



Doctoral Thesis

Attosecond electron kinematics in strong field single and double ionization

Author(s):

Pfeiffer, Adrian Nikolaus

Publication Date:

2011

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-006393543> →

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](#).

Diss. ETH No. 19565

ATTOSECOND ELECTRON KINEMATICS IN STRONG FIELD SINGLE AND DOUBLE IONIZATION

A dissertation submitted to

E T H Z U R I C H

for the degree of

D O C T O R O F S C I E N C E S

presented by

A D R I A N N I K O L A U S P F E I F F E R

Dipl.-Phys., Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

born on September 26, 1979

citizen of Germany

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. U. Keller, Supervisor
Prof. Dr. Reinhard Dörner, Co-Examiner

March 2011

Abstract

The key process underlying attosecond physics is strong field ionization by femtosecond laser pulses. The following model has been established to describe it: in the semi-classical model, the electron escapes from the atom by tunneling and moves afterwards on a classical trajectory. Currently, the frontiers in attosecond physics are moving forward, pushing resolution in time and space. This raises the demand for precision in the semi-classical model to support the accuracy of the new measurement techniques.

In this thesis, the momenta of ions and electrons after ionization by femtosecond laser pulses are measured by COLTRIMS. This method features the measurement of the three-dimensional vector momenta possessed by the charged particles after an atomic break-up. Furthermore, the charged particles are measured in coincidence, which means that the charged particles can be grouped according to their atom of origin. This opens up the possibility to explore kinematic correlations between the involved particles.

The transition from the tunneling process into a classically moving particle poses great challenges both to a conceptual definition and to measurements. The experiments presented in this thesis can be regarded as kinematic studies of the electron following tunnel ionization. Conclusions are presented concerning the initial conditions of the electron trajectory, the starting time of the electron trajectory, and kinematic correlations of the electrons in double ionization.

The initial conditions of the electron trajectory are the exit of the tunnel and the initial momentum of the electron. The force exerted by the laser field dominates the trajectory of the electron, but the Coulomb interaction with the parent ion induces subtle effects. It is found that these effects can be used as a probe for the initial conditions of the electron trajectory. The TIPIS model is introduced for the calculation of the exit of the tunnel, demonstrating that multi-electron effects and the Stark shift play a critical role. The tunnel exit points calculated with the TIPIS model are generally larger than in the standard model, and the threshold intensity for over-

the-barrier ionization is increased. The initial momentum of the electron is zero in a first approximation, but the quantum mechanical view associates an initial spread with the electron wavepacket. Whereas the wave packet spread transversal to the field polarization is known and commonly accepted, the longitudinal spread is debated and therefore often neglected in simulations. In this thesis it is shown how the Coulomb asymmetry probes the longitudinal wavepacket spread.

The attoclock technique is applied to measure the ionization time, i.e., the time zero of the electron trajectory. It is discussed how the attoclock provides timings on a coarse and on a fine scale, similar to the hour and the minute hand of a watch face. With the attoclock technique the temporal resolution is on the attosecond timescale, the natural timescale for valence electron motion. We found that the ionization time of the first electron in double ionization of Argon is in good agreement with the semi-classical model, whereas the ionization of the second electron occurs significantly earlier than predicted.

Finally, correlations in the emission directions of the electrons are found for double ionization by close-to-circularly polarized laser pulses, a case where up to now the electrons were assumed to be field ionized without mutual interaction. Here we present coincidence momentum measurements of the doubly charged ion and the two electrons that are in contradiction with the independent electron assumption. These experiments demonstrate that recollision is not the only reason for electron correlation in strong field double ionization.

Kurzfassung

Der grundlegende Prozess im Gebiet der Attosekundenphysik ist Starkfeldionisation durch kurze Laserpulse. Es hat sich bewährt, den Prozess durch ein Modell zu beschreiben: Im sogenannten halbklassischen Modell löst sich das Elektron zunächst vom Atom durch Tunneln und bewegt sich danach auf einer klassischen Trajektorie. Gegenwärtig verschieben sich die Grenzen der Attosekundenphysik durch immer bessere zeitliche und räumliche Auflösung. Dadurch erhöht sich die Nachfrage nach Präzision im halbklassischen Modell.

In dieser Doktorarbeit werden COLTRIMS Messungen der Impulse von Ionen und Elektronen nach Ionisation durch kurze Laserpulse vorgestellt. Diese Methode ermöglicht die Messung der drei-dimensionalen Impulse geladener Teilchen, die beim Zerfall eines Atoms entstehen. Außerdem werden die Teilchen in Koinzidenz gemessen, sodass man die Teilchen nach ihrem Ursprungsatom einteilen kann. Das eröffnet die Möglichkeit, die Teilchen auf kinetische Korrelationen zu untersuchen.

Der Übergang vom Tunnelprozess in eine klassische Teilchenbahn stellt große Herausforderung sowohl an konzeptionelle Definitionen als auch an Messungen. Die Experimente in dieser Doktorarbeit sind kinematische Untersuchungen der Elektronen nach Tunnelionisation. Es werden Schlussfolgerungen gemacht über die Anfangsbedingungen der Elektronentrajektorie, die Anfangszeit der Elektronentrajektorie, und über kinematische Korrelationen zwischen den Elektronen bei Doppelionisation.

Die Anfangsbedingungen der Elektronentrajektorie sind der Tunnelausgang und der Anfangsimpuls des Elektrons. Die Kraft, die durch das Laserfeld ausgeübt wird, bestimmt die Elektronenbewegung größtenteils, aber auch die Anziehung durch das Ion hat einen Effekt wenn man die Feinheiten betrachtet. Es stellt sich heraus, dass man diese Feinheiten als Sonde für die Anfangsbedingungen benutzen kann. Das TIPIS Modell für die Berechnung des Tunnelausgangs wird eingeführt. Es berücksichtigt Mehrelektroneneffekte und den Stark-Effekt. Im Vergleich zum Standardmodell verlagern sich die Tunnelausgänge weiter nach außen und die

Grenzintensität für Ionisation über der Potentialbarriere wird erhöht. Der Anfangsimpuls des Elektrons wird in erster Näherung als null angenommen, aber in der quantenmechanischen Beschreibung verbreitert sich das Wellenpaket des Elektrons. Wohingegen die transversale Verbreiterung bekannt und weitgehend unumstritten ist, ist die Verbreiterung in Längsrichtung zur Polarisierung des Feldes umstritten und wird deshalb oft vernachlässigt. In dieser Doktorarbeit wird gezeigt wie die Coulomb Asymmetrie als Sonde für diese Verbreiterung fungiert.

Die Ionisationszeit, definiert als die Anfangszeit der Elektronentrajektorie, wird mithilfe einer Methode namens Attosekundenuhr gemessen. Dabei wird erörtert, dass die Attosekundenuhr zwei Messskalen mit verschiedener Genauigkeit, ähnlich einem Stundenzeiger und einem Minutenzeiger, aufweist. Die dabei erzielte zeitliche Auflösung befindet sich im Bereich von Attosekunden, was der natürlichen Zeitskala für Bewegungen von Valenzelektronen entspricht. Die gemessene Ionisationszeit des ersten Elektrons bei Doppelionisation von Argon stimmt gut mit der Vorhersage des halbklassischen Modells überein, aber die Ionisationszeit des zweiten Elektrons ereignet sich wesentlich früher als im Modell.

Schließlich werden Korrelationen zwischen den Emissionsrichtungen der Elektronen bei Doppelionisation mit nahezu zirkular polarisierten Laserpulsen gemessen, obwohl bisher für diesen Fall die Annahme von nicht wechselwirkenden Elektronen vorherrschte. Die Koinzidenzmessungen des Ions und der zwei Elektronen sind im Widerspruch zur Annahme, dass die Elektronen unabhängig voneinander sind und ausschließlich mit dem Feld des Laserpulses wechselwirken. Dadurch wird aufgezeigt dass die Kollision nach dem ersten Ionisationsschritt nicht die einzige Ursache für Korrelationen in Starkfeldionisation ist.