



Doctoral Thesis

Attosecond and strong-field ionization dynamics in atoms and molecules

Author(s):

Ludwig, André

Publication Date:

2016

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-010608867> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

Abstract

Recent developments in laser technology have paved the way for a new field of research called attosecond science. Laser sources delivering ultra-short pulses with durations on the order of femtoseconds have shed new light on the dynamics on atomic and molecular timescales. Furthermore, the application of intense femtosecond pulses in strong-field ionization of atoms has led to the discovery of high-order harmonic generation, in essence a frequency up-conversion process and the basis of attosecond experiments.

The field of attosecond science focuses on control and analysis of electron dynamics in atoms, molecules, and solids by using coherent sub-femtosecond pulses in the extreme-ultraviolet spectral range. This thesis presents studies on strong-field and attosecond ionization dynamics in representative atomic and molecular systems ranging from noble gases to basic hydrocarbons.

First, we report on an experiment on the strong-field ionization of noble gases by mid-infrared laser pulses. Non-dipole effects were predicted to emerge for peak intensities on the order of 10^{13} W/cm² in this long-wavelength regime of strong-field ionization. We analyze photoelectron momentum distributions acquired with a velocity map imaging spectrometer. We find evidence for an influence of the magnetic field component of the laser pulse during ionization, visible as asymmetries along the propa-

gation direction. This asymmetry is essentially a shift of the peak of the electron momentum distribution caused by the combined laser field and Coulomb potential. It is a sign of the breakdown of the dipole approximation in strong-field ionization and challenges the theoretical treatment of ionization dynamics at long wavelengths.

The second part of this work is centered around the characterization and application of attosecond pulses in pump-probe experiments. We present and benchmark a new iterative FROG-CRAB algorithm called ptychographic reconstruction of attosecond pulses. This method is capable of retrieving the complete temporal properties of attosecond pulses but performs far better and imposes much lower demands on the delay sampling and the signal-to-noise ratio of the experimental photoelectron spectrogram in comparison to commonly used reconstruction schemes.

Third, we present results from the application of attosecond pulses to an attosecond quantum beat spectroscopy experiment on excited states in helium. Our spectrally tailored excitation pulse minimizes direct ionization and thus allows unperturbed access to the quantum beat signal even in the region of temporal overlap of the two applied pulses. A comparison with calculations of the time-dependent Schrödinger equation complies with the observed oscillations and reveals a previously neglected anisotropy in some of the quantum beats. We show that this anisotropy can be used to control the photoemission direction by varying the carrier envelope phase of the probe pulse.

The fourth study, a pump-probe experiment based on fragment ion detection, allows us to examine ultrafast isomerization and dissociation dynamics of the ethylene cation $C_2H_4^+$. This sheds new understanding on the dynamics of the excited nuclear wave packets on their natural timescale of few femtoseconds. We attribute the dynamics in the ion yields to transitions between different potential surfaces in the vicinity of conical intersections. Ultimately, we show the control of the dissociation to $C_2H_3^+$ and $C_2H_2^+$ on an ultrafast timescale.

Kurzfassung

Jüngste Entwicklungen in der Lasertechnologie haben einem neuen Forschungsgebiet, der Attosekunden-Wissenschaft, den Weg bereitet. Laser, die ultrakurze Pulse mit Pulsdauern in der Grössenordnung von Femtosekunden liefern, haben Einblicke in Dynamiken auf atomaren und molekularen Zeitskalen ermöglicht. Darüber hinaus hat die Anwendung von intensiven Femtosekundenpulsen in der Starkfeldionisation von Atomen zur Entdeckung der Erzeugung hoher Harmonischer geführt, die im Wesentlichen einen Frequenz-Umwandlungsprozess und die Basis von Attosekunden-Experimenten darstellt.

In der Attosekunden-Wissenschaft werden kohärente Pulse mit subfemtosekunden Pulsdauern im extrem-ultravioletten Bereich genutzt, um Elektronendynamiken in Atomen, Molekülen und Festkörpern zu kontrollieren und zu untersuchen. In der vorliegenden Arbeit präsentieren wir Ergebnisse in den Bereichen der Starkfeld- und Attosekunden-Ionisationsdynamiken am Beispiel von repräsentativen atomaren und molekularen Systemen, von Edelgasen bis hin zu einfachen Kohlenwasserstoffen.

Zuerst berichten wir von einem Experiment im Bereich der Starkfeldionisation von Edelgasen durch Laserpulse im mittleren Infrarotbereich. Für diesen langwelligen Bereich der Starkfeldionisation wurde das Aufkommen von Nicht-Dipol-Effekten bei Spitzenintensitäten in der Grössenordnung von 10^{13} W/cm^2 vorhergesagt. Wir untersuchen Photoelektronen-

Impulsverteilungen, die mit Hilfe eines *Velocity-Map-Imaging*-Spektrometers aufgenommen wurden. In diesen Impulsverteilungen sehen wir den Einfluss der Magnetfeldkomponente des Laserpulses während der Ionisation, erkennbar an Asymmetrien entlang der Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls. Diese Asymmetrien kommen durch die Verlagerung der Spitzen der Impulsverteilungen zu Stande, verursacht durch das kombinierte Laserfeld- und Coulomb-Potential. Sie sind ein Zeichen des Zusammenbruchs der Dipolnäherung in der Starkfeldionisation und fordern die theoretische Beschreibung von Ionisationsprozessen bei langen Wellenlängen heraus.

Im zweiten Teil dieser Arbeit geht es um die Charakterisierung und Anwendungen von Attosekundenpulsen in Anrege-Abfrage-Experimenten. Wir präsentieren und vergleichen eine neue iterative FROG-CRAB-Methode, genannt ptychographische Rekonstruktion von Attosekundenpulsen. Diese Methode ermöglicht es, Attosekundenpulse zeitlich vollständig zu charakterisieren. Dabei zeichnet sich unser Algorithmus durch eine weit bessere Leistung aus und setzt weit geringere Ansprüche in Bezug auf die Schrittweite und das Signal-Rausch-Verhältnis des gemessenen Photoelektronen-Spektrogramms im Vergleich zu anderen weit verbreiteten Rekonstruktionsmethoden voraus.

Im dritten Teil dieser Arbeit stellen wir die Ergebnisse eines Experimentes vor, in dem wir Attosekundenpulse für die Quantenschwebungspektroskopie von angeregten Zuständen in Helium verwenden. Unsere spektral angepassten Anregepulse minimieren den Beitrag durch direkte Ionisation und ermöglichen uns so ungehinderten Zugriff auf das Quantenschwebungssignal sogar im Bereich der zeitlichen Überlappung beider involvierter Pulse. Ein Vergleich mit Berechnungen auf Basis der zeitabhängigen Schrödingergleichung ergibt eine sehr gute Übereinstimmung der beobachteten Oszillationen und deckt eine Anisotropie in einigen der Quantenschwebungen auf, die in früheren Studien vernachlässigt wurde. Wir zeigen, dass sich auf Basis dieser Anisotropie die Emissionsrichtung mit Hilfe der Träger-Einhüllenden-Phase des Abfragepulses kontrollieren lässt.

Im vierten Teil dieser Arbeit, einem Anrege-Abfrage-Experiment basie-

rend auf der Detektion von Fragment-Ionen, geht es um Messungen der ultraschnellen Isomerisations- und Dissoziations-Dynamiken des Ethylen-Kations $C_2H_4^+$. Mit diesem Experiment erreichen wir Einblicke in die Dynamiken von angeregten nuklearen Wellenpaketen auf ihrer natürlichen Zeitskala von wenigen Femtosekunden. Wir ordnen die Dynamiken in den Ionen-Signalen der verschiedenen Fragmente Übergängen zwischen Potentialflächen in der Nähe von konischen Schnittpunkten zu. Zum Schluss zeigen wir, dass wir die Dissoziation zu $C_2H_3^+$ und $C_2H_2^+$ auf ultrakurz- en Zeitskalen kontrollieren können.