bestimmung von Eigenfunktionen eines Hamiltonoperators unter Verwendung einer B-Spline-Basis (basis- oder basic-splines) beschrieben sowie die grundlegenden Eigenschaften von B-Splines erläutert.

B-Splines sind lokale Polynome, die sich zum Beispiel zur Berechnung der Eigenzustände einer zeitunabhängigen Schrödingergleichung eignen. Im Gegensatz zu globalen Basissätzen (Slater-type orbitals, Gaussians) sind lokale Basissätzen nur in einem bestimmten Raumbereich ('Box') von Null verschieden. Sind die Funktionen des Basisatzes nun noch stückweise Polynome, so spricht man von finiten Elementen bzw. Splines [3]. Der Begriff 'Splines' wurde erstmals 1946 in einer Arbeit von Schoenberg [23] zur Beschreibung einer glatten, stückweise polynomischen Annäherung verwendet. Seitdem wurden Splines vielfach und in den unterschiedlichsten Formen



### 3. Numerische Berechnung

(z.B. Bezier-Splines und Hermite-Splines) in numerischen Rechnungen verwendet. Alle Splines sind  $L^2$  integrierbare Funktionen. Innerhalb der Box lässt sich eine Knotensequenz definieren und somit auf das gegebene Problem abstimmen, was einen der grossen Vorteile dieser Methode ausmacht. Außerdem wird durch die Lokalität der Basis die durch die endliche Maschinengenauigkeit bedingte lineare Abhängigkeit verschiedener Basisfunktionen minimiert [24]. Jede Art von Splines wird durch ihren Grad, ihre Glattheit und ihre Knotensequenz charakterisiert. B-Splines ermöglichen durch Linearkombination die Darstellung jeglicher anderer Splines, daher auch der Name. Neben weiteren Vorteilen eignen sich B-Splines besonders für die Darstellung von Kontinuumszuständen und finden somit bei wichtigen Starkfeldphänomenen wie ATI und HHG Anwendung. Ein umfangreicher Übersichtsartikel zu der Verwendung von B-Splines in Atom- und Molekularphysik findet sich in [3]. Im folgenden wird eine kurze Definition von B-Splines, sowie eine Beschreibung wichtiger Eigenschaften gegeben. Für eine ausführliche Beschreibung sei auf [3] und [25] verwiesen.

#### 3.1.1. Definition und Eigenschaften von B-Splines

Da es sich bei B-Splines um sehr flexible mathematische Objekte handelt, ist die allgemeine Definition sehr umfangreich. Im Rahmen dieser Arbeit genügt es, sich auf die Aspekte zu beschränken, die für das Verständnis des physikalischen Nutzens notwendig sind. Der Einfachheit halber wird die folgende Diskussion einer B-Spline-Basis auf eine Dimension beschränkt. Der eindimensionale Raum sei durch die Koordinate  $x$  charakterisiert. Um eine Basis aus B-Splines auf einem Intervall  $I = [a, b]$  mit Endpunkten  $x = a$  und  $x = b$  zu definieren, werden die folgenden Eigenschaften festgelegt [3]:

- Die Ordnung  $k$  der B-Splines wird festgelegt. Ein B-Spline der Ordnung  $k$  entspricht dabei einem lokalen Polynom der Art  $p(x) = a_{k-1}x^{k-1} + a_{k-2}x^{k-2} + \dots + a_0$ . Die Ordnung der B-Splines ist folglich immer um eins höher als ihr Polynomgrad.
- Das Intervall  $I$  wird in  $N$  Teilintervalle zerlegt. Die  $N+1$  Stützstellen (inklusive den Randpunkten), die dabei entstehen, bilden eine streng monotone steigende Folge  $x_1 = a, x_2, \dots, x_{N+1} = b$ , mit  $x_{i+1} > x_i$  für alle  $i$ .
- Es wird eine monoton steigende Knotensequenz  $q_1, q_2, \dots, q_{N+1k}$  ( $q_{i+1} \geq q_i$ ) festgelegt. Dabei gehören zu jeder Stützstelle ein oder mehrere Knotenpunkte. Die Zahl der Knotenpunkte einer Stützstelle sei  $\kappa$ . Die B-Splines der Ordnung  $k$  sind an einer Stützstelle mit  $\kappa = 1$  maximal differenzierbar (Die Funktion und ihre Ableitungen sind bis zur  $k-2$ -ten Ableitung stetig). Jeder weitere Knotenpunkt reduziert die Differenzierbarkeit der B-Splines an der Stützstelle um 1. Somit sind die B-Splines an jeder Stützstelle Elemente von  $C^{k-1-\kappa}$  (stetige differenzierbare Funktionen der Ordnung  $k - 1 - \kappa$ ). Die gängige Wahl für die Zahl der Knoten ist  $\kappa = 1$  für innere Stützstellen und  $\kappa = k$  für die Randpunkte [2]. Damit ergibt sich für die Gesamtzahl der Knotenpunkte  $(N+1)_k = N + 2k - 1$ .

### 3. Numerische Berechnung

Zur Darstellung von  $n$  B-Splines der Ordnung  $k$  werden  $n + k$  Knotenpunkte benötigt. Daraus ergibt sich für die Zahl  $n$  der B-Splines

$$n = N + k - 1. \quad (3.1.1)$$

In Abbildung 3.1 ist ein kompletter Satz aus 11 B-Splines der Ordnung  $k = 4$  dargestellt. Die folgenden wichtigen Eigenschaften sind offensichtlich:

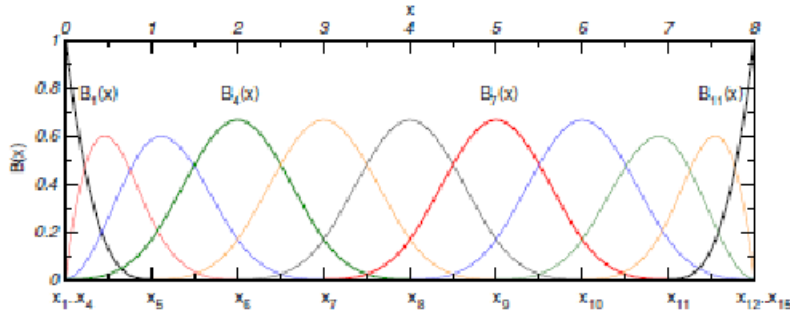


Abbildung 3.1.: Kompletter Satz aus 11 B-Splines der Ordnung  $k = 4$  mit der Knotensequenz  $\{x_i\} = \{0, 0, 0, 0, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 8, 8, 8\}$  (entnommen aus [3]).

- Jeder B-Spline ist auf maximal  $k$  Teilintervallen ungleich Null,

$$B_i(x) \neq 0 \quad \text{für} \quad x \in (x_i, x_{i+1}). \quad (3.1.2)$$

- Auf jedem Teilintervall  $(x_i, x_{i+1})$  sind genau  $k$  B-Splines von Null verschieden,

$$B_j(x) \neq 0 \quad \text{für} \quad j = i - k + 1, \dots, i. \quad (3.1.3)$$

- Jeder B-Spline hat nur mit einer bestimmten Anzahl anderer B-Splines einen Überlapp,

$$B_i(x)B_j(x) = 0 \quad \text{für} \quad |i - j| \geq k. \quad (3.1.4)$$

- B-Spline Basis-Sets sind normiert:

$$\sum_i B_i(x) = 1 \quad \text{für} \quad x \in [a, b]. \quad (3.1.5)$$

Die Koeffizienten  $a_i$  sind für verschiedene Teilintervalle und B-Splines verschieden, lassen sich jedoch über eine Rekursionsformel bestimmen [2]. Der  $i$ -te B-Spline der Ordnung  $k$ ,  $B_i^k(x)$ , der auf dem Teilintervall  $(x_i, x_{i+1})$  von Null verschieden ist, ist definiert über:

$$B_i^1(x) = \begin{cases} 1 & \text{für } x \in (x_i, x_{i+1}) \\ 0 & \text{sonst} \end{cases}$$

### 3. Numerische Berechnung

$$B_i^k(x) = \frac{x - q_i}{q_{i+k-1} - q_i} B_i^{k-1}(x) + \frac{q_{i+k} - x}{q_{i+k} - q_{i+1}} B_{i+1}^{k-1}(x). \quad (3.1.6)$$

B-Splines haben den Vorteil, dass sie sowohl oszillierende als auch exponentiell abfallende Funktionen sowie Funktionen mit anderem qualitativen Verhalten akkurat mit ein und derselben Basis beschreiben können. Desweiteren gibt es zwischen den Beiträgen der verschiedenen B-Splines einer Basis keine großen Auslöschungen. Dies ist in globalen Basis Sets nicht immer der Fall und kann zu numerischen Instabilitäten führen [3].

#### 3.1.2. Lösung der zeitunabhängigen Schrödingergleichung

Zur Bestimmung der Eigenfunktionen einer zeitunabhängigen effektiven Ein-Teilchen-Schrödingergleichung

$$\hat{H}_0 \psi(r) = E \psi(r) \quad (3.1.7)$$

mit dem Ein-Teilchen-Hamiltonian

$$\hat{H}_0 = -\frac{d^2}{2dr^2} + V_{\text{eff}}(r) \quad (3.1.8)$$

und den Randbedingungen  $\psi(r=0)=0$  und  $\psi(r=r_{\text{max}})=0$  (Boxdiskretisierung) werden die Radialteile der Lösungen als Linearkombinationen von N B-Splines der Ordnung k approximiert. Zu dem Radialteil kommen noch die üblichen Kugelflächenfunktionen hinzu [2,3].

$$\psi(r) = \sum_i^N c_i B_i^k(r). \quad (3.1.9)$$

Durch die Box-Diskretisierung (zweite künstliche Randbedingung) ergibt sich ein erweitertes Eigenwertproblem welches sowohl für  $E < 0$  als auch für  $E > 0$  auf diskrete Eigenzustände mit diskreten Energien führt. Mit diesem Zugang lassen sich sowohl die gebundenen ( $E < 0$ ) als auch die Kontinuumszustände ( $E > 0$ ) darstellen.

Setzt man (3.1.9) in (3.1.7) ein und projiziert auf alle B-Splines, so reduziert sich die Differentialgleichung auf ein Gleichungssystem aus N linearen Gleichungen. In Matrixschreibweise [2] ergibt sich

$$\mathbf{H} \mathbf{c} = E \mathbf{S} \mathbf{c} \quad (3.1.10)$$

mit dem Spaltenvektor  $\mathbf{c} = (c_1, c_2, \dots, c_N)^T$  und den Matrizen

$$H_{ij} = \int B_i^k(r) \hat{H}_0 B_j^k(r) dr, \quad (3.1.11)$$

$$S_{ij} = \int B_i^k B_j^k dr. \quad (3.1.12)$$

Die Randbedingungen lassen sich durch die Forderungen  $c_1 = 0$  und  $c_N = 0$  erfüllen. Damit kann man das System auf N-2 lineare Gleichungen reduzieren. Die meisten der Integrale in (3.1.11) und (3.1.12) verschwinden wegen der Lokalität der B Splines. Die Lösung des erweiterten Eigenwertproblems mit den Methoden der linearen Algebra ist unproblematisch. Die nicht verschwindenden Integrale lassen sich mittels Gauß-Legendre-Quadratur bis zu einem gewissen Polynomgrad exakt lösen [29].

### 3.2. Extrapolationsmethode zur Behandlung von above-threshold ionisation (ATI)

Normalerweise ergeben sich innerhalb der Zwei-Photonen-Übergangsrate (2.2.10) Divergenzen, wenn bereits das erste Photon für einen Übergang in das (diskretisierte) Kontinuum ausreicht, da dann die Verstimmung divergiert. Die hier beschriebene Methode zur Behandlung dieser Divergenzen basiert auf einer Arbeit von E. Cormier und P. Lambropoulos [13].

Im folgenden wird der spezielle Fall der Zweiphotonenabsorption betrachtet. Das Laserfeld sei vollständig quantisiert und die Amplitude sei konstant in der Zeit. Das Atom befinde sich zu Beginn in einem gebundenen Zustand  $|\psi_{il_i}\rangle$ . Außerdem seien  $N_0$  Photonen vorhanden. Der Gesamtzustand ist  $|I\rangle = |\psi_{il_i}\rangle |N_0\rangle$ . Die Übergangsrate von diesem Anfangszustand in einen Endzustand  $|F\rangle = |\psi_{fl_f}\rangle |N_0 - 2\rangle$  durch Absorption von zwei Photonen der Energie  $\omega$  ist

$$\Gamma_{FI}^{(2)} = 2\pi(2\pi\alpha)^2(\omega F)^2\tau_0^3 a_0^4 |M_{fi}^{(2)}|^2 \quad (3.2.1)$$

mit der Zweiphotonenübergangsamplitude  $M_{fi}^{(2)}$ , wie sie in Abschnitt 2.2 definiert wurde. Dabei beschreibt  $\tau_0$  die atomare Zeiteinheit,  $a_0$  die atomare Längeneinheit (Bohr-Radius, siehe Abschnitt 4.1) und  $F$  den Fluss der Photonen mit Energie  $\omega$ . Die in Gleichung (2.2.10) dargestellte Multiphotonenübergangsamplitude ist nur gültig solange keine Photonen innerhalb des Kontinuums absorbiert werden. Für den Fall der Absorption im Kontinuum (ATI) entstehen in den Integralen Divergenzen genau dann wenn die Energie des Ausgangszustandes und die des Zwischenzustandes sich um die Energie eines Photons unterscheiden ( $\omega_{il_i} + \omega = \omega_{al_a}$ ). Dabei reicht bereits das erste Photon ins Kontinuum. Anwendung von formaler Streutheorie [22] ergibt für diesen Prozess (in Längeneichung) [1,6]

$$M_{fi}^{(2)} = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \oint_a \frac{\langle fl_f | \vec{E}\vec{r} | al_a \rangle \langle al_a | \vec{E}\vec{r} | il_i \rangle}{\omega_{il_i} + \omega - \omega_{al_a} + i\epsilon}. \quad (3.2.2)$$

Dieser Ausdruck gleicht dem in Abschnitt 2.2 abgeleiteten Ausdruck (2.2.10) mit dem Unterschied, dass hier noch ein imaginärer Teil zu der Verstimmung hinzukommt. Auch hier kommen aufgrund der Energieerhaltung nur Endzustände in Frage, für die  $\omega_{il_i} + 2\omega = \omega_{fl_f}$  gilt. Geht man nun über zu einer Beschreibung innerhalb einer diskreten Basis (B-Splines) so erhält man durch Diagonalisieren des Hamiltonoperators (siehe Abschnitt 3.1.2) ein System von Eigenfunktionen  $|\psi_{nl}\rangle$  mit Energien  $\omega_{nl}$ . Im Rahmen der diskreten Basis lässt sich die Zweiphotonenamplitude als

$$M_{fi}^{(2)} = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \sum_a \frac{\langle fl_f | \vec{E}\vec{r} | al_a \rangle \langle al_a | \vec{E}\vec{r} | il_i \rangle}{\omega_{il_i} + \omega - \omega_{al_a} + i\epsilon}. \quad (3.2.3)$$

schreiben. Dabei wurde die Integration des Kontinuumsteils durch die Summation über die diskreten Eigenfunktionen ersetzt. Diese Behauptung lässt sich aus der Vollständigkeit der B-Spline Basis ableiten (siehe Abschnitt 3.1.1, Glg. 3.1.5). Zur

### 3. Numerische Berechnung

Berechnung der Übergangsamplitude wird dem energetisch nächsten diskreten Kontinuumszustand eine künstliche Breite  $\epsilon$  zugeordnet. Ist diese Breite viel kleiner als die Zustandsdichte (etwa Faktor 10), so versagt das Verfahren und die Amplitude divergiert. Die Grenzwertbildung führt damit immer zu einer Divergenz in der Multiphotonamplitude. Zur Lösung dieses Problems schlagen E. Cormier und P. Lambropoulos vor, die Amplitude für einige große Werte von  $\epsilon$  (von der Größenordnung der Zustandsdichte oder größer) zu berechnen und aus diesen Werten durch Extrapolation den Wert für  $\epsilon = 0$  zu bestimmen. Das Verfahren basiert auf der guten Kenntnis des Verhaltens der komplexen Multiphotonenamplitude für große  $\epsilon$  und der Tatsache, dass die Variation in  $\epsilon$  glatt und oft sogar monoton ist. Diese Extrapolationsmethode zur Behandlung von ATI wurde von E. Cormier und P. Lambropoulos erfolgreich zur Berechnung von Multiphotonenamplituden in Wasserstoff und Helium verwendet [13]. In der vorliegenden Arbeit wurde zur Extrapolation der komplexen Amplitude ein auf rationalen Funktionen basierendes Programm aus dem Buch 'Numerical Recipes' verwendet [5]. Die Extrapolationsmethode wurde von E. Cormier in dem Programm `lopto.f` implementiert. Zum Test der Methode wurden die Zwei-Photonen Übergangswahrscheinlichkeiten für die Ionisation von Helium aus dem Grundzustand im Rahmen des SAE-Modells berechnet. Alle Rechnungen wurden sowohl in Geschwindigkeits- als auch in Längeneichung durchgeführt und nur bei guter Übereinstimmung als konvergiert betrachtet. Ab Photonenenergien  $\omega > 24,5784$  eV kommt es zu ATI. Das zweite Photon wird im Kontinuum absorbiert. Solange die Photonenenergie unterhalb von  $\omega = 24,5784$  eV ist, stimmen die beiden Eichungen überein. Ab dem Einsetzen von ATI kommt es zu Abweichungen. Diese liegen an dem oben beschriebenen Extrapolationsverfahren. Der qualitative Verlauf stimmt dennoch überein und die Ausreißer können leicht durch Mittelwertbildung aus den benachbarten Punkten bereinigt werden.

### 3. Numerische Berechnung

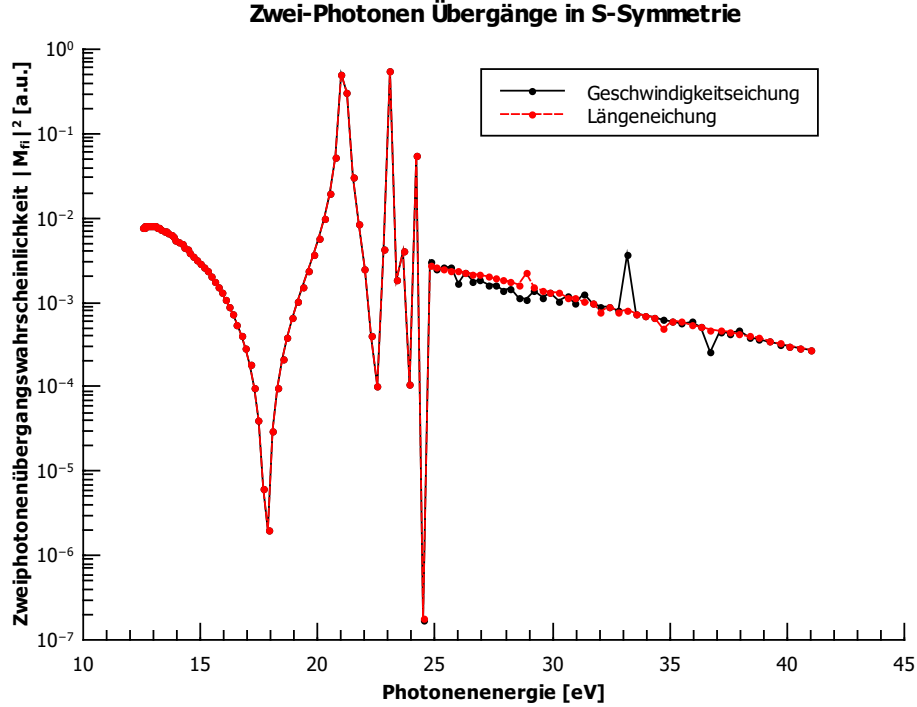


Abbildung 3.2.: Quadrat der Zweiphotonenübergangsamplitude in S-Zustände für Ionisation aus dem Grundzustand in Abhängigkeit von der Photonenenergie. Dargestellt sind sowohl Längen- als auch Geschwindigkeitseichung (rot bzw. schwarz).

Für die Extrapolation wurden 15 Epsilon-Werte verwendet. Prinzipiell sollten mehr Werte eine höhere Genauigkeit und bessere Übereinstimmung der beiden Eichungen ergeben, doch treten auch bei mehr Schritten noch numerische Ausreißer auf. Die Werte von Epsilon wurden so gewählt, dass die oben beschriebenen Divergenzen vermieden wurden. Die selben Rechnungen wurden auch für Wasserstoff durchgeführt, um die Methode zu testen. Bei Wasserstoff stimmen die beiden Eichungen auch für den Fall von ATI überein. Die Abweichungen liegen also vermutlich an dem verwendeten Modelpotential (siehe Abschnitt 2.1) und der Tatsache, dass Längen- und Geschwindigkeitseichung verschiedene Bereiche der Wellenfunktion unterschiedlich gewichten. Eine weitere Möglichkeit besteht darin, dass die B-Spline Basis unvollständig sein könnte. Eine unvollständige Basis führt zu Eichabhängigkeit. Das Weglassen der Rumpforbitale in dem Modell mit einem aktiven Elektron kann dazu führen, dass der Hilbert-Raum der Einteilchenwellenfunktion unvollständig ist [30]. Zur Untersuchung der Eichabhängigkeit sollte desweiteren die Basissatzkonvergenz genauer untersucht werden. Dazu muss die Konvergenz bezüglich der Boxgröße und der Zahl der B-Splines genauer untersucht werden. Dies war im Rahmen dieser Arbeit zeitlich nicht möglich.

### 3. Numerische Berechnung

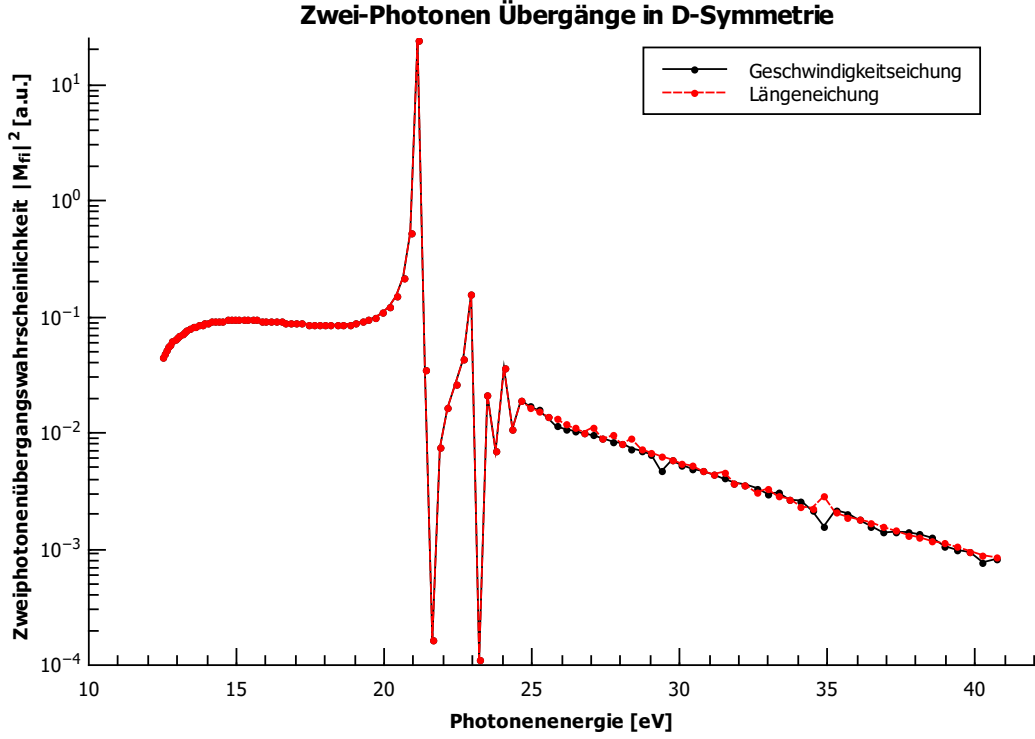


Abbildung 3.3.: Quadrat der Zweiphotonenübergangsamplitude in D-Zustände für Ionisation aus dem Grundzustand in Abhängigkeit von der Photonenenergie. Dargestellt sind sowohl Längen- als auch Geschwindigkeitseichung (rot bzw. schwarz).

Zum besseren Vergleich der hier dargestellten Übergangswahrscheinlichkeiten ist es möglicherweise notwendig, diese in Wirkungsquerschnitte oder Raten umzurechnen. Dazu können die folgenden Formeln verwendet [13] werden:

- Ionisationsrate [ $s^{-1}$ ]

$$\Gamma_{FI}^{(2)} = \frac{2\pi}{\tau_0} \left( \frac{I_{Wcm^{-2}}}{I_0} \right)^2 |M_{fi}^{(2)}(au)|^2 \quad (3.2.4)$$

- verallgemeinerter Ionisationswirkungsquerschnitt [ $\frac{cm^4}{s}$ ]

$$\sigma_{FI}^{(2)} = 2\pi \frac{\omega(eV)}{F_0^2 \tau_0} |M_{fi}^{(2)}(au)|^2 \quad (3.2.5)$$

Dabei bezeichnet  $I$  die Feldintensität. Mit  $I_0 = 14,038 \times 10^{16} \text{ Wcm}^{-2}$  und  $F_0 = 3,22 \times 10^{34} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  wurden Einheiten für die Feldintensität bzw. den Photonenfluss

### 3. Numerische Berechnung

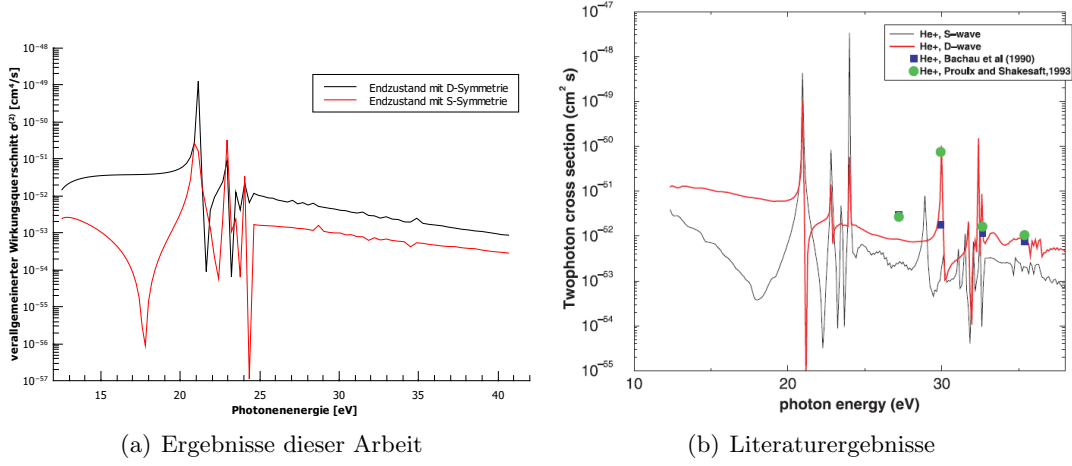


Abbildung 3.4.: Dargestellt sind die verallgemeinerten Wirkungsquerschnitte (Glg. 3.2.5) über der Photonenenergie. Links sind die Ergebnisse der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Rechnungen dargestellt. Die rechte Grafik wurde aus [29] entnommen, um die Daten vergleichen zu können.

eingeführt. In Abbildung 3.4 sind die verallgemeinerten Wirkungsquerschnitte für die Ionisation aus dem Grundzustand mittels zwei Photonen dargestellt. Grafik 3.4 (a) zeigt die Ergebnisse dieser Arbeit in Längeneichung. Grafik 3.4 (b) fasst mehrere frühere Ergebnisse zusammen und wurde [29] entnommen. In [29] wurde im Gegensatz zu dieser Arbeit mit zwei Elektronen gerechnet. Dies erklärt die Resonanzen ab  $\omega > 24,5784$  eV. Die Resonanzen stellen angeregte Zustände des zweiten Elektrons dar. Insgesamt sind die Kurvenverläufe qualitativ sehr ähnlich sofern man von den doppeltangeregten Resonanzen absieht. Die Ergebnisse dieser Arbeit scheinen jedoch quantitativ in etwa eine Größenordnung kleiner zu sein als die Ergebnisse der anderen Arbeiten. Diese Abweichung ist im Rahmen der gemachten Näherungen durchaus vertretbar.



## 4. Ergebnisse

Für die eigentliche Fragestellung der Arbeit, ob sich die Ergebnisse der Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung (siehe Abschnitt 1) bereits in einem einfacheren störungstheoretischen Modell reproduzieren lassen, wurde das vorliegende Programmpaket so abgeändert, dass nicht nur Photoionisation (Endzustand im Einelektronenkontinuum) sondern auch Prozesse der Art

$$|n, l\rangle \rightarrow |n', l'\rangle \rightarrow |n, l\rangle \quad (4.0.1)$$

berechnet werden konnten. Dazu wurde im Programm lopto.f der Endzustand gleich dem Anfangszustand gesetzt und alle möglichen Zwischenzustände betrachtet. Im Rahmen der Dipolnäherung kommen nur solche Zwischenzustände in Frage, für die  $l' = l \pm 1$  gilt (siehe 2.3). Die magnetische Quantenzahl  $m$  wird in der folgenden Beschreibung vernachlässigt, da im Rahmen dieser Arbeit nur linear polarisiertes Laserlicht betrachtet wurde. Für linear polarisiertes Licht gilt  $\Delta m = 0$  und die magnetische Quantenzahl verändert sich somit im Verlauf der Photonenabsorption und -emission nicht. Außerdem wurde die Feinstruktur nicht berücksichtigt. Damit hat die magnetische Quantenzahl auch auf die Energien der Zustände keinen Einfluss. Betrachtet wurden Übergänge bei denen das Atom am Ende wieder im selben Zustand vorliegt wie vor der Wechselwirkung mit dem Laserfeld. Die an diesem Prozess beteiligte Zweiphotonenübergangsamplitude berechnet sich aus (2.2.10) indem man den Endzustand gleich dem Anfangszustand setzt

$$M_{fi}^{(2)} = \sum_{n', l'} \frac{\langle n, l | \vec{E} \vec{r} | n', l' \rangle \langle n', l' | \vec{E} \vec{r} | n, l \rangle}{E_{n, l} - E_{n', l'} + \omega}. \quad (4.0.2)$$

Aufgrund der Box-Diskretisierung kann die Summe über den Kontinuumsteil durch eine Summe über die diskreten Kontinuumszustände ersetzt werden (siehe 3.2). Die mit dem Programmpaket berechnete Übergangsamplitude hat dann in Längeneichung die Form

$$M_{fi}^{(2)} = \sum_{n', l'} \frac{\langle n, l | \vec{E} \vec{r} | n', l' \rangle \langle n', l' | \vec{E} \vec{r} | n, l \rangle}{E_{n, l} - E_{n', l'} + \omega}. \quad (4.0.3)$$

Es wurden Photonen mit  $\omega = 1,55$  eV betrachtet. Die Summe über die Zwischenzustände wurde nach der Energie der Zwischenzustände in zwei Teilsummen aufgespalten, um 'hoch-runter'-Prozesse mit 'runter-hoch'-Prozessen zu vergleichen. 'Hoch' und 'runter' beziehen sich dabei auf Absorption bzw. Emission eines Photons und den damit einhergehenden Übergang innerhalb eines Energieniveauschema. Für 'runter-hoch'-Prozesse gilt  $E_{n', l'} < E_{n, l}$ , während für 'hoch-runter'-Prozesse  $E_{n', l'} > E_{n, l}$  sein

#### 4. Ergebnisse

muss.

$$M_{fi}^{(2)} = \sum_{\substack{n',l' \\ E_{n',l'} < E_{n,l}}} \frac{\langle n,l|\vec{E}\vec{r}|n',l'\rangle \langle n',l'|\vec{E}\vec{r}|n,l\rangle}{E_{n,l} - E_{n',l'} - \omega} + \sum_{\substack{n',l' \\ E_{n',l'} > E_{n,l}}} \frac{\langle n,l|\vec{E}\vec{r}|n',l'\rangle \langle n',l'|\vec{E}\vec{r}|n,l\rangle}{E_{n,l} - E_{n',l'} + \omega}. \quad (4.0.4)$$

Diese Aufteilung erlaubt es die Einflüsse der zwei verschiedenen Prozesse abzuschätzen. Berechnet wurde für verschieden Ausgangszustände jeweils die Gesamtsumme und die Teilsumme für den 'runter-hoch'-Prozess. Der Anteil des 'hoch-runter'-Prozesses ergibt sich aus der Differenz dieser beiden Werte. Für Anfangszustände mit  $l = 1$  sind die Amplituden nach den  $l$ -Werten der Zwischenzustände aufgelöst. Ist  $l = 0$  im Anfangszustand so muss aufgrund der Dipolauswahlregeln  $l' = 1$  sein. Untersucht wurden Zustände mit Hauptquantenzahlen  $n \in [8, 10]$ . Bei Absorption eines Photons mit  $\omega = 1,55$  eV liegt der Zwischenzustand beim 'hoch-runter'-Prozess für alle diese Zustände im Kontinuum. Die Ergebnisse sind in den nachfolgenden Tabellen dargestellt. Alle Amplituden sind in atomaren Einheiten dargestellt und in Längeneinheit berechnet. Die Ausgangszustände sind über die Haupt- und die Drehimpulsquantenzahl klassifiziert ( $n$  und  $l$ ).

Tabelle 4.1.: Zweiphotonenamplituden für  $l=0$  Ausgangszustände.

Ausgangszustand	Gesamtamplitude	'runter-hoch'-Amplitude	'hoch-runter'-Amplitude
$n=7$	$3,1 \times 10^4$	$0,3 \times 10^4$	$2,8 \times 10^4$
$n=8$	$5,3 \times 10^4$	$0,5 \times 10^4$	$4,8 \times 10^4$
$n=9$	$8,6 \times 10^4$	$0,9 \times 10^4$	$7,7 \times 10^4$
$n=10$	$10,9 \times 10^4$	$1,5 \times 10^4$	$9,4 \times 10^4$
$n=11$	$10,8 \times 10^4$	$1,7 \times 10^4$	$9,1 \times 10^4$
$n=12$	$10,2 \times 10^4$	$1,7 \times 10^4$	$8,5 \times 10^4$

Man erkennt in Tabelle 4.1, dass für  $l=0$  Ausgangszustände der 'hoch-runter'-Prozess dominiert. Die Gesamtamplitude nimmt mit steigender Hauptquantenzahl zunächst zu ab  $n = 10$  jedoch wieder leicht ab. Die 'runter-hoch'-Amplitude nimmt mit steigender Hauptquantenzahl zu, da nun mehr Zwischenzustände unterhalb des Ausgangszustandes dipolerlaubt sind. Dieses Argument ist rein anschaulicher Natur. Für eine quantitative Begründung müssten die einzelnen Übergangsdipolmomente ausgewertet werden.

#### 4. Ergebnisse

Tabelle 4.2.: Zweiphotonenamplituden für  $l=1$  Ausgangszustände und Zwischenzustände mit  $l' = 2$ .

Ausgangszustand	Gesamtamplitude	'runter-hoch'-Amplitude	'hoch-runter'-Amplitude
n=7	$4,6 \times 10^4$	$0,1 \times 10^4$	$4,4 \times 10^4$
n=8	$7,3 \times 10^4$	$0,2 \times 10^4$	$7,1 \times 10^4$
n=9	$8,8 \times 10^4$	$0,3 \times 10^4$	$8,5 \times 10^4$
n=10	$8,5 \times 10^4$	$7,6 \times 10^4$	$0,9 \times 10^4$
n=11	$8,1 \times 10^4$	$7,1 \times 10^4$	$1,0 \times 10^4$

Tabelle 4.3.: Zweiphotonenamplituden für  $l=1$  Ausgangszustände und Zwischenzustände mit  $l' = 0$ .

Ausgangszustand	Gesamtamplitude	'runter-hoch'-Amplitude	'hoch-runter'-Amplitude
n=7	$5,8 \times 10^4$	$4,9 \times 10^4$	$0,9 \times 10^4$
n=8	$9,1 \times 10^4$	$7,7 \times 10^4$	$1,4 \times 10^4$
n=9	$11,0 \times 10^4$	$9,6 \times 10^4$	$1,4 \times 10^4$
n=10	$10,7 \times 10^4$	$9,2 \times 10^4$	$1,5 \times 10^4$
n=11	$10,1 \times 10^4$	$8,7 \times 10^4$	$1,4 \times 10^4$

In Tabelle 4.4 erkennt man, dass die beiden untersuchten Prozesse für  $|7, 1\rangle, |8, 1\rangle$  und  $|9, 1\rangle$  in etwa in gleicher Weise zu der Gesamtamplitude beitragen. Dabei dominiert für  $l' = 0$  Zwischenzustände der 'runter-hoch'-Prozess, für  $l' = 2$  Zwischenzustände hingegen der 'hoch-runter'-Prozess (siehe Tabelle 4.2 und Tabelle 4.3). In der Summe heben sich die unterschiedlich starken Kontributionen der verschiedenen  $l'$  Zwischenzustände wieder auf. Anders verhält es sich bei dem  $|10, 1\rangle$  und dem  $|11, 1\rangle$  Ausgangszustand. Dort dominiert für alle möglichen Zwischenzustandssymmetrien der 'runter-hoch'-Prozess, der damit natürlich auch in der Gesamtamplitude den dominierenden Term darstellt. Für Ausgangszustände mit  $l = 1$  stellt  $n = 11$  den letzten Zustand mit negativer Energie dar. Um mehr Rydbergzustände für diesen und höhere  $l$ -Werte untersuchen zu können muss die Zahl der verwendeten B-Splines erhöht werden. Dadurch erhöht sich die Zustandsdichte. Die Rechnungen wurden auch in Geschwindigkeitseichung durchgeführt. Dabei ergibt sich qualitativ das selbe Verhalten, quantitative weichen die Werte jedoch stark voneinander ab. Auch hier liegt somit eine Eichabhängigkeit vor. Die Ursachen sind vermutlich die selben, die bereits in Abschnitt 3.2 erwähnt wurden. So sind die Gesamtamplituden in der Geschwindigkeitseichung in der Größenordnung von  $10^1$ - $10^2$  au und somit etwa 3 Größenordnungen kleiner als in

#### 4. Ergebnisse

Tabelle 4.4.: Zweiphotonenamplituden für  $l=1$  Ausgangszustände.

Ausgangszustand	Gesamtamplitude	'runter-hoch'-Amplitude	'hoch-runter'-Amplitude
n=7	$10,4 \times 10^4$	$5,0 \times 10^4$	$5,4 \times 10^4$
n=8	$16,4 \times 10^4$	$7,9 \times 10^4$	$8,5 \times 10^4$
n=9	$19,8 \times 10^4$	$9,9 \times 10^4$	$9,9 \times 10^4$
n=10	$19,2 \times 10^4$	$16,8 \times 10^4$	$2,4 \times 10^4$
n=11	$18,2 \times 10^4$	$15,8 \times 10^4$	$2,4 \times 10^4$

der Längeneichung. Die Unsicherheit der Extrapolation ist in diesem Fall in der selben Größenordnung wie die Gesamtamplituden. Da die Ursache dieser Diskrepanz nicht klar ist, wurden hier nur die Ergebnisse aus der Längeneichung genauer betrachtet.

## 5. Zusammenfassung und Ausblick

Ziel der Arbeit war die Untersuchung von Rydbergzuständen eines Heliumatoms in starken Laserfeldern. Dazu wurde ein vorhandenes Programmpaket zur Berechnung von Multiphotonenionisation zunächst getestet, insbesondere in Hinblick auf die Behandlung von Photonenabsorption im Kontinuum (siehe Abschnitt 3.2). und anschließend so abgeändert, dass 'hoch-runter' bzw. 'runter-hoch' Zwei-Photonen-Prozesse ausgehend von Rydbergzuständen berechnet und verglichen werden konnten. Bei dem Vergleich der beiden Prozesse wurde festgestellt, dass für  $l = 0$  Ausgangszustände 'hoch-runter' den dominierenden Prozess darstellt. Für  $l = 1$  Ausgangszustände hing das Verhältnis der beiden Prozesse von der Hauptquantenzahl ab. Für  $n = 7$ ,  $n = 8$  und  $n = 9$  waren die beiden Wege in etwa gleich wahrscheinlich. Bei den  $|10, 1\rangle$  und  $|11, 1\rangle$  Ausgangszuständen dominierte hingegen eindeutig der 'runter-hoch' Teil. Aus Zeitgründen konnten bisher nur wenige Hauptquantenzahlen und zwei verschiedene Drehimpulsquantenzahlen untersucht werden. Es bleiben deshalb noch viele Fragen offen. Wie ist das Verhalten für große  $l$ -Werte und große  $n$ -Werte? Tritt bereits im störungstheoretischen Modell die Ionisationsminderung hoher Rydbergzustände, die bei der Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung berechnet wurde, auf? Zur Klärung dieser Fragen ist es notwendig, Rechnungen mit mehr Hauptquantenzahlen (mehr B-Splines) durchzuführen und die Programme so zu erweitern, dass in den störungstheoretischen Rechnungen größere  $l$ -Werte berücksichtigt werden können (zur Zeit ist hier  $l' = 2$  die Obergrenze). Die Schwierigkeit besteht darin, dass `lopto.f` auf Multiphotonenionisation aus dem Grundzustand ausgelegt ist. Die Zahl der in die Rechnungen eingehenden  $l$ -Quantenzahlen korrespondiert dabei zu der Zahl der verwendeten Photonen. Dies erklärt warum bisher  $l = 2$  die Obergrenze darstellt. Um Zustände wie den anfangs erwähnten Rydbergzustand mit  $n = 15$  und  $l = 12$  untersuchen zu können und die Fragestellung der Arbeit klären zu können ist es folglich notwendig sowohl die Zahl der betrachteten Hauptquantenzahlen als auch die der Drehimpulsquantenzahlen deutlich zu erhöhen. Berücksichtigt man mehr B-Splines in den Rechnungen so lässt sich auch untersuchen ob die Eichabhängigkeit der bisherigen Ergebnisse mangelnder Basissatzkonvergenz geschuldet ist. Insgesamt war es in dieser Arbeit nur möglich den Grundstein für die Klärung der anfangs aufgeworfenen Fragen zu legen und das Programmpaket zu testen. Eine erste Implementierung der zu betrachtenden Prozesse ist gelungen. Diese muss jedoch noch deutlich erweitert werden.

# A. Anhang

## A.1. Atomare Einheiten

Die Angaben in diesem Abschnitt wurden größtenteils aus der Zusammenstellung der atomaren Einheiten der Arbeitsgruppe Moderne Optik [17] übernommen.

Im Rahmen des atomaren Einheitensystems werden die folgenden Naturkonstanten auf Eins gesetzt:

$$\hbar = 1 \text{ a.u.} = 1,05457173 \cdot 10^{-34} \text{ J s} \quad (\text{A.1.1})$$

$$e = 1 \text{ a.u.} = 1,60217657 \cdot 10^{-19} \text{ C} \quad (\text{A.1.2})$$

$$m_e = 1 \text{ a.u.} = 9,1093829 \cdot 10^{-31} \text{ kg} \quad (\text{A.1.3})$$

$$4\pi\epsilon_0 = 1 \text{ a.u.} = 1,126501 \cdot 10^{-10} \text{ Fm}^{-1} \quad (\text{A.1.4})$$

Mit dieser Festlegung lassen sich die anderen Größen wie Zeit, Länge und Energie sowohl im atomaren als auch im SI-Einheitensystem ableiten. Da diese Arbeit unter Verwendung des atomaren Einheitensystems geschrieben wurde werden die Umrechnungen zwischen den beiden Einheitensystemen bezogen auf die atomaren Einheitennormale für die entsprechende physikalische Größe angegeben. Die Einheiten für Länge, Zeit und Energie ergeben sich dann zu

$$\text{Länge } a_0 = \frac{4\pi\epsilon_0\hbar^2}{m_e e^2} = 5,29177206 \cdot 10^{-11} \text{ m} \quad (\text{A.1.5})$$

$$\text{Zeit } \tau_0 = \frac{(4\pi\epsilon_0)^2\hbar^3}{m_e e^4} = 2,4188432 \cdot 10^{-17} \text{ s} \quad (\text{A.1.6})$$

$$\text{Energie } E_h = \frac{m_e e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2\hbar^2} = 4,3597443 \cdot 10^{-18} \text{ J} \quad (\text{A.1.7})$$

Diese Einheiten treten in der Arbeit am häufigsten auf und wurden deshalb hier aufgelistet. Andere atomare Einheiten ergeben sich leicht aus assoziierten Beziehungen. Die atomare Längeneinheit wird als Bohr-Radius bezeichnet, die atomare Energieeinheit als Hartree-Energie.

# Literaturverzeichnis

- [1] P. Lambropoulos, P. Maragahkis, J. Zhang, “Two-electron atoms in strong fields”, Physics Reports 305 (1998), S. 203-293
- [2] J. Förster, “Molekularer Wasserstoff in intensiven, ultrakurzen Laserfeldern”, Masterarbeit, Humboldt-Universität zu Berlin, 2013.
- [3] Y.V. Vane, “Ionization of Molecular Hydrogen in Ultrashort Intense Laser Pulses”, Dissertation, Humboldt-Universität zu Berlin, 2009.
- [4] A. Saenz, P. Lambropoulos, “Theoretical two-, three- and four-photon ionization cross sections for helium in the XUV range”, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 32 (1999), S. 5629-5637
- [5] W.H. Press, B.P. Flannery, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling, “Numerical Recipes”, Cambridge University Press (1986)
- [6] E. Cormier, H. Bachau, J. Zhang, “Discretization techniques applied to the study of multiphoton excitation of resonances in helium”, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 26 (1993), S. 4449-4463
- [7] J.J. Wynne, J.A. Armstrong, P. Esherick, “Multiphoton Processes: Proceedings of an International Conference at the University of Rochester”, Wiley New York (1977)
- [8] T. Brabec, “Strong Field Laser Physics”, Springer Verlag (2008)
- [9] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloe, “Quantenmechanik Teil 2.”, 2. Auflage de Gruyter Berlin New York (1999)
- [10] P. Koval, S. Fritzsche, “Abschätzung zur nichtresonanten Zweiphotonen-Ionisation der K-Elektronen mittelschwerer Atome ( $Z=25,\dots,34$ )”, Fachbereich Physik, Universität Kassel
- [11] A. Saenz, J. Vane, “Ionisation of  $H_2$  in intense ultrashort laser pulses: parallel versus perpendicular orientation”, <http://arxiv.org/pdf/0804.0567v2.pdf> (2008), Abruf: 10.09.2015
- [12] B.H. Bransden, C.J. Joachain, “Physics of Atoms and Molecules”, Pearson Education (2003), S. 850-851
- [13] E. Cormier, P. Lambropoulos, “Above-threshold ionization spectrum of hydrogen using B-spline functions”, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 30 (1993), S. 77 ff.
- [14] D.B. Milosovic, G.G. Paulus, D. Bauer, W. Becker, “Topical Review: Above-threshold ionization by few cycle pulses”, J. Phys. B 39 (2006), S. R203-R262

## *Literaturverzeichnis*

- [15] A. Macias, F. Martin, A. Riera, M. Yaanez, "A practical solution to the "unknown normalization" problem", *Int. J. Quant. Chem.* 33 (1988), S. 279-300
- [16] M. Abramowitz, I.A. Stegun, "Handbook of Mathematical Functions", Dover (1972), S. 887
- [17] Arbeitsgruppe Moderne Optik HU-Berlin, "Comment on atomic units", [http://amo.physik.hu-berlin.de/mater/q2\\_06/au.pdf](http://amo.physik.hu-berlin.de/mater/q2_06/au.pdf) Abruf: 07.09.2015
- [18] P. Koval, "Two-photon ionization of atomic inner-shells", [https://kobra.bibliothek.uni-kassel.de/bitstream/urn:nbn:de:hebis:34-1057/1/dis3158\\_18.pdf](https://kobra.bibliothek.uni-kassel.de/bitstream/urn:nbn:de:hebis:34-1057/1/dis3158_18.pdf) Abruf: 02.09.2015
- [19] D. Suter, "Auswahlregeln", [https://e3.physik.uni-dortmund.de/~suter/Vorlesung/Laserspektroskopie\\_00/4\\_Auswahlregeln.pdf](https://e3.physik.uni-dortmund.de/~suter/Vorlesung/Laserspektroskopie_00/4_Auswahlregeln.pdf) Abruf: 25.08.2015
- [20] M. Göppert-Mayer, "Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen", *Ann. Phys.* 9 (1931), S. 273-295
- [21] G. Mainfray, C. Manus, "Multiphoton ionization of atoms", *Rep. Prog. Phys.* 54 (1991), S. 1333-1372
- [22] M.L. Goldberg, K.M. Watson, "Collision theory", Dover (1964)
- [23] I.J. Schoenberg, "Contribution to the problem of approximation of equidistant data by analytic functions", *Quart. Appl. Math.* 4, 45 (1946)
- [24] J. Sapirstein, W.R. Johnson, "The use of basis spines in theoretical atomic physics", *J. Phys. B* 29 (1996), 5213
- [25] C. De Boor, "A practical guide to splines", Springer Verlag Bd. 9 (1978)
- [26] W. Kaiser, C.B.G. Garrett, "Two-photon excitation in  $\text{CaF}_2\text{:Eu}^{2+}$ ", *Phys. Review Letters* Band 7 (1961), S. 229
- [27] N.B. Delone, V.P. Krainov, "Multiphoton Processes in Atoms", Springer Verlag (1999)
- [28] L.A.A. Nikolopoulos, P. Lambropoulos, "Multichannel theory of two-photon single and double ionization of helium", *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys* 34 (2001), S.545-564
- [29] A. Lühr, A. Saenz, J. Vanne, "Parameter-free one-center model potential for an effective one-electron description of molecular hydrogen", *Phys. Rev. A* 78 (2008), 042510 S.1-7
- [30] A. Saenz, "Analyse und Kontrolle von Rydbergzuständen in Erdalkaliatomen sowie Alkalidimeren und -trimeren", <http://users.physik.fu-berlin.de/~abt/sfb450/4bericht/TPC6.pdf> Abruf: 19.09.2015



Ich versichere, dass ich die Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt sowie Zitate kenntlich gemacht habe.

Berlin, den 22.09.2015

Dorian Daimer  
Institut für Physik

Humboldt-Universität zu Berlin  
D-10099 Berlin  
[daimer@physik.hu-berlin.de](mailto:daimer@physik.hu-berlin.de)