

Diss. ETH No. 22331

**ULTRAFAST MOMENTUM SPECTROSCOPY IN  
STRONG-FIELD AND XUV SINGLE-PHOTON IONIZATION**

A thesis submitted to attain the degree of  
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH  
(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by  
ROBERT BOGE  
MSc in Physics, University of Massachusetts Amherst

born on 20.01.1987

citizen of Germany and France

accepted on the recommendation of  
Prof. Dr. Ursula Keller, examiner  
Prof. Dr. Jürg Osterwalder, co-examiner  
PD Dr. Lukas Gallmann, co-examiner

2014

# Abstract

In this thesis, the electron dynamics occurring during the photo-ionization of noble gases are studied in order to answer the fundamental question of how fast light can remove an electron from an atom. First the dynamics in strong-field ionization are investigated, followed by the dynamics in single-photon ionization. These two ionization channels are of fundamentally different nature.

In strong-field ionization, when the electric field of the laser is sufficiently strong to bend the binding potential of the ion, it creates a barrier through which the valence electron might tunnel into the continuum. In a more figurative picture one could see the electron as being ripped out of the atom by the laser field, whereas during single-photon ionization the electron is promoted into the continuum via the absorption of a single photon of sufficiently high energy.

In the work presented here, the underlying attosecond dynamics of these two different channels will be investigated. It will be shown that the dynamics of the electron while tunneling can only be addressed through the interaction of the electron with the remaining parent ion and the still present laser field during propagation in the continuum, while in single-photon ionization it is exactly this interaction that leads to the observed delay in photoemission.

Tunnel ionization dynamics are probed with an angular streaking technique called "attoclock" that transfers through the rotating field of the

close-to-circularly polarized laser the state of the electron right at the moment when it exits the tunneling barrier onto the final momentum at the detector. In order to disentangle contributions to the final observable from tunneling and from the propagation in the continuum and also to identify the underlying mechanisms, a semi-classical Monte Carlo simulation is implemented. It describes the tunneling quantum mechanically in a first step that provides starting conditions to classically calculate the trajectories of the electron in the continuum in the second step.

The specific question addressed within the framework of tunnel ionization is how the tunneling theory has to be modified when approaching the multi-photon ionization regime. In the quasi-static or adiabatic approximation, valid for high intensities, the tunneling barrier is treated as a constant potential at each moment in time. However, when sufficiently reducing the intensity, this approximation is expected to fail, giving rise to an additional velocity offset of the electron at the exit point. In this work it is shown that extending adiabatic theory by this effect alone is not sufficient to explain the experimental findings and that the model needs further refinement.

In order to probe single-photon ionization dynamics as the second topic of the thesis, a new front-end had to be installed in front of the COLd Target Recoil Ion Momentum Spectrometer (COLTRIMS) detector previously used for the tunnel ionization experiments. The front-end provides attosecond pulse trains (APTs) and single attosecond pulses (SAPs) in the extreme ultraviolet (XUV) regime with sufficiently high photon energy for single-photon ionization and pulse durations in the attosecond range. Long-term stability of the XUV-infrared (IR) pump-probe experiments addressing single-photon ionization delays, is ensured by the implementation of an active interferometer length stabilization.

For the first time, Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of Two-photon Transitions (RABBITT) and attosecond streaking experiments are performed in combination with a COLTRIMS detector, allowing for a new class of experiments, where different species were studied simultaneously with a multi species gas target, enabled by the coincidence capability of the detector. Here, the delay between two species, argon and

---

neon, is determined, such that the contribution from the XUV chirp cancels out. Furthermore, performing two different experiments, RABBITT and attosecond streaking, allows for the addressing of contributions from measurement-induced delays.

## Kurzfassung

Diese Arbeit befasst sich mit Elektronendynamiken während der Photoionisation von Edelgasen. Dabei soll die fundamentale Frage beantwortet werden, wie lange es dauert, um ein Elektron von einem Atom zu entfernen. Hierzu werden die dynamischen Prozesse zweier grundlegend verschiedener Ionisationskanäle untersucht: einerseits Tunnelionisation, andererseits Einphotonenionisation. Während der Tunnelionisation verändert das ausreichend starke elektrische Feld des Lasers das Bindungspotenzial des Ions derart, dass eine Barriere entsteht, durch welche das Elektron in das Kontinuum tunneln kann, es entreisst praktisch dem Atom das Elektron. Bei der Einphotonenionisation hingegen wird das Elektron durch die Absorption eines einzelnen, hinreichend energetischen Photons in einen freien Zustand angeregt.

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit den zugrunde liegenden Dynamiken dieser beiden Prozesse. Es wird gezeigt, dass diese im Fall der Tunnelionisation nur durch die Wechselwirkung des Elektrons mit dem Ion und dem noch präsenten Laserfeld während der Propagation im Kontinuum adressiert werden können, wobei genau diese Wechselwirkung zu den beobachteten Verzögerungen während der Einphotonenionisation führen.

Tunnelionisationsdynamiken werden mit einer winkelabbildenden Technik namens "attoclock" untersucht, welche auf dem rotierenden Feld des nahezu zirkular polarisierten Laserlichts beruht, das den Anfangszustand des Elektrons am Ausgang der Tunnelbarriere auf den Impuls am Detek-

tor abbildet. Eine semiklassische Monte-Carlo-Simulation erlaubt es, die verschiedenen Beiträge der experimentellen Observablen zu unterscheiden: einerseits das Tunneln selbst und andererseits die Propagation im Kontinuum. Die Simulation beschreibt das Tunneln quantenmechanisch in einem ersten Schritt, welcher die nötigen Startwerte für die klassische Propagation im Kontinuum während des zweiten Schrittes liefert.

Der Fokus innerhalb des Themengebietes der Tunnelionisation wird auf die Frage gelegt, wie die Tunnelionisationstheorie angepasst werden muss, wenn sie sich dem Bereich der Mehrphotonenionisation nähert. Für hohe Intensitäten wird die Tunnelbarriere im Rahmen der quasi-statischen oder adiabatischen Näherung als zeitunabhängiges Potenzial betrachtet. Bei niedrigeren Intensitäten hingegen wird erwartet, dass diese Näherung unzuverlässig ist, was zu einer zusätzlichen Startgeschwindigkeit des Elektrons nach dem Tunneln führt. Diese Arbeit zeigt, dass dieser Effekt alleine nicht ausreicht, um die experimentellen Beobachtungen zu beschreiben und dass das Modell weiter verfeinert werden muss.

Um die Dynamik der Einphotonenionisation, das zweite Themengebiet dieser Arbeit, zu untersuchen, muss zunächst ein neues "extreme ultraviolet" (XUV) Front-End vor den schon für die vorigen Experimente verwendeten COLTRIMS-Detektor installiert werden. Das Front-End erzeugt "attosecond pulse trains" (APTs) und "single attosecond pulses" (SAPs) im XUV-Regime mit ausreichender Photonenenergie zur Einphotonenionisation mit Attosekunden Pulslänge. Eine aktive Interferometerstabilisierung sorgt für die benötigte Langzeitstabilität der XUV-IR Doppelpulsexperimente.

Durch die erstmalige Durchführung von "RABBITT" und Attosekundenabbildungsexperimenten in Kombination mit einem COLTRIMS-Detektor werden neuartige Experimente ermöglicht, welche, Dank der Koindenzfähigkeit des Detektors gleichzeitig eine Mischung mehrerer Gase untersuchen. Es wird die Ionisationsverzögerung zwischen Argon und Neon untersucht, ohne dass das zeitabhängige Spektrum der XUV-Pulse das Ergebnis verfälscht. Ferner können durch die Verwendung verschiedener Messtechniken messbedingte Einflüsse auf die experimentelle Observable untersucht werden.