

**Fakultät für Physik und Astronomie
Ruprecht-Karls Universität Heidelberg**

Bachelorarbeit in Physik
vorgelegt von

Alexander Magunia

geboren in Recklinghausen (Deutschland)

19. September 2016

Elektronen-Korrelation in Helium unter Einfluss intensiver XUV-Laserpulse

Die Bachelorarbeit wurde ausgeführt von *Alexander Magunia* am
Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg
unter der Betreuung von
Prof. Dr. Thomas Pfeifer

Elektronen-Korrelation in Helium unter Einfluss intensiver XUV-Laserpulse:

In dieser Arbeit wird die Wechselwirkung von Helium mit intensiven XUV-Pulsen numerisch untersucht, um die am FLASH (**F**reie-Elektronen-**L**aser in **H**amburg) durchgeführten Experimente (Juni 2016) interpretieren zu können. Dafür wird das Heliumatom als *Few-Level-Modell* aufgefasst und es werden die Elektronen-Korrelation sowie Kontinuumskopplung berücksichtigt. Die Lösung der zeitabhängige Schrödingergleichung des Systems erfolgt in diskretisierten Zeitschritten. Das Ergebnis ist eine intensitätsabhängige Variation der Linienform der betrachteten 2s2p Resonanz. Diese Änderung kann mit einem durch eine Energieverschiebung induzierte Phasenänderung erklärt werden. Damit werden Resultate und Erklärungen bei ähnlichen Experimenten mit intensiven IR-Pulsen und schwachen Hohen Harmonischen (XUV) verifiziert. Erste Schritte zur Untersuchung der Einflüsse der am FLASH erzeugten verrauschten XUV-Pulse auf diese Linienänderung werden ebenfalls durchgeführt.

Electron-correlation in helium interacting with strong XUV laser pulses:

In this work the interaction of helium with intensive XUV-pulses is investigated numerically to interpret the experiments (june 2016) performed at FLASH (**F**ree-Electron-**L**aser in **H**amburg).

For this purpose the helium atom can be regarded as a *few-level-model*, furthermore the electron-correlation as well as the coupling with the continuum are considered. The time-dependent Schrödinger equation of the system is solved with discrete time steps. The result is an intensity dependent variation of the observed 2s2p resonance's line shape. This variation is explained by an energy-change induced phase-shift. With this, results and explanations of similar experiments using intense IR-pulses and weak high harmonics can be confirmed. First steps of the influence on this line shape variation due to noisy XUV-pulses produced at FLASH are investigated as well.

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1 Grundlagen	3
1.1 Ultrakurze Laser-Pulse	3
1.2 Quantenmechanische Systeme	6
1.3 Elektronenkonfiguration von Helium	7
1.4 Autoionisation & Fano-Formalismus	8
1.5 Dressed States und Rabi-Oszillation	11
2 Experimenteller Aufbau am <i>FLASH</i>	15
3 Simulationstechniken	17
3.1 Partielle-Kohärenz-Methode	17
3.2 Simulationen zum Few-Level-Model	18
3.3 Kontinuumszustände	21
4 Diskussion der Ergebnisse	23
4.1 Ergebnisse des 2-Level-Modells	23
4.2 Simulationen mit Kontinuumskopplung	26
4.3 Experimentelle Resultate	33
5 Zusammenfassung und Ausblick	37

Einleitung

Moderne Beschleunigeranlagen wie FLASH ermöglichen es, extrem kurze (fs-Bereich, 10^{-15} s) und intensive ($\leq 10^{16} \frac{W}{cm^2}$) Laserpulse im extrem ultra-violetten (XUV) und im weichen Röntgenbereich zu erzeugen. Damit können Experimente zur Untersuchung von Atomen und Molekülen auf kleinsten Zeitskalen durchgeführt werden, um die Grundlagen der Materie sowie die physikalischen (quantenmechanischen) Modelle dahinter zu testen und zu verstehen. Dafür werden neben den Experimenten auch Computersimulationen benötigt, da physikalische Phänomene wie z.B. die Elektronenkorrelation in Mehr-Elektron-Atomen theoretisch nur schwierig zu beschreiben sind und keine analytischen Lösungen haben. Das Ziel dieser Arbeit ist es, Simulationsergebnisse zu erzeugen, mit denen Experimente am FLASH verstanden werden können. Bevor Ergebnisse komplexe Systeme, wie z.B. die untersuchten Iod-Moleküle in dem von unserer Arbeitsgruppe durchgeführten Experiment diskutiert werden, werden die Grundlagen an Helium-Messungen getestet. Das Heliumatom mit nur 2 Elektronen ist das einfachste Mehr-Elektron-Atom und bietet sich daher vielfältig im Bereich der Kurzpulsphysik an, um ein erstes Verständnis der jeweiligen Problematik zu gewinnen. Dadurch motiviert, werden in dieser Arbeit verschiedene Simulationsmodelle in Anlehnung an das Heliumatom verwendet, um die abschließend diskutierten experimentellen Resultate zu interpretieren. Dabei wird das Heliumatom auf ein *Few-Level-Model* reduziert, d.h. das Atom wird mit Hilfe einer geringen Anzahl an Eigenzuständen beschrieben, die durch das numerische Lösen der zeitabhängigen Schrödingergleichung propagieren. In verschiedenen Implementierungen dieses Few-Level-Models durch variierende Beschreibungen eines *Kontinuumszustands* wird versucht zu verstehen, wie sich die betrachtete Absorptionslinie des 2s2p Zustands intensitätsabhängig ändert. Es soll getestet werden, ob die gemessene Linienformänderung in intensiven XUV-Feldern mit einem ähnlichen Modell beschrieben werden kann, mit dem die Änderungen der 2s2p Resonanzlinie in Experimenten mit intensiven infrarot (IR) und schwachen XUV-Pulsen erklärt werden (siehe [1] und [2]).

Die Rechnungen dieser Arbeit werden in atomaren Einheiten a.u. (englisch: *atomic units*) durchgeführt. Für diese gilt:

$$e = m_e = \hbar = a_0 = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} = 1.$$

Verschiedene (SI-)Einheiten lassen sich dadurch einfacher umrechnen. Die wichtigsten Größen für diese Arbeit in atomaren Einheiten sind Zeit $t_{a.u.} = 0,02412$ fs und elektrische Feldstärke $E_{a.u.} = 5,1422 \cdot 10^{11} \frac{V}{m}$. Die präsentierten Resultate sind dahingegen, wenn nicht anders kommentiert, in SI-Einheiten angegeben, da diese einfacher zu interpretieren sind.

1 Grundlagen

Dieses Kapitel soll die Grundlagen für das Verständnis dieser Arbeit liefern, wobei hierfür die theoretischen und mathematischen Konzepte präsentiert werden. Die Überlegungen hierfür stammen aus [3]. In den anschließenden Kapiteln werden der experimentelle Aufbau zu den Messungen am FLASH und die Simulationstechniken der verwendeten Computerprogramme erklärt.

Zuerst werden in Abschnitt 1.1 ultrakurze Laserpulse vorgestellt und in Abschnitt 1.2 werden freie und gebundene Zustände in allgemeinen Quantensysteme eingeführt. Daraufhin behandelt Unterkapitel 1.3 die Elektronenkonfiguration des Helium-Atoms. Anschließend werden die in dieser Arbeit wichtigsten Prozesse und Eigenschaften in Helium, *Autoionisation* und die daraus resultierende *Fano-Linien* in Abschnitt 1.4 erläutert. In Abschnitt 1.5 folgt eine Beschreibung des *dressed states*-Modells im Bereich der Licht-Materie-Wechselwirkung, welche auch eine Erläuterung zu der dazugehörigen *Rabi-Oszillation* beinhaltet.

1.1 Ultrakurze Laser-Pulse

In diesem Abschnitt wird eine Einführung in die Ultrakurzzeitpulse präsentiert. Die mathematischen Grundlagen sowie der Unterschied zwischen gaußförmigen und *verrauschten* oder auch *partiell kohärenten* Pulsen wird erläutert. Zweitere werden unter anderem am FLASH erzeugt und für die in dieser Arbeit diskutierte Messung verwendet, weshalb auf diese ausführlicher eingegangen wird.

Ein Laserpuls wird in einfachster Form als zeitliche Schwingung des elektrischen Feldes E transversal zur Ausbreitungsrichtung z , eingehüllt von einer Gauß-Funktion modelliert:

$$E(z, t) = \underbrace{E_0}_{\text{Amplitude}} \operatorname{Re} \left(\underbrace{e^{\frac{(t-t_0)^2}{2\tau_p^2}}}_{\text{Einhüllende}} \underbrace{e^{i(w_0 t - k(w_0)z)}}_{\text{Schwingung}} \right), \quad (1.1)$$

woraus sich seine Intensität I ergibt zu:

$$I = \frac{1}{2} \epsilon_0 c E^2. \quad (1.2)$$

Dabei wird ω_0 als *Trägerfrequenz* aufgefasst und $k(\omega_0)$ ist der dazugehörige Wellenvektor. Die zeitliche Pulsbreite wird mit τ_p und der zeitliche Mittelwert als t_0 bezeichnet. Das Spektrum eines solchen Pulses ergibt sich aus der Fouriertransformation und ist ebenfalls gaußförmig. Aus der Fourierunschärfe (s. [4])

$$\tau_p \cdot \Delta\nu \geq \textit{konstant} \quad (1.3)$$

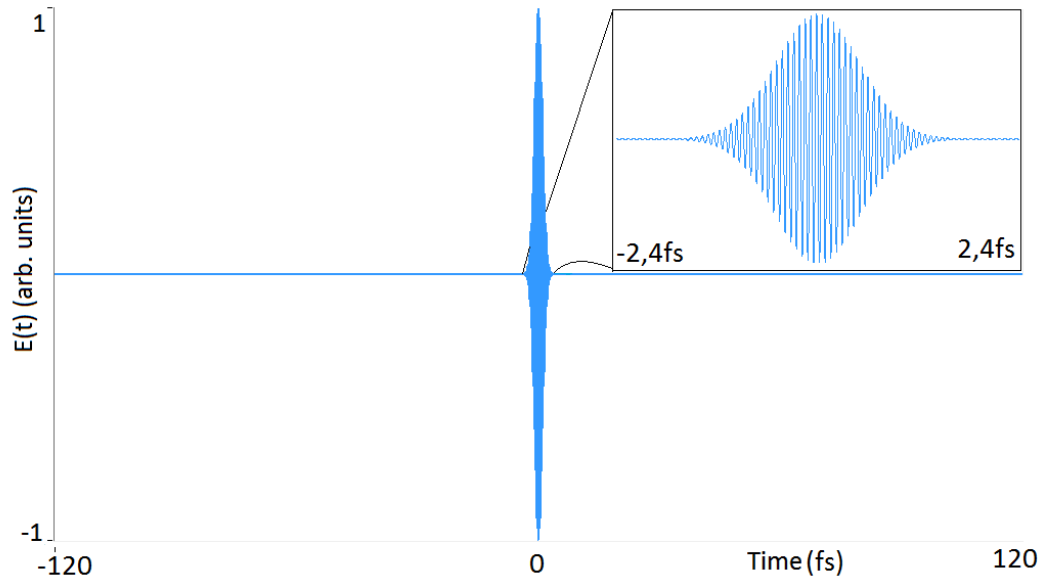
folgt zudem, dass es für zeitlich kurze Pulse ein breites kohärentes Pulsspektrum $\Delta\nu$ geben muss. Wenn diese Fourierunschärfe bestmöglich erfüllt wird, spricht man auch von *bandbreitenbegrenzten* Pulsen. Verrauschte Pulse unterscheiden sich in diesem Punkt von den gaußförmigen. Für diese ist die Ungleichung nur sehr schlecht erfüllt:

$$\tau_p \cdot \Delta\nu \gg \textit{konstant}. \quad (1.4)$$

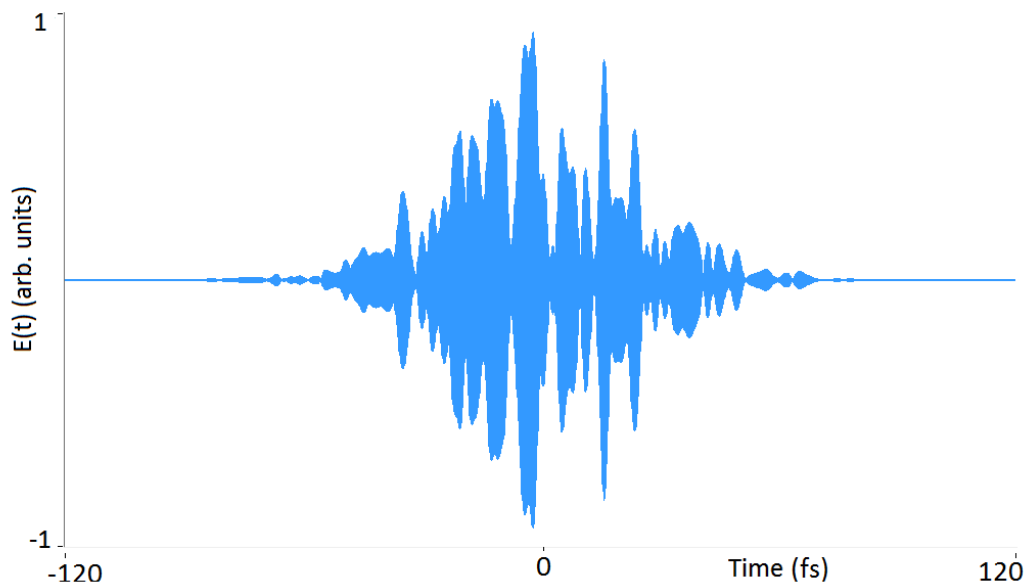
Das Verrauschen der Pulse ändert die temporalen und spektralen Eigenschaften der Pulse, welche nicht mehr bandbreitenbegrenzt sind und somit zeitlich breiter als bandbreitenbegrenzte Pulse bei gleich breitem Spektrum sind. Die spektrale Phase $\Phi(\omega)$ ist bei diesen Pulsen nicht mehr konstant und kann auch nicht mit einem *Chirp*, also einem funktionalen Zusammenhang wie z.B. linearer oder quadratischer Zunahme der Phase mit der Frequenz, modelliert werden. Statt dessen ist die Phasenabhängigkeit statistischer Natur, d.h. zufällig verteilt bzw. dem Namen nach verrauscht. Bei partiell kohärenten Pulsen tritt dieser Effekt des Verrauschens nur bis zu einem gewissen Grad auf. Mit solchen Pulsen sind die in Kapitel 4 vorgestellten Messergebnisse aufgenommen worden. In [5] findet sich eine ausführliche Beschreibung der hier präsentierten Zusammenfassung, wie am FLASH solche Pulse entstehen:

Elektronenpakete, welche in einem Undulator beschleunigt werden, strahlen zunächst inkohärente Strahlung ab. Durch den Prozess der sogenannten *SA-SE (Self-Amplified Spontaneous Emission)* wird den Elektronenpaketen eine Struktur, zu englisch *microbunches*, aufgeprägt, sodass die Strahlung konstruktiv interferiert und damit die Pulse kohärenter werden. Nachdem die Mikrobunches-Bildung abgeschlossen ist, geht dieser Prozess jedoch in Sättigung. Folglich können die Pulse nur partielle Kohärenz erreichen.

Diese besitzen eine veränderte Form der Einhüllenden im Vergleich zu den Gaußpulsen auf Grund der nicht mehr idealen konstruktiven Interferenz. Ein Vergleich zwischen einem gaußschen und einem verrauschten Puls ist in Abbildung 1.1 dargestellt.



(a) Gausspuls



(b) Verrauschter Puls

Abbildung 1.1: Gauß- und verrauschter Puls im Vergleich

In **a)** ist ein zeitlicher Gaußpuls mit $\tau_p = 1$ fs geplottet. Der Ausschnitt oben rechts im Bild vergrößert den Bereich um $t_0 = 0$, um die zeitlichen Oszillationen aufzulösen. Mit den selben Parametern für Intensität (hier auf 1 normiert) und spektrale Breite ($\Delta\nu = 1,8$ eV/ \hbar) wird wie in Kapitel 3 beschrieben in **b)** ein verrauschter Puls erzeugt. Man erkennt, dass die Einhüllende deutlich verändert wird. Auf Grund der statistischen Natur variieren solche Pulse stark. Im Durchschnitt beträgt die Pulsbreite $\tau_p = 50$ fs. Die Oszillationen unter der Einhüllenden entsprechen denen aus **a)** und werden daher nicht erneut vergrößert dargestellt.

1.2 Quantenmechanische Systeme

In der Quantenmechanik werden orts- und zeitabhängige Zustände $|\Psi(x, t)\rangle$ eingeführt, um das Verhalten und die Dynamik von Teilchen und Wellenpaketen zu modellieren. Wichtigste Kenngröße für die Energie ist der Hamiltonoperator \mathcal{H} . Mit diesem kann die zeitabhängige Schrödingergleichung (SGL) als Bewegungsgleichung der Quantenmechanik folgendermaßen formuliert werden:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(x, t)\rangle = \mathcal{H} |\Psi(x, t)\rangle. \quad (1.5)$$

Im stationären Fall, d.h. wenn \mathcal{H} zeitunabhängig ist, kann diese als Eigenwertgleichung aufgefasst werden. Damit ergeben sich normierte Eigenzustände $|\Psi_n(x)\rangle$ mit Energie-Eigenwerten E_n zum Hamiltonoperator, welcher als $N \times N$ -Matrix aufgefasst werden kann. Bei räumlich gebundenen atomaren Zuständen, wie z.B. Elektronen im He-Atom, spricht man hier für $n = 0$ vom Grundzustand und für alle $n \geq 1$ von angeregten Zuständen als zeitliche Lösungen der SGL:

$$|\Psi_n(x, t)\rangle = e^{-iE_n t/\hbar} |\Psi_n(x)\rangle. \quad (1.6)$$

Das daraus resultierende System stationärer Zustände ist ein Orthonormalsystem, sortiert nach steigendem n mit $E_0 < E_1 < \dots < E_N$. Allgemein kann nun jeder Zustand als Superposition dieser Eigenzustände beschrieben werden:

$$|\Psi(x, t)\rangle = \sum_n c_n |\Psi_n(x, t)\rangle. \quad (1.7)$$

Aus den Koeffizienten $c_n(x, t) = \langle \Psi(x, t) | \Psi_n(x, t = 0) \rangle$ folgen die Wahrscheinlichkeiten $P_n = |c_n|^2$ für die Besetzung der jeweiligen Eigenzustände. Aus Normierungsgründen wird $\sum_n P_n = 1$ gefordert.

Bislang wurden jedoch nur *gebundene* Zustände mit einem diskreten Energie-Eigenwertspektrum betrachtet. Darüber hinaus gibt es auch *freie* Zustände. Damit werden Elektronen mit Eigenenergien oberhalb der atomaren Ionisationsschwelle beschrieben, die sich aufgrund ihrer kinetischen Energie frei im Kontinuum ausbreiten können. Aufgrund dessen besitzen freie Zustände auch kein diskretes, sondern ein kontinuierliches Energiespektrum.

Auch hier wird eine Entwicklung nach Eigenfunktionen angestrebt. Für ungebundene Zustände bietet sich dafür die Beschreibung in freien Wellen an. Diese sind über ihre Wellenlänge λ charakterisiert und somit auch über den Wellenvektor $k = 2\pi/\lambda$, sowie durch ihren Impuls $p' = \hbar k$ und ihre Energie $E' = \frac{p'^2}{2m}$, sodass zwischen der Beschreibungsgröße frei gewechselt werden kann.

In der Regel findet man diese als Impulseigenfunktion beschrieben:

$$\Psi_{p'}(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\hbar}} e^{ip'x/\hbar}. \quad (1.8)$$

Zur mathematischen Behandlung eines freien Zustands muss daher die Summe aus Gl. 1.7 durch ein Integral ausgetauscht werden, um alle kontinuierlichen kinetischen Energien E' aufzusummieren. Benennt man die Beimischungskoeffizienten mit $b_{E'}$, so kann ein freier Zustand beschrieben werden als:

$$|\Psi_{E'}\rangle = \int dE' b_{E'} |\Psi_{E'}\rangle. \quad (1.9)$$

Ein allgemeiner quantenmechanischer Zustand kann aus Anteilen sowohl gebundener als auch freier Zustände bestehen:

$$|\Psi\rangle = \sum_n c_n |\Psi_n\rangle + \int dE' b_{E'} |\Psi_{E'}\rangle. \quad (1.10)$$

1.3 Elektronenkonfiguration von Helium

Die Bedeutung der gleichzeitigen Präsenz von freien und gebundenen Zuständen soll in diesem Abschnitt am Beispiel des Helium-Atoms verdeutlicht werden.

Dieses kann als zweifach geladener Kern umgeben von zwei Elektronen modelliert werden. Hierbei ist nicht nur die Wechselwirkung zwischen Kern und Elektron(en) zu beachten, sondern auch die Wechselwirkung zwischen den beiden Elektronen. Dieses Problem ist analytisch nicht mehr lösbar, sodass Näherungsansätze benötigt werden. In 0. Ordnung vernachlässigt man die Elektronen-Korrelation vollständig, in 1. Ordnung ändert jedes der Elektronen nur die effektive Kernladung des jeweils anderen. In diesem Fall kann die Gesamtwellenfunktion über einen Produktansatz aufgestellt werden:

$$|\Psi\rangle = |\Psi_{nl}\rangle \cdot |\Psi_{n'l'}\rangle = |nl, n'l'\rangle.$$

Dabei werden die Elektronen jeweils mit $|nl\rangle$ und $|n'l'\rangle$ beschrieben, wobei n der Hauptquantenzahl wie in Abschnitt 1.2 und l der Drehimpulsquantenzahl ($0 \leq l \leq n-1$, auch $l = s, p, d, \dots$ üblich) entspricht. In dieser Notation können Strahlungsprozesse beschrieben werden, welche zur Umordnung der Elektronenkonfiguration im Atom führen können. Angefangen beim Grundzustand $|1s1s\rangle$ können so folgende vier Konfigurationen erreicht werden:

- **Einfachanregung** ($|1s, n'l'\rangle$):
 Eines der beiden Elektronen wird in einen angeregten Zustand $|n'l'\rangle$ ($n' > 1$) gebracht, während das andere im Grundzustand $|1s\rangle$ bleibt.

- **Einfachionisation** ($|1s, \infty\rangle$):
Das Helium-Atom wird einfach ionisiert, indem das eine Elektron genug Energie absorbiert, um das Atom zu verlassen. Der Überschuss an Energie $\Delta E = E_{Strahlung} - E_{Ionisation}$ wird zur kinetischen Energie des e^- . Auch hier bleibt das zweite Elektron im Grundzustand $|1s\rangle$.
- **Doppeltanregung** ($|nl, n'l'\rangle$):
Die Energie eines einzelnen Photons teilt sich auf beide Elektronen auf, sodass beide in einen angeregten Zustand $|nl\rangle, |n'l'\rangle$ angehoben werden ($n, n' > 1$).
- **Doppeltionisation** ($|\infty, \infty\rangle$):
Der Prozess läuft analog zur Einfachionisation ab, allerdings absorbieren beide Elektronen genug Energie, um ionisiert zu werden.

1.4 Autoionisation & Fano-Formalismus

Dem in Abschnitt 1.3 beschriebenen Bild ist hinzuzufügen, dass es doppelt-angeregte Zustände $|nl, n'l'\rangle$ gibt, deren Energie über der Ionisationsschwelle ($E_{Ion} = 24,6$ eV) für den einfach ionisierten Zustand $|1s, \infty\rangle$ liegt. Abbildung 1.2 verdeutlicht dies. Nun kann so ein doppelt angeregter Zustand strahlungsfrei in einen Kontinuumszustand übergehen. In dieser Arbeit wird insbesondere der Übergang $|2s, 2p\rangle \rightarrow |1, \infty\rangle$ untersucht.

Diesen Vorgang nennt man *Autoionisation*, da der doppelt angeregte Zustand nicht mehr weiter mit Photonen wechselwirken muss, um ein Elektron ins Kontinuum zu entlassen, während das zweite in den Grundzustand abfällt. Die Elektronen-Korrelation führt zu einem Energieaustausch zwischen den Elektronen zur Ionisation des Atoms und wird auch *Auger-Effekt* genannt.

Somit führen sowohl *Einfachionisation* als auch *Autoionisation* im externen Strahlungsfeld vom selben Anfangs- in den gleichen Endzustand des Heliumatoms:

$$He + \gamma \rightarrow \begin{cases} He^+ + e^-, & \text{Einfachionisation} \\ He^{**} \rightarrow He^+ + e^-, & \text{Autoionisation} \end{cases}$$

Dabei bezeichnet He^{**} den doppelt angeregten Zustand. Die beiden Übergänge vom Grundzustand in den einfach ionisierten Zustand sind experimentell nicht unterscheidbar. Deshalb koppeln diese beiden Pfade mit bestimmten Wahrscheinlichkeiten und Phasen aneinander. Das Resultat ist eine *quantenmechanische Interferenzerscheinung*, welche zu der Änderung der Linienform des doppeltangeregten Zustands führt. Die Elektronen-Korrelation führt damit zu einer *Fano-Resonanz*, welche im Folgenden genauer diskutiert wird.

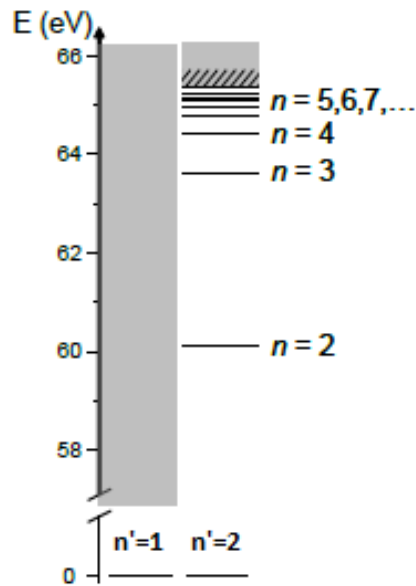


Abbildung 1.2: Energien für einfach und doppelt angeregte Zustände in Helium

Der linke mit $n' = 1$ beschriebene Kanal zeigt das breite Kontinuum des äußeren Elektrons für einfach ionisiertes Helium. Dabei bezeichnet $n' = 1$ die Besetzung des Grundzustandes des inneren Elektrons. Rechts sieht man die diskreten Zustände für doppelt angeregtes Helium bis zur Ionisationsschwelle von 65,4 eV, wobei das eine Elektron den $n' = 2$ Zustand einnimmt und das andere den jeweils mit n bezeichneten. Abbildung entnommen aus [6].

Wie in der Originalveröffentlichung von U.Fano [7] beschrieben, lässt sich ein autoionisierender Zustand beschreiben gemäß (vgl. Gl. 1.10):

$$|\Psi_E\rangle = a|\phi\rangle + \int dE' b_{E'} |\psi'_{E'}\rangle. \quad (1.11)$$

Dabei wird ab sofort der Zustand im Energieraum statt im Impulsraum dargestellt und a und $b_{E'}$ sind die entsprechenden phasenabhängigen Koeffizienten zur Beimischung des gebundenen Zustands $|\phi\rangle$ und der freien Zustände $|\Psi_E\rangle$, deren Energie mit der des gebundenen Zustands entartet sind. Zunächst sollen zwei Spezialfälle betrachtet werden:

Vernachlässigt man das Kontinuum, so kann durch eine Photonanregung der Grundzustand in den $2s2p$ Zustand gehoben werden. Die dadurch induzierte Dipolantwort des Systems $d(t)$ entspricht einer exponentiell gedämpften Schwingung im Zeitraum. Fouriertransformiert ergibt sich eine Lorentz-Resonanz-

Linie mit Halbwertsbreite $\Gamma_{2s2p} = 37 \text{ meV}$ [8] und der Form:

$$\sigma(\epsilon)_{\text{Gebunden}} \propto \frac{1}{1 + \epsilon^2}, \quad (1.12)$$

wobei ϵ als *reduzierte Energie* definiert ist (E_{ph} entspricht der Photonenenergie):

$$\epsilon = 2 \frac{E_{ph} - E_{\phi}}{\Gamma}. \quad (1.13)$$

Der oben eingeführte Absorptionsquerschnitt $\sigma(\epsilon)$ entspricht der Wahrscheinlichkeit für bestimmte Energien E_{ph} bzw ϵ eine Anregung des Zustands stattfinden zu lassen.

Betrachtet man den entgegengesetzten Extremfall des Kontinuums ohne diskreten Zustand, so ist die Anregungswahrscheinlichkeit energieunabhängig, da die kontinuierlichen Zustände alle gleich wahrscheinlich sind:

$$\sigma_{\text{Kont}}(\epsilon) = \textit{konstant}. \quad (1.14)$$

Beim allgemeinen Zustand wechselwirken Kontinuum und angeregter Zustand. Die entstehende Fano-Resonanz wird dabei durch

$$\sigma(\epsilon)_{\text{Fano}} \propto \frac{(q + \epsilon)^2}{1 + \epsilon^2} \quad (1.15)$$

beschrieben. Der oben eingeführte *Fanoparameter* q beschreibt die Linienform der Resonanzlinie. Er hängt direkt mit der Phase Φ zusammen, mit der die Dipolschwingung im Zeitraum durch die Kontinuumswechsekwirkung verschoben wird wird:

$$q(\Phi) = -\cot\left(\frac{\Phi}{2}\right) \quad (1.16)$$

$$\Leftrightarrow \Phi(q) = 2 \arg(q - i). \quad (1.17)$$

Dieser Zusammenhang wurde in von Ott et al. [2] nachgewiesen und wird in Abbildung 1.3 dargestellt.

Für $q \rightarrow \pm\infty$ ergibt sich nach Gleichung 1.15 ein Lorentz-Peak, für $q = 0$ ein Lorentz-Dip und für alle weiteren Werte für q eine Fanolinie.

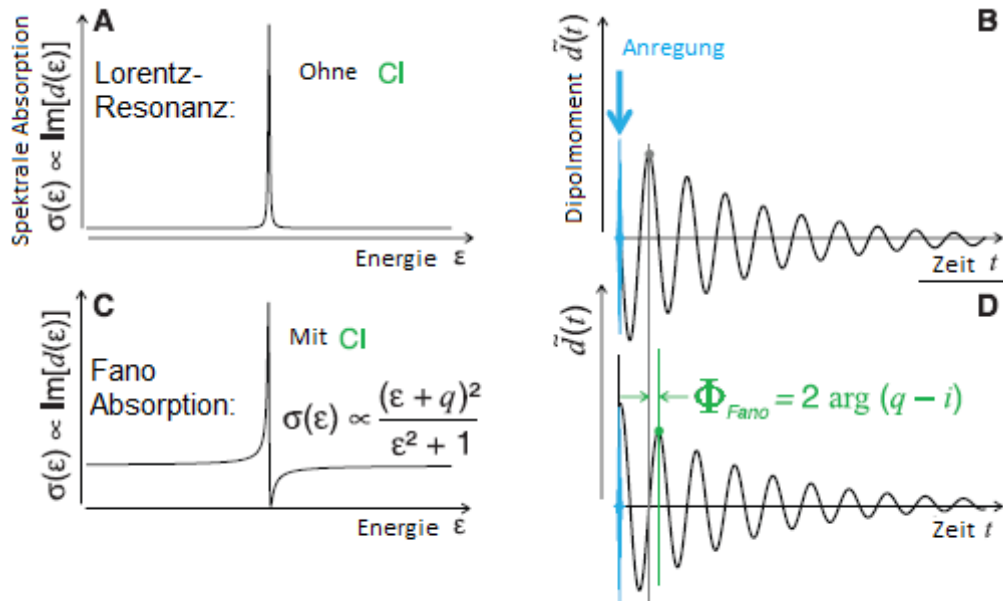


Abbildung 1.3: Fanolinien und Dipolantwort

A zeigt eine Lorentzprofil für den Absorptionsquerschnitt σ im Spektrum einer ungestörten Dipolantwort, deren zeitlicher Verlauf in **B** dargestellt ist. Für $t = 0$ verschwindet deren Phase Φ . Nach Gl. 1.16 geht der q -Parameter daher gegen ∞ , sodass die Resonanz lorentzförmig ist. **C** und **D** zeigen den selben Zusammenhang bei eingeschalteter Konfiguration-Interaktion ('CI'). Durch die Phasenverschiebung Φ_{Fano} in **D** wird aus dem Lorentz- ein Fanoprofil in **C**. Entnommen und modifiziert aus [1].

1.5 Dressed States und Rabi-Oszillation

Nachdem nun Laserpuls und Atom jeweils einzeln betrachtet worden sind, soll in diesem Abschnitt ein Bereich der Wechselwirkung von Licht mit Materie erläutert werden. Insbesondere das Bild der *dressed states* und die *Rabi-Oszillation* werden im Folgenden erklärt. Dafür wird ein einfaches 2-Level-System betrachtet. In Anlehnung an das Heliumatom werden hier ein Grundzustand (g) mit $E_g = 0$ eV und ein angeregter Zustand (e , *englisch: excited*) mit $E_e = 60,2$ eV (entspricht der Energie des 2s2p Helium-Zustands) festgelegt. Durch einen (intensiven) XUV-Puls werden diese beiden Zustände gekoppelt. Der Versatz der Laserenergie E_{ph} zur Energie des angeregten Zustands E_e wird mit dem *Detuning* Δ beschrieben. Im resonanten Fall gilt: $E_e - E_g = E_{ph}$ und $\Delta = 0$. Durch die Wechselwirkung mit dem Laser entstehen sogenannte *dressed states* [9]. Sie beschreiben (virtuell) verschobene Zustände des Atom-

Licht-Systems. Abhängig vom Detuning kann so z.B der Grundzustand über (E_{ph} blauverschoben), auf oder unter (E_{ph} rotverschoben) den angeregten Zustand projiziert werden (siehe Abbildung 1.5). Der verschobene Zustand wird statt mit $|g\rangle$ ab sofort mit $|g'\rangle$ bezeichnet. Die Energie eines solchen Zustands $E_{g'}$ entspricht der Summe aus E_{ph} und E_g .

Durch die Kopplung sind obige Zustände keine Eigenzustände des Systems mehr. Es lässt sich herleiten, dass die Eigenzustände nun beschrieben werden können als:

$$E^\pm = \frac{E_{g'} + E_e}{2} \pm \hbar \Omega'_R. \quad (1.18)$$

Für eine genauere mathematische Beschreibung siehe [9] oder [10]. Dabei entspricht Ω'_R der verallgemeinerten Rabi-Frequenz, welche sich aus dem Detuning und der Rabi-Frequenz Ω_R zusammensetzt:

$$\Omega'_R = \sqrt{\Delta^2 + \Omega^2} \quad (1.19)$$

$$\Omega_R = \frac{d_{eg}E(t)}{\hbar}. \quad (1.20)$$

Die Rabi-Frequenz ist abhängig von der elektrischen Feldstärke $E(t)$ des Lasers und somit auch von dessen Intensität. Sie beschreibt, wie im zeitlichen Verlauf die Besetzungswahrscheinlichkeit zwischen den Eigenzuständen hin und her oszilliert (siehe Abbildung 1.4). Da das System anfangs im Grundzustand ist, werden solange Elektronen in den angeregten Zustand gebracht, bis dieser maximal besetzt ist: $c_e = 1$. Für ein zeitlich konstantes Feld werden anschließend die Elektronen wieder in den Grundzustand gebracht, bis dieser erneut voll besetzt ist ($c_g = 1$) und der Vorgang beginnt von vorne.

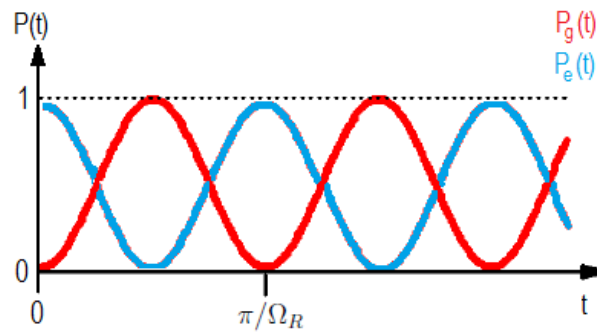
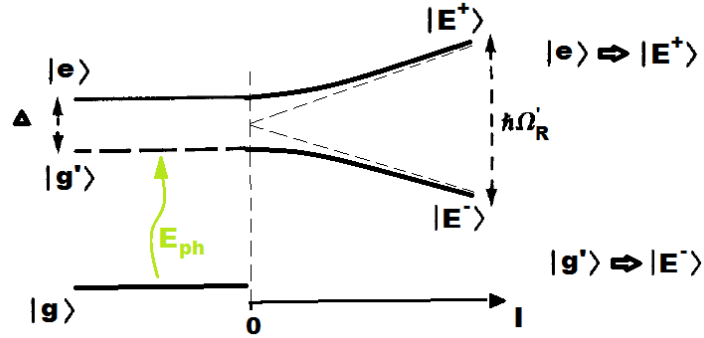


Abbildung 1.4: Rabi-Oszillation der Besetzungswahrscheinlichkeiten

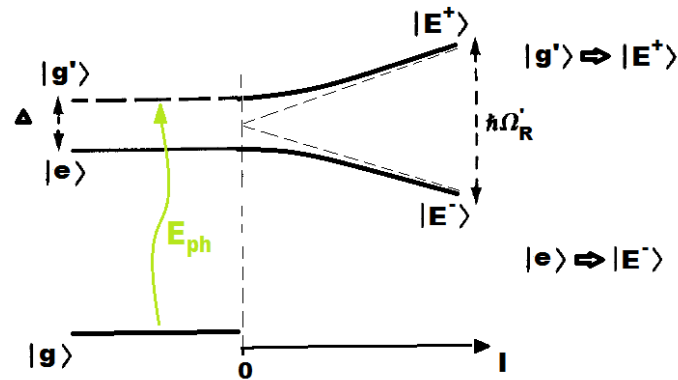
Das Laserfeld koppelt Grund- und angeregten Zustand, sodass die Besetzung der Zustände zwischen diesen hin und her oszilliert.

Für einen ultrakurzen Laserpuls, wie in dieser Arbeit verwendeten, tritt dieser Effekt nur während der kurzen Dauer der Wechselwirkung des Pulses mit dem System auf. Zudem ändert sich mit der Intensität die Rabi-Frequenz nach Gleichung 1.20. Damit schwingen die Besetzungswahrscheinlichkeiten nahe des zeitlichen Pulsmaximums schneller als in den Seiten. Nach Abklingen des Laserpulses ($t \rightarrow \infty$) haben sich die Besetzungswahrscheinlichkeiten abhängig von der vorherigen Oszillation bei bestimmten Werten $c_{g',\infty}$, $c_{e,\infty}$ eingependelt. Da diese Oszillationen während der Dauer der Interaktion des Pulses mit den Zuständen intensitätsabhängig sind, variieren auch $c_{g',\infty}$, $c_{e,\infty}$ mit der Intensität. Diese Abhängigkeit wird im späteren in Kapitel 4.1 benötigt, um dort die physikalischen Ereignisse zu diskutieren.

Neben den Rabi-Oszillationen treten auch noch weitere Effekte auf. Aus Gleichung 1.18 folgt, dass die Eigenwerte abhängig von der Intensität des Lasers verschoben werden. Wenn die Intensität, und damit die Rabi-Frequenz groß genug sind, kann in der Gleichung das Detuning vernachlässigt werden, sodass die Eigenwerte sich proportional zu $\pm\Omega'_R$ verhalten. Bei steigender Intensität stoßen sich die Eigenwerte gegenseitig ab. Welcher der beiden atomaren Zustände $|g\rangle$ oder $|e\rangle$ sich für (verschwindend) geringe Intensitäten energetisch höher befindet, hängt vom Detuning ab. Dadurch entscheidet sich auch, welcher dieser Zustand bei ansteigender Intensität zu höheren $|E^+\rangle$ und welcher zu niedrigeren Energien $|E^-\rangle$ verschoben wird. Abbildung 1.5 verdeutlicht dies. Für mehr Level-Systeme sind diese Prozesse komplizierter und können nicht mehr einfach schematisch dargestellt werden.



(a) dressed states für rotverschobene Photonenenergie



(b) dressed states mit blauverschobener Photonenenergie

Abbildung 1.5: Intensitätsabhängigkeit der Eigenzustände E^\pm im dressed states Bild

In **a**) wird der Grundzustand $|g\rangle$ durch den Laserpuls in den dressed state $|g'\rangle$ im Abstand Δ unterhalb des angeregten Zustands $|e\rangle$ projiziert (links). Durch Erhöhung der Intensität werden die Eigenzustände auseinander geschoben (rechts), für hohe Intensitäten nähern sie sich dem Limes $\Omega_R \gg \Delta$ (gestichelte Linien). In **b**) ist das selbe Bild im blauverschobenen Fall skizziert. Grundzustand und angeregter Zustand tauschen ihre Rollen im Intensitätsverlauf.

2 Experimenteller Aufbau am *FLASH*

Im Folgenden soll der Aufbau am Freien-Elektronen-Laser (FEL) am Desy, Hamburg, erläutert werden. Dafür wird zunächst kurz auf die für diese Arbeit wichtigsten Bestandteile des *FLASH* eingegangen und anschließend der am Max-Planck-Institut für Kernphysik für solche Messungen erstellte experimentelle Aufbau präsentiert. In Abbildung 2.1 sind beide Teile skizziert.

Funktionsweise und Eigenschaften des FEL sollen an dieser Stelle nicht diskutiert werden. Hierfür wird auf [11] verwiesen. Die vom *FLASH* gelieferten Pulse entsprechen für die Helium-Messungen der Resonanz des 2s2p Zustands von 60,2 eV bzw. 20,6 nm. Die Intensität wird durch den *Gas-Attenuator* variiert. Dafür wird der ca. 15m lange Attenuator mit Neon gefüllt (In Abbildung 2.1 hellbraun dargestellt), sodass bei der Propagation des XUV-Pulses durch das Gas die Intensität abgeschwächt wird [12]. Dem Lambert-Beerschen Gesetz nach, fällt dabei die Intensität des Lasers exponentiell mit dem Absorptionsquerschnitt σ_{Neon} , der Länge des Wechselwirkungsbereichs L und der druckabhängigen Dichte des Gases $\rho(p_{Neon})$ ab [13]. Da L durch die Länge des Attenuators und σ_{Neon} durch die Wahl des Gases festgelegt werden, kann die Intensität der Laserpulse durch Erhöhung des Gasdrucks abgeschwächt werden. Mit jeweils einem Gas Monitor Detektor (GMD) am Anfang und Ende des Attenuators kann nicht-invasiv das Ionisationsvermögen des Lasers gemessen werden und somit die Pulsenergie bestimmt werden. Dieser Vorgang ermöglicht die in Kapitel 4 diskutierten experimentellen Intensitätsscans. Daraufhin wird mit einem Gitter die erste Beugungsordnung des Lasers abgelenkt und diese simultan als Referenzspektrum mit einer CCD-Kamera (PCO) mitgeschrieben. Anschließend fokussiert der *FLASH* interne Ellipsoid-Spiegel den Puls mit einer Brennweite $f = 2m$ auf eine Fokusfläche in der Targetkammer von ca. $25 \times 25 \mu m$. Dort befindet sich das Helium-Gas (blau) bei einem Druck von ≈ 100 mbar, mit welchem die Pulse wechselwirken sollen. Der restliche, weiß hinterlegte Hintergrund entspricht einem Vakuum mit $p \leq 10^{-6}$ mbar, sodass die Intensität des Laserpulses vor Erreichen des Targets nicht zu stark abgeschwächt wird. Schließlich durchläuft der Laserpuls das Spektrometer-System, welches dem aus [6] entspricht. Das eindimensionale Gitter lenkt die erste Ordnung der Gitterbeugung ab und die unterschiedlichen Spektralanteile werden durch die Wellenlängenabhängigkeit der Beugungseffekte räumlich getrennt.

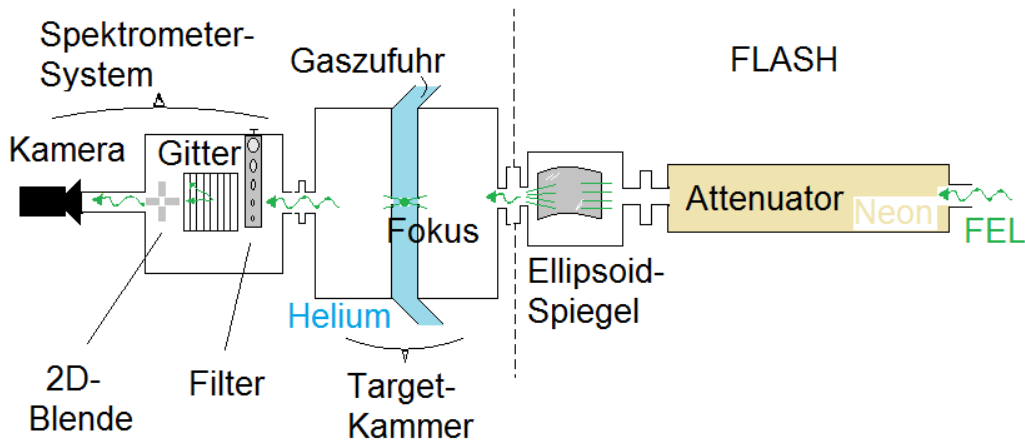


Abbildung 2.1: Skizze des Experimentellen Aufbaus

Von rechts kommend durchläuft der vom FEL generierte Laserpuls erst den Abschwächer (Attenuator) und dann den Ellipsoidspiegel des FLASH eigenen Aufbaus zum Fokussieren in die Target-Kammer. Dort wechselwirkt der Laser mit dem Heliumgas und das entstandene Signal wird im Spektrometer-System durch das Gitter gebeugt, sodass es als Spektrum mit der Kamera (links) ausgelesen werden kann.

Die Skizze beinhaltet nur die für diese Arbeit wesentlichen Merkmale des Aufbaus.

Dabei wird eine Auflösung bei Energien $\propto 60$ eV von ungefähr $A = \frac{\lambda}{\Delta\lambda} \propto 1278$ ähnlich wie in [6] angenommen. Die Aluminiumfilter vor und die 2D-Blende nach dem Gitter helfen dabei, geometrische Effekte im Pulsprofil abzuschneiden und die Pulsintensität soweit zu vermindern, dass bei der Aufnahme der Spektren mit der CCD-Kamera diese nicht beschädigt wird.

3 Simulationstechniken

Die Simulationsergebnisse in Kapitel 4 sind Hauptmerkmal dieser Arbeit. Daher sollen in diesem Kapitel die Konzepte und Umsetzungen der Simulationen dargestellt werden. Alle Computerprogramme für diese Arbeit sind mit *Lab-View13* geschrieben worden.

Zunächst wird in Abschnitt 3.1 erläutert, wie die in Kapitel 1.1 eingeführten partiell kohärenten Pulse nachgeahmt werden können.

In Abschnitt 3.2 werden die Simulationen zum *2-Level-Model* anhand des Diagonalisierungsverfahren zur Eigenwertgleichung aus Kapitel 1.2 erläutert.

Verschiedene Beschreibungsmöglichkeiten zur Simulation des Kontinuums sind in Abschnitt 3.3 zusammengefasst.

3.1 Partielle-Kohärenz-Methode

Die *Partielle-Kohärenz-Methode* wurde in der Dissertation von Meyer (et al.) [5] behandelt und in dem Paper [14] veröffentlicht. Die folgende Zusammenfassung basiert auf diesen beiden Quellen und ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Die Kernidee basiert auf der per Zufallsgenerator bestimmten Phase des diskretisierten Pulsspektrums. Die simulierten Pulse werden darüber hinaus über drei experimentell zugängliche Parameter, der Pulsdauer τ_p , der Peak-Intensität I_0 und der Breite gemittelter Pulsspektren $\Delta\nu$ definiert. Der letzte Parameter wird benötigt, um einen diskreten spektralen Gaußpuls zu erzeugen, dem ein diskretes Set an zufällig erzeugten Phasen mit Werten von 0 bis 2π zugeordnet wird. Bei der Transformation in den Zeitraum stellen sich durch die stochastische Natur der Phase erhebliche Änderungen ein. Aus dem Gaußpuls wird ein undefiniertes Rauschen, da im Spektrum keine Kohärenz mehr vorliegt. Um erneut einen Puls zu erhalten, wird dieses Rauschen mit einer Gauß-Einhüllenden multipliziert, welche durch die beiden anderen Parameter bestimmt wird. Dieser Schritt ermöglicht es, aus dem vollständig inkohärenten Puls einen partiell kohärenten Puls zu formen. Erneute Fouriertransformation in den Frequenzraum zeigt, wie sich sowohl spektrale Amplitude als auch Phase geändert haben.

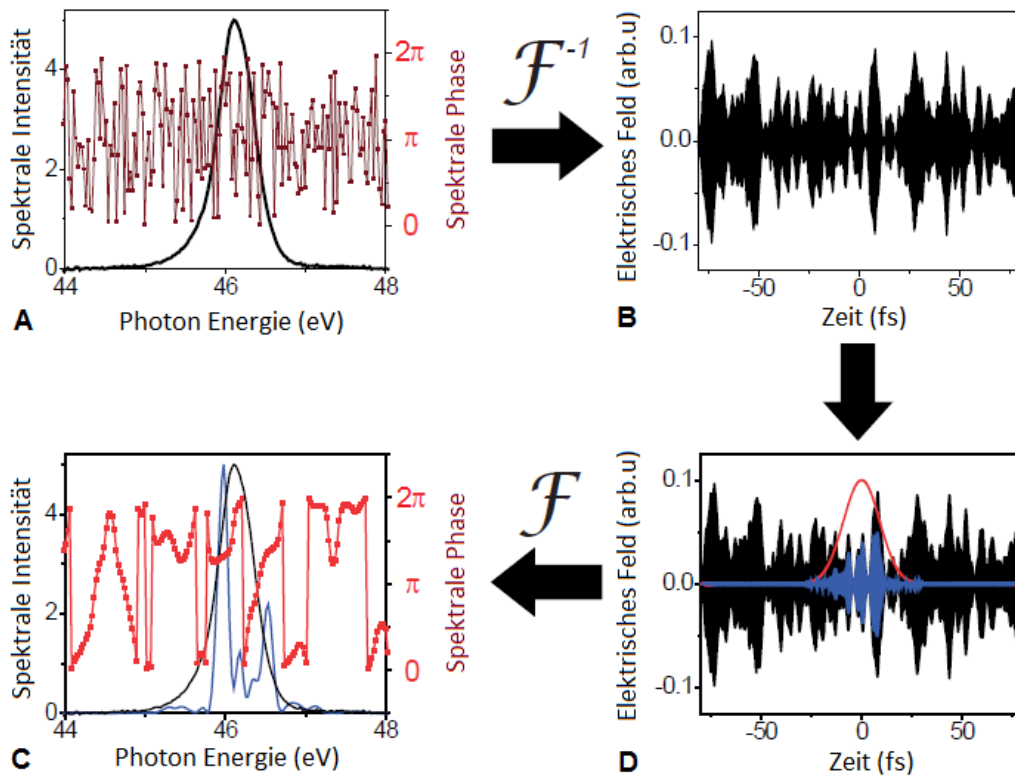


Abbildung 3.1: Veranschaulichung der Partiellen-Kohärenz-Methode

A Der spektrale Anfangspuls (schwarz) und die dazugehörige zufällig verteilte Phase (rot) ist zu sehen. Für die Abbildung wird nach [14] ein gemessenes, gemittelttes Spektrum verwendet, im Gegensatz zu den für die Simulationen dieser Arbeit verwendeten Gaußpulsen. **B** Durch Fouriertransformation erhält man das zeitliche Signal in Form von Rauschen. **C** Der Puls im Zeitraum (blau) entsteht durch Ausschneiden einer Gauß-Einhüllenden (rot) aus dem Rauschen (schwarz). **D** Durch Rücktransformation erhält man den partiell kohärenten spektralen Puls (blau). Die Phasenverteilung (rot) hat sich im Vergleich zu **A** geändert. Durch Wiederholen und Mitteln über diesen Prozesses ergibt sich die selbe Einhüllende wie in **A**. Aus [5] entnommen und bearbeitet.

3.2 Simulationen zum Few-Level-Model

Zur Lösung des zeitabhängigen Schrödingerproblems wird wie in Kapitel 1 beschreiben der Hamiltonian eines 2-Level-Modells als 2×2 Matrix aufgefasst, wobei die Diagonale aus den entsprechenden Eigenwerten für die Zustandsenergien besteht und die Offdiagonal-Einträge zur Kopplung beitragen [15]. Zunächst soll nun als Anschauungsbeispiel das System aus Grundzustand ($E_g =$

0 eV) und doppelt angeregtem 2s2p Zustand ($E_e = 60,2$ eV) des Heliumatoms betrachtet werden. Die Kopplung der Zustände auf den Offdiagonal-Einträgen der 2×2 Matrix besteht aus dem Produkt des Dipolmoments d_{eg} und des zeitabhängigen elektrischem Felds $E(t)$. Die Zustände $|\Psi\rangle$ werden als 2×1 Vektor aufgefasst, wobei aus den Einträgen $c_g(t)$, $c_e(t)$, wie in Kapitel 1 beschrieben, die Besetzungswahrscheinlichkeiten hervorgehen. Als Anfangsbedingung ist dabei nur der Grundzustand besetzt.

Für jeden Zeitschritt Δt wird das Eigenwertproblem gelöst, d.h. mit Hilfe der unitären Transformationsmatrizen U und $U^T = U^{-1}$ wird der Hamiltonoperator diagonalisiert:

$$\mathcal{H}_D = U^T \mathcal{H} U. \quad (3.1)$$

Die Diagonaleinträge von \mathcal{H}_D entsprechen damit den (neuen) Eigenwerten, die Spalten der Matrix U ergeben die Eigenvektoren. Mit Hilfe von U kann der Ausgangszustand $|\Psi\rangle$ in den Diagonalraum transformiert werden:

$$|\Psi_D\rangle = U|\Psi\rangle. \quad (3.2)$$

Die zeitliche Lösung der Schrödingergleichung entspricht der Lösung des Eigenwertproblems nach Gleichung 1.6, d.h die Phase der Koeffizienten wird mit den entsprechenden Eigenwerten im Diagonalraum für den Zeitschritt Δt propagiert:

$$|\Psi_n(x, t)\rangle = e^{-iE_n \Delta t / \hbar} |\Psi_n(x)\rangle. \quad (3.3)$$

Aus Rücktransformation durch Anwendung von U^T folgt die Lösung im Zustandsraum für den Zeitschritt t_n :

$$|\Psi(t_n)\rangle = U^T |\Psi_D(t_n)\rangle. \quad (3.4)$$

Dieser wird als Ausgangszustand für den folgenden Zeitschritt $t_{n+1} = t_n + \Delta t$ verwendet und der obige Prozess wird wiederholt und für alle Zeitschritte sukzessive durchgeführt.

Zudem wird in jedem Schritt der Erwartungswert des Dipolmoments d_{eg} berechnet:

$$\langle d_{eg}(t_n) \rangle = \int d^3x \langle \Psi(x, t) | d_{eg}(x) | \Psi^*(x, t) \rangle. \quad (3.5)$$

Ausmultiplizieren des Skalarprodukts $\langle \Psi | d_{eg} | \Psi^* \rangle$ liefert vier Terme, von denen die beiden Terme $\langle c_g(t) | d_{eg} | c_g^*(t) \rangle$ und $\langle c_e(t) | d_{eg} | c_e^*(t) \rangle$ verschwinden, da es keinen Dipolübergang zwischen einem Energiezustand und sich selbst geben kann. Der zeitabhängige Teil der Entwicklungskoeffizienten $c_g(t)$ und $c_e(t)$ kann aus dem

Integral gezogen werden:

$$\langle d_{eg}(t_n) \rangle = \langle c_g(t_n) | c_e^*(t_n) \rangle \int d^3x \langle \Psi_g(x) | d_{ge}(x) | \Psi_e^*(x) \rangle \quad (3.6)$$

$$+ \langle c_g^*(t_n) | c_e(t_n) \rangle \int d^3x \langle \Psi_g^*(x) | d_{eg}(x) | \Psi_e(x) \rangle. \quad (3.7)$$

Die restliche Volumenintegrale ergeben die zeitlich konstanten Dipolmomente d_{ge} und $d_{eg} = d_{ge}^*$, welche reellwertig sind und damit als gleich angenommen werden. Auf die genaue Form des ortsabhängigen Teils der Zustände und des Dipolmoments wird hier nicht weiter eingegangen. Wie obige Rechnung zeigt, verschwindet die Ortsabhängigkeit für diese Simulationen in einer Konstante, für welche ein Wert vorgegeben wird. Die Berechnung des Erwartungswerts vereinfacht sich damit zu:

$$\langle d_{eg}(t_n) \rangle = d_{eg}(\langle c_g(t_n) | c_e^*(t_n) \rangle + \langle c_g^*(t_n) | c_e(t_n) \rangle). \quad (3.8)$$

Insgesamt entsteht so die zeitliche diskretisierte Dipolantwort $d_{eg}(t)$ des Systems. Wenn der angeregte Zustand eine gewisse zeitliche Lebensdauer besitzt, so entspricht $d_{eg}(t)$ nach der Anregung durch den Laserpuls einem oszillierenden exponentiellen Abfall. Fouriertransformiert folgt damit eine Resonanzlinie bei der Energie E_e , deren Form nach Gleichung 1.12 einer Lorentzkurve entspricht. In den experimentellen Messungen wird jedoch nicht die spektrale Dipolantwort, sondern die *Absorption* $\sigma_{Absorption}$ betrachtet, für welche gilt [15]:

$$\sigma_{Absorption}(\omega) \propto \text{Im} \left\{ \frac{d_{eg}(\omega)}{E(\omega)} \right\} \propto OD. \quad (3.9)$$

Diese wird aus der komplexen Beschreibung der Polarisierbarkeit hergeleitet und wird im Vergleich zur spektralen Dipolantwort $d_{eg}(\omega)$ noch durch das Pulsspektrum $E(\omega)$ geteilt. Die Absorption entspricht bis auf einen konstanten Vorfaktor der *optischen Dichte* OD , sodass im Laufe der Arbeit meistens diese betrachtet wird.

Gleichungen 3.8 und 3.9 sind für diese Arbeit von zentraler Bedeutung. Mit diesen gehen die Prozesse auf atomarer Ebene als Fouriertransformierte in ein makroskopisch messbares Signal über. In gängigen *Transient Absorption Spectroscopy*-Experimenten werden schwache XUV-Pulse verwendet, sodass zur Berechnung des Dipolmoments störungstheoretische Näherungen verwendet werden können. In diesen Fällen ist die Besetzung des Grundzustands durchgehend 1 und die Besetzung des angeregten Zustands wird als Störung betrachtet. Bei den intensiven XUV-Pulsen am FLASH verlieren diese Näherungen ihre Gültigkeit, sodass in dieser Arbeit im Rahmen von Simulationsungenauigkeiten (durch die diskretisierten Zeitschritte Δt) „exakt“ gerechnet wird.

Die Grundlagen zu den Simulationen sind in diesem Abschnitt am Beispiel eines einfachen 2-Level-Systems präsentiert worden. Sie lassen sich auch auf kompliziertere Systeme wie im nächsten Teilkapitel erweitern.

3.3 Kontinuumszustände

In diesem Abschnitt soll nun präsentiert werden, wie die Rolle des Kontinuums in diese Simulation integriert werden kann. Ansätze, die bei störungstheoretischen Rechnungen verwendet wurden, finden sich in [6]. Die dort formulierten Ideen werden für die Arbeit abgeändert, um mit diskreten, zerfallenden Zuständen eine Art *Kontinuumszustand* zu erzeugen.

Das Kontinuum sollte im Idealfall einem gleichverteilten Absorptionsquerschnitt $\sigma(E')$ (vgl. Gl. 1.14) im Energieraum für Energien E' größer als die Ionisationsenergie des einfach ionisierten Heliums von $E_{Ion} = 24,6$ eV entsprechen (rote gestrichelte Linie in Abb. 3.2). Der Grundzustand wird in der Abbildung als scharf definiert und der angeregte Zustand als schmale Lorentzkurve skizziert (Abb. 3.2 a). Der erste Schritt zur Annäherung an die rote Kontinuumslinie besteht darin, dass Kontinuum (*c*, *englisch: continuum*) als dritten Zustand in den obigen Formalismus aufzunehmen. Er besitzt das selbe Energieniveau wie der angeregte Zustand, jedoch eine andere Halbwertsbreite $\Gamma_c > \Gamma_e$,

$$E_c = 60,2 \text{ eV} - i \frac{\Gamma_c}{2}, \quad (3.10)$$

welche zu einer Verbreiterung des Zustands führt, sodass dieser im Vergleich zum schärfer definierten Eigenzustand mehr einem Kontinuum ähnelt (vgl. Abbildung 3.2 b). Die hinzugefügte Halbwertsbreite führt zu einem Zerfall des Kontinuums mit einer Lebensdauer $\tau_c = \frac{1}{\Gamma_c}$. Dieser Prozess ist deshalb erwünscht, da in der Realität ein Elektron im Kontinuum sich in einem bestimmten Zeitfenster vom Atom wegbewegt. Mit den Größenordnungen für Γ_c bei $\propto 10^0 - 10^1$ eV und $\tau_c \propto 1$ fs wird erreicht, dass beide Werte physikalisch sinnvoll abgeschätzt werden. Daraus ergibt sich auch, dass das Kontinuum schneller zerfällt als der 2s2p Zustand mit $\tau_{2s2p} = 17$ fs [16].

Der Laserpuls kann nun vom Grundzustand $|g\rangle$ aus in den angeregten $|e\rangle$ oder in den Kontinuumszustand $|c\rangle$ populieren. Die Kopplung zwischen $|e\rangle$ und $|c\rangle$ entspricht einer konstante Konfiguration-Interaktion V_{CI} (engl.: *configuration*) zwischen dem gebunden Elektron in $|e\rangle$ und dem freien in $|c\rangle$. In den Simulationen wird diese im 3×3 dimensionalen Hamiltonoperator in den Elementen $(\mathcal{H})_{ec}$ und $(\mathcal{H})_{ce}$ eingeführt. Darüber hinaus wird neben dem Dipolmoment d_{ge} der entsprechende Übergang vom Grundzustand in das Kontinuum d_{gc} benötigt. Die beiden Dipolmomente haben in der Regel verschiedene Werte, welche aus verschiedenen Absorptionsquerschnitten hervorgehen. Für die hier

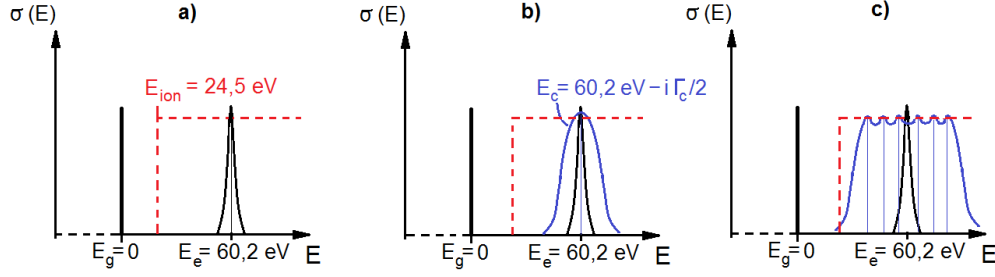


Abbildung 3.2: Schematische Annäherung ans Kontinuum

a) Grund- und angeregter Zustand mit dem Kontinuum des einfach ionisierten Heliums (rot). b) Der Kontinuumszustand (blau) ist energetisch breiter als der angeregte Zustand. c) Viele Kontinuumszustände überlagert geben bestmöglich das Kontinuum wieder.

verwendeten Simulationen genügen qualitative Ergebnisse, sodass die Dipolmomente manuell den Erwartungen entsprechend eingetragen werden. Insgesamt sieht der Hamiltonian wie folgt aus:

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} E_g & d_{ge} & d_{gc} \\ d_{ge} & E_e & V_{CI} \\ d_{gc} & V_{CI} & E_c \end{pmatrix}$$

Ziel ist es, mit den Parametern Γ_c , V_{CI} , und dem Verhältnis $\frac{d_{ge}}{d_{gc}}$ das Kontinuum und die Wechselwirkung zum angeregten Zustand und somit schließlich die Linienform der Absorption einstellen zu können. Zu berücksichtigen ist noch, dass Gleichung 3.8 bei hinzugefügtem Kontinuum abzuändern ist. Da die Autoionisation vom angeregten in den Kontinuumszustand strahlungsfrei geschieht, besteht die gesamte Dipolantwort aus den jeweiligen Dipolmomenten der Übergänge von $|e\rangle$ nach $|g\rangle$ und von $|c\rangle$ nach $|g\rangle$:

$$\begin{aligned} \langle d(t) \rangle &= \langle d_{ge}(t) \rangle + \langle d_{gc}(t) \rangle \\ &= d_{eg}(\langle c_g(t) | c_e^*(t) \rangle + \langle c_g^*(t) | c_e(t) \rangle) + d_{ec}(\langle c_g(t) | c_c^*(t) \rangle + \langle c_g^*(t) | c_c(t) \rangle). \end{aligned} \quad (3.11)$$

Durch die oben beschriebenen Änderungen ist es möglich, die zuvor lorentzförmige Absorptionslinie im Bereich kleiner Intensitäten in eine Fano-Linie mit $q = -2,75$ übergehen zu lassen, wie sie für die 2s2p Resonanz gemessen wird. Im letzten Schritt kann nun aus dem einen Kontinuumszustand ein Set diskreter Zustände gemacht werden. Wenn diese eine entsprechende Halbwertsbreite besitzen, so überlagern sie im Energieraum, sodass das Kontinuum bestmöglich nachgeahmt wird (s. Abbildung 3.2 c). In Gleichung 4.1 wird $\langle d_{cg}(t) \rangle$ ersetzt durch die Summe aller Dipolübergänge aus den Kontinuumszuständen in den Grundzustand.

4 Diskussion der Ergebnisse

In diesem Kapitel werden nacheinander die jeweiligen Simulationsergebnisse präsentiert und dabei die Intensitätsabhängigkeit von Helium in Wechselwirkung mit intensiven XUV-Feldern diskutiert. Einleitend wird kurz dargestellt, wie sich ein 2-Level-System ohne Kontinuum verhält. Basierend darauf wird erläutert, wie die verwendeten Simulationsmaßnahmen zur Kontinuumskopplung dieses Bild ändern. Zum Schluss werden Simulationsergebnisse und experimentelle Resultate verglichen.

Wenn nicht anders beschrieben, sind für die Simulationen gaußförmige Pulse mit $\tau_p = 1$ fs verwendet worden. Da alle Effekte der Computerprogramme zunächst qualitativ untersucht werden, sind sie unabhängig von der Pulsdauer, solange für alle Simulationen die selben Pulse verwendet werden. Allerdings ermöglicht diese Wahl eine stark verkürzte Rechenzeit und deutlichere Resultate. Gegen Ende des Kapitels, vor der Diskussion der Messergebnisse, wird von dieser Annahme abgewichen und die verrauschten Pulse aus Kapitel 3.1 werden eingeführt. Die Intensitätsskalierung der präsentierten Plots erfolgt über die Peak-Intensität I_0 . Diese wird in den Simulationen linear erhöht und in jedem Schritt wird nach Kapitel 3 die optische Dichte berechnet. Die gesamte Intensität lässt sich als zeitliches Integral über die Pulsintensität bestimmen und entspricht damit der Fluenz F :

$$F = \int I(t) dt. \quad (4.1)$$

Für eine feste Pulsbreite eines Gaußpulses ergibt sich dabei numerisch ein konstanter Umrechnungsfaktor von Peak- zu Gesamt-Intensität/Fluenz.

Darüber hinaus werden für die Dipolmomente d_{ge} und d_{gc} keine experimentell bestimmten Zahlenwerte verwendet. Folglich sind die Amplituden der folgenden Plots stets in *arbitrary units (arb. u.)* angegeben.

4.1 Ergebnisse des 2-Level-Modells

Im Abschnitt 1.5 des Grundlagenkapitels wird erklärt, dass in einem Zwei-Zustand-Modell die Besetzung der Zustände mit der intensitätsabhängigen Rabi-Frequenz oszillieren. Die zeitliche Dipolantwort des Systems $d(t)$ folgt nach Gleichung 3.8 diesen Besetzungen. Im Folgenden soll erklärt werden, wie aus der zeitlichen Rabi-Oszillation eine intensitätsabhängige Schwingung entsteht.

Dafür wird angenommen, dass der resonante Puls das System zum Zeitpunkt t' mit $t_0 < t' < \infty$ verlässt, d.h. die Restintensität des Pulses und dessen Auswirkungen kann für $t > t'$ als vernachlässigbar klein angenommen werden. Um Gleichung 3.8 zu lösen, werden die komplexwertigen Besetzungskoeffizienten $c_{g,e}(t)$ in Amplitude $|c_{g,e}|$ und Phasenentwicklung $e^{-itE_{g,e}/\hbar}$ eingeteilt. Im XUV-Feld gehen die Eigenwerte dabei wie in Gleichung 1.18 beschrieben von $E_{e,g}$ in E^\pm über. Solange der XUV-Puls mit dem System wechselwirkt, kann das Dipolmoment nach Gl. 3.8 beschrieben werden als:

$$\langle d_{eg}(t) \rangle = d_{eg} \cdot (\langle c_g(t) | c_e^*(t) \rangle + \langle c_g^*(t) | c_e(t) \rangle) \quad (4.2)$$

$$= d_{eg} \cdot \left(|c_g| |c_e| \cdot e^{-i\frac{tE^+}{\hbar}} \cdot e^{i\frac{tE^-}{\hbar}} + |c_g| |c_e| \cdot e^{+i\frac{tE^+}{\hbar}} \cdot e^{-i\frac{tE^-}{\hbar}} \right) \quad (4.3)$$

$$= d_{eg} |c_g| |c_e| \cdot \left(e^{-i\frac{t(E^+ - E^-)}{\hbar}} + e^{i\frac{t(E^+ - E^-)}{\hbar}} \right) \quad (4.4)$$

$$= d_{eg} |c_g| |c_e| \cdot (e^{-2it\Omega_R} + e^{-2it\Omega_R}) \quad (4.5)$$

$$= 2 d_{eg} |c_g| |c_e| \cdot \cos(2t\Omega_R). \quad (4.6)$$

Dabei wird für Gleichung 4.5 verwendet, dass die Differenz der Eigenwerte gerade der doppelten Rabi-Frequenz entspricht:

$$E^+ - E^- = \frac{E_g + E_e}{2} + \hbar\Omega_R - \left(\frac{E_g + E_e}{2} - \hbar\Omega_R \right) = 2\hbar\Omega_R. \quad (4.7)$$

Für Zeiten $t > t'$ wird das System als ungestört betrachtet, weshalb $d(t \geq t')$ einer exponentiell abfallenden (Dipol-) Oszillation entspricht. Die Amplitude dieses Abfalls wird daher durch den Startwert $d(t')$ festgelegt, welcher gerade im Übergang von wechselwirkendem zu ungestörtem System festgelegt wird. Folglich kann Gleichung 4.6 für t' noch verwendet werden und somit als intensitätsabhängige Oszillation des Dipolmoments zum festen Zeitpunkt t' angesehen werden:

$$d_{eg}(t') = 2 d_{eg} |c_g| |c_e| \cdot \cos(2t'\Omega_R(\sqrt{I})). \quad (4.8)$$

Bei der Fouriertransformation in den Frequenzraum entsteht aus dem schwindenden exponentiellen Abfall eine Lorentzlinie. Die Amplitude $d(t')$ kann aus dem Integral der Fouriertransformation gezogen werden, sodass letztlich auch die Amplitude der Lorentzlinie durch diese Effekte im Intensitätsverlauf oszilliert. Wie Abbildung 4.1 zeigt, sieht man diesen Vorgang auch in den Simulationsergebnissen. Die Intensitätskala zeigt die Peak-Intensität des Pulses und ist quadratisch aufgetragen. Wie erwartet erkennt man, dass die Oszillationsfrequenz von \sqrt{I} abhängt (lineare Schwingung im I^2 -Plot). Gleichung 4.8 kann zudem überprüft werden, indem das Dipolmoment variiert wird. Eine Verdopplung von d_{ge} führt den Erwartungen entsprechend zu einer Verdopp-

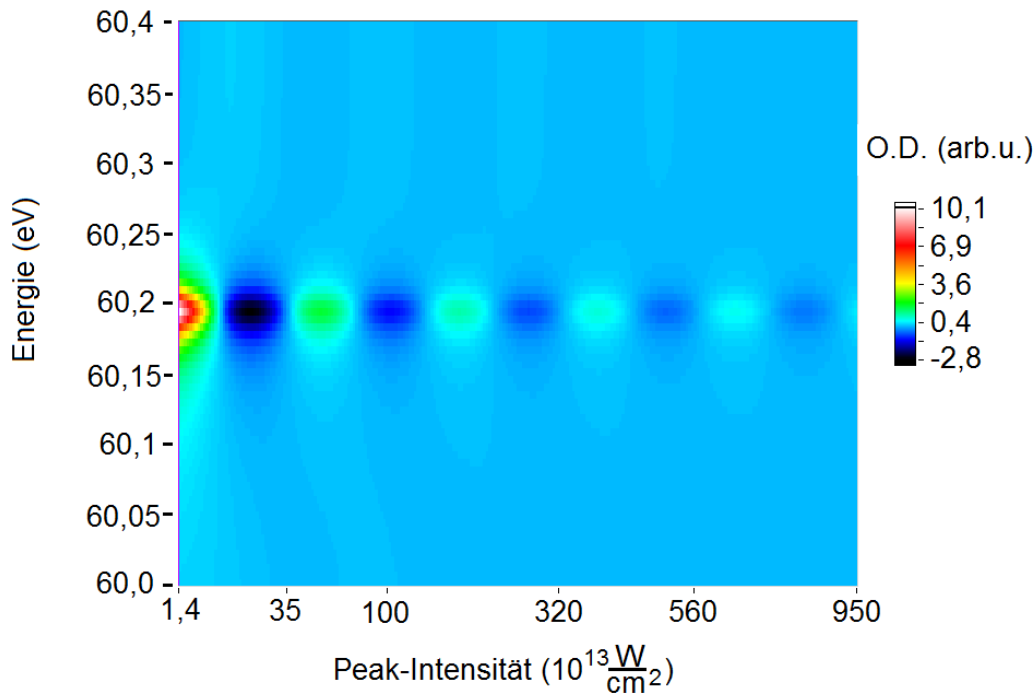


Abbildung 4.1: Intensitätsscan 2-Level-System

Simulierte optische Dichten werden in Abhängigkeit der XUV-Peak-Intensität im Bereich $\propto 10^{13}$ - $\propto 10^{16} \frac{W}{cm^2}$ gezeigt. Die Farbkodierung entspricht der z-Achse und stellt die intensitätsabhängige optische Dichte dar. Ein vertikaler Querschnitt der Abbildung entspricht der spektralen O.D bei einer festen XUV-Intensität. Die im Text beschriebene Rabi-Oszillation führt zu einer intensitätsabhängigen Modulation der stets symmetrischen Lorentzlinie.

lung der spektralen Amplitude bei sonst gleich bleibendem Intensitätsplot. In der Abbildung 4.1 ist nur der Intensitätsbereich dargestellt, in dem die zuvor beschriebenen Effekte auftreten. Für kleinere Intensitäten ergibt sich den Erwartungen gemäß eine nahezu unveränderte optische Dichte, weshalb dieser Bereich nicht weiter diskutiert wird.

Zudem sieht man einen Abfall der Amplitude der optischen Dichte für steigende Intensitäten sobald die Rabi-Oszillationen eintreten. Dieser lässt sich wie folgt erklären: Bei zunehmender Intensität steigt per Definition die Amplitude des Pulsspektrums. Für geringe Intensitäten bedeutet dies jedoch auch, dass mehr Photonen zur Verfügung stehen, welche das System anregen können. Dadurch steigt die Besetzung des angeregten Zustands und mit ihr auch die Amplitude des Dipolspektrums. Im Verhältnis sind damit $E(\omega)$ und $d(\omega)$ konstant. Die Effekte der Rabi-Oszillation werden dann deutlich, wenn der angeregte Zustand mindestens einmal maximal besetzt worden ist. Danach steigt

das Dipolmoment nicht mehr mit der Intensität an, sondern beginnt mit den beschriebenen Oszillationen. Da nur noch das Pulsspektrum ansteigt, wird der Bruch $\frac{d(\omega)}{E(\omega)}$ für höhere Intensitäten verringert, wodurch die Resonanzlinie in Abbildung 4.1 langsam verschwindet.

4.2 Simulationen mit Kontinuumskopplung

Die in Kapitel 3.3 eingeführten Änderungen der bisherigen Simulation werden in diesem Abschnitt präsentiert und diskutiert.

Das Kontinuum wird zunächst durch einen einzigen Zustand modelliert. Wie in Kapitel 3 beschrieben, müssen dafür die Werte für Halbwertsbreite Γ_c , Konfiguration-Interaktion V_{CI} und Dipolmoment d_{gc} (im Verhältnis zu d_{ge}) entsprechend gewählt werden. Als Referenz hierfür dient die Fano-Linie im Limes verschwindender Intensitäten, denn ohne die Wechselwirkung mit Photonen ist zu erwarten, dass die Resonanz ihrer bekannten Form entspricht. Mit der Wahl von $\Gamma_c = 8,4$, $d_{gc} = 4,6$ und $V_{CI} = -0,01$ kann die Resonanzlinie wie in Abbildung 4.2 eingestellt werden. Die simulierte Linienform (blaue Kreuze) entspricht der vorgegeben roten Fanolinie mit $\Gamma = 0,037$ meV und $q = -2,75$.

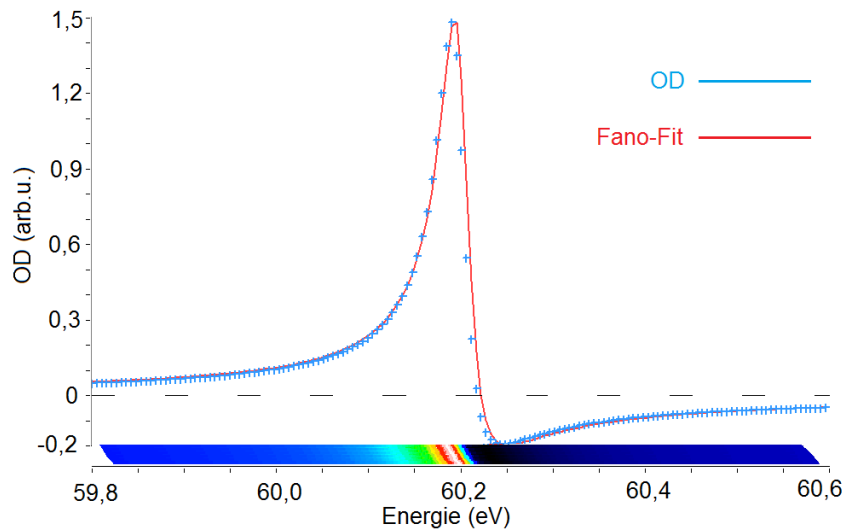


Abbildung 4.2: Fanolinie für geringe Intensitäten

Die Farbskala an der Energie Achse entspricht der ins eindimensionale projizierten O.D. Diese Farbkodierung wird in den zweidimensionalen intensitätsabhängigen Plots übernommen.

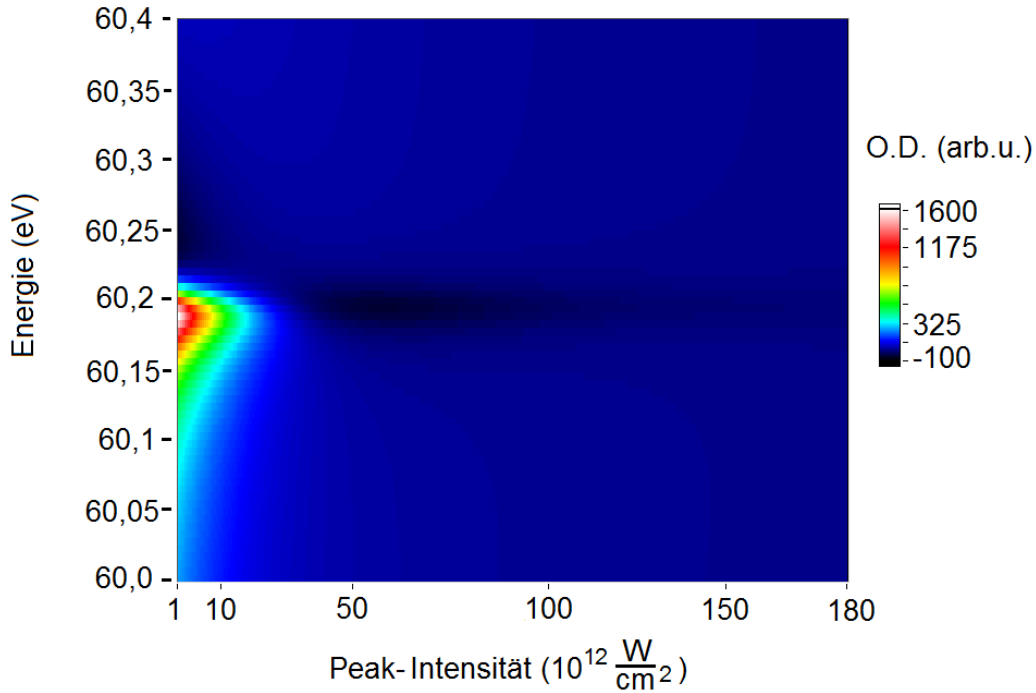


Abbildung 4.3: Intensitätsscan mit einem Kontinuumszustand

Durch den Hinzunahme des Kontinuumszustand verschwindet die Rabi-Oszillation im Intensitätsverlauf im Vergleich zum Plot des Zwei-Level-Systems 4.1. Stattdessen sieht man nun eine Änderung der Linienform. Beide Effekte werden im Text erläutert.

Mit den oben gewählten Parametern kann das 3-Zustands-System nun für hohe Intensitäten untersucht werden. Die intensitätsabhängige Änderung der optischen Dichte wird in Abbildung 4.3 gezeigt.

Zwei wesentliche Merkmale im Vergleich zu den Ergebnissen in Abbildung 4.1 haben sich hierbei geändert. Zunächst erkennt man, dass die Rabi bedingte Oszillation nicht mehr vorhanden ist. Wie in Kapitel 3 erläutert, wurde das Kontinuum so modelliert, dass frei werdende Elektronen sich auf Zeitskalen von $t_{ionisation} \propto 1$ fs fort bewegen. Die Auswirkungen der Rabi-Oszillation werden bei Größenordnungen der Peak-Intensität von $I_{Peak} \propto 10^{13} \frac{W}{cm^2}$ deutlich (s. Abb. 4.1). Nach Gleichung 1.20 hängt die Rabi-Frequenz von der elektrischen Feldstärke E , also auch von der Intensität ab, sodass diese mit $\Omega_R \propto 0,000169$ a.u. abgeschätzt werden kann. Die Zeitskala, auf der der Rabi-Zyklus sich auf das System auswirken kann, entspricht damit $t_{Rabi} = \frac{2\pi}{\Omega_R} \cdot \frac{1}{2} \propto 1,86 \cdot 10^4$ a.u. $\propto 450$ fs. Da diese größer ist als $t_{ionisation}$, können im Rabi-Zyklus die Elektronen nicht mehr zurück in den Grundzustand gebracht werden, weshalb intensitätsabhängige Oszillationen nicht mehr zu erwarten sind. Zudem liegt die Intensitätsskala in Abb. 4.3 in einem geringeren Bereich als in Abb. 4.1, sodass

Rabi-Oszillationen nicht mehr beobachtet werden können.

Des Weiteren ändert sich im Intensitätsverlauf die Linienform der optischen Dichte. Um diesen Effekt zu verstehen, muss auf das dressed-state-Bild aus Kapitel 1.5 zurückgegriffen werden. In Abbildung 1.5 wird gezeigt, dass die Eigenwerte E^\pm basierend auf Gleichung 1.18 im System mit Atom-Laser-Wechselwirkung intensitätsabhängig zu- bzw. abnehmen. Aus der Energieänderung folgt, dass die Phasen der Zustände $|\Psi\rangle$ und Besetzungskoeffizienten $c_{e,g,c}$ nach Gleichung 1.6 sich ebenso intensitätsabhängig ändern. Auf Grund von Gleichung 4.1 gilt das selbe für das Dipolmoment. Insgesamt erhält dieses einen Phasenshift ϕ gemäß:

$$\phi(t, I) = -\frac{1}{\hbar} \int dt t \cdot E(I, t) \quad (4.9)$$

Dieser Phasenshift wird für den Zeitraum aufintegriert, in welchem der Puls mit dem System wechselwirkt. Damit entspricht er gerade einer Phasenänderung der zeitlichen Dipolantwort zu Beginn der anschließenden ungestörten gedämpften Schwingung. Ein solcher Phasenshift bewirkt nach Gleichung 1.16, dass der q-Parameter der Fano-Resonanz und somit deren Linienform geändert wird (wie in Abb. 1.3 dargestellt).

Für das 2-Level-System im vorherigen Abschnitt sind die Energieänderungen durch Gleichung 1.18 symmetrisch (s. Abb 1.5). Auf Grund dieser Symmetrie sind auch die Phasenentwicklungen von $|g\rangle$ und $|e\rangle$ symmetrisch, wodurch die gesamte Phasenverschiebung verschwindet. Damit ist in Abbildung 4.1 eine Linienformänderung nicht wieder zu finden. Die Kopplung des Kontinuums an den angeregten Zustand bricht diese Symmetrie, da die Energieveränderungen nicht mehr Gleichung 1.18 folgen, welche nur für im Fall von zwei Zuständen gültig ist. Die intensitätsabhängige Entwicklung des 3-Zustand-Systems kann theoretisch nur schwer beschrieben werden, weshalb für die Resultate mit Kontinuumskopplung keine analytischen Erwartungen wie im 2-Level-System vorliegen. Aus einer qualitativen Betrachtung heraus erscheint es nachvollziehbar, dass das Kontinuum ohne den Grundzustand zu beeinträchtigen den angeregten Zustand energetisch stärker verschiebt als ohne Konfiguration-Interaktion, sodass für das Dipolmoment eine „Netto“-Phasenentwicklung hinzukommt, welche durch die Richtung der Verschiebung des angeregten Zustands vorgegeben wird.

Die Zusammenfassung all dieser Effekte hat zur Folge, dass im System mit Kontinuumskopplung ein kontinuierliches Erhöhen der Intensität einen stetig ansteigenden q-Parameter zur Folge hat. Da dieser für kleine Intensitäten im negativen Bereich liegt, muss die Fanolinie bei wachsender Intensität durchgehend ihre Form ändern und dabei auch für $q = 0$ zu einem Lorentz-Dip, einer sogenannten *Window-Resonanz*, werden. Dieses Verhalten findet sich in Abbil-

dung 4.3 wieder. Für höhere Intensitäten überwiegt der durch Sättigung der Besetzungskoeffizienten eintretende Abfall der Amplitude der Resonanzlinie, sodass weitere Änderungen nicht mehr deutlich zu verfolgen sind.

In obiger Erklärung wurde davon ausgegangen, dass für resonante Laserpulse das System sich wie im blauverschobenen Fall verhält (vgl. Abb. 1.5(b)) und damit der angeregte Zustand $|e\rangle$ für zunehmende Intensitäten in den energetisch abfallenden Zustand $|E_-\rangle$ übergeht. Da der resonante Fall gerade der Grenzfall zwischen Rot- und Blauverschiebung ist, in dem die Eigenzustände $|g\rangle$ und $|e\rangle$ übereinander gelegt werden, kann hier nicht mehr unterschieden werden, welcher Zustand in $|E^+\rangle$ und welcher in $|E^-\rangle$ übergeht. Um das simulierte Verhalten, das Ansteigen des q -Parameters, beschreiben zu können, muss daher eine Einordnung in den blauverschobenen Fall erfolgen.

Diese Behauptung kann überprüft werden, indem die selbe Simulationen für $E_{ph} < E_e$ bzw. $E_{ph} > E_e$ durchgeführt wird. Da sich für eine blauverschobene mittlere Energie des XUV-Pulses von $E_{ph} = 62$ eV der selbe intensitätsabhängige Verlauf einstellt wie in Abbildung 4.3, kann die zuvor gelieferte Erklärung als korrekt erachtet werden. Für eine Rotverschiebung mit $E_{ph} = 58$ eV stellt sich gerade der umgekehrte Effekt ein. Die Energie nimmt hier bei steigender Intensität zu, sodass die Phase verringert wird und der q -Parameter bei $q = -2,75$ erst gegen $-\infty$ läuft, dort das Vorzeichen wechselt und anschließend über $q = 0$ hinaus erneut negativ wird (siehe Abbildung 4.4). Der dazugehörige Intensitätsscan wird in Abbildung 4.5 präsentiert. Die dargestellte Linienform entspricht dabei dem Wechsel:

$$\begin{array}{ccccccc}
 \text{Fano} & \rightarrow & \text{Lorentz} & \rightarrow & \text{Fano} & \rightarrow & \text{Window} & \rightarrow & \text{Fano} \\
 1 & & 2 & & 3 & & 4 & &
 \end{array} \quad (4.10)$$

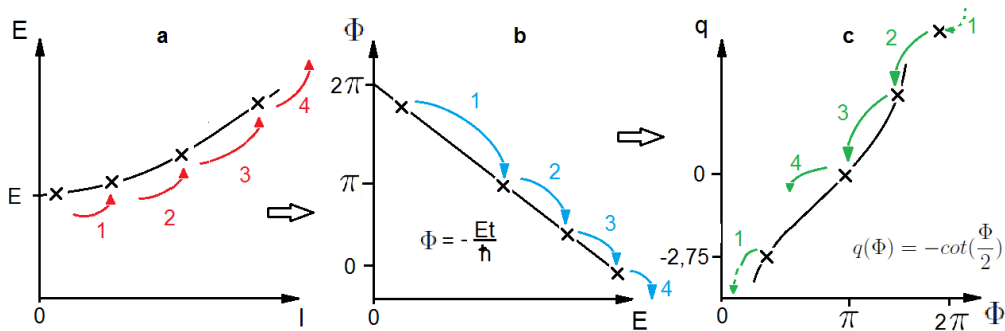


Abbildung 4.4: Graphische Zusammenfassung zur intensitätsabhängigen Änderung des q -Parameters

Die intensitätsabhängige Änderung der Eigenenergie ist in **a** dargestellt. Dadurch ändert sich in **b** nach Gl. 1.6 die Phase Φ und q folgt durch Gl. 1.16 dieser Änderung (**c**).

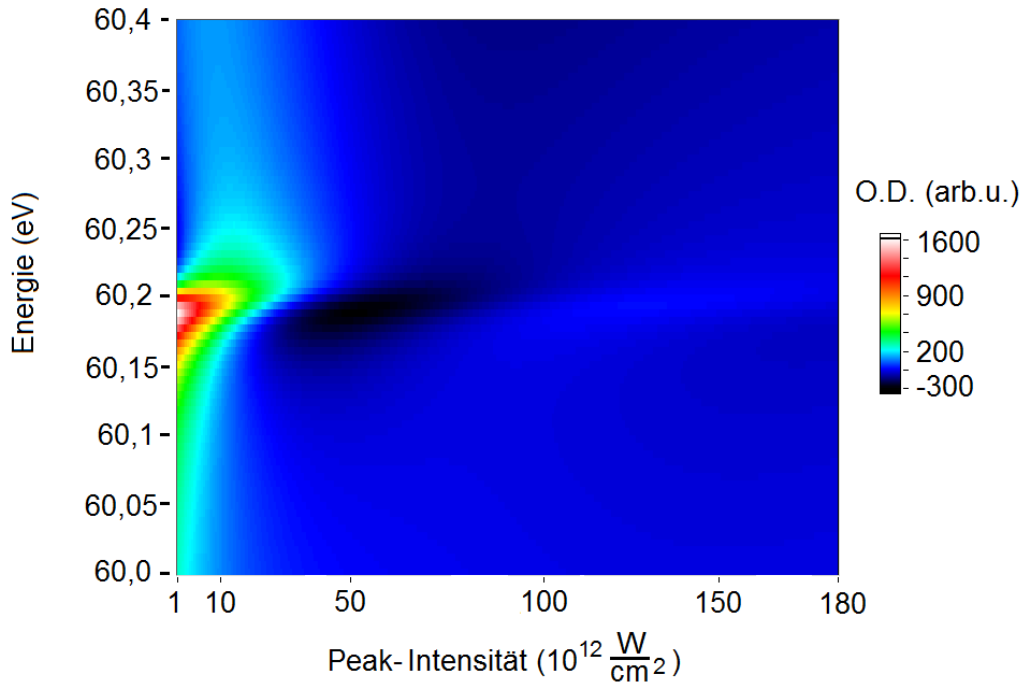


Abbildung 4.5: Intensitätsscan mit rotverschobenem XUV-Puls

Durch die Änderung der Pulsenergie ändert sich auch die Verlaufsrichtung des Fano-Parameters. Statt sich auf eine Window-Resonanz zu bewegen, wird aus der Resonanzlinie zuerst ein Lorentz-Peak bei $I \approx 10^{13} \frac{W}{cm^2}$.

Dieser Wechsel kann in der Farbkodierung von Abbildung 4.5 wie folgt mit dem Auge nachvollzogen werden: Beim Startwert der Intensität $I = 1 \cdot 10^{12} \frac{W}{cm^2}$ lässt sich für Energien geringer als 60,2 eV ein heller Peak erkennen, wohingegen bei größeren Energien ein dunkler Dip sichtbar ist (der Fanolinie von $q = -2,75$ entsprechend). Durch steigende Intensität verschwindet der dunkle Bereich und der helle Peak schiebt sich in das Zentrum der Linie, bis bei $I \approx 10^{13} \frac{W}{cm^2}$ nur noch eine lorentzförmige Resonanz vorhanden ist. Anschließend wechselt diese wieder zu weiteren Fanolinien. Der Verlauf der resonanten/blauverschobenen Fälle in Abb. 4.3 weist dahingegen das umkehrte Verhalten auf: Der dunkle Bereich bei höheren Energien übernimmt bei wachsender Intensität bis sich bei $I \approx 5 \cdot 10^{13}$ eine Window-Resonanz einstellt. Diese wird erst später im Intensitätsverlauf erreicht als die Lorentzlinie in Abb. 4.5 ($I_{Window} \approx 5 \cdot 10^{13} \frac{W}{cm^2} > I_{Lorentz} \approx 1 \cdot 10^{13} \frac{W}{cm^2}$). Auch dieses Verhalten ist mit Abb. 4.4 erklärbar, denn angefangen bei einer Phase von $\Phi \approx 0,7$ rad ($q = -2,75$) ist die Phasenänderung zu einem Lorentz-Peak: $\Phi = 0$ ($q \rightarrow \infty$) geringer als zu einem Lorentz-Dip: $\Phi = \pi$ ($q = 0$), sodass für einen Lorentz-Shift weniger Intensität benötigt wird als für eine Window-Resonanz und

diese bereits bei geringeren Intensitäten auftritt.

Die auftretenden Linienformänderungen können mit Hilfe der Phasenverschiebungen und des dressed state Modells verstanden werden. Allerdings impliziert diese Erklärung auch, dass die Eigenenergien verschoben werden, welche festlegen, bei welcher Energie sich die Resonanzlinie im Spektrum befindet. Da die Energien variiert werden, sollte auch die Absorptionslinie ihr Position ändern. Dieser Effekt ist bei den gezeigten Abbildungen nicht festzustellen. Jedoch werden für diese Simulationen nur sehr kurze Pulse verwendet, d.h. die Energieverschiebung findet nur sehr kurzzeitig statt. Im Bild des zeitlichen Dipolmoments bedeutet dies, dass nur in dem Zeitraum, in welchem der XUV-Puls mit dem System wechselwirkt, die Frequenz verändert wird, mit der das Dipolmoment oszilliert. Zu allen anderen Zeiten entspricht diese Schwingung aber der Trägerfrequenz des angeregten Zustands von $60,2\text{eV}/\hbar$. Diese Trägerfrequenz entscheidet, bei welcher Energie sich die fouriertransformierte Resonanzlinie befindet. Wenn diese nur kurzzeitig verändert wird, so variiert die Resonanz im Spektrum auch nur geringfügig. Folglich kann eine Verschiebung der Fanlinie im Intensitätsscan nicht beobachtet werden.

Bevor diese Ergebnisse im nächsten Abschnitt 4.3 mit den experimentellen Resultaten verglichen werden, soll zunächst das Kontinuum weiter numerisch untersucht werden. Dafür wird dieses mit 10 bzw. 20 diskreten, sich energetisch überlagernden Zuständen definiert. Dadurch ändert sich auch die Konfiguration-Interaktion, sodass auch die oben bestimmten Parameter Γ_c , d_{gc} und V_{CI} abgeändert werden müssen:

#	Γ_c	d_{gc}	V_{CI}
10	2,2	0,8	-0,0016
20	4,4	0,7	-0,0016

Allerdings ist zu beachten, dass ein neuer freier Parameter hinzukommt, der Abstand der diskretisierten Kontinuumszustände ΔE_c untereinander. Dieser darf nicht in der Größenordnung von Γ_c oder größer gewählt werden, da ansonsten die einzelnen Zustände nicht energetisch überlagern und die Fanlinie eine andere Form annimmt. Für $\Delta E_c = 0,01 \ll \Gamma_c$ ist die resultierende optische Dichte unabhängig von diesem Parameter. Erneut kann für geringe Intensitäten die gewünschte Fanresonanzlinie simuliert werden (Plots analog zu Abb. 4.2). Das intensitätsabhängige Verhalten dieser simulierten Systeme ist in Abbildung 4.6 zu sehen. Dabei wird der Laserpuls erneut rotverschoben mit $E_{ph} = 58\text{ eV}$ eingestellt.

Das Verhalten der Resonanzlinie bei $60,2\text{ eV}$ weicht kaum von dem aus Abbildung 4.5 ab. Die Resonanz ändert kontinuierlich ihre Linienform dem Wechsel aus Zeile 4.10 entsprechend. Allerdings ist dieser Vorgang etwas langsamer, so-

dass z.B. die Lorentz- und Window-Resonanz erst später im Intensitätsverlauf erreicht wird. Im Vergleich von 10 Zuständen (Abb. 4.6 a) zu 20 (Abb. 4.6 b) erkennt man kaum eine Veränderung. Insgesamt scheint die Anzahl der Kontinuumszustände keine signifikante Rolle bei den in dieser Arbeit diskutierten Ergebnissen zu haben. Daher kann an dieser Stelle angenommen werden, dass das Kontinuum bereits mit wenigen Zuständen ausreichend gut simuliert wird, weshalb darauf verzichtet wird, weitere Änderungen des Kontinuums vorzunehmen.

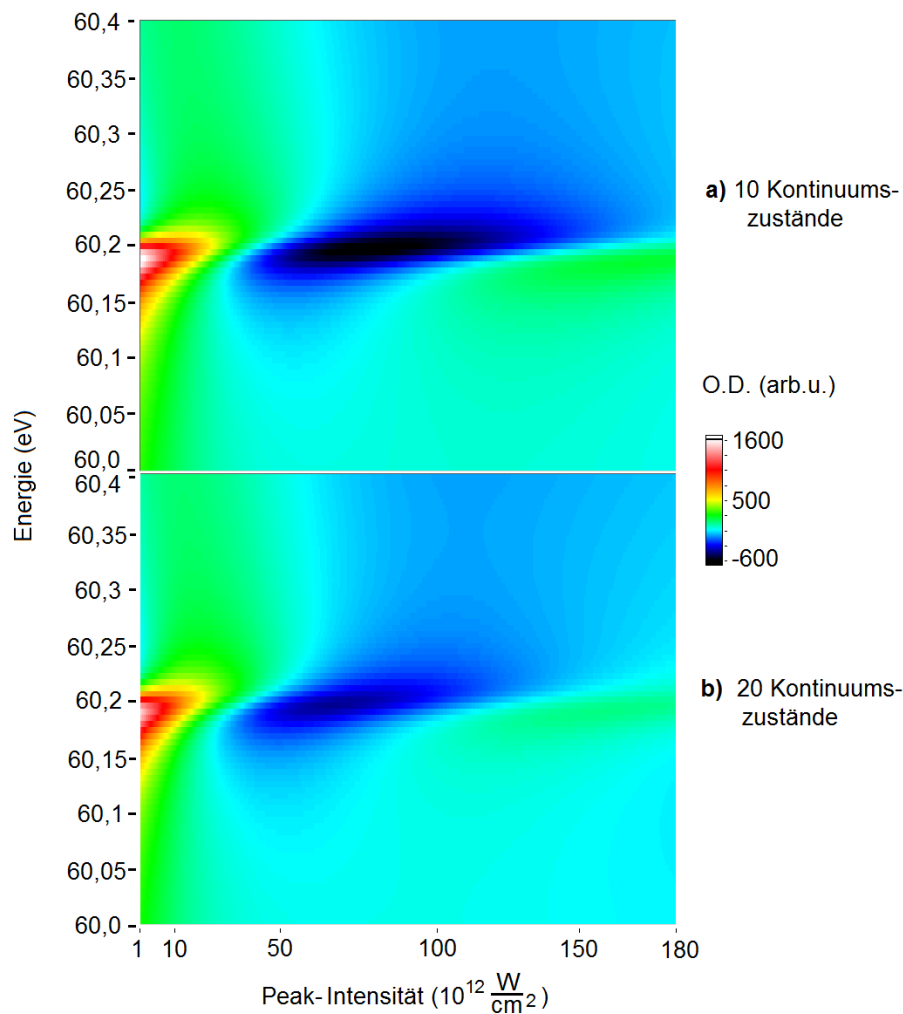


Abbildung 4.6: Intensitätsscan mit mehreren Kontinuumszuständen
 Mit gleichen Einstellungen wie in Abb. 4.5 werden die Intensitätsplots an Stelle mit einem Kontinuumszustand mit 10 (a) resp. 20 (b) Zuständen wiederholt.

4.3 Experimentelle Resultate

Um die Simulationsergebnisse mit den Experimenten am FLASH vergleichen zu können, muss von den kurzen gaußförmigen Pulsen abgesehen werden und stattdessen mit partiell-kohärenten Pulsen gerechnet werden. Um diese zu implementieren, wird, wie in Kapitel 3.1 beschrieben, ein gemittelttes Pulsspektrum und eine durchschnittliche Pulsdauer benötigt. Abbildung 4.7 zeigt ein solches gemittelttes Spektrum, aus dem die benötigte spektrale Kohärenzbreite als Full-Width-Half-Maximum $\text{FWHM} = 0,53 \text{ eV}$ ermittelt werden kann. Die gemessenen Spektren unterscheiden sich im Mittel kaum von dem Gaußfit. Deshalb kann an Stelle des gemittelten Spektrums auch ein gaußförmiges mit der entsprechenden FWHM verwendet werden, um die verausachteten Pulse zu erzeugen. Die benötigte Pulsdauer ist für diese Experimente (noch) nicht bestimmt worden. Aus älteren Messungen erfolgt eine Abschätzung von $\tau_p \propto 50 \text{ fs}$ [11].

Mit diesen Werten können die verausachteten Pulse simuliert und diese für einen Intensitätsscan verwendet werden. In Abbildung 4.8 werden die experimentellen Daten präsentiert und mit den Simulationen aus Abbildung 4.9 verglichen.

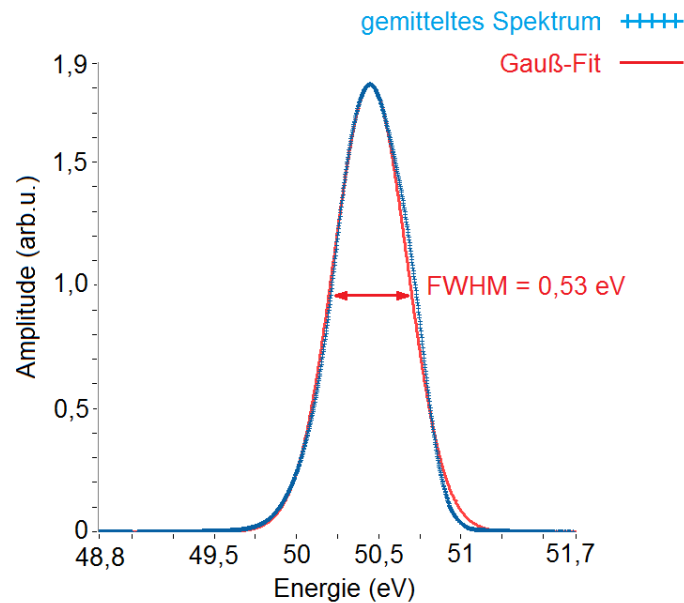


Abbildung 4.7: Gemittelttes FLASH-Spektrum

Die gemittelten Spektren werden benötigt, um mit der partiellen-Kohärenz-Methode verausachtete Pulse im Simulationsprogramm zu erzeugen. Diese Referenzspektren sind nur bei Energien von $\propto 50 \text{ eV}$ gemessen worden. Bei den für die Helium Messung verwendeten XUV-Pulse bei Energien von $\propto 60 \text{ eV}$ wird davon ausgegangen, dass sie die selben Eigenschaften aufweisen.

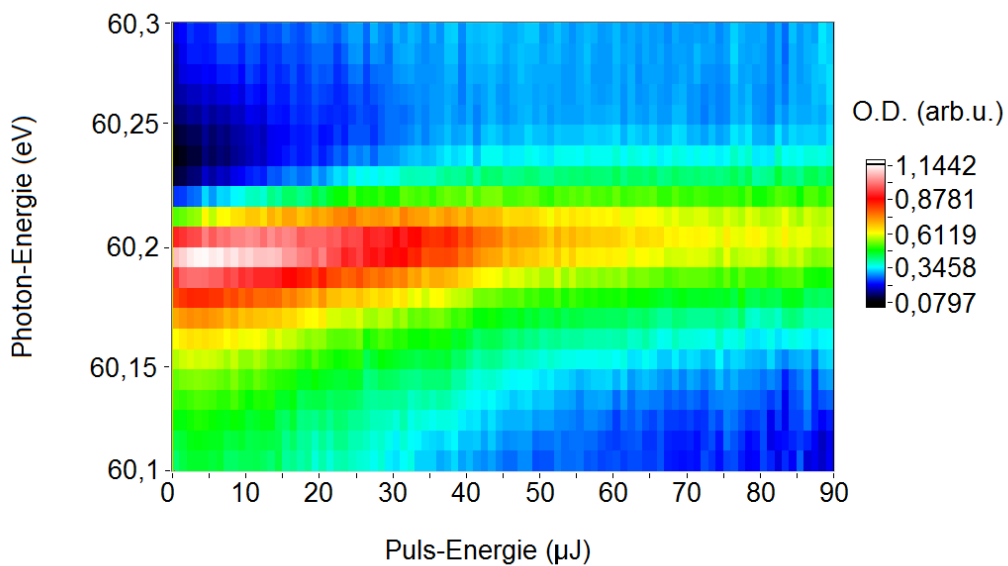


Abbildung 4.8: Experimenteller Intensitätsplot

Die gemessene optische OD wird aufsteigend nach der aus den zugehörigen Referenzspektren ermittelten Puls-Energie geordnet. Durch Einordnen in Bins kann über mehrere Aufnahmen mit gleicher Energie gemittelt werden. Das daraus resultierende Histogramm ist in der Abbildung dargestellt.

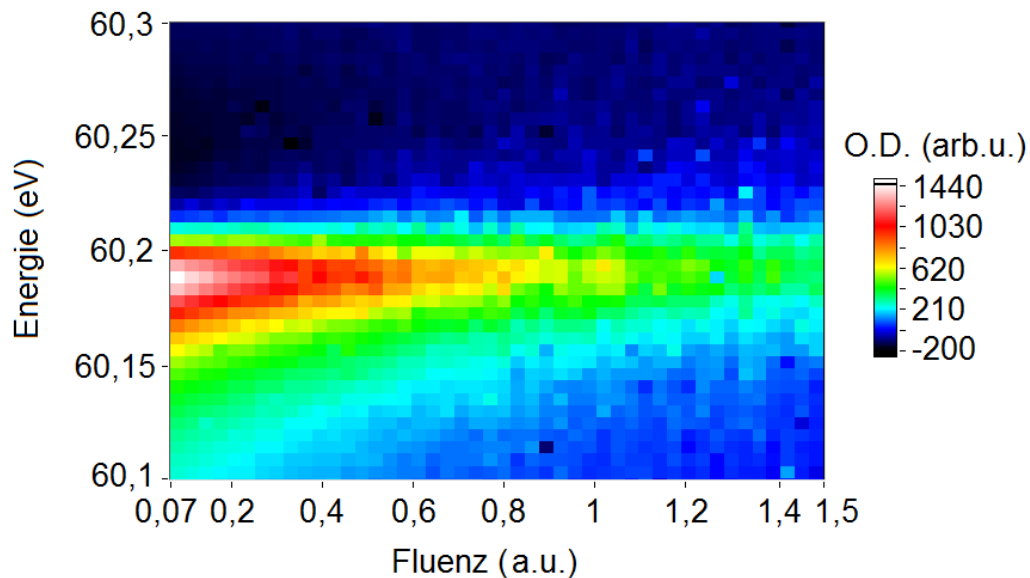


Abbildung 4.9: Simulierter Intensitätsscan mit verrauschten Pulsen

Mit den Angaben aus Abb. 4.7 kann der experimentelle Intensitätsverlauf aus Abb. 4.8 nachgeahmt werden. Dafür wird angenommen, dass die Pulse leicht rotverstimmt ($E_{ph} = 60$ eV) sind. Es werden 200 Spektren gemittelt.

Für die Simulationen mit partiell kohärenten Pulsen in Abbildung 4.9, wird das selbe Verfahren wie in dem Experiment verwendet, um einen Intensitätsplot zu erstellen. Bislang ist für die simulierten Plots auf der Intensitätsskala die Peak-Intensität aufgetragen worden. Für alle gaußschen Pulse ist diese bis auf einen konstanten Umrechnungsfaktor auch ein Maß für die integrierte Intensität, also auch der Fluenz. Bei den verrauschten Pulsen ist dieser Zusammenhang nicht mehr gültig, denn bei fest vorgegebener Peak-Intensität kann die Fluenz stark variieren. Die beobachtete Linienänderung entspricht einem Phasenshift, welcher durch den gesamten Puls verursacht wird. Deshalb ist es bei diesen Pulsen entscheidend, die Fluenz zu betrachten, um intensitätsabhängige Änderungen zu beobachten. Im Experiment ist für jeden Puls die Puls-Energie E_{Puls} bestimmt worden, welche mit der Fluenz zusammenhängt nach:

$$E_{Puls} = \frac{F}{A_{Fokus}} = \frac{1}{A_{Fokus}} \int I(t) dt. \quad (4.11)$$

Dabei entspricht A_{Fokus} der Querschnittsfläche des Fokus, welche im Experiment zu $25 \times 25 \mu m$ bestimmt worden ist. Die aufgenommenen optischen Dichten werden sowohl im Experiment als auch in den Simulationen aufsteigend nach der Fluenz des dazugehörigen Pulsspektrums geordnet und in Bins eingeteilt. Über diese wird gemittelt und die Ergebnisse in einem Histogramm gegen die Fluenz bzw. Pulsenergie aufgetragen.

In den Messresultaten aus Abb. 4.8 erkennt man deutlich die Linienformänderung wie sie in Abschnitt 4.2 bereits zu erkennen ist. Die in Abschnitt 4.2 präsentierten Simulationen und insbesondere die dazugehörigen physikalischen Interpretationen zum Linienformwechsel stimmen daher mit den tatsächlich ablaufenden Ereignissen überein. Die Simulationen in Abbildung 4.9 zeigen ebenso den gemessenen Fano-zu-Lorentz-Shift. Dieser ist jedoch nicht mehr so klar zu erkennen wie in den Simulationen mit kurzen gaußschen Pulsen aus Kapitel 4.2. Sowohl die Erhöhung der Pulsdauer (von $\tau_p = 1$ fs auf 50 fs) als auch die partielle Kohärenz können dafür verantwortlich sein. Zudem kann bei Pulsen, die breiter als die Lebensdauer der Absorptionslinie sind, erwartet werden, dass eine Verschiebung der Resonanz im Spektrum auftritt. Eine solche Verschiebung tritt in der Simulation in Abb. 4.9 nicht auf. Ob diese in den experimentellen Daten in Abb. 4.8 zu erkennen ist, kann im Rahmen der Messungenauigkeiten nicht ausgesagt werden. Diese Effekte hängen stark von den verwendeten verrauschten XUV-Pulsen ab und obliegen weiterer Untersuchungen bezüglich der partiellen Kohärenz und der Puls-Substruktur.

Die Fluenz-Skala in Abb. 4.9 kann mit obiger Abschätzung für die Fokus-Fläche in Pulsenergie analog zu den Messungen am FLASH in μJ umgerechnet werden. Der Energiebereich entspricht damit: $0,0051 \mu J \leq E_{puls} \leq 1,14 \mu J$, und ist um zwei bis drei Größenordnungen geringer als in den experimentellen

Resultaten in Abb. 4.8. Für die Simulationen wird nach wie vor mit einem Dipolmoment von $d_{ge} = 1$ a.u. gerechnet. Das Verändern dieses Wertes führt zu einer veränderten Kopplung der Zustände durch die Rabi-Frequenz (siehe Gl. 1.20). Für ein anderes Dipolmoment treten obige Effekte daher auf anderen Intensitäts-/Fluenzskalen auf, sodass die Abweichung zwischen Simulation und Experiment nachvollziehbar ist.

Trotz einiger ungelöster Problemstellungen, kann insgesamt die gemessene Linienänderung mit den Simulationen nachgeahmt und verstanden werden. Das Modell in vorherigen Versuchen zur Linienformänderungen ([1] und [2]) kann auch hier angewandt werden, wenn die dort verwendete ponderomotorische Energieänderung durch eine intensitätsabhängige Verschiebung der Eigenenergien im Rabi-gekoppelten dressed-state-Bild ersetzt wird.

5 Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde erfolgreich das Heliumatom als Few-Level-Modell in Wechselwirkung mit intensiven XUV-Feldern simuliert.

Im einfachen 2-Level-System sind intensitätsabhängige (Rabi-)Oszillationen präsentiert und diskutiert worden. Dieses Modellsystem tritt in der Natur als solches nicht auf, da es zu stark vereinfacht ist. Dennoch konnten mit ihm die Grundlagen der Simulation geprüft werden, da eine analytische Behandlung noch möglich ist.

Darauf aufbauend ist das vereinfachte Heliummodell mit zusätzlicher Kontinuumskopplung untersucht worden. Diese bricht die Symmetrie der Energieverschiebung und somit Phasenänderung im XUV-Intensitätsverlauf zwischen Grundzustand und angeregtem Zustand. Dadurch werden intensitätsabhängige Linienformänderungen im XUV-Bereich deutlich, welche mit ähnlichen Erklärungen zu Experimenten mit intensiven IR-Pulsen und schwachen hohen Harmonischen gedeutet werden können (Eine ausführlichere Beschreibung dieser Experimente findet sich in [1] und [2]). Dort variiert die ponderomotorische Energie intensitätsabhängig. In diesem Experiment wird dahingegen die Intensitätsabhängigkeit der Energieverschiebung über die Rabi-Kopplung im dressed states Bild hergeleitet. In beiden Fällen kann mit dieser intensitätsabhängigen Energieverschiebung eine Änderung der Phase des Dipolmoments und damit der Linienform über den Zusammenhang $q(\Phi)$ [2] erklärt werden. Darüberhinaus ist festgestellt worden, dass sich das Kontinuum bereits mit wenigen Zuständen gut nachahmen lässt.

Auch in den Experimenten am FLASH und den dazugehörigen Simulationen mit partiell-kohärenten Pulsen finden sich die beobachteten Linienformänderungen wieder, welche mit den zuvor durchgeführten Simulationen durch Energie- und Phasenverschiebungen erklärt werden können. Weitere Untersuchungen, in welcher Form die Struktur der Pulse auf diese Messungen Einfluss hat, sind noch durchzuführen. Damit kann z.B. der Fragestellung nachgegangen werden, ob bei Experimenten mit partiell kohärenten Pulsen der gesamte Puls die beobachteten Effekte hervorruft, oder sogenannte *Kohärenz-Peaks* (kurze, phasenkonstante Sub-Pulse im verrauschten Puls) die Auslöser sind. Darüber hinaus sollen diese Ergebnisse dazu beitragen, andere (komplexere) Systeme zu verstehen. Eine direkte Anwendung wäre zum Beispiel, die Resultate der Heliummessungen als Intensitäts- bzw. Pulsenergie-Kalibrierung

für andere von unserer Arbeitsgruppe durchgeführte Messungen am FLASH zu verwenden. Dafür müssen die Simulationen mit den korrekten, theoretisch noch zu bestimmenden Werten für die Dipolmomente d_{ge} und d_{gc} durchgeführt werden. Auch das Heliumatom kann weiterhin in Wechselwirkung mit starken XUV-Feldern untersucht werden. Höhere Pulsintensitäten können z.B dazu beitragen, die nach dieser Arbeit erwarteten weiteren Linienformänderungen über den gemessenen Fano-zu-Lorentz-Shift hinaus zu verifizieren. Da Helium besser und einfacher zu verstehen ist als viele andere Atome und Moleküle, bietet es sich auch an, Time-Delay-Experimente mit intensiven XUV-Pump und XUV-Probe-Pulsen durchzuführen, um analog zu dieser Arbeit erste Einblicke in diese Art von Experimente zu gewinnen.

Literaturverzeichnis

- [1] C. Ott, A. Kaldun, P. Raith, K. Meyer, M. Laux, J. Evers, C. H. Keitel, C. H. Greene, and T. Pfeifer. Lorentz meets fano in spectral line shapes: A universal phase and its laser control. *Science*, 340:716–720, May 2013.
- [2] Christian Ott, Andreas Kaldun, Luca Argenti, Philipp Raith, Kristina Meyer, Martin Laux, Yizhu Zhang, Alexander Blättermann, Steffen Hagstotz, Thomas Ding, Robert Heck, Javier Madronero, Fernando Martin, and Thomas Pfeifer. Reconstruction and control of a time-dependent two-electron wave packet. *Nature*, 516:374–378, 2014.
- [3] Franz Schwabl. *Quantenmechanik (QM1), Eine Einführung*. Springer Verlag, Heidelberg, Berlin, 2007.
- [4] Thomas Pfeifer. *Adaptive Control of Coherent Soft X-Rays*. Dissertation, 2004.
- [5] Kristina Meier. *Coherent and statistical phase control and measurements of time-dependent quantum dynamics*. Dissertation, 2014.
- [6] Christian Ott. *Attosecond multidimensional interferometry of single and two correlated electrons in atoms*. Dissertation, 2012.
- [7] U. Fano. Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts. *Phys. Rev.*, 124:1866–1878, Dec 1961.
- [8] M. Domke, K. Schulz, G. Remmers, G-Kaindl, and D. Wintgen. High-resolution study of 1po double-excitation states in helium. *Physical Review*, 53, March 1996.
- [9] Claude Cohen-Tannoudji, Jacques Dupont-Roc, and Gilbert Grynberg. *Atom-Photon Interaction*. John Wiley & Sons, Inc., 1992.
- [10] Andrei Tokmakoff. *Time-Dependent Quantum Mechanics and Spectroscopy*. licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-ShareAlike 4.0 International License, 2014.
- [11] K Tiedtke, A Azima, N von Bargen, L Bittner, S Bonfigt, S Düsterer, B Faatz, U Frühling, M Gensch, Ch Gerth, N Guerassimova, U Hahn,

- T Hans, M Hesse, K Honkavaar, U Jastrow, P Juranic, S Kapitzki, B Keitel, T Kracht, M Kuhlmann, W B Li, M Martins, T Núñez, E Plönjes, H Redlin, E L Saldin, E A Schneidmiller, J R Schneider, S Schreiber, N Stojanovic, F Tavella, S Toleikis, R Treusch, H Weigelt, M Wellhöfer, H Wabnitz, M V Yurkov, and J Feldhaus. The soft x-ray free-electron laser flash at desy: beamlines, diagnostics and end-stations. *New Journal of Physics*, 11(2):023029, 2009.
- [12] Ulrich Hahn and Kai Tiedtke. The gas attenuator of flash at desy. *AIP Conference Proceedings*, 879, Jan 2007.
- [13] D.D. Ryutov, R.M. Bionta, S.P. Hau-Riege, K.I. Kishiyama, D. McMahon, M.D. Roeben, S. Shen, Livermore /LLNL, P.M. Stefan, and /SLAC. *The Physics of the Gas Attenuator for the Linac Coherent Light Source (LCLS)*. Feb 2011.
- [14] Thomas Pfeifer, Yuhai Jiang, Stefan Düsterer, Robert Moshhammer, and Joachim Ullrich. Partial-coherence method to model experimental free-electron laser pulse statistics. *Opt. Lett.*, 35(20):3441–3443, Oct 2010.
- [15] Veit Stooß. Time-resolved strong field effects in helium observed with transient absorption spectroscopy. Masterarbeit, 2015.
- [16] P Ranitovic, X M Tong, B Gramkow, S De, B DePaola, K P Singh, W Cao, M Magrakvelidze, D Ray, I Bocharova, H Mashiko, A Sandhu, E Gagnon, M M Murnane, HC Kapteyn, I Litvinyuk, and C L Cocke. Ir-assisted ionization of helium by attosecond extreme ultraviolet radiation. *New Journal of Physics*, 12(1):013008, 2010.

Danksagung

Ich möchte mich bei allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe Pfeifer am Max-Planck-Institut für Kernphysik für eine sowohl spannende und lehrreiche als auch unterhaltsame Zeit während der Zeit dieser Bachelorarbeit bedanken. Ich werde mich gerne daran zurück erinnern.

Mein besonderer Dank geht an..

Prof. Dr. Thomas Pfeifer, der es mir ermöglicht hat, in seiner Gruppe diese Arbeit zu verfassen. Zudem ist er stets für Rat und Vorschläge ansprechbar gewesen, die hilfreich und verständlich waren.

Priv.-Doz. Dr. Robert Moshhammer für die Übernahme der Zweitkorrektur meiner Arbeit.

Thomas Ding, der als Betreuer dieser Arbeit immer ein Ohr für mich offen und auch bei komplexen Themen eine nachvollziehbare Erklärung parat hatte.

Dr. Christian Ott für die Beantwortung aller Fragen, die nach den Diskussionen mit Thomas noch offen geblieben sind.

die weiteren Mitglieder der X-Music-Gruppe, **Marc Rebholz**, **Max Hartmann** und **Lennart Aufleger**, welche die Messzeit am FLASH erlebenswert gemacht haben.

Veit Stoß und **Kristina Meier** für die vielen Erläuterungen zu den Simulationsprogrammen und den dazugehörigen physikalischen Prozessen.

Abschließend bedanke ich mich bei meinen Eltern, **Biljana** und **Ulrich**, auf deren Unterstützung und Rückhalt ich mich immer verlassen kann und weit über die Zeit der Bachelorarbeit hinausgehen.

Erklärung

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg, den 19. September 2016, _____
Alexander Magunia