

Interacción de pulsos de attosegundos y femtosegundos con átomos y moléculas



VNIVERSIDAD
D SALAMANCA

CAMPUS DE EXCELENCIA INTERNACIONAL

Alexis Agustín Chacón Salazar

FACULTAD DE CIENCIAS

Departamento de Física Aplicada. Área de Óptica.

Universidad de Salamanca

Tesis para optar por el grado de

Doctor en Física en la Universidad de Salamanca

Director: Dr. Camilo Ruiz Méndez

Tutor: Prof. Dr. Luis Plaja Rustein

Salamanca, Diciembre 2014

CAMILO RUIZ MÉNDEZ, Investigador Asociado del Departamento de Física de Partículas en la Universidad de Santiago de Compostela y

LUIS PLAJA RUSTEIN, Profesor Titular del Área de Óptica del Departamento de Física Aplicada de la Universidad de Salamanca,

CERTIFICAN:

Que la presente Memoria, “**Interaction of attosecond and femtosecond pulses with atoms and molecules**” ha sido realizada bajo su dirección y tutoría en el Área de Óptica del Departamento de Física Aplicada de la Universidad de Salamanca por Don Alexis Agustín Chacón Salazar y constituye su Tesis Doctoral para optar al grado de Doctor en Física por la Universidad de Salamanca.

Camilo Ruiz Méndez
Director

Luis Plaja Rustein
Tutor

Salamanca, 12 de diciembre de 2014.

*“The ultimate value of life depends upon awareness
and the power of contemplation rather
than upon mere survival.”*

Aristotle

A la memoria de mi querido hermano: *Ricardo A. Chacón S.*

A mis padres: *Agustín and Vielka*

A mis hermanos: *María and Agustín Junior*

A mi esposa: *Alma Dreyer*

Abstract

Nowadays attosecond science tools have opened new avenues to access the ultrafast electronic motion in matter with unprecedented time and spatial resolutions.

This thesis is dedicated to the study of both the structural and dynamical information carried by the electrons in atoms and small molecules. Our first aim consists in applying the schemes widely used in optics to reconstruct the amplitude and phase of the ultrafast laser pulses. Analogously, we extend these schemes to the matter-wave characterization. By using the attosecond streak camera concepts, we theoretically demonstrate that the application of two attosecond pulses, in the presence of a moderated infrared laser field, leads to the emission of two coherent electron wavepackets (EWP). The resulting interferogram contains full information about the phase difference between the two ionization events. Conceptually, this ionization scheme is equivalent to the optical technique named Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction (SPIDER). In a similar way to the one used in optics, we apply the SPIDER algorithm but in this case to extract information of an atomic system. This information is encoded in the complex bound-free dipole transition matrix element, amplitude and phase, and can be obtained from the final interferogram.

Furthermore, the time delay in photoemission or Wigner time delay is a fundamental quantity related to the time-dynamics of an EWP when it is ionized by a single attosecond pulse. The now available attosecond streaking technique has demonstrated to be the adequate tool to extract the time delay in the photoionization process. However, due to the problems related to the Coulomb-laser coupling (CLC), the information of the intrinsic Wigner time delay is intertwined in the measurement process. In this thesis we will evaluate an alternative method to remove the CLC from the measurement process of the Wigner time delay and address its reliability. To this end we use a small asymmetric molecule. By measuring two streaking traces, to either side of the molecular orientation axis, the resulting left-right time delay is obtained. We demonstrate that this simple asymmetric time delay removes completely the so-problematic CLC. At the same time, our numerical calculations suggest that the exact asymmetric Wigner time delay is comparable to the stereo streaking delay.

Resumen

Hoy en día las herramientas de la ciencia de attosegundos han abierto nuevas vías para acceder al movimiento electrónico ultra-rápido en la materia con resoluciones temporales y espaciales por primera vez observadas.

La presente tesis está dedicada al estudio de la información estructural y dinámica asociada a los electrones en átomos y moléculas. Nuestro primer propósito consiste en aplicar algunos esquemas usados en Óptica para reconstruir la amplitud y la fase de pulsos láseres ultra-rápidos. Análogamente y desde un punto de vista teórico, nosotros extendemos éstos esquemas a la caracterización de ondas de materia. Mediante el uso de los conceptos de la attosecond streak camera, demostramos que la aplicación de dos pulsos de attosegundos en presencia de un pulso láser en el régimen del infrarrojo y con intensidad moderada, conduce a la emisión de dos paquetes de ondas de electrones (EWP). El interferograma resultante contiene información completa acerca de la diferencia de fase entre los dos eventos de ionización. Conceptualmente, dicho esquema de ionización es equivalente a la técnica de caracterización en Óptica denominada Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction (SPIDER). De manera semejante a la seguida en Óptica, aplicamos el algoritmo SPIDER, pero en nuestro caso con el propósito de recuperar información estructural de sistemas atómicos. Dicha información está codificada en el elemento de transición dipolar complejo entre los estados ligados y los del continuo. Esta información puede ser obtenida a partir del interferograma de paquetes de ondas electrónicos.

Por otro lado, el retardo en la foto-emisión o tiempo de Wigner es una cantidad fundamental relacionada con la dinámica de un EWP cuando éste es ionizado mediante un pulso de attosegundos. La técnica attosecond streaking ha demostrado ser la herramienta adecuada para extraer el retardo en el proceso de foto-emisión. Sin embargo, debido al acoplamiento entre el potencial de Coulomb y el láser (CLC), la información del tiempo de Wigner se observa mezclada en el proceso de medición. Como segunda proposición, en esta tesis se sugiere un método alternativo para remover el CLC en el proceso de medición del tiempo de Wigner. Con tal fin, usamos una molécula asimétrica “pequeña”. Mediante la medición de dos trazas streaking, una a la izquierda y otra a la derecha con respecto al eje de orientación molecular, obtenemos el retardo temporal asimétrico izquierda-derecha. Con ello, demostramos que esta simple asimetría en la medición de los retardos remueve completamente el llamado CLC. Simultáneamente, nuestros cálculos numéricos sugieren que la asimetría en el tiempo de Wigner es comparable al retardo relativo izquierda-derecha obtenido con el método streaking.

Lista de Publicaciones

La memoria de la presente tesis está basada en los siguientes artículos:

- I **Asymmetry of Wigner's time delay in a small molecule**
A. Chacón, M. Lein and C. Ruiz. *Phys. Rev. A* **89**, 053427 (2014).
(Paper published as Editors' suggestion)

- II **Retrieval of the amplitude and phase of the dipole matrix element by attosecond electron-wave-packet interferometry**
A. Chacón, M. Lein and C. Ruiz. *Phys. Rev. A* **87**, 023408 (2013).

- III **Effects of electron dynamics in the measurement of the delay in photoemission using streaking technique**
A. Chacón and C. Ruiz. *Paper in preparation.*

- IV **Momentum-spatial phase retrieval of electron wavepackets using elliptical fields**
A. Chacón and C. Ruiz. *Paper in preparation.*

Otro trabajo llevado a cabo durante el periodo pre-doctoral que no ha sido mencionado en la presente memoria:

- I **High harmonic generation enhanced by coherent population return**
A. Chacón, M. F. Ciappina and A. Peralta Conde. *Submitted paper.*

Acrónimos

1D, 2D and 3D	One Dimensional, Two Dimensional and Three Dimensional
AM	Asymmetric Molecule
APT	Attosecond Pulse Train
ATI	Above Threshold Ionization
CLC	Coulomb-Laser-Coupling
CPA	Chirped Pulse Amplification
CEP	Carrier Envelope Phase
EWP	Electron Wave Packet
FROG-CRAB	Frequency Resolved Optical Gating for Complete Reconstruction of Attosecond Bursts
FWHM	Full Width at Half Maximum
FT	Fourier Transform
FFT	Fast Fourier Transform
FFTW	Fast Fourier Transform in the West
IR	Infra Red
HHG	High-order Harmonic Generation
HOMO	Highest Occupied Molecular Orbital
HT	Hankel Transform
LIC	Laser Induced Chirp
MKL	Math Kernel Library
PW	Plane Wave
QSPIDER	Quantum Spectral Phase Interferometry for Direct Electron-wavepacket Reconstruction
RABBIT	Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of Two-photon transitions
SAE	Single Active Electron
SAP	Single Attosecond Pulse
SFA	Strong Field Approximation
SPIDER	Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction
SW	Scattering Wave

SWTD	Stereo Wigner Time Delay
SSTD	Stereo Streaking Time Delay
TDSE	Time Dependent Schrödinger Equation
TISE	Time Independent Schrödinger Equation
TOF	Time Of Flight
WKB	Wentzel-Kramers-Brillouin approximation
XUV	eXtreme Ultra Violet

Índice general

Lista de Publicaciones	VIII
Acrónimos	IX
Índice general	XI
1. Introducción	1
1.1. Breve historia de los láseres pulsos ultra-cortos	3
1.2. Generación de armónicos de orden alto	6
1.3. Generación de pulsos de attosegundos	10
1.4. Estado del arte en la física de attosegundos	12
1.5. Motivación de la tesis	16
1.6. Descripción general de la tesis	17
2. Métodos teóricos y numéricos	19
2.1. Interacción de campos fuertes	19
2.1.1. Formalismo de Schrödinger	21
2.1.2. Operador de evolución temporal	21
2.1.3. Hamiltonianos independientes del tiempo	21
2.1.4. Hamiltonianos dependientes del tiempo	21
2.1.5. Observables en Mecánica Cuántica	21
2.1.6. Aproximación de campo fuerte	21
2.1.6.1. Estados de Volkov	21
2.1.6.2. Elemento de matriz de transición complejo	21
2.2. Métodos numéricos	21
2.2.1. Ecuación de Schrödinger en coordenadas cartesianas	21
2.2.1.1. Método espectral split-operator	21
2.2.1.2. Espacio de posición y momentum: mallas	21

ÍNDICE GENERAL

2.2.1.3.	Hamiltoniano de los sistemas	21
2.2.1.4.	Espectro discreto y espectro del continuo	21
2.2.1.5.	Campo eléctrico de los láseres pulsados	21
2.2.1.6.	Evolución dependiente del tiempo	21
2.2.1.7.	Absorbentes en las fronteras	21
2.2.1.8.	Observables	21
2.2.2.	Ecuación de Schrödinger en coordenadas cilíndricas	21
2.2.2.1.	Método de Crank-Nicolson en coordenadas cilíndricas	21
2.2.2.2.	Aspectos numéricos en coordenadas cilíndricas	21
2.2.3.	Integración numérica de la amplitud compleja de transición	21
2.2.3.1.	Método Runge-Kutta	21
2.2.3.2.	Definición de la malla de momentum en SFA	21
3.	Diseño de softwares	23
3.1.	Introducción	23
3.1.1.	Estructuras de librerías de acuerdo a conceptos de físicos	24
3.1.2.	Separación de las herramientas numéricas elementales	27
3.1.3.	Ciclo de las ideas	27
3.2.	PULSESMAKER	27
3.2.1.	Arreglo time-grid	27
3.2.2.	Clase time object	27
3.2.3.	La clase laser	27
3.3.	QFISHBOWL	27
3.3.1.	Clase de la malla computacional	27
3.3.2.	Clase wavefunction	27
3.3.3.	Clase Hamiltoniano or potencial del sistema	27
3.3.4.	Operadores evolución: clase cartesian	27
3.4.	BALAS	27
3.5.	QSPHERE	27
4.	Técnicas de recuperación de la amplitud y fase de paquetes de ondas electrónicas	29
4.1.	Introducción	29
4.2.	Interferometría de fase espectral cuántica para la reconstrucción directa de EWP	31
4.2.1.	Foto-ionización mediante un pulso de attosegundos	31

4.2.2. Foto-ionización mediante dos pulsos de attosegundos	31
4.2.3. Foto-ionización en presencia de un campo láser de infrarrojo . . .	31
4.2.4. Interferometría de paquetes de ondas electrónicas de attosegundos	31
4.2.5. Fase de acoplamiento entre el potencial y el láser	31
4.2.6. Implementación del QSPIDER	31
4.2.7. Resultados de acuerdo con la SFA	33
4.2.8. Resultados de acuerdo con la TDSE	38
4.3. Técnica de interferometría espectral: lateral momentum-shearing EWP .	38
4.3.1. Interferometría bi-dimensional de EWPs	38
4.3.2. Implementación del QSPIDER y el 2D lateral momentum-shearing	38
4.3.3. Resultados dentro del modelo SFA y del TDSE	38
4.3.3.1. Resultados de acuerdo con la SFA para lateral momentum- shearing	38
4.3.3.2. Modelo TDSE en un plano bi-dimensional	38
4.4. Conclusiones	38
5. Retardo en foto-emisión	39
5.1. Introducción	39
5.2. Tiempo de Wigner en sistemas atómicos	40
5.2.1. Tiempo de Wigner mediante la descripción cuántica y la descrip- ción clásica	40
5.2.2. Medición del tiempo de Wigner mediante la técnica streaking . .	40
5.3. Tiempo de Wigner en una molécula asimétrica pequeña	40
5.3.1. Descripción del sistema asimétrico	41
5.3.2. Estructura dipolar y el estereo del tiempo de Wigner	41
5.3.3. Foto-ionización desde una molécula asimétrica	43
5.3.4. Stereo streaking technique en una molécula asimétrica	43
5.4. Molécula asimétrica en tres dimensiones	47
5.4.1. Definición del sistema	47
5.4.2. Estéreo tiempo de vuelo: resultados 3D	47
5.4.3. Stereo streaking technique de acuerdo al modelo 3D-TDSE . . .	47
5.4.3.1. Dinámica electrónica molecular entre estados ligados . .	47
5.5. Conclusiones	47
Conclusiones y perspectivas futuras	49
Bibliografía	53

ÍNDICE GENERAL

1

Introducción

La descripción de los fenómenos de la naturaleza depende de sus escalas espaciales y temporales. Por ejemplo, el período de la órbita de la tierra alrededor del sol es de un año ($1,3 \times 10^6$ s), el período de la órbita de la luna alrededor de la tierra es de un mes ($\sim 9,8 \times 10^4$ s) y el período de las ritmo cardiaco es de un segundo (1,0 s).

Otros fenómenos muchos más rápidos tales como el aleteo de un abeja o el periodo de vibración de las cuerdas de un violín ($\sim 10^{-3}$ s (ms)) pueden ser caracterizados si se dispone del instrumento apropiado. Los procesos biológicos de la vida están en el orden de $\sim 10^{-6}$ s (μ s). En dispositivos electrónicos tales como los microprocesadores de ordenadores, la transferencia de información ocurre en tiempos de 10^{-9} s (ns).

Los cambios en la estructura nuclear de moléculas, como las vibraciones o la rotura y formación de enlaces químicos ocurren en la escala de tiempo característica de unos pocos femtosegundos ($\sim 10^{-15}$ s (fs)) a unos pocos miles de femtosegundos o picosegundos ($\sim 10^{-12}$ s (ps)).

Hoy en día todas estas escalas temporales de fenómenos biológicos, químicos y físicos pueden abordarse debido al notable avance de los dispositivos electrónicos, en particular los pulsos de láser [1].

Las fuentes de láser de femtosegundos y attosegundos son considerados como las principales herramientas para resolver el movimiento de los electrones rápidos en materia temporal y espacialmente a sub-Ångstrom ($1 \text{ \AA} = 10^{-10}$ m) resolución [2, 3, 4].

En la física atómica, uno de los procesos más fundamentales es la transición electrónica entre estados. Hasta hace poco, no era posible observar tal “movimiento” de los electrones, porque no había herramientas con suficiente resolución temporal disponible. Pero, con el advenimiento de los pulsos de attosegundos (10^{-18} s (as)) se abre una nueva perspectiva temporal [1, 5].

1. INTRODUCCIÓN

Los pulsos de femtosegundos y attosegundos se han convertido en una de las herramientas principales para medir el movimiento de los rápidos electrones. La presente tesis está dedicada al estudio de los fenómenos electrónicos ultrar-rápidos como resultado de la interacción de los pulsos attosegundos y femtosegundos con átomos y moléculas.

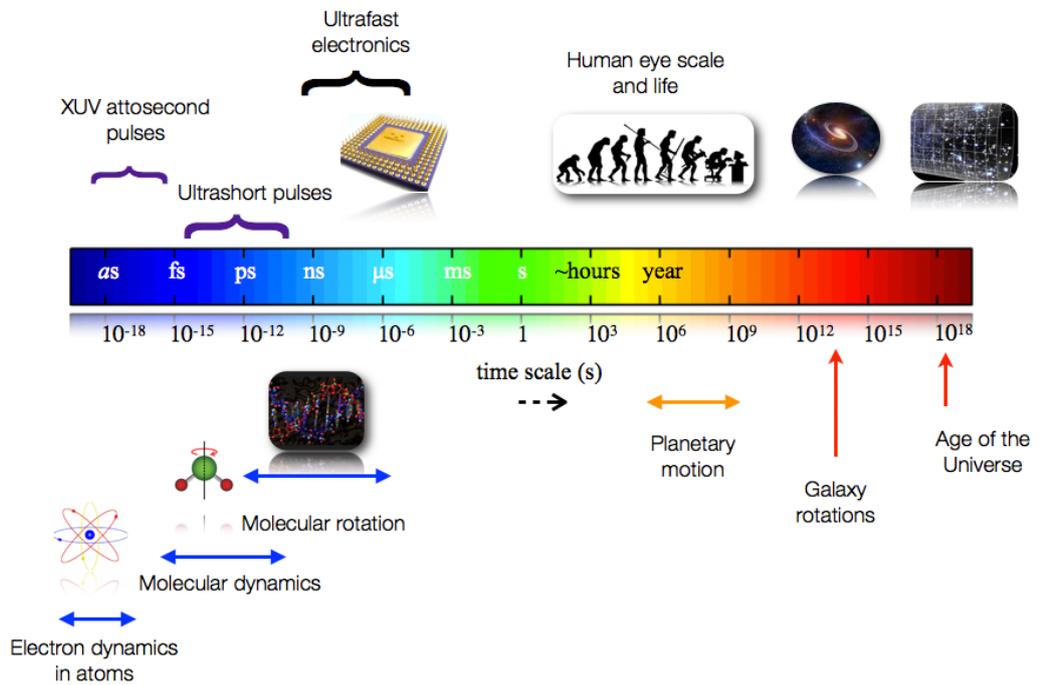


Figura 1.1: **Escalas temporales de diferentes fenómenos físicos.** Esta figura ilustra diferentes escalas temporales de fenómenos naturales y desarrollos tecnológicos.

1.1. Breve historia de los láseres pulsos ultra-cortos

La generación de pulsos cortos láseres comenzó justo después de la primera implementación del láser en 1960 [6] por Maiman. Durante las siguientes décadas, el desarrollo de nuevas técnicas ayudó a lograr pulsos más cortos [4, 7]. Un diagrama que muestra la evolución de la duración del pulso durante el marco de tiempo 1960-2010 se representa en la figura 1.2.

El Q-Switching [8] es una técnica activa que modula las pérdidas de la cavidad. Cuando las pérdidas se reducen momentáneamente la energía acumulada es lanzada en forma de un pulso corto. Como la modulación es activa, se limita a la rapidéz del cambio en la modulación. Esta técnica se utiliza para generar pulsos de nanosegundos de alta energía en láseres de estado sólido [8, 9].

El Kerr Lens Mode-locking (KLM) [7] es una técnica pasiva que logra Simultáneamente dos cosas. Utilizando la respuesta no lineal de un material tal como el efecto Kerr, la modulación de la cavidad es mucho más rápida conduciendo a emisiones muy cortas. Para producir pulsos cortos, es necesario aportar a un amplio espectro con las fases sincronizadas.

En 1964 Hargrove *et al.* [10, 11] reportaron por primera vez el Mode-locking. El propósito de esta técnica consistió en sincronizar o “anclar” la relación de fases de los modos oscilantes dentro de la cavidad láser. Estas frecuencias se suman coherentemente (de manera constructiva) y la intensidad intra-cavidad aumenta.

Esta técnica ayudó a producir los primeros pulsos de femtosegundos, típicamente entre 30 fs y 30 ps, en casos extremos hasta ~ 5 fs [9, 12].

Los pulsos de femtosegundos sólo pueden producirse si los medios de ganancia en la cavidad láser soportan un amplio espectro. En 1982, un nuevo material láser, el Ti:Zafiro ($\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$) fue desarrollado por Moulton [13]. Este cristal permite la generación de pulsos muy cortos debido a su ancho de banda de ganancia grande (650 – 1100 nm).

Otro avance en el desarrollo de los láseres fue hecho por Strickland y Mourou en 1985. ste avance fue CPA [17], que permite la amplificación de los láseres de femtosegundos en varios órdenes de magnitud (desde nano-joule (nJ) hasta multi-Joule).

La técnica CPA resuelve el problema de umbral de daño en el cristal cuando un pulso de femtosegundo se amplifica en el láser. Para eludir este problema los pulsos ultra-cortos se estiran en el tiempo, reduciéndose de la potencia de pico (típicamente un factor de 10^4 o superior), y con ello, evitándose el daño del cristal. Una vez que los pulsos se amplifican, se comprimen de nuevo a la duración original lograr una alta potencia de pico. Con este proceso muy altas potencias de pico tan grande como 10^{15} W

BREVE HISTORIA DE LOS LÁSERES PULSOS ULTRA-CORTOS

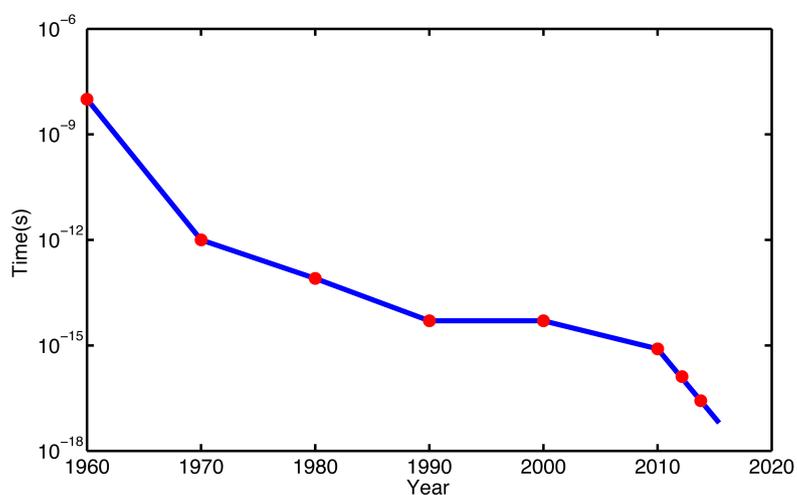


Figura 1.2: **Evolución de los pulsos láseres ultra-rápidos.** El tiempo de duración de los pulsos láseres disminuye continuamente desde el descubrimiento del Q-Switching y el mode-locking en 1963-64 hasta 1987, cuando se reportaron pulsos de 6 fs [14]. En esa escala de duración de los pulsos láseres, 6 fs (tres períodos de luz en el infrarrojo medio), una tecnología diferente se requiere con el fin de estudiar y controlar los fenómenos naturales dentro de dicha ventana temporal. Este desarrollo llevó unos 15 años. Según Corkum y Krausz [4] hoy en día la tecnología de los pulsos de attosegundos es la que proporciona nuevas herramientas en la ciencia para acceder a fenómenos nunca antes observados. Por lo tanto, se está abriendo nuevos campos para la medición en tiempo real, por ejemplo, la dinámica de electrones en el proceso de fotoemisión [15, 16].

se puede lograr.

Simultáneamente con el desarrollo de estas técnicas para comprimir pulsos láseres era necesario desarrollar métodos de caracterización del perfil temporal de estos pulsos ultra-cortos. Varias técnicas para diagnosticar la amplitud y la fase espectral del campo eléctrico del pulso láser se han desarrollado dentro del régimen espectral del IR.

Algunos ejemplos de éstas técnicas son: SPIDER [18, 19], Spatially Encoded Arrangement for SPIDER (SEA-SPIDER) [20], FROG [21], GRating-Eliminated No-nonsense Observation of Ultrafast Incident Laser Light E-fields (GRENOUILLE) [22], Spatio-Temporal Amplitude-and-phase Reconstruction by Fourier-transform of Interference Spectra of Highly-complex-beams (STARFISH) [23, 24], etc.

Tras el desarrollo CPA, surge la necesidad de comprimir los pulsos hasta el límite de difracción con el fin de acceder a la dinámica molecular ultra-rápida. Algunos de los métodos para lograr pulsos láseres ultra-cortos de 30 fs, del Ti:Zafiro láser (800 nm de longitud de onda central), son la propagación del haz de láser a lo largo de un gas, donde la interacción no lineal conduce a un proceso ensanchamiento del espectro más amplio [25, 26, 27, 28]. Estos métodos han sido capaces de generar los pulsos más cortos pocos-fs, correspondiente a tres ciclos, dos ciclos y hasta más cortos, uno ciclo (2, 6 fs) de la frecuencia central de portadora [28, 29, 30].

Los pulsos láseres ultra-cortos generados en los osciladores y los pulsos de alta potencia amplificados abrieron un nuevo campo de investigación dentro de la escala de tiempo del femtosegundos. Cuando estos pulsos se concentran cerca del límite de difracción sobre algunos μm^2 en el foco, la intensidad del pico de láser puede ser muy alta que conduce a fuertes distorsiones en el medio material.

Estas altas intensidades pueden producir respuestas no lineales en los átomos y las moléculas. En particular, si la intensidad del pulso láser es comparable a la unidad atómica $I_{au} = 3,5 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$, el campo de láser del pulso crear un campo eléctrico comparable al campo electrostático experimentado por el electrón dentro de el átomo o molécula.

En tal caso, la interacción láser-materia no es perturbativa y surgen fenómenos de interacción en campo ultra-intensos.

La tecnología de láseres ultra-cortos disponibles en la actualidad permite a los físicos tratar una amplia variedad de fenómenos en campos ultra-intensos con resolución temporal sin precedente alguno. Por ejemplo, el proceso de ionización de túnel que conduce a la generación de armónicos de orden alto, la ionización por encima del umbral, la ionización doble y multi-electrón, dinámica de disociación y dinámica nucleares en moléculas, ahora pueden ser comprendidos y controlados gracias a la tecnología de los

láseres ultra-cortos [4, 31, 32, 33, 34].

La ciencia de attosegundos es el derivado más importante de la física campos ultra-intensos. Sobre la base de la generación y el control de la envolvente y la portadora de los pulsos de femtosegundos [35, 36], es posible generar y sintetizar pulsos de attosegundos.

Los físicos han desarrollado nuevas técnicas pump-probe basada en la combinación uso tanto de pulsos de attosegundos y los pulsos de femtosegundos que les permite acceder a la dinámica electrónica en tiempo real [37]. Attosecond streaking, es un ejemplo de esta técnica, que nos permite el acceso a la dinámica de electrones en tiempo real, por ejemplo, ha sido utilizada para caracterizar la dinámica electrónica de relajación Auger en criptón [37].

Por último, uno de los fenómenos en la física de attosegundos es la HHG, que permite la síntesis de pulsos de attosegundos [35, 36] dentro de duraciones de tiempo ultra-cortos. La próxima sección se dedicará a la descripción el proceso de HHG.

1.2. Generación de armónicos de orden alto

La primera demostración experimental de la emisión de armónicos de orden alto se observó por McPherson *et al.* [38] usando una haz de luz pulsado ultravioleta e intenso (248 nm) y por también por Ferray *et al.* [39] con un IR de Nd:YAG (1064 nm) focalizado en diferentes muestras gases atómicos. Estos experimentos, y en particular [39], muestran una forma de armónicos diferente a la del esperado de acuerdo a la teoría perturbativa. Esta emisión de armónicos tenía una forma distinta, con tres regiones claramente distinguibles, a saber: (i) una fuerte señal para los armónicos bajos (región perturbativa), (ii) los armónicos de la región media, mayores que el $\sim 5^{\text{to}}$ armónico (región de la plateau que tiene una amplitud constante para los armónicos) y (iii) la región alta de armónicos (región del cut-off).

La interacción de estos pulsos de láser IR ultra-corto de alta intensidad ($10^{13} - 10^{15}$ W/cm²) con muestra de gas, lleva al electrón de estado liberado al continuo por efecto túnel y con ello el proceso de HHG. Una imagen clásica que describe este fenómeno, fue introducida por primera vez por Corkum [40] en 1993 utilizando el llamado modelo de tres pasos o modelo del “hombre simple”.

Este modelo sugiere que, primero, cuando el campo eléctrico del láser está alrededor de su máximo, el potencial atómico se deforma de tal manera que crea una barrera a través de la cual el electrón puede ser ionizado vía túnel. Se supone que cuando el electrón aparece en el continuo, su coordenada posición y velocidad son iguales a cero. En segundo lugar, una vez que el electrón está en el continuo, que se ve acelerado por

el campo eléctrico del láser pulsado ganando energía, como se ilustra en la figura 1.3. Una vez en el continuo, la influencia del potencial de Coulomb de el ion restante es despreciada. En tercer lugar, cuando el campo electromagnético del láser cambia de signo, el electrón regresa a su ion padre y tiene la probabilidad de volver a su estado inicial, el ground state, (re-combinación). En dicho proceso por conversión de la energía el exceso de energía cinética del electrón es transformado en un fotón de alta energía ω_{\max} . Este proceso se produce en algún momento alrededor de la cero del campo eléctrico del láser (ver parte (v) en la Fig. 1.3). Luego, el átomo emite su el exceso de energía en forma de radiación XUV. Fig. 1.3 ilustra la imagen clásica de la proceso HHG.

De acuerdo con este modelo clásico la energía máxima emisión de fotón ω_{\max} está dada por $\omega_{\max} = I_p + 3,17U_p$, donde I_p es el potencial de ionización del sistema, y $U_p = \frac{\varepsilon_0^2}{4\omega_0^2}$ es el la energía ponderomotriz. Aquí, ε_0 y ω_0 denota la amplitud de pico del campo eléctrico oscilante IR y su frecuencia central, respectivamente ¹.

El tratamiento ms general de la fuerte interaccin de campo con la materia es la solucin de la TDSE y en particular se puede aplicar a HHG. Por lo tanto, es interesante sealar que la densidad de electrones posicin espacio-tiempo completo se muestra en la Fig. 1.4a), muestra un comportamiento similar a la descrita por el modelo clnico de tres pasos.

Fig. 1.4 representa un ejemplo de espectros HHG de acuerdo con la TDSE 1D solución numérica. Fig. 1.4a) muestra la distribución de posiciones del electrón en función del tiempo y en la Fig. 1.4 b), representamos el espectro HHG correspondiente. La densidad de electrones es obtenida como resultado de la interacción de un campo ultra-intenso de láser en el IR con una el hidrógeno en un modelo 1D. El láser de IR puede ser considerado como un titanio Zafiro (Ti: Sa) láser con longitud de onda central de 800 nm ($\omega_0 = 0,057$ a.u. de la frecuencia central) y una duración de tiempo 13-fs en FWHM. Está claro que los tres pasos descritos en la Fig. 1.3, es decir, el túnel de ionización, el movimiento en el continuo y la re-combinación, se puede apreciar en el mapa tiempo-posición de la densidad de corriente de electrónica.

Además, tenga en cuenta que el espectro de HHG (Fig. 1.4b)) se compone de sólo armónicos impares. Esto es así porque la simetría espacio-temporal del potencial atómico y del láser causan que la aceleración dipolar siga el valor negativo del campo eléctrico [41]. Estos armónicos son múltiplos enteros de la frecuencia del láser IR fundamental $\omega_0 = 0,057$ a.u.

¹Tenga en cuenta que las unidades atómicas se utilizan a lo largo de esta tesis. Esto significa que las constantes fundamentales son $|q_e| = m_e = \hbar = a_0 = 1$, $c = 137$, etc.

GENERACIÓN DE ARMÓNICOS DE ORDEN ALTO

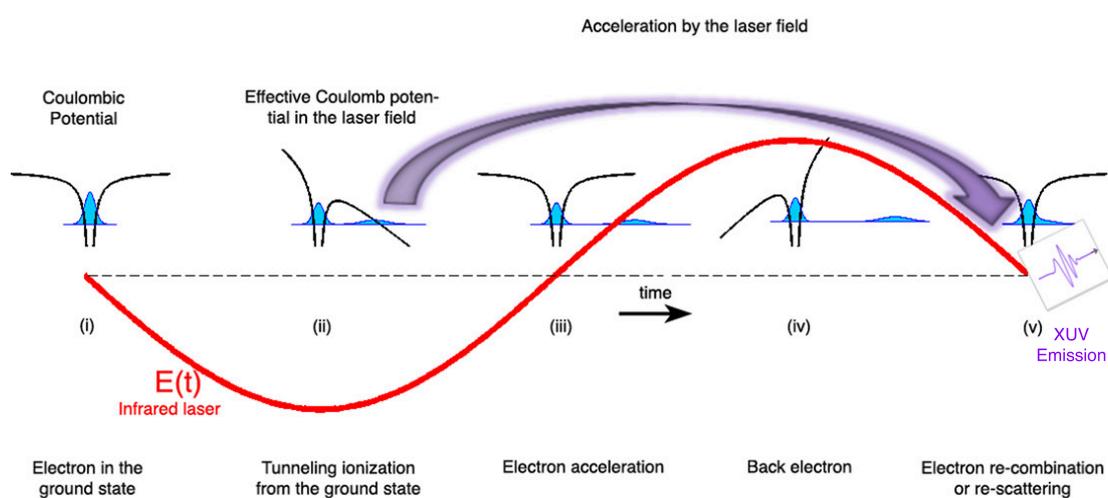


Figura 1.3: **Esquema clásico del proceso de HHG.** Ésta imagen describe el mecanismo clásico de la HHG y con ello la generación de pulsos de attosegundos. (i) El potencial de Coulomb y el electrón en el estado fundamental, cuando el láser está apagado. (ii) Cuando el campo eléctrico láser de IR alcanza el máximo negativo, el potencial de Coulomb se deforma creando una barrera de potencial. Por lo tanto, el electrón puede hacer un túnel a través de la barrera de potencial. El electrón es acelerado en la parte (iii) y (iv) por el campo eléctrico del láser conduciendo de una manera tal que el electrón gana energía y vuelve al ion padre que lo liberó entre las partes (iv) y (v). (v) El electrón se re-colisiona con su ion padre, entonces se re-combina con el átomo emitiendo la energía acumulada en forma de un armónico de orden alto de la frecuencia fundamental del láser, es decir, emitiendo fotones en el régimen del XUV.

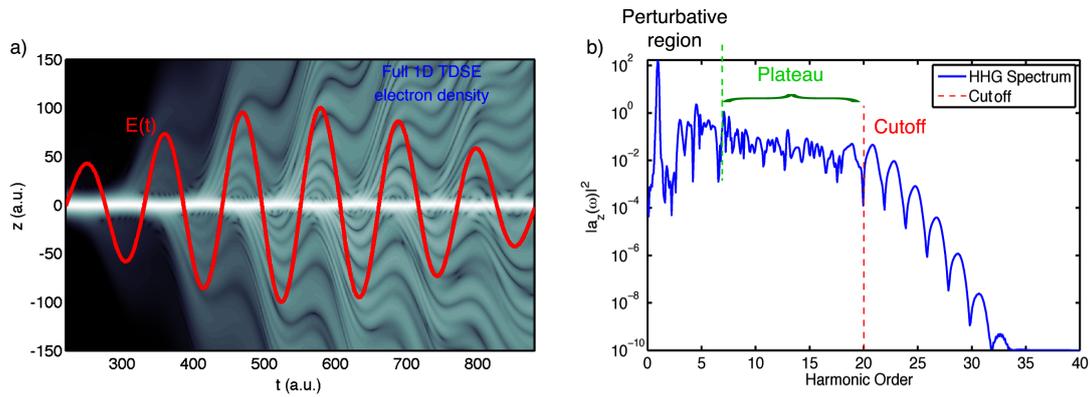


Figura 1.4: **Ionización por un campo ultra-intenso y el espectro de HHG.** a) Solución numérica de la TDSE para la densidad electrónica de posiciones en función del tiempo (escala de color gris, el negro es el color más bajo y el blanco, el más alto). Este mapa de densidad de electrones es el resultado de la interacción del campo de láser de IR (línea roja sólida) con el átomo de hidrógeno considerando el electrón en el estado base en un modelo 1D. La intensidad de pico del láser IR es $8,5 \times 10^{13}$ W/cm². La simulación se realizó con un \sin^2 envolvente de 10 ciclos. b) El espectro de HHG en función del número armónicos de orden alto se representa en la línea azul. La radiación de emisión espectral se define como el cuadrado absoluto de la transformada de Fourier de la aceleración dipolar a lo largo del eje del tiempo. La línea vertical discontinua roja indica la energía ω_{\max}/ω_0 . El espectro armónico consta de tres partes principales, la perturbativa, el plateau y el corte de las regiones espectrales. En primer lugar, la región perturbativa indica la espectral intervalo en el que la teoría perturbativa describe perfectamente el comportamiento de las emisiones de armónicos. En segundo lugar, la meseta es el rango en el que la intensidad armónica parece ser constante. Y en tercer lugar, cuando una reducción drástica de se alcanza la intensidad armónica, la región de corte se define. Esta región muestra que la trayectorias corto largos corresponden a “los eventos de re-combinación individuales”.

1.3. Generación de pulsos de attosegundos

Una de las características más notables de la HHG es que la radiación emitida es coherente. Como las re-colisiones son periódicas, estos armónicos se emiten en cada uno de los ceros del campo en cortas ráfagas de luz. Debido a la coherencia que produce un pulso corto y si hay varios re-colisiones provocadas por el campo de láser IR una a continuación de otra, la emisión se traduce en un tren de pulsos.

Muchos esfuerzos experimentales se han hecho para controlar y manipular la emisión coherente en el XUV del HHG [35, 36, 42, 43], con el propósito de producir trenes de pulsos de attosegundos [36] y un solo pulso de attosegundos [35].

Un tren de pulsos se genera mediante el filtrado de la parte de frecuencia más alta de la HHG espectro que corresponde a la región de la meseta [36]. La primera observación experimental de un APT se obtuvo por Paul y sus colaboradores [36] mediante el aislamiento de los cinco armónicos consecutivos emitidos desde Ar. Midieron una APT con una duración por pulso de 250 as, separadas por un medio-ciclo de la onda láser IR con el tren que se extiende sobre unos 10 fs.

Para lograr pulsos de attosegundos individuales muchos existen técnicas [35, 44, 45, 46]. Mediante la manipulación de la temporalidad la duración y la forma del campo eléctrico el número de re-colisiones pueden ser controlados.

El proceso fundamental para generar una APT consiste en aislar una región espectral de la Espectro HHG. experimentalmente, filtrado espectral se consigue utilizando diferentes materiales para eliminar los inferiores armónica [36].

Figura 1.5 representa un cálculo numérico realizado con el modelo de la Lewenstein [76]. La parcela a) muestra el espectro seleccionado región entre el plateau y el cut-off (ver Fig. 1.5a)). Entonces, por Transformada de Fourier de la señal seleccionada, la APT se pueden generar. Este proceso también se puede realizar en la región del plateau como se muestra en referencia [47].

Con un procedimiento similar al descrito en la Fig. 1.6, Hentschel *et al.* [35] reportaron la primera observación experimental de un SAP. El pulso medido tuvo una duración de aproximadamente 650 as. Tal medición se realizó mediante el filtrado de unos armónicos alrededor del cut-off. El espectro HHG se había producido mediante un pulso de láser polarizada linealmente, con una longitud de onda de 750 nm, una duración temporal de 4 fs y con CEP estabilizada, utilizando Ar.

Fig. 1.6 representa el mismo proceso que se sigue en la Fig. 1.5, pero ahora para obtener un solo pulso de attosegundos. En este caso, el mecanismo físico para el proceso de HHG difiere que en el APT. El campo láser IR es un pulso de pocos ciclos. Según

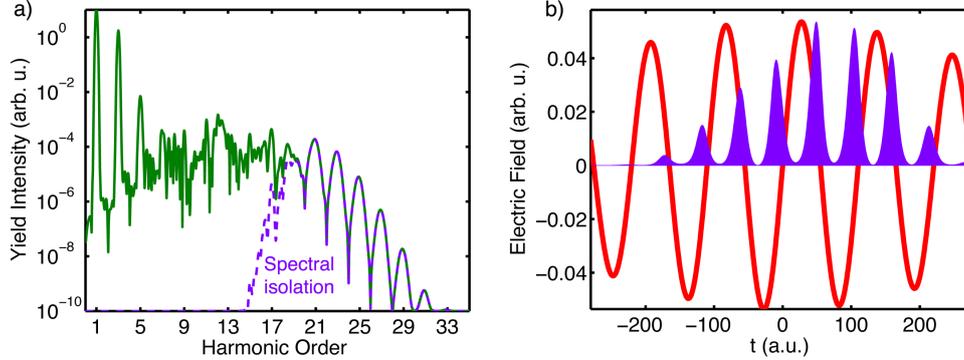


Figura 1.5: **Tren de pulsos de attosegundos.** a) En la línea de color verde oscuro, el HHG espectro en función del orden de armónicos que se calcula por el modelo SFA para el átomo de hidrógeno. El espectro aislado entre el plateau y el cut-off está marcado en la línea discontinua violeta. b) En el área violeta, la intensidad de tren de pulsos de attosegundos en función del tiempo. Este APT se obtiene mediante el cálculo de FFT del espectro aislado de a). El dominio temporal del campo de láser del IR se muestra por la línea roja. La intensidad máxima de láser del IR utilizado para este cálculo es de 10^{14} W/cm² y el FWHM = 18-fs, la frecuencia central es de $\omega_0 = 0,057$ a.u. (800 nm de longitud de onda).

el modelo semiclásico de Lewenstein, esto significa que pocos eventos re-colisión se llevarán a cabo. Entonces, se espera que el control de una evento único re-colisión conduce a la emisión de un SAP.

Estas fuentes de XUV, los APT y el SAP, necesitan ser caracterizadas en el tiempo mediante la medición de la amplitud del campo eléctrico y la fase. Esta es una tarea muy difícil debido a que estos pulsos en el UV y XUV son absorbidos por los materiales. Además, es muy difícil producir una respuesta no lineal en este intervalo espectral. Por estas razones, la manipulación de los espectros de HHG en el laboratorio para llevar a cabo un diagnóstico de la fuente XUV es difícil.

Sin embargo, la caracterización de estos pulsos es posible. Mediante el análisis de los electrones emitidos que son creados por la interacción de la señal HHG con gases varias técnicas han sido desarrolladas. La mayoría de las técnicas de medición se aprovechan de la energía de alta fotón de la APT (o el SAP) y combinarlo con un moderado intensa láser IR para modular la dinámica de ionización. Por lo tanto, las características temporales de los pulsos son inferidos.

Estos son la base del RABBIT técnica [36, 48] para diagnosticar un APT, y la FROG-CRAB técnica [49, 50] para caracterizar un SAP [50, 51]. Ambas técnicas proporcionan una reconstrucción completa de las formas temporales de un APT [?] y SAP [49, 52], respectivamente.

La técnica FROG-CRAB utiliza cámara de attosecond streak [35, 50, ?], la cual es una

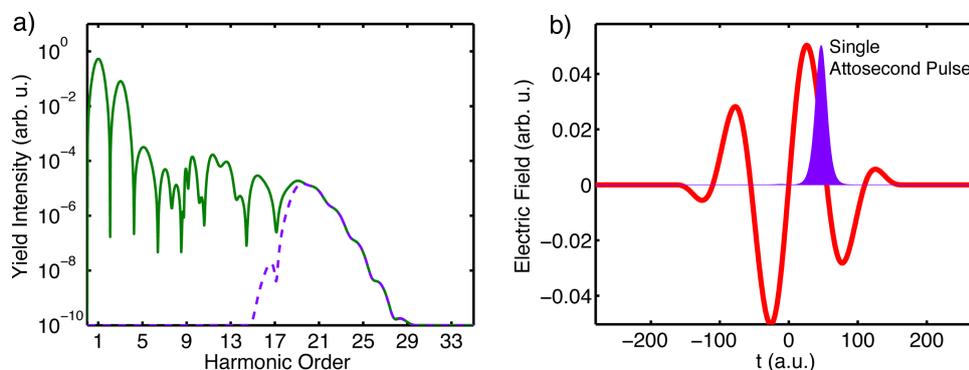


Figura 1.6: **Single attosecond pulse.** a) y b) muestran lo mismo que en la Fig. 1.5 pero aquí el espectro HHG es controlado por un pulso láser del IR de pocos ciclos. El pulso láser se denota por la línea roja en b). Se obtiene un único pulso de attosegundos cuando el mismo filtro empleado en la Fig. 1.5a) es el mismo que el usado aquí en a).

técnica para caracterizar pulsos de XUV de attosegundos aislados y el campo de láser del IR.

La attosecond streak camera es una técnica de pump-probe, donde la dependencia del tiempo del láser se puede encapsular en el momentum final del electrón. Los electrones ionizados por el SAP en presencia de un láser de IR de moderada intensidad desplazan o streak en el momentum del electrón dado por el valor del potencial vector en el momento de ionización [50, 52].

La energía final de los electrones o momentum depende del retardo entre el SAP aislado y el campo de láser del IR. En los Capítulos 4 y 5 abordaremos con mayor detalle los aspectos teóricos de esta técnica revolucionaria.

La generación y el control de los pulsos de attosegundos, y las técnicas de diagnóstico son las principales herramientas de la attoscience y abren nuevas posibilidades para estudiar dinámica ultra-rápida de los electrones en la materia.

1.4. Estado del arte en la física de attosegundos

La información estructural electrónica y dinámica electrónica puede ser experimentalmente estudiada mediante el uso de la tecnología de attosegundos. El punto clave es cómo esta información se puede deducir de los resultados de la interacción láser-materia. Este es uno de los grandes desafíos para la ciencia attosegundos.

Durante las dos últimas décadas, muchos esfuerzos experimentales y teóricos se han hecho para desarrollar y entender las herramientas de attosegundos y sus principales

mecanismos, por ejemplo, la espectroscopia de armónicos de orden alto y la espectroscopia de attosegundos [4, 54].

Información estructural del electrón

En 2004 Itatani *et al.* reportaron uno de los primeros experimentos que utilizaron la espectroscopia de armónicos de orden alto para extraer información estructural. Ellos realizaron una reconstrucción tomográfica del HOMO del nitrógeno molecular N_2 [3]. De acuerdo con este artículo de Itatani, el elemento de matriz del dipolo en el proceso de HHG contiene información estructural sobre el estado inicial del electrón dentro de la molécula.

Este método de tomografía consta de tres pasos: (i) la medición del espectro como HHG en función del ángulo de alineamiento molecular entre el láser IR, linealmente polarizado, y el eje molecular, (ii) la medición de la emisión de armónicos de un sistema de referencia atómico con similares potencial de ionización que el N_2 molécula, por ejemplo, el átomo de Ar, y (iii) la aplicación de un algoritmo de reconstrucción para todos los diferentes ángulos.

Para llevar a cabo una reconstrucción completa de tomografía, la medición de fase también es importante en el análisis de Fourier que se requiere para la recuperación. A pesar del hecho de que los autores en [3] reconstruyeron el HOMO de N_2 , el pariente fase de la emisión de armónicos no se midió para cada ángulo de alineación.

Haessler *et al.* [56], abordaron este problema y midieron la fase del espectro de HHG para cada ángulo de alineamiento en ambos sistemas, es decir, la referencia atómica y la molécula en estudio. Se aprovecharon de la técnica RABBIT para medir la fase espectral para cada señal HHG. De esta manera, una reconstrucción experimental completa del HOMO y HOMO-1 para la molécula alineada N_2 se llevó a cabo en 2010.

A pesar de que, la espectroscopia de armónicos de orden alto parece ser una buena técnica para construir imágenes de un orbital molecular, este método requiere varios pasos experimentales. Más aún, las dificultades para encontrar un potencial de referencia atómica que coincida con el potencial de ionización del sistema molecular en estudio, reducen drásticamente el rango de moléculas que se pueden estudiar con dicha técnica.

En particular, otro experimento llevado a cabo para extraer información estructural fue reportado por Remetter *et al.* [57] en 2006. Tal experimento consistió en hacer uso de la ionización dirigido por la interacción de un APT en presencia de un láser IR débil con una muestra de gas atómico, por ejemplo, Ar. Los múltiples EWPs creado por un APT se midieron en un interferograma de momentum final, que claramente

era dependiente del retardo temporal entre el APT y el pulso de láser IR. Es notable que dicho interferograma codificó información estructural sobre el nodo del estado ligado del Ar. Sin embargo, un algoritmo para recuperar la fase del EWP completo o la elemento matriz de transición dipolar, sigue ausente.

Aquí presentamos dos de las principales preguntas de investigación de esta tesis: primero, es posible diseñar una nueva técnica para extraer información estructural, es decir, el elemento de matriz de transición dipolar, mediante la aplicación de las herramientas de las ciencias de attosegundos? En segundo lugar, Podría esa técnica ser de un solo disparo (“single shot”) y un auto-referenciada Estas cuestiones se abordarán con más detalles en el Capítulo 4.

Información dinámica del electrón en la materia

Por otro lado, cuando un SAP o un APT interactúa con un átomo o una molécula, se crea un EWP con un amplio ancho de banda. Si la energía del fotón del pulso attosegundos es más alta que la del potencial de ionización, el electrón es entonces ionizado y la distribución de momentum de estos electrones mapea las características del pulso de attosegundos y el sistema padre [52, 58].

La emisión de este EWP no es un proceso instantáneo en el sentido de que un corto tiempo es tomado por el electrón que salir del potencial [59]. Dicho retraso en el proceso de emisión de foto-electrones se conoce como el tiempo de Wigner o tiempo de retardo de Wigner-Eisenbud-Smith [60, 61]. Formalmente, el tiempo de Wigner se define como la derivada de la energía de la fase de dipolo que acumula el EWP en la ionización de un fotón proceso [60, 61, 62].

Usando la técnica attosecond streaking Schultze *et al.* [15] han medido el retraso relativo en la foto-emisión del Ne desde los estado $2s$ y $2p$ [35]. La medición se basa en la producción y control de un SAP de 200 as de duración y de energía central de 106 eV con un pulso láser ultra-corto en el IR. Los resultados mostraron un 21 as retardo relativo entre los dos canales de emisión ($2s$ y $2p$), mientras que el tiempo Wigner teóricamente calculado dada en el mismo periódico predice un valor de 6,4 as.

Recientemente, la técnica RABBIT [36] ha sido empleada para medir el retardo relativo entre los estados $3s$ y $3p$ en átomo de Ar [16]. Esta técnica utiliza un APT con la energía de 35 eV en la presencia de un pulso de láser IR moderada. En este caso y con respecto al $3p$ se muestra un retraso de alrededor de 100 as con los $3s$ electrón que parece estar en libertad antes. En el mismo artículo, se han encontrado que un retardo adicional se introduce en el proceso de medición aparente como un mecanismo adicional está involucrado.

Este desacuerdo entre teoría y experimento ha atraído la atención de varios expertos. Con el objetivo de explorar nuevas propuestas teóricas para encontrar una explicación física clara de los resultados experimentales, dichos expertos abordaron el problema. El largo retardo temporal extra medido en el proceso de foto-emisión sugiere que el tiempo de Wigner no es suficiente para explicar los resultados experimentales y un mecanismo adicional parece estar implicado.

Trabajos pioneros de Nagele [63], Kheifets [64], e Ivanov [65], han encontrado que el campo de láser del IR pueden ser responsables de la gran retraso observado en el experimento. En particular, Ivanov y Smirnova sugirieron que la medición se ve influida por la acoplamiento entre el pulso de láser de IR y la potencial de Coulomb del sistema [65].

Trabajos recientes también ha abordado teóricamente el retraso en pequeñas moléculas, como el hidrógeno moléculas [66, 67], haciendo hincapié en la consecuencias que tienen dos centros de la dependencia angular del tiempo de Wigner. En referencia [67] que también han estudiado la dependencia de la Wigner retraso de la distancia internuclear y la alineación angular del ión molecular de hidrógeno. Estos resultados muestran que el tiempo de retardo Wigner también contiene información sobre el geométrica estructura de la molécula. Además, y lo más importante, a partir del observable retardo streaking el tiempo intrínseco de Wigner se puede extraer. Sin embargo, es importante señalar que el acoplamiento CLC no puede ser removido del proceso de medición.

Esos estudios sobre la influencia del láser de IR en la detección del tiempo de Wigner han demostrado que el Acoplamiento Coulomb-láser juega un papel importante en el proceso de medición.

Estudios teóricos por Maquet *et al.* [59] sugieren que la cola del potencial de Coulomb, es decir, $-Z/r$, y su acoplamiento con el IR, ejerce una influencia simetría en el proceso de detección del tiempo de Wigner [63, 65]. Esto significa que el CLC es simétrico con respecto al centro del potencial, en el sentido de que los electrones emitidos a la izquierda y derecha experimentan el mismo retardo CLC en el proceso de medición mediante la técnica streaking.

Uno se puede preguntar si existe un método alternativo para eliminar esta influencia del CLC [68]. Esto es, mediante la comparación de electrones emitidos a izquierda y derecha con respecto al centro de scattering (núcleo del potencial) se pueda extraer el retardo relativo utilizando la attosecond streak camera y mediante la comparación izquierda-derecha remover el CLC en el procesos de medición. Sin embargo, en el caso de los potenciales simétricos, es decir, hidrógeno, este retraso asimétrico eliminará el CLC, así como el retardo de tiempo Wigner.

A lo largo de esta tesis también abordamos otros temas de investigación con respecto a la dinámica del proceso de foto-emisión. Nos preguntamos si un método alternativo se puede utilizar en la detección del retraso en la foto-emisión que relacione directamente el retardo (o tiempo) de Wigner con el retardo obtenido con la técnica streaking. Simultáneamente, si éste método elimina el llamado acoplamiento Coulomb-láser involucrado en el proceso de medición. Estas preguntas serán estudiadas con más detalles en el Capítulo 5.

1.5. Motivación de la tesis

Con las motivaciones citadas anteriormente, el objetivo de esta tesis es aplicar las herramientas de la ciencia attosegundos con el propósito de extraer dos tipos diferentes de información, a saber: estructura electrónica y la dinámica de electrones en el proceso de foto-ionización.

En particular:

(i) Por un lado, proponemos una técnica general para reconstruir el elemento matriz de transición dipolar complejo, mediante el empleo de un método interferométrico. Al igual que en óptica física, donde existe un conjunto de técnicas interferométricas para recuperar la información de amplitud y la fase del haz láser, se construirá una analogía con la física cuántica. Pero ahora estas analogías se aplicarán a la reconstrucción de la EWPs attosegundos. Por SFA cálculos numéricos y analíticos TDSE, vamos a demostrar que la posterior aplicación de dos pulsos de attosegundos retardada, en presencia de un campo de láser IR débil, conduce a la emisión de dos EWPs al continuum. Si la frecuencia central de los impulsos de attosegundos XUV son las mismas, esos EWPs interfieren en el espacio de momentum. El interferograma resultante contiene información completa acerca de la diferencia de fase dipolar entre ambos eventos ionización. Vamos a demostrar que este esquema es conceptualmente equivalente a la llamada interferograma SPIDER en óptica.

(em ii) Por otro lado, la información dinámica, tal como el retardo de Wigner, se estudia mediante la utilización de la técnica streaking con una propuesta alternativa para medir el retardo en el proceso de foto-emisión. Sobre la base de la solución numérica de la TDSE en 1D y 3D para un pequeño sistema molecular y asimétrico (como el CO), vamos a demostrar que el retardo de Wigner izquierda-derecha se puede asociar directamente a las estereo retado medido con la técnica streaking. Este último se obtiene por el cálculo de dos trazas streaking, una a la izquierda y otro a la derecha con respecto al núcleos del ion molecular. La gran ventaja de dicho esquema es que el estereo retardo

remueve el problemático CLC del proceso de medición.

1.6. Descripción general de la tesis

El esquema de esta tesis es la siguiente. En el Capítulo 2, damos una visión general de las herramientas teóricas de la Mecánica Cuántica empleadas para el estudio de los procesos físicos en campo fuertes. Principalmente el formalismo de Schrödinger el enfoque de aproximación de campo fuerte se describen en este segundo Capítulo también. Adicionalmente, describiremos los métodos numéricos para implementar numéricamente la TDSE en diferentes geometrías, es decir, en coordenadas cartesianas en 1D, 2D, 3D y, y el cilíndrica coordenadas para un cálculo 3D completa que será necesaria para abordar de manera adecuada a nuestras preguntas de investigación.

En el siguiente Capítulo 3, definiremos las herramientas computacionales que hemos desarrollado para llevar a cabo la interacción fuerte campo de pulsos láser con la materia, y la estrategia diseñada para abordar, desde una punto de vista computacional, nuestros problemas físicos.

En el Capítulo 4, estudiaremos cómo la informacin estructural, es decir, el elemento matriz de transición dipolar, puede ser recuperada mediante el empleo de herramientas de las ciencias de attosegundos. Haremos analogías entre técnicas ópticas para caracterizar los pulsos láseres ultrarrápido y los EWPs cuántica creados por la la interacción de pulsos de attosegundos con una sistema atómico o molecular.

En el próximo capítulo 5, se estudiará el tiempo de Wigner en el proceso de la fotoemisión de átomos y/o moléculas. Vamos a proponer un nuevo método para eliminar la influencia del CLC en el proceso de detección del retardo fundamental de Wigner.

Por último, presentaremos las conclusiones. También incluiremos preguntas de investigación abiertas que pueden ser consideradas en un futuro.

DESCRIPCIÓN GENERAL DE LA TESIS

2

Métodos teóricos y numéricos

2.1. Interacción de campos fuertes

En las escalas atómicas de tiempo y espacio, la estructura electrónica y la dinámica de electrones descripción de el asunto está totalmente regido por las leyes de la Mecánica Cuántica. Típicamente, el estudio de los fenómenos de cuánticos se ha realizado en el marco de la teoría perturbative. Es una muy buena aproximación en caso de que el potencial de interacción de acoplamiento del sistema con un campo externo se puede considerar como una perturbación del hamiltoniano sin campo [69, 70, 71, 72].

Este enfoque teórico ha sido bastante exitoso para explicar una amplia gama de resultados experimentales [73, 74, 75]. Sin embargo, en caso de ultra-corto y pulsos láser ultra-intensos, el término de interacción no se pueden tratarse más como una perturbación del hamiltoniano de campo libre. Una teoría nueva y totalmente diferente necesita ser desarrollada con el fin de explicar los resultados experimentales en este régimen.

El tratamiento más general de la Mecánica Cuántica esta dado por la ecuación Schrödinger dependiente del tiempo. Ella gobierna la evolucin temporal de una función de onda y con ello, la cuantificación de los observables se puede medir en laboratorios.

Pioneras aproximaciones teóricas han sido desarrollados por Keldysh [69] , Faisal [70], Resnik [71], Lewenstein [76], etc., para describir los principales procesos y sus mecanismos de fundamentales de la interacción de campo fuertes con la materia [77]. Mediante la utilizacin de la S-Matrix, fenómenos interesantes, tales como ionización multi-fotón, la ionización mediante túnel, HHG, ATI, etc., se han explicado con éxito bajo algunos ingeniosos suposiciones.

En este Capítulo se describen las herramientas teóricas necesarias para abordar los

2. MÉTODOS TEÓRICOS Y NUMÉRICOS

problemas físicos y de las preguntas que esta tesis propone responder.

Dos formalismos principales se abordan: primero, el formalismo de Schrödinger, donde la evolución temporal del sistema cuántico está vinculada a la función de onda a través de la TDSE. A su vez dicha función de onda se utiliza para calcular los observables de interés. En segundo lugar, el capítulo describe la aproximación de campo fuerte como una herramienta para estudiar la ionización dirigida por pulsos de attosegundos y asistida por un campo de láser del IR con moderada intensidad.

Además, otro objetivo importante es la creación de nuestros métodos numéricos para resolver el TDSE que se utiliza en todo el resto de esta tesis.

3

Diseño de softwares

3.1. Introducción

El esfuerzo numéricos y la complejidad para resolver la TDSE en una cuadrícula crece exponencialmente con el número de grados de libertad del fenómeno físico a estudiar. Entre más grados de libertad se incluyen, los recursos computacionales son más exigentes. Por lo tanto, es necesario desarrollar códigos con el proponer de manejar la complejidad de los problemas de la física.

Tradicionalmente, los físicos escribir código específico para simular un fenómeno físico en particular. Cuando se dirigen a un problema similar, comúnmente un nuevo código está escrito basado en el anterior. En tal caso, surgen dos dificultades prácticas. Primero, es difícil de escalar un código de este tipo. Como el problema físico se vuelve más compleja, es decir, con la participación de alta dimensionalidad (3D, 4D, etc.), las simulaciones son más exigentes y, por tanto, se requiere un diseño para hacer frente computacional complejidad.

Segundo, los códigos son desordenados difícil de cambiar y cada modificación requiere mucho tiempo. Este enorme esfuerzo reduce el tiempo que se puede dedicar al problema físico real.

El desarrollo de software tiene un papel importante en esta tesis. Más allá de la tradicional de desarrollo de un código único, un grupo diseñado de las bibliotecas se lleva a cabo a través de este papel. Estas bibliotecas se utilizan para estudiar una variedad de ultra-rápida y fuertes fenómenos físicos campo.

Dos aspectos importantes a tener en cuenta en el desarrollo de un programa de simulación eficiente son identificados. En primer lugar, la elección de los algoritmos para simular el problema físico con resultados precisos. En segundo lugar, se requiere la

construcción de un código o software eficiente para llevar a cabo simulaciones en las instalaciones con computación de alto rendimiento.

Ruiz y Becker han tenido una larga experiencia en este tipo de estrategias de simulación y han encontrado un método para manejarlos. El objetivo de este método es desarrollar un software de simulación basado en el diseño de estrategias simples. El primer software de este tipo fue la SimLab desarrollado por Ruiz y Becker en el Instituto Max Planck para Sistemas Complejos. Ruiz diseñó y QFISHBOWL desarrollada [109] y ASSAM [110]. El autor de esta tesis y De La Calle han crecido estas dos librerías o bibliotecas con nuevas rutinas y clases. Siguiendo una estrategia similar a los de QFISHBOWL, el autor de esta tesis y Ruiz han desarrollado y diseñado el código BALAS [105].

Además, el autor de esta tesis ha diseñado y desarrollado dos nuevos códigos: el PULSESMAKER [102] y QSPHERE [111]. Todas estas bibliotecas o los códigos se han aplicado con el objetivo de simular los problemas físicos con respecto a las preguntas de investigación mencionadas en la Sección 1.4.

Este Capítulo está dedicado a presentar el *Diseño de la Estrategia* que se emplea para desarrollar nuestras librerías. El Capítulo también describe rápidamente como estas librerías se implementan y se puede utilizar como un *Simulacin Lab*.

A lo largo de las siguientes secciones se describen las estrategias de diseño para los códigos, en particular:

- (I) Definir la estructura de las librerías basado en los conceptos de la física,
- (II) Separe los algoritmos numéricos de la biblioteca,
- (III) Ciclo de ideas, a partir de bosquejo para simulaciones a escala real.

3.1.1. Estructuras de librerías de acuerdo a conceptos de físicos

Para describir un fenómeno físico, los físicos definen un conjunto de “objetos”, o las cantidades, es decir, posición de electrones, el momentum de electrones, la energía de electrones, campo electromagnético, etc., con respecto a lo particular fenómeno que parecen interesados para estudiar.

Mantenemos esta lengua en los códigos de simulación con la motivación para definir una correspondencia entre los físicos “objetos” y las computacionales.

Esta estrategia de diseño se basa en el uso de la lógica y las magnitudes de la teoría cuántica a guiar la construcción de un software de simulación.

El primer paso hacia ese objetivo es identificar varias estructuras de la teoría como objetos, pero aquí en un contexto computacional.

El lenguaje C++ tiene un paradigma de programación orientado a objetos que permite la construcción de clases. Podemos representar estructuras hechas de varias variables y métodos (o rutinas). La principal ventaja de C++ es la factibilidad de dividir un problema computacional en clases pequeñas. Una clase es un tipo o estructura de datos definida por el usuario declarado con palabras claves que tienen de datos y rutinas. El acceso a las variables y rutinas se rige por la tres especificaciones de acceso privado, protegido o público (por defecto el acceso a los miembros de una clase es privado).

Como ejemplo, la Fig. 3.1 muestra una representación esquemática de cómo implementar esta estrategia de diseño.

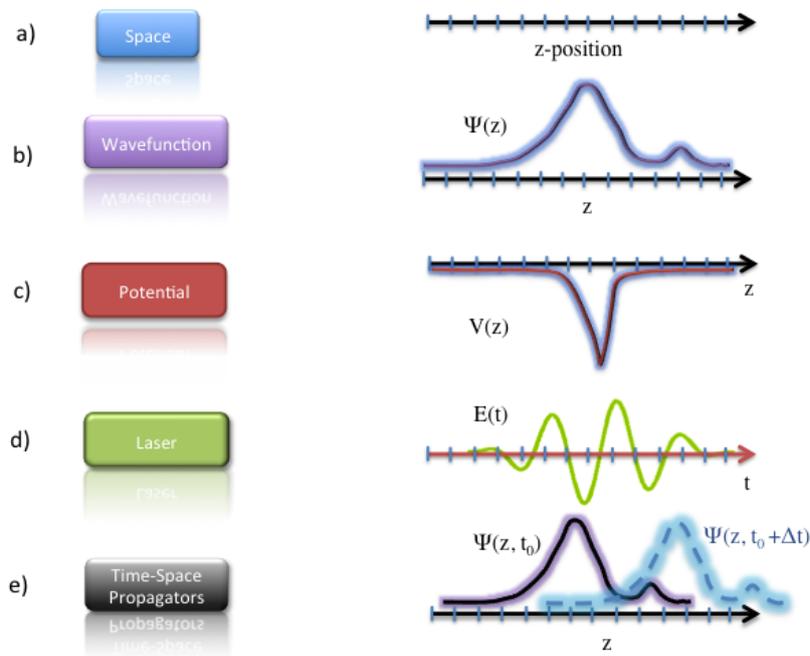


Figura 3.1: **Diseño de códigos basados en conceptos físicos.** En esta imagen se cómo se divide la dependencia de espacio en la función de onda, potenciales y operadores de evolución (o propagador). Entonces, esta separación nos permite construir clases de computación en C++ con las características de estos conceptos físicos.

En la Mecánica Cuántica el cálculo de la evolución temporal y espacial de las funciones de onda es uno de los principales problemas físicos. Esta Fig. 3.1 identifica los diferentes

ESTRATEGÍA DE DISEÑO PARA LOS CÓDIGOS

“componentes” físicos o en analogías con los objetos computacionales, que son necesarios para calcular la evolución de la función de onda. Cinco pasos para identificar objetos físicos como los computacionales se representan en la Fig. 3.1.

Por lo tanto, la física de las interacciones láser-materia pueden ser simulado. Antes, durante y después de las simulaciones, algunos pueden ser observables grabado para describir los efectos de los diferentes campos externos en el sistema físico en estudio.

Las analogías anteriores dan lugar a la organización del código en las librerías donde se definen las clases y sus métodos (rutinas). Para utilizarlos, sólo es necesario para crear pequeños programas o “scripts” donde se incluyen las librerías.

Estos pequeños scripts producen una funcionalidad similar a la del software MATLAB. Los scripts utilizan rutinas prefabricadas para calcular unos tareas específicas. Por ejemplo, en MATLAB, es suficiente escribir `fft (f)` para calcular la Transformada de Fourier discreta (DFT) en lugar de implementar un nuevo código DFT.

La construcción de nuestras bibliotecas con respecto a estos conceptos físicos nos permite incluir la lógica de la teoría en las simulaciones.

4

Técnicas de recuperación de la amplitud y fase de paquetes de ondas electrónicos

4.1. Introducción

Con el advenimiento de nuevas fuentes XUV [118, 119] y, en particular, los pulsos de attosegundos [1] han abierto nuevas oportunidades para obtener imágenes de átomos y de sistemas moleculares con resolución temporales y espaciales nunca antes vistas [15, 16].

Los pulsos de attosegundos tienen un espectro de banda ancho en el rango XUV y pueden ionizar un átomo o una molécula por la absorción de único fotón que conduce a la emisión de una EWP. Este EWP contiene información tanto del pulso attosegundos [53, 120] y el átomo o sistema molecular [15, 57]. El espectro de los pulsos de attosegundos y el elemento de matriz de transición de dipolar son mapeados en la amplitud y fase del espectro de foto-electrones.

El elemento de matriz de transición dipolar contiene información estructural [3, 56] sobre el estado inicial. La ionización por pulsos de attosegundos y mediciones de los espectros de electrones proporciona a continuación acceso al valor absoluto del elemento de matriz de transición de dipolar en un amplio intervalo de energías, pero la fase de esta cantidad permanece en gran medida desconocida y difícil de medir. Para una caracterización completa del sistema el conocimiento de la fase de electrones es esencial. Esto proporciona información estructural e información de la dinámica de ionización, es decir, el retardo o tiempo de Wigner.

4. TÉCNICAS DE RECUPERACIÓN DE LA AMPLITUD Y FASE DE PAQUETES DE ONDAS ELECTRÓNICOS

En este capítulo, vamos a proponer dos técnicas generales para la caracterización completa del EWP y el elemento de matriz de transición dipolar. A diferencia de los trabajos anteriores [49, 52, 53] nosotros no nos centramos en la caracterización del propio pulso attosegundos sino, en la caracterización del elemento de matriz de transición dipolar. Nos basamos en la demostración previa de la medición de la diferencia de fase de EWPs [57] para proponer un método interferométrico general para la caracterización completa del complejo EWP y la transición dipolar elemento de matriz.

Como un primer esquema, se introduce la técnica Quantum Spectral Phase Interferometry for Direct Electron-wavepacket Reconstruction (QSPIDER) [58]. Este método es una variante de la técnica SPIDER [18, 19], pero aquí se aplica a funciones de onda cuántica.

La técnica de SPIDER es un método para la medición del campo eléctrico en pulsos de láser cortos a partir de interferometría espectral. Se utiliza un algoritmo no recursivo [121] para extraer las diferencias de fase entre las diferentes componentes de frecuencia del pulso.

La técnica SPIDER también puede ser empleada para caracterizar pulsos de attosegundos. Como se demostró por Quéré y colaboradores [49, 53, 52], la fase espectral de tales pulsos puede obtenerse mediante la aplicación del SPIDER a paquetes de ondas electrónicas generada por la foto-ionización de un átomo mediante pulsos de attosegundos, suponiendo un dipolo de transición constante.

Nosotros demostramos que esta técnica [53] puede extenderse a la caracterización de la amplitud y fase del elemento de matriz de transición de dipolar.

En la segunda técnica, extendemos QSPIDER a un plano de momentum bidimensional en analogía al método óptico lateral shearing interferometry method [122, 123]. Este método óptico reconstruye el frente de onda espacial del haz de láser mediante un esquema de interferometría sencilla [122]. En este método dos copias son creadas y luego se introducen un shearing or corrimiento espectral en las dos direcciones perpendiculares [124, 125, 126]. A partir de los dos interferogramas resultantes del dos derivadas parciales a lo largo de las direcciones perpendiculares, es decir, $\frac{\partial\phi}{\partial x}$ y $\frac{\partial\phi}{\partial y}$, son recuperadas. Nosotros extendemos ésta técnica de caracterización del frente de onda a paquetes de ondas electrónicas. Mediante el uso de la ionización mediada por dos pulsos de attosegundos en presencia de un láser de IR circularmente polarizado es posible construir el lateral spectral shearing en dos direcciones de momentum diferentes.

4.2. Interferometría de fase espectral cuántica para la reconstrucción directa de EWP

4.2.1. Implementación del QSPIDER

La interferencia de dos EWPs retardados conducen a un patrón de interferograma en la distribución impulso de electrones, en donde la fase relevante diferencia de $\Delta\phi_{21}$. Tal como se indica en las siguientes ecuaciones:

$$\begin{aligned}
|a(\mathbf{p}, \tau_1, \tau_2)|^2 &= |A_1(\mathbf{p}, \tau_1)e^{-i\phi(\mathbf{p}, \tau_1, t_f)} + A_2(\mathbf{p}, \tau_2)e^{-i\phi(\mathbf{p}, \tau_2, t_f)}|^2 \\
&= A_1(\mathbf{p}, \tau_1)^2 + A_2(\mathbf{p}, \tau_2)^2 \\
&\quad + 2A_1(\mathbf{p}, \tau_1)A_2(\mathbf{p}, \tau_2) \cos(\Delta\phi_{21}).
\end{aligned} \tag{4.1}$$

Aquí, $A_1(\mathbf{p}, \tau_1)$ and $A_2(\mathbf{p}, \tau_2)$, son las (real) amplitudes para dos EWPs ionizados por un APT de dos pulsos en presencia del IR. El término de interferencia en la Ec. (4.1) está gobernado por la fase relativa:

$$\begin{aligned}
\Delta\phi_{21} &= \Delta\phi_d(\mathbf{p}, \tau_1, \tau_2) + \frac{1}{2} \int_{\tau_1}^{\tau_2} dt'' (\mathbf{p} + \mathbf{A}_L(t''))^2 \\
&\quad + I_p\Delta\tau + \Delta\phi_X(\mathbf{p}, \tau_1, \tau_2) + \Delta\phi_{LIC}(\mathbf{p}, \tau_1, \tau_2),
\end{aligned} \tag{4.2}$$

donde, $\Delta\tau = \tau_2 - \tau_1$, es el retraso temporal entre los dos pulsos de attosegundos y el láser de IR. τ_1 y τ_2 son los retardos relativos entre los pulsos de attosegundos y el láser de IR. $\Delta\phi_d(\mathbf{p}, \tau_1, \tau_2) = \phi_{d(\mathbf{p} + \mathbf{A}_L(\tau_2))} - \phi_{d(\mathbf{p} + \mathbf{A}_L(\tau_1))}$ representa la diferencia de fase del dipolo, $\Delta\phi_X(\mathbf{p}, \tau_1, \tau_2)$ es la diferencia de fase de los pulsos de XUV, $I_p\Delta\tau$ es la diferencia de fase atómica y $\Delta\phi_{LIC}(\mathbf{p}, \tau_1, \tau_2)$ es el laser-induced chirp. I_p es el potencial de ionización, $\mathbf{A}_L(t)$ es el potencial vector del campo eléctrico del láser de IR $\mathbf{E}_L(t)$.

El esquema para recuperar $\Delta\phi_{21}$ se representa en la Fig. 4.1. El panel c) muestra un momentum típico espectro producido por los campos aplicados que se muestran en el panel a). Este interferograma lleva información sobre la amplitud y fase de los EWPs.

Una vez que el interferograma está disponible podemos aplicar el algoritmo de recuperación QSPIDER que consta de cinco pasos, a saber:

(i) Calculamos la FFT del interferograma, la transformación del espacio impulso a un espacio pseudo-posición. La señal resultante se representa en la Fig. 4.1(d). Se compone de un pico central, el componente de DC, y dos señales laterales, los componentes

4. TÉCNICAS DE RECUPERACIÓN DE LA AMPLITUD Y FASE DE PAQUETES DE ONDAS ELECTRÓNICAS

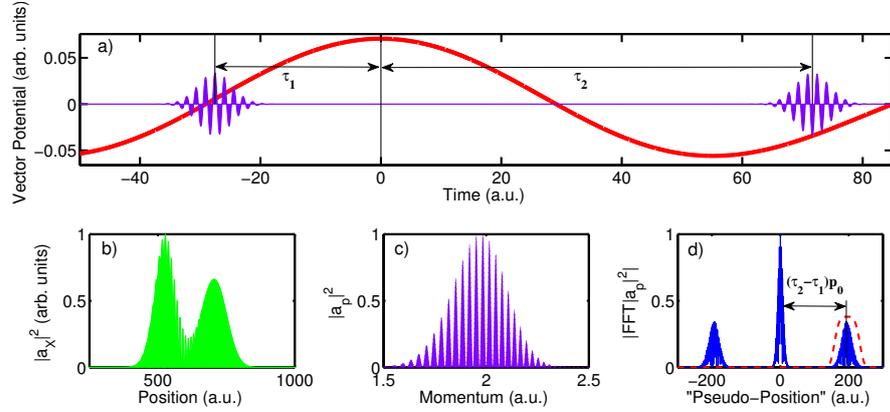


Figura 4.1: **Esquema general de la técnica QSPIDER.** a) Dos pulsos de attosegundos (área violeta) en el presencia del potencial vector de un láser de IR (línea roja) producen dos EWPs idénticos con diferente momentum central debido al campo streaking IR. El panel b) muestra dos EWPs después de la absorción de los pulsos de attosegundos. Los EWPs están representados en el espacio de posicin (zona verde). c) La distribución de momentum de estos EWPs es un interferograma (área violeta) que contiene información acerca de la diferencia de amplitud y fase de los elementos de matriz de transición de dipolar. d) La FFT de la distribucin de impulso consiste en un componente DC central y dos componentes de CA (línea azul), que está separado por $(\tau_2 - \tau_1)p_0$ con respecto a la componente de corriente continua. Después de aislar el AC derecho (línea discontinua roja), la diferencia de fase se puede recuperar.

de corriente alterna.

(ii) Mediante la colocación de una máscara suave, la parte central DC puede ser aislado para obtener el *el cuadrado absoluto de la amplitud* del EWP $|A(\mathbf{p}, \tau_1)|^2$. Este sencillo procedimiento nos permite recuperar la amplitud de EWP como si sólo uno de SAP se utiliz.

(iii) Para extraer la diferencia de fase $\Delta\phi_{21}$ es necesario utilizar una máscara suave (línea roja punteada en la Fig. 4.1d)) para aislar el término AC derecha. Para una mejor recuperación de esta fase los componentes DC y AC deben estar bien separados. Esto puede ser controlado por "ajuste" el tiempo de retardo $\tau_x = \tau_2 - \tau_1$ entre los pulsos de attosegundos, el momentum central de la EWP y la espectral anchura del pulso XUV. Para el attosegundos pulsos aquí considerados, las mejores recuperaciones se obtienen de los retrasos alrededor de $\tau_x \sim T_0$, es decir, el período del pulso de láser. Retrasos menores τ_x plomo a una superposición entre los componentes de CA y CC, que son separado por $p_0\tau_x$, arruinando así el algoritmo de recuperación. Pulsos de attosegundos separados por un láser IR ciclo se han obtenido en HHG experimento con dos colores $(\omega, 2\omega)$ [140]. Además, el retraso de los dos pulsos de attosegundos puede ser controlado por medio de una segmentado espejo [141]. Después de aislar la AC

componente, se calcula la FFT inversa para obtener el diferencia de fase $\Delta\phi_{21}$.

(iv) En analogía a la técnica SPIDER óptica, podemos eliminar las fases conocidas en la Ec (4.2), para extraer la diferencia de fase del dipolo $\Delta\phi_d(\mathbf{p}, \tau_1, \tau_2)$. En principio, la diferencia de fase se puede obtener independientemente del valor del streaking field relativo a las dos copias. Sin embargo, si las streaking relativo $\Delta A_L = A_L(\tau_2) - A_L(\tau_1)$ es suficientemente pequeño, la diferencia de fase da el derivado de la fase de:

$$\Delta\phi_d(\mathbf{p}, \tau_1, \tau_2) \approx \frac{\partial\phi_d}{\partial p} \Delta A_L. \quad (4.3)$$

(v) Finalmente, integrando numéricamente con respecto al momentum, es posible recuperar la fase del elemento de matriz de transición de dipolar.

4.2.2. Resultados de acuerdo con la SFA

Caracterización del dipolo complejo para el caso $1s$

En el caso de los $|\phi_{1s}\rangle$ estado hemos utilizado el siguiente parámetros del pulso para calcular nuestra Interferograma QSPIDER. La APT se compone de dos pulsos con el centro frecuencia $\omega_X = 2,845$ a.u. (77, 4 eV). La envolvente del impulso es una gaussiana para ambos pulsos con FWHM ~ 170 as como. La intensidad de los pulsos XUV es $I_X = 10^{13}$ W/cm². Por otra parte, los parámetros del pulso IR utilizan aquí son: longitud de onda $\lambda_0 = 800$ nm ($\omega_0 = 0,057$ a.u.) y la intensidad $I_0 = 5,0 \times 10^{11}$ W/cm². El tiempo de duración de la pulso de láser es de alrededor de FWHM ~ 4 fs y el envolvente del campo es una función gaussiana. El parámetro de momentum de la red o malla es de $\Delta p = 0,001$ a.u., y el momentum máximo de $L_p = 12,5$ a.u.

Nos interesa la integración numérica de la ecuación SFA para la ionización mediada por dos pulsos en el XUV y un IR débil. Utilizando un cuarto orden Runge-Kutta numrica mtodo [95] para los parámetros del pulso antes descritos y escaneando el retardo $\tau_{rmx} = \tau_2 - \tau_1$ entre los pulsos de attosegundos XUV. Hemos fijado el retardo τ_1 entre el primer XUV y el láser IR (ver Fig. 4.2a)). Entonces, el impulso final calculada interferogramas, $S(p, \tau_x)$, se exploran en el tiempo de retardo a τ_x . Esto es equivalente a variar el tiempo de retardo τ_2 entre el segundo pulsos de attosegundos y el IR. Un muy buen ejemplo acerca de este retraso, se representa en la Fig. 4.2a).

Hemos aplicado el algoritmo QSPIDER al interferograma (ver Fig. 4.2) a cada tiempo de retardo τ_{rmx} . Lo mejor de retardo para la recuperación está cerca de un ciclo de la IR y impulso relativo $\Delta A_L = 0,04$ a.u.

Las Figuras 4.3 b) y c) muestran la distribución de momentum del EWP recuperado

4. TÉCNICAS DE RECUPERACIÓN DE LA AMPLITUD Y FASE DE PAQUETES DE ONDAS ELECTRÓNICOS

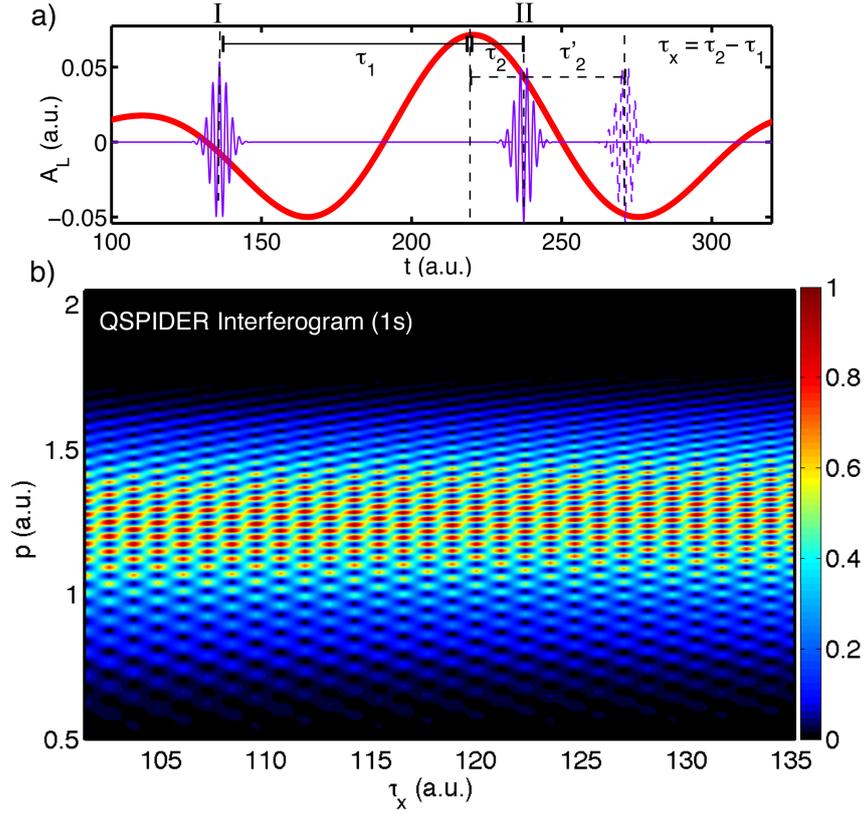


Figura 4.2: **Interferogram de streaked en caso del $1s$ para el He^+ : modelo SFA.** Interferograma de momentum final (escala de color en unidades arbitrarias) en función del tiempo de retardo τ_x entre los pulsos de XUV se representa en el panel b). Los pulsos utilizados son de dos colores: El primer color es el láser de IR campo. Su vector potencial $A_L(t)$ está representado por la línea roja de la parcela a). El segundo color es el tren de dos pulsos de attosegundos (línea violeta sólido) retraso entre ellos por τ_x . el tiempo de retardo τ_1 entre la primera (I) attosegundos y el potencial vector es fijo, mientras que el tiempo de retardo de la segunda (II) attosegundos τ_2 es variada. El retardo de tiempo τ_2 se cambia hasta τ'_2 que denota la retardo de tiempo final del segundo pulso de attosegundos. Este pulso se representa en línea discontinua violeta.

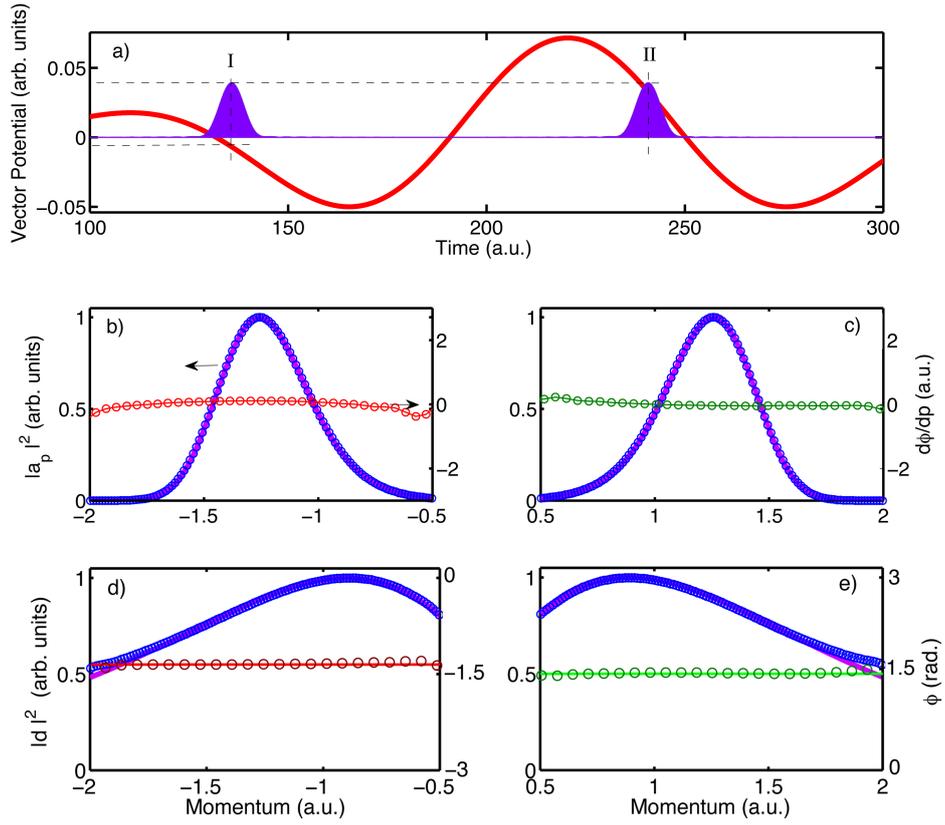


Figura 4.3: **Recuperación QSPIDER para el $1s$ del He^+ : modelo SFA.** a) La línea sólida roja muestra el potencial vector del pulso láser IR. El área de color violeta es la envolvente de APT. La distribución de momentum del EWP recuperado (círculos azules) en comparación con el impulso exacto distribución (violeta línea continua) de la interacción con un SAP en ausencia del campo IR se representa en b) y c) para los momentum negativos y positivos, respectivamente. La derivada de la fase de dipolo recuperada se muestra en rojo y círculos verdes, respectivamente en las letras b) y c). La amplitud recuperada cuadrado (círculos azules) y la fase (rojo y círculos verdes) del elemento de matriz dipolo se compara con la amplitud al cuadrado exacta (línea sólido violeta) y la fase (rojo y verde línea continua) en d) y e).

4. TÉCNICAS DE RECUPERACIÓN DE LA AMPLITUD Y FASE DE PAQUETES DE ONDAS ELECTRÓNICOS

para el negativo y positivo momentos en comparación con el caso de la absorción de un único pulso de attosegundos sin campo de IR, respectivamente. Además, representamos el derivado recuperado de la fase de dipolo. Los resultados muestran un muy buen acuerdo en la región definido por el ancho de impulso espectral de la EWP. Las Figuras 4.3d-e) muestran la recuperación del dipolo la amplitud y la fase de dipolo, respectivamente. La amplitud del dipolo se puede encontrar dividiendo el recuperado amplitud de la EWP por la amplitud XUV $|E_{0,x}(\omega_p)|$ [131]. El acuerdo entre la amplitud recuperada y el exacto es excelente en toda la región accesible. La fase dipolo recuperado después de la integración es constante que indica que el algoritmo no añadir cualquier fase artificial.

Caracterización del dipolo complejo para el $2s$

En el segundo caso, se analiza el primer estado excitado $|\phi_{2s}\rangle$. La transición dipolar tiene un nodo de alrededor de $p_z = 1,4$ a.u. y la fase exhibe un salto de fase en π en este momentum definitivo (ver Fig. ??b)). Este comportamiento es similar al que se encuentra alrededor del mínimo en Cooper foto-ionización de Argón [142]. La APT se compone de dos pulsos con $\omega_x = 1,605$ a.u. (43,7 eV) y FWHM ~ 215 as. Los parámetros del campo de IR son los mismos que en el primer ejemplo.

The final momentum interferogram is also calculated as a function of the time delay τ_x . The results are shown in Fig. ?. The time delay range τ_x can be understood easily by analyzing Fig. ??a). Similar to the dipole characterization for the $|\phi_{1s}\rangle$ state, we have fixed the first attosecond pulse (I) and varied the time delay τ_2 of the second one. The corresponding range to the time delay $\tau_x = \tau_2 - \tau_1$ between the XUV pulses is $\tau_x = T_0/2$ and $1,4T_0$.

Fig. ??b) clearly shows that while the fixed first EWP does not change its final momentum, the vector potential of the IR streaks the second emitted EWP when the second XUV pulse changes its relative time delay τ_2 . Note, that this streaked delay-momentum interferogram encodes also information about the IR laser field.

In addition, we find that this momentum interferogram has a clear signature of the structural dipole node. Note that we are referring to the zero in the EWPs interferogram as a function of the time delay τ_x . This zero is clearly streaked by IR vector potential $A_L(t)$ at the time delay τ_2 . We are not referring to the zero set by one interferogram at single delay τ_x .

Las gráficas 4.4 b-c) muestran la distribución de momentum para el EWP recuperado en comparación con el caso de la absorción de un único pulso de attosegundos sin el campo IR. También podemos observar que la derivada recuperado de la fase se encuentra en muy buen acuerdo con el derivado de fase exacta. Figuras 4.4 d-e) mues-

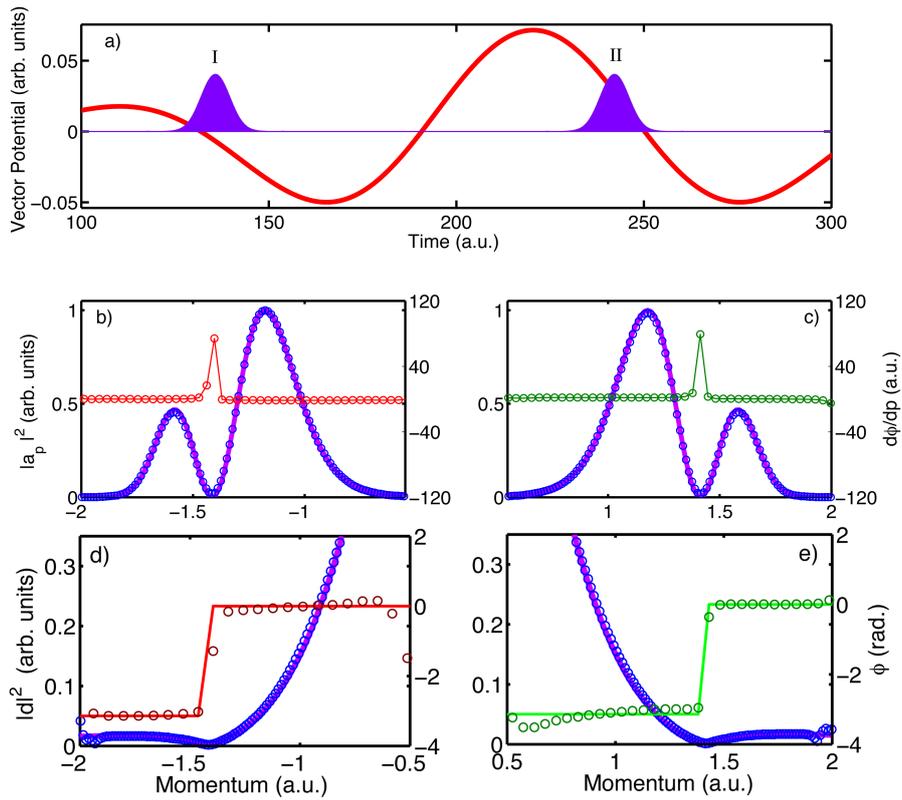


Figura 4.4: **QSPIDER para el 2s del He⁺: modelo SFA.** Las líneas y los símbolos como en la Fig. 4.3. (a) pulsos de láser utilizado en nuestra simulación. (b-c) La recuperación de la amplitud de las EWP (círculos azules) frente a la amplitud exacta de la EWP (línea violeta continua) y recuperación de la derivada de la fase del dipolo (rojo y círculos verdes). (d-e) Recuperación de la amplitud dipolo (círculos azules) y fase dipolo (rojo y círculos verdes) de la EWP. La recuperación QSPIDER (rojo y verde círculos) frente a la fase de dipolo (línea continua de color rojo y verde) de análisis se muestran para el negativo y positivo momentum, respectivamente.

4. TÉCNICAS DE RECUPERACIÓN DE LA AMPLITUD Y FASE DE PAQUETES DE ONDAS ELECTRÓNICOS

tra la fase después de la integración con el salto correcto alrededor de $p_z = 1,4$ a.u., como se esperaba. El acuerdo entre las amplitudes dipolo recuperados y exactas es muy buena en toda la gama accesible y de impulso negativo y positivo.

En conclusión, los resultados bajo el modelo SFA, muestra que la técnica QSPIDER es capaz plenamente de caracterizar el EWP y el elemento de matriz de transición dipolar complejo en un átomo, ion o molécula. La técnica requiere la interacción de un tren de dos pulsos de attosegundos en presencia de un streaked Campo IR. QSPIDER puede recuperar amplitudes y fases dentro de una región definida por la frecuencia central y anchura espectral de los pulsos de attosegundos. Si los pulsos son bien conocidos y el acoplamiento Coulomb-láser se tiene en cuenta, la técnica mide la fase del elemento de transición dipolar.

Además nosotros hemos hecho una extensión de la técnica QSPIDER a un plano bi-dimensional y a su vez hemos demostrado que la técnica funciona. Sin embargo, por la limitaciones de tiempo dentro de la presente memoria de esta tesis doctoral no entraremos en detalles al respecto. Referimos al lector a la versión en inglés de la presente tesis.

5

Retardo en foto-emisión

5.1. Introducción

Cuando la energía de un fotón del XUV de un SAP o un APT es mayor que el potencial de ionización de un átomo o molécula, el electrón puede ser ionizado. Este proceso crea un EWP ultra coherente y ancho espectralmente. La distribución de momentum de los electrones ionizados mapea tanto las características de los pulsos de attosegundos y el padre sistema [52, 53, 58].

Otra propiedad interesante es que este electrón no se emite instantáneamente. En lugar de ello, el átomo o molécula puede tener un tiempo de respuesta o “demora” en el proceso de foto-emisión [59]. Dicho retraso está relacionado con el llamado tiempo de Wigner [60, 61] que mide la diferencia de tiempo de vuelo entre un electrón libre y un electrón bajo la influencia de un potencial de corto alcance. Formalmente, el tiempo de Wigner se define como la derivada de la energía de la fase del elemento de transición dipolar que acumula el EWP en el proceso de foto-ionización [60, 61, 62].

El tiempo de respuesta del átomo o molécula se codifica a continuación, en la fase del EWP y proporciona información valiosa sobre el sistema [58, ?]. Teniendo en cuenta esta información se codifica en la fase, observables tradicionales no pueden acceder a ella.

Sólo recientemente algunos experimentos relacionados con el retardo en foto-ionización han sido llevados a cabo, gracias a las herramientas de la attoscience. Schultze y sus colaboradores [15] han medido el retraso relativo en foto-emisión de los $2s$ y $2p$ estados de Ne átomos utilizando la técnica de rayado [35].

Trabajos recientes también han abordado teóricamente el tiempo de retraso de Wigner en pequeñas moléculas, moléculas de hidrógeno [66, 67], haciendo hincapié en las consecuencias de tener dos centros. En referencia [67] se han estudiado la dependencia

5. RETARDO EN FOTO-EMISIÓN

del retardo de Wigner con la distancia internuclear. También se abordó la dependencia angular del retardo temporal para el ion molecular de hidrógeno.

Estos resultados muestran que el retardo de Wigner también contiene información acerca de la estructura geométrica de la molécula. Lo más importante, el observable *streaking time*, se puede extraer y comparado con el tiempo intrínseco Wigner. Sin embargo, es importante señalar que el acoplamiento Coulomb-laser puede no haber sido eliminada del proceso de medición.

Además en aquellos estudios se describen en la sección introductoria 1.4 acerca de la influencia del campo de láser IR en la detección de la Wigner tiempo han demostrado que el CLC juega un papel importante en el proceso de medición.

En este capítulo se estudia el tiempo de Wigner, su medición problemático mediante la técnica *streaking* y, sobre todo, sugerimos una forma alternativa para eliminar el CLC del proceso de medición.

Nosotros abordamos las preguntas abiertas sobre el tiempo de Wigner que han sido describas en las secciones 1.4 y 1.5. Para ello, proponemos un pequeño sistema molecular asimétrica y definimos una cantidad alternativa que se llama el estéreo tiempo de Wigner. Nosotros demostramos que mediante la medición de dos trazas *streaking* de attosegundos, una a la izquierda y otra a la derecha del electrón con respecto al eje de polarización del haz láser, y por la comparación del retardo obtenido con *streaking*, el retardo simétrico CLC puede ser removido de la medición.

5.2. Tiempo de Wigner en sistemas atómicos

La principal dificultad para extraer el tiempo Wigner de un sistema atómico está relacionada con el hecho de que durante el proceso de detección del acoplamiento entre el largo alcance potencial de Coulomb y la campo de láser juega un papel importante. En el experimento de Schultze *et al.* [15] se presentó, la medición del retardo relativo en foto-emisión de los $2s$ y $2p$ del átomo de Ne, uno lo podría esperar que los dos EWPs lanzados al continuo tienen diferentes velocidades finales. Esto implica que la contribución del potencial de largo alcance entre los dos canales de influencias sustancialmente la proceso de foto-emisión. Entonces, el CLC necesita ser estimado y eliminada del medición con el fin de extraer una “cleanretaso temporal relativo Wigner entre ambos orbitales.

Un proceso alternativo para evitar este CLC es comparar la emisión de dos EWPs con la misma energía final. Aquí vamos a demostrar que mediante la elección de una molécula asimétrica orientada tal como el CO, este CLC es retirado del proceso de

detección mediante la medición y comparación del retardo en el proceso de emisión de un EWP a izquierdas y otro a derechas.

5.2.1. Descripción del sistema asimétrico

5.2.2. Estructura dipolar y el estéreo del tiempo de Wigner

Para calcular el retardo de Wigner en el sistema molecular CO nosotros determinamos el elemento de matriz de transición dipolar, su amplitud y su fase. Luego, computamos la derivada energética de dicha fase mediante PW y SW.

La figura 5.1 muestra la amplitud $|d(k)|$ y fase $\phi(k)$ del dipolo de transición en función del momentum k por PW y SW.

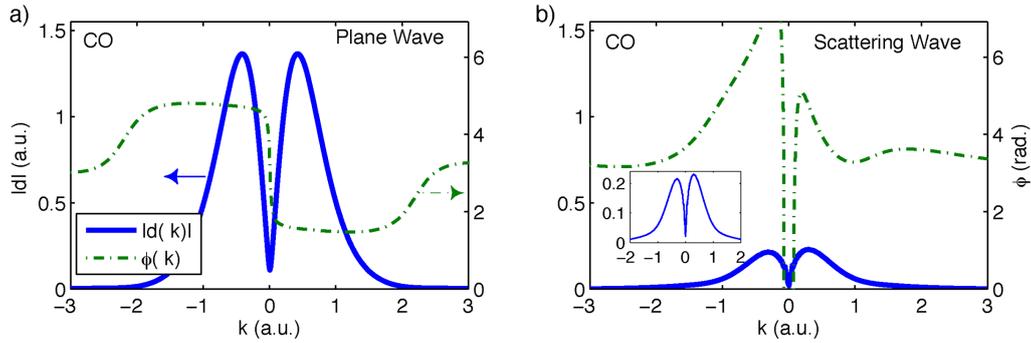


Figura 5.1: **Elemento de matriz de transición dipolar para el modelo CO.** a) La amplitud (línea azul) y fase (puntos-línea discontinua verde) del elemento de matriz de transición dipolar considerando el estado continuo como PW, $\Psi_k(z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}e^{ikz}$. b) Lo mismo que a) pero con SW, $\Psi_k(z)$.

Como esperamos que el PW produce resultados diferentes a SW para el complejo dipolo. La amplitud dipolo en caso de proyección PW es totalmente simétrica, mientras que en el caso de SW es ligeramente asimétrica. La fase dipolar también difiere considerablemente si PW o SW se utiliza para calcular la misma. Mientras que la asimetría se produce en la transición de dipolo elemento de matriz de amplitud y fase, la asimetría en la amplitud es pequeña y, probablemente, muy difícil de medir. En contraste, la asimetría en la fase de dipolo es mucho más grande y por lo tanto sensible a los detalles de el potencial asimétrico. Por lo tanto, se configura una más potente observable para medir la características de la molécula asimétrica (AM).

Introducimos una definición sistemática para la asimetría temporal. Definimos el retardo de Wigner a izquierdas como la derivada de la fase de dipolo con respecto a la

5. RETARDO EN FOTO-EMISIÓN

energía para electrones con el momentum negativo de $\Delta t_W^{(L)} = \frac{1}{k} \frac{\partial \phi(k)}{\partial k} \Big|_{k < 0}$. El derecho retardo Wigner, por el contrario, se define como $\Delta t_W^{(R)} = \frac{1}{k} \frac{\partial \phi(k)}{\partial k} \Big|_{k > 0}$ de electrones con un impulso o momentum positivo. Entonces, el tiempo de retardo asimétrico o el estéreo tiempo de Wigner se define como la diferencia entre estas dos cantidades:

$$\Delta t_W^{(LR)} = \Delta t_W^{(L)} - \Delta t_W^{(R)}. \quad (5.1)$$

La Figura 5.2 muestra los cálculos de la demora de izquierda-derecha tiempo Wigner y la SWTD desde las fases dipolar calculadas por el PW y SW. Los retardos de tiempo de Wigner izquierdo y derecho son diferentes si PWs o SWs se utilizan para calcularlas. Sin embargo, mediante ambos métodos, se obtiene un mínimo claro en el estéreo retardo de Wigner. Es claro que diferente información se obtienen para el estéreo tiempo de Wigner si se utilizan PWs o SWs.

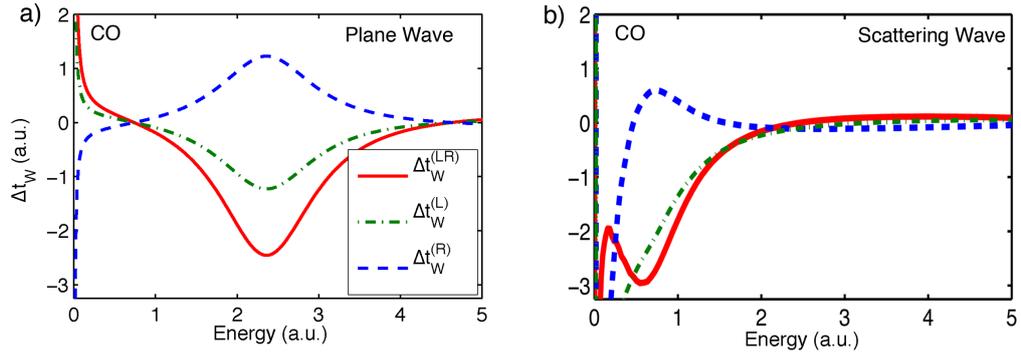


Figura 5.2: **Stereo Wigner time delay.** a) Los retardos izquierda, derecha y los retrasos de estéreo tiempo de Wigner calculados mediante PW se representan en líneas con puntos y rayas verdes, la líneas azules y rojas, discontinuas, respectivamente. b) Lo mismo que en a) pero para los cálculos de SW.

5.2.3. Stereo streaking technique en una molécula asimétrica

El supuesto básico de la streaking technique es que el campo IR no modifica ni el estado inicial ni el estado continuo definitiva a excepción de un cambio de impulso $A_L(\tau)$. Sin embargo, mientras que los efectos de campo de láser de infrarrojos se pueden despreciar en el estado inicial, en la continuidad de la acoplamiento entre el campo de láser y el potencial de Coulomb produce un retardo de tiempo que debe ser removido de el medido [63, 65, 152].

El SWTD $\Delta t_W^{(LR)}$ quita el CLC de la mediciones, ya que es idéntica a la izquierda y a

la derecha, [65]. El SWTD evita la necesidad de estimar esta contribución para cada canal de ionización, pero el SWTD sólo se puede aplicar a los sistemas asimétricos.

Calculamos las streaking traces mediante la solución numérica de la TDSE que permite simular la interacción de un SAP en presencia de un campo de láser IR débil y grabar el impulso final de electrones. Llevamos a cabo esta tarea para cada tiempo de retardo τ entre el pulso de attosegundos XUV y el campo de láser IR. Los parámetros del pulso attosegundos son: intensidad máxima $I_X = 5 \times 10^{12}$ W/cm², el centro de frecuencia $\omega_X = 1,2$ a.u., un sobre gaussiano con FWHM = 20 a.u., y CEP = 0 rad. El campo de láser IR tiene una intensidad máxima de streaking típicas de $I_0 = 2,5 \times 10^{12}$ W/cm², la frecuencia central de $\omega_{IR} = 0,057$ a.u., un sobre en seno cuadrado con dos ciclos totales y un CEP = 0 rad., la cuadrícula parámetros son los mismos que en las secciones anteriores.

Fig. 5.3 a-b) muestran las streaking traces para H y CO, respectivamente. El electrón distribuciones de momento se calculan mediante la proyección de la función de onda final sobre SW para ambos los casos atómicas y moleculares. Para extraer el retardo estéreo en foto-emisión de la traza streaking, se calculan los valores esperados de momentum $\langle p_L \rangle$ y $\langle p_R \rangle$ en función del retardo temporal τ . Por la Fourier método de análisis ($\Delta t_S^{(L/R)} = \frac{\phi^{(L/R)}(\omega_0)}{\omega_0}$) para la impulsos negativos y positivos, el tiempos streaking se extraen $\Delta t_S^{(L/R)}$. Entonces, el estéreo streaking se recupera por:

$$\Delta t_S^{(LR)} = \Delta t_S^{(L)} - \Delta t_S^{(R)}. \quad (5.2)$$

El valor esperado del impulso desplazado $\langle p'_L \rangle = \langle p_L \rangle + p_0$ y $\langle p'_R \rangle = \langle p_R \rangle - p_0$ se representa en la Fig. 5.3 c-d) para el caso de los sistemas H y CO. El tiempo relativo $\Delta t_S^{(L/R)} \approx -1,5$ entre el vector potencial de $-A_L(\tau)$ y $\langle p_{L/R} \rangle$ son los mismos, que el estéreo tiempo $\Delta t_S^{(LR)}$ produce un valor de cero para el caso atómica H (mirar la gráfica de inserción en la Fig. 5.3c)).

Por el contrario, nuestro análisis de Fourier resulta dar tiempos de streaking a la izquierda y a la derecha alrededor de $\Delta t_S^{(L)} \approx -2,8$ y $\Delta t_S^{(R)} \approx 0,2$ a.u., para la molécula de CO. Entonces, el stereo streaking time delay no es cero y tiene un valor alrededor de $\Delta t_S^{(LR)} \approx -3,0$ a.u., tal como se muestra el gráfico de inserción en la Fig. 5.3d). Notamos que este stereo streaking time delay está en muy buen acuerdo con la media exacta de la SWTD $\langle \Delta t_W^{(LR)} \rangle = -2,9$ a.u. Sólo hay una pequeña diferencia que viene del error del análisis de Fourier, que en este caso es de alrededor de 0,1 a.u.

Con el fin de comparar si los rastros de escurridos calculados por proyecciones PW

5. RETARDO EN FOTO-EMISIÓN

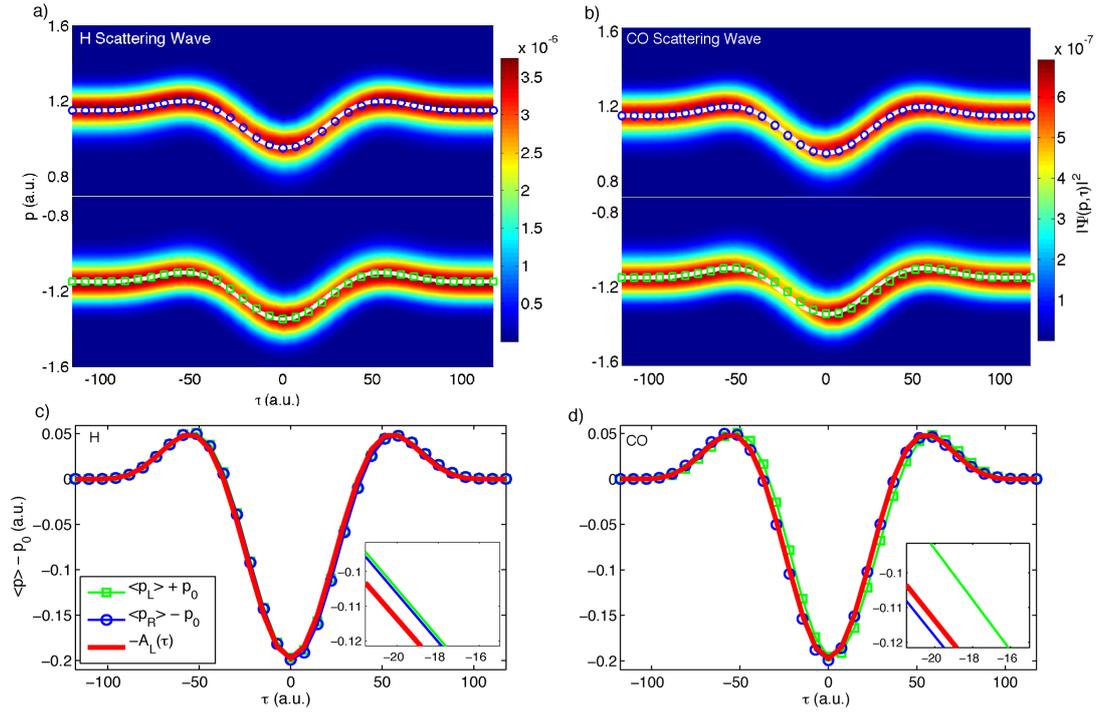


Figura 5.3: **Comparación de las trazas streaking para los sistemas H y CO.** Las distribuciones de momento finales a izquierda y a derecha, mediante la proyección en SW, en función del retardo τ entre el IR y XUV y para H y CO, son representadas en a) and b), respectivamente. Los valores esperados del momento de electrones con negativo, $\langle p_L \rangle$, y positivo, $\langle p_R \rangle$, el momentum en los círculos azules (derecha) y los círculos verdes (izquierda). En línea blanca, el vector potencial de $-A_L(\tau)$. Estos valores esperados y el vector potencial de $-A_L(\tau)$ para ambos sistemas se representan en c) y d). Los gráficos de inserción en c) y d) muestran el streaking time $\Delta t_S^{(L/R)}$ y el estero retardo $\Delta t_S^{(LR)}$, entre el potencial IR del vector y los valores esperados de momento para ambos sistemas.

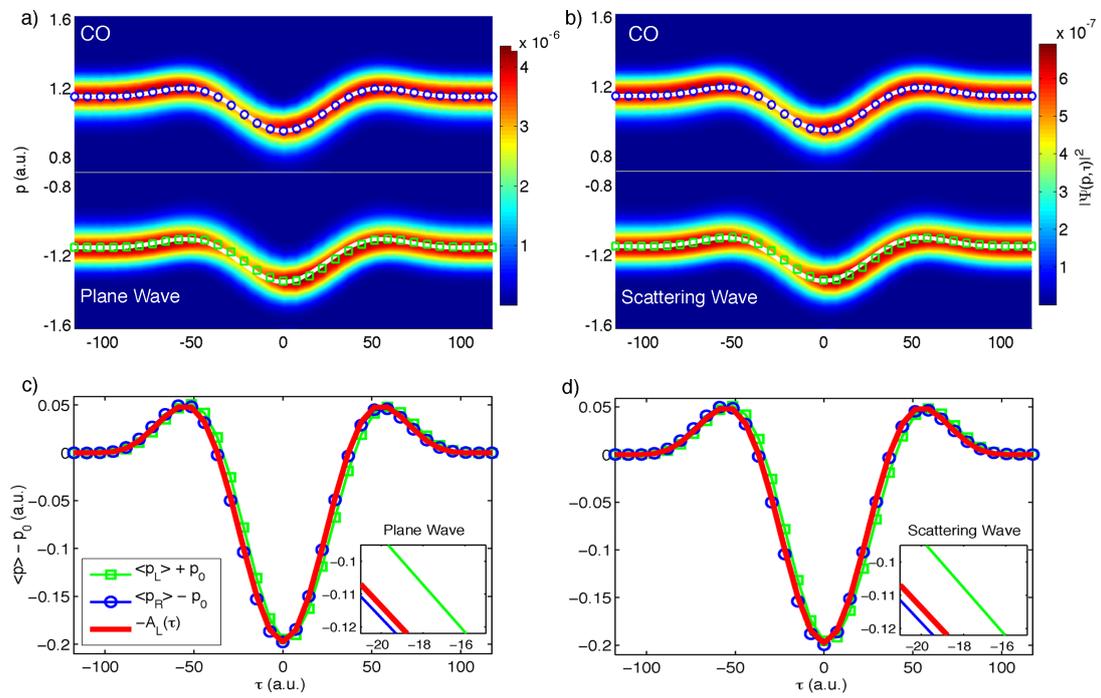


Figura 5.4: **Trazas streaking mediante PW and SW en el caso de la molécula CO.** Esta figura muestra lo mismo que la Fig. 5.3 en caso de CO, pero las trazas streaking se calculan mediante las proyecciones PW y SW.

5. RETARDO EN FOTO-EMISIÓN

y SW dan la misma informacin sobre el tiempo de retraso rayas estreo en el caso molecular, los hemos calculado. Fig. 5.4 a-b) muestra la comparacin entre las left-right streaking traces proyectando en PW y SW para el sistema molécula de CO. Como es de esperar las formas de amplitud aspecto similar para ambos casos, pero los valores absolutos difieren entre si. Sin embargo, los valores esperados de impulso desplazado son similares si PWs o SWs se utilizan para calcular estas cantidades (véase las figuras 5.4 c-d)). Los gráficos de insercin en c) y d) muestran un retraso de tiempo vetas estreo muy similar $\Delta t_S^{(LR)} \approx -3,0$ a.u., si se utilizan PWS o MTS para calcular la streaking traces.

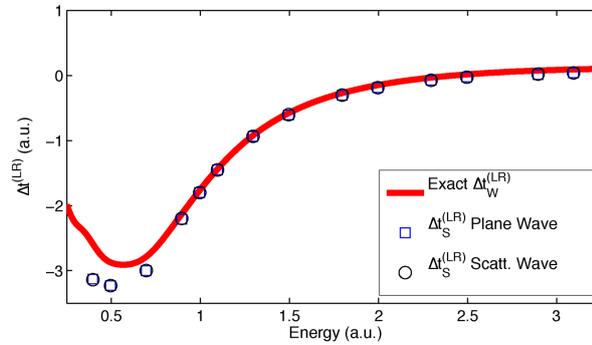


Figura 5.5: **Estéreo streaking time delay.** El stereo streaking time delay en función de la EWP centro de energía $E_0 = \omega_X - I_p$ por PW (cuadrados azules) y SW (círculos negros) se comparan con el exacto stereo Wigner time delay $\Delta t_W^{(LR)}$ calculado a través de la derivada de la fase de dipolo.

Para probar si la técnica de rayas funciona en una amplia gama de frecuencias XUV, hemos calculado las huellas de escurridos izquierda-derecha por proyecciones o PW SW para un conjunto de frecuencias centrales XUV.

Los resultados se representan en la Fig. 5.5. Nos encontramos con un muy buen acuerdo entre el stereo time delay extraído por nuestro método stereo streaking y la exacta SWTD $\Delta t_W^{(LR)}$ como se obtiene de la transición exacta dipolo complejo elemento de la matriz y la técnica TOF definido anteriormente.

Esto muestra que la SWTD se puede medir experimentalmente y proporciona una manera sencilla de eliminar el CLC.

La extensión de este método a un sistema 3D, se presenta en la versión en inglés de la presente tesis doctoral.

Conclusiones y perspectivas futuras

Los resultados de la presente tesis doctoral se han organizado en dos grandes grupos. En el primero de estos grupos, el foco estaba en desarrollar nuevas técnicas de caracterización de paquetes de ondas electrónicos basadas en técnicas ópticas. En el segundo grupo, el foco estaba puesto en cómo utilizar los pulsos de attosegundos para extraer información dinámica de sistemas atómicos y moleculares.

Conclusiones

El objetivo principal del primer grupo de las conclusiones era el estudio de diferentes técnicas de caracterización para reconstruir la amplitud y la fase de un EWP y su correspondiente elemento de matriz de transición dipolar ligado-contínuum (complejo). En el segundo grupo de resultados la atención se centró en el estudio del retardo en el proceso de foto-emisión mediante la técnica de attosegundos streaking, principalmente una forma de remover el llamado acoplamiento Coulomb-laser coupling.

Paquetes de ondas electrónicos e información estructural

Presentamos la técnica QSPIDER en 1D y su extensión 2D para reconstruir el EWP complejo y su correspondiente elemento de matriz de transición dipolar complejo. Dos diferentes esquemas interferométricos se presentaron: la técnica QSPIDER y la técnica de interferometría lateral momentum-shearing para EWPs la cual es una extensión de la QSPIDER a un plano de momentum 2D. Con los parámetros que se puede acceder hoy en día experimentalmente, hemos demostrado que estas técnicas son capaces de recuperar la información estructural.

A lo largo del Capítulo 4, se demostró que QSPIDER permite extraer el dipolo

5. CONCLUSIONES Y PERSPECTIVAS FUTURAS

complejo dentro del ancho de banda de momentum del EWP.

Por otro lado, la técnica de interferometría lateral momentum-shearing para EWPs se asemeja al QSPIDER, pero en este caso el campo láser que ocasiona un desplazamiento espectral del EWP, estaba polarizado circularmente. De acuerdo con nuestros resultados numéricos basado en la TDSE y SFA 2D, también demostramos que esta técnica extrae la información estructural sobre el sistema atómico, es decir, el complejo de dipolo relacionado con la función de onda del estado ligado.

Hacemos hincapié en que la aplicación subsecuente de los dos pulsos de attosegundos en la presencia de un campo láser de IR (lineal o circularmente polarizada) a la muestra atómica o molecular, demostró que QSPIDER es una técnica de un solo “disparo”.

Además, la emisión de dos EWPs desde el mismo estado ligado demostró que QSPIDER es una novedosa técnica con la singular propiedad de ser auto-referencia.

Concluimos que, en comparación con el método de espectroscopia de armónicos de orden alto [3, 56] usado para extraer información estructural, QSPIDER tiene dos deseables ventajas: primero, es una técnica de un único “disparo” segundo, es una técnica de auto-referenciado.

Por último, los resultados del Capítulo 4 demostraron que los conceptos de las técnicas de caracterización óptica puede aplicarse con éxito, al menos en ciertas condiciones, a la reconstrucción de paquetes de ondas de electrones.

Tiempo de Wigner e información dinámica

El segundo grupo de resultados en esta tesis se centró en el uso de pulsos de attosegundos para extraer información dinámica del proceso de ionización. En particular, investigamos el problema de medir el tiempo de Wigner en pequeñas moléculas asimétricas.

La técnica de attosecond streaking es una herramienta útil para medir el retraso en foto-emisión. Dependiendo de la naturaleza del potencial atómica este retraso puede medirse con precisión.

Para los potenciales de largo alcance, el tiempo de retardo en la foto-emisión no estaba directamente relacionado con el tiempo Wigner. La contribución del potencial de largo alcance dependía de la posición final en la que se hizo el cálculo y por lo tanto

el valor del retardo en foto-emisión no era único. Para el potencial de corto alcance, el retraso en el proceso de foto-emisión y el tiempo de Wigner eran los mismos.

En el caso del potencial de corto alcance, la técnica streaking funcionó para extraer el retardo de Wigner. Sin embargo, para los potenciales de largo alcance, el acoplamiento entre el láser IR y el potencial distorsionó la medición e indujo un retardo adicional.

En esta tesis, hemos propuesto una alternativa para extraer información acerca de la retardo de Wigner. Este método se basa en un sistema molecular asimétrico tal como CO. Al tomar la diferencia de retardos entre EWPs emitidos a la izquierda y derecha con respecto al eje de orientación molecular, nosotros hemos definido el retardo estéreo en el proceso de foto-emisión.

De acuerdo con el estéreo retardo descrito en el capítulo 5, nuestros resultados numéricos sugirieron que dicho estéreo retardo en foto-emisión (tiempo de estéreo vuelo) estaba perfectamente en acuerdo con el estéreo retardo de Wigner. Además, este retardo asimétrico eliminó la aceleración inducida por el potencial de largo alcance de Coulomb.

Hacemos hincapié en que la medición del estéreo retardo streaking mediante la detección de dos trazas streaking izquierda-derecha, se comparó en muy buen acuerdo con el estéreo retardo de Wigner. Este esquema, viable desde un punto de vista experimental, remueve la problemática del retardo inducido por el acoplamiento del potencial de Coulomb con el láser en el proceso de medición del tiempo de Wigner.

Por otra parte, en el mismo capítulo 5, exploramos un sistema molecular asimétrico en un modelo 3D para confirmar nuestras predicciones 1D en relación con el estéreo retardo de Wigner. Los resultados sugieren que el estéreo tiempo de Wigner también se puede medir en caso de que no exista ninguna dinámica electrón entre los estados ligados inducida por el campo de streaking. En el caso que existió dinámica electrónica inducida por el campo de láser IR, la medición del estéreo retardo en foto-emisión fue muy complicada. Este era el caso, en el que la diferencia de energía entre los orbitales acoplados fue de un fotón del láser del IR.

Futuras perspectivas

Hemos confirmado que las herramientas de la ciencia attosegundos puede ser aplicado con éxito a la recumeración de información de la estructura y de la dinámica de electrones.

5. CONCLUSIONES Y PERSPECTIVAS FUTURAS

Nuestros resultados sugieren que el desarrollo de aplicaciones basadas en la física de attosegundos proporcionan una nueva y valiosa perspectiva de electrones en el la materia mediante el acceso de la misma función de onda en átomos.

Como perspectiva, proponemos extraer información estructural sobre el elemento de matriz de transición de dipolar en un rango de momentums más amplio que QSPIDER. Mediante la mezcla de la señal de un solo pulso de attosegundos XUV y la ionización llevada a cabo por el campo láser de IR tal vez es posible la reconstrucción completa dipolo complejo. Sería muy interesante realizar una reconstrucción completa tomografía de la función de onda inicial del electrón con una resolución espacial sin precedentes.

Bibliografía

- [1] F. Krausz and M. Ivanov. *Rev. Mod. Phys.*, **81**:163, (2009). [1](#), [29](#)
- [2] T. Zuo, A. D. Bandrauk, and P. B. Corkum. *Chem. Phys. Lett.*, **259**:313, (1996). [1](#)
- [3] J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, et al. *Nature*, **432**:867, (2004). [1](#), [13](#), [29](#), [50](#)
- [4] P. B. Corkum and F. Krausz. *Nat. Phys.*, **3**:381, (2007). [1](#), [3](#), [4](#), [6](#), [13](#)
- [5] E. Goulielmakis, M. Schultze, M. Hofstetter, et al. *Science*, **320**:1614, (2008). [1](#)
- [6] T. H. Maiman. *Nature*, **187**:493, (1960). [3](#)
- [7] U. Keller. *Nature*, **424**:831, (2003). [3](#)
- [8] F. J. McClung and R. W. Hellwarth. *J. Appl. Phys.*, **33**:828, (1962). [3](#)
- [9] R. Paschotta. RP Photonics: Encyclopedia. <http://www.rp-photonics.com/>. [3](#)
- [10] L. E. Hargrove, R. L. Fork, and M. A. Pollack. *Appl. Phys. Lett.*, **5**:4, (1964). [3](#)
- [11] W. E. Lamb. *Phys. Rev.*, **134**:A1429, (1964). [3](#)
- [12] R. Borrego. *Role of wavefront aberrations of amplified femtosecond pulses in nonlinear optics*, 2012. PhD. thesis, Universidad de Salamanca. [3](#)
- [13] P. F. Moulton. *J. Opt. Soc. Am. B.*, **3**:125, (1986). [3](#)
- [14] R. L. Fork, C. H. Brito Cruz, P. C. Becket, and C. V. Shank. *Opt. Lett.*, **12**:483, (1987). [4](#)
- [15] M. Schultze, M. Fiess, N. Karpowicz, et al. *Science*, **328**:1658, (2010). [4](#), [14](#), [29](#), [39](#), [40](#)

BIBLIOGRAFÍA

- [16] K. Klünder, J. M. Dahlström, M. Gisselbrecht, et al. *Phys. Rev. Lett.*, **106**:143002, (2011). [4](#), [14](#), [29](#)
- [17] D. Strickland and G. Mourou. *Opt. Comm.*, **56**:219, (1985). [3](#)
- [18] C. Iaconis and I. A. Walmsley. *Opt. Lett.*, **23**:792, (1998). [5](#), [30](#)
- [19] M. E. Anderson, L. E. E. Araujo, E. M. Kosik, and I. A. Walmsley. *Appl. Phys. B*, **70**:S85, (2000). [5](#), [30](#)
- [20] E. M. Kosik, A. S. Radunsky, I. A. Walmsley, and Dorrer. C. *Opt. Lett.*, **30**:326, (2005). [5](#)
- [21] D. J. Kane and R. Trebino. *Opt. Lett.*, **18**:823, (1993). [5](#)
- [22] P. OShea, M. Kimmel, X. Gu, and R. Trebino. *Opt. Lett.*, **26**:932, (2001). [5](#)
- [23] B. Alonso, I. J. Sola, O. Varela, J. Hernández-Toro, et al. *J. Opt. Soc. Am. B*, **27**:933, (2010). [5](#)
- [24] B. Alonso. *Spatiotemporal characterization of ultrashort laser pulses*, 2012. PhD. thesis, Universidad de Salamanca. [5](#)
- [25] C. P. Hauri, W. Kornelis, F. W. Helbing, et al. *Appl. Phys. B*, **79**:673, (2004). [5](#)
- [26] B. Varela, O. Alonso, I. J. Sola, J. San Román, et al. *Opt. Lett.*, **35**:3649, (2010). [5](#)
- [27] W. Holgado, B. Alonso, J. San Román, and I. J. Sola. *Opt. Exp.*, **22**:10191, (2014). [5](#)
- [28] F. Böhle, M. Kretschmar, A. Jullien, et al. *Laser Phys. Lett.*, **11**:095401, (2014). [5](#)
- [29] U. Keller, G. W. tHooft, W. H. Knox, and J. E. Cunningham. *Opt. Lett.*, **16**:1022, (1991). [5](#)
- [30] T. R. Schibli, O. Kuzucu, J.-W. Kim, et al. *J. Sel. Topics in Quantum Elec.*, **9**:1022, (2003). [5](#)
- [31] M. Uiberacker, Th. Uphues, M. Schultze, et al. *Nature*, **446**:627, (2007). [6](#)
- [32] A. L'Huillier and Ph. Balcou. *Phys. Rev. Lett.*, **70**:774, (1993). [6](#)

-
- [33] G. Mainfray and C. Manus. *Rep. Prog. Phys.*, **54**:1333, (1991). [6](#)
- [34] B. Walker, B. Sheehy, L. F. DiMauro, et al. *Phys. Rev. Lett.*, **73**:1228, (1994). [6](#)
- [35] M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, et al. *Nature*, **414**:509, (2001). [6](#), [10](#), [11](#), [14](#), [39](#)
- [36] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, et al. *Science*, **292**:1689, (2001). [6](#), [10](#), [11](#), [14](#)
- [37] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, et al. *Nature*, **419**:803, (2002). [6](#)
- [38] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, et al. *J. Opt. Soc. Am. B*, **4**:595, (1987). [6](#)
- [39] M. Ferray, A. LHuillier, X. F. Li, G. Mainfray, and C. Manus. *J. Phys. B*, **21**:L31, (1988). [6](#)
- [40] P. B. Corkum. *Phys. Rev. Lett.*, **71**:1994, (1993). [6](#)
- [41] P. Mulser and D. Bauer. *High Power Laser-Matter Interaction*. Springer Verlag Berlin Heidelberg, 2010. [7](#)
- [42] G. Farkas and C. Toth. *Phys. Lett. A*, **168**:447, (1992). [10](#)
- [43] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and M. Y. Ivanov. *Opt. Lett. A*, **19**:1870, (1994). [10](#)
- [44] I. J. Sola, E. Mével, L. Elouga, E. Constant, et al. *Nature Phys.*, **2**:319, (2006). [10](#)
- [45] G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, et al. *Science*, **314**:443, (2006). [10](#)
- [46] F. He, C. Ruiz, and A. Becker. *Opt. Lett.*, **32**:3224, (2007). [10](#)
- [47] C. Hernández García. *Coherent attosecond light sources based on high-order harmonic generation: influence of the propagation effects*, 2013. PhD. thesis, Universidad de Salamanca. [10](#)
- [48] H. G. Muller. *Appl. Phys. B*, **74**:S17, (2002). [11](#)
- [49] Y. Mairesse and F. Quéré. *Phys. Rev. A*, **71**:011401(R), (2005). [11](#), [30](#)
- [50] J. Itatani, F. Quéré, G. L. Yudin, et al. *Phys. Rev. Lett.*, **88**:173903, (2002). [11](#), [12](#)

BIBLIOGRAFÍA

- [51] M. Kitzler, N. Milosevic, A. Scrinzi, F. Krausz, and T. Brabec. *Phys. Rev. Lett.*, **88**:361, (2002). [11](#)
- [52] F. Quéré, Y. Mairesse, and J. Itatani. *J. Mod. Opt.*, **52**:339, (2005). [11](#), [12](#), [14](#), [30](#), [39](#)
- [53] F. Quéré, J. Itatani, G. L. Yudin, et al. *Phys. Rev. Lett.*, **90**, (2003). [29](#), [30](#), [39](#)
- [54] P. Eckle, M. Smolarski, P. Schlup, et al. *Nature Phys.*, **4**:565, (2008). [13](#)
- [55] F. Krausz and M. I. Stockman. *Nature Photonics*, **8**:205, (2014).
- [56] S. Haessler, J. Caillat, W. Boutu, et al. *Nature Phys.*, **6**:200, (2010). [13](#), [29](#), [50](#)
- [57] T. Remetter, P. Johnsson, J. Mauritsson, et al. *Nature Phys.*, **2**:323, (2006). [13](#), [29](#), [30](#)
- [58] A. Chacón, M. Lein, and C. Ruiz. *Phys. Rev. A*, **87**:023408, (2013). [14](#), [30](#), [39](#)
- [59] J. M. Dahlström, A. L’Huillier, and A. Maquet. *J. Phys. B*, **44**:081001, (2011). [14](#), [15](#), [39](#)
- [60] E. P. Wigner. *Phys. Rev.*, **98**:145, (1955). [14](#), [39](#)
- [61] F. T. Smith. *Phys. Rev.*, **108**:349, (1960). [14](#), [39](#)
- [62] L Eisenbud. *The formal properties of nuclear collisions*, 1948. PhD. thesis, Princeton University. [14](#), [39](#)
- [63] S. Nagele, R. Pazourek, J. Feist, et al. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **44**:081001, (2011). [15](#), [43](#)
- [64] A. S. Kheifets and I. A. Ivanov. *Phys. Rev. Lett.*, **105**:233002, (2010). [15](#)
- [65] M. Ivanov and O. Smirnova. *Phys. Rev. Lett.*, **107**:213605, (2011). [15](#), [43](#)
- [66] V. Serov, V. L. Derbov, and T. A. Sergeeva. *Phys. Rev. A*, **87**:063414, (2013). [15](#), [39](#)
- [67] Q.-C. Ning, L.-Y. Peng, S.-N. Song, et al. *Phys. Rev. A*, **90**:013423, (2014). [15](#), [39](#)
- [68] A. Chacón, M. Lein, and C. Ruiz. *Phys. Rev. A*, **89**:053427, (2014). [15](#)
- [69] L. V. Keldysh. *Eksp. Teor. Fiz.*, **47**:1945, (1964). [19](#)

- [70] F. H. M. Faisal. *J. Phys. B.*, **6**:L89, (1973). [19](#)
- [71] H. R. Reiss. *Phys. Rev. A*, **22**:1786, (1980). [19](#)
- [72] A. Becker and F. H. Faisal. *J. Phys. B*, **38**:R1, (2005). [19](#)
- [73] H. Hertz. *Annalen der Physik*, **267**:983, (1887). [19](#)
- [74] A. Peralta Conde, L. P. Yatsenko, J. Klein, et al. *Phys. Rev. A*, **72**:053808, (2005). [19](#)
- [75] A. Peralta Conde, J. Kruse, O. Faucher, et al. *Phys. Rev. A*, **79**:061405R, (2009). [19](#)
- [76] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Hullier, and P. B. Corkum. *Phys. Rev. A*, **49**:2117, (1994). [10](#), [19](#)
- [77] A. Becker and F. H. M. Faisal. *J. Phys. B*, **38**:R1, (2005). [19](#)
- [78] J. J. Sakurai. *Modern Quantum Mechanics*. Addison Wesley, 1994.
- [79] L. Plaja. *Teoría Perturbativa de la Ionización*, (2007). Notas de Máster.
- [80] J. R. Ackerhalt and P. W. Milonni. *J. Opt. Soc. Am. B*, **1**:116, (1984).
- [81] T. K. Kjeldsen. *Wave packet dynamics studied by ab initio methods: Applications to strong-field ionization of atoms and molecules*, 2007. PhD. thesis, University of Aarhus.
- [82] T. Brabec. *Strong Field Laser Physics*. Springer Science, 2008.
- [83] W. Gordon. *Z. Phys.*, **40**:294, (1926).
- [84] D. V. Volkov. *Z. Phys.*, **94**:294, (1935).
- [85] A. Lohr, M. Kleber, R. Kopold, and W. Becker. *Phys. Rev. A*, **55**:R4003, (1997).
- [86] D. B. Milošević, G. G. Paulus, D. Bauer, et al. *J. Phys. B.*, **39**:R203, (2006).
- [87] A. Persson. *Numerical methods for solving the time-dependent Schrödinger equation*, 2012. Bachelor's thesis, Lund University.
- [88] J. Crank and P. Nicolson. *Math. Proc. Camb. Phil. Soc.*, **43**:50, (1947).

BIBLIOGRAFÍA

- [89] J. D. Anderson. *Computational Fluid Dynamics: The Basics with Applications*. McGraw Hill, 1994.
- [90] M. D. Feit, J. A. Fleck, and A. Steiger. *J. Comp. Phys.*, **47**:412, (1982).
- [91] C. E. Dateo and H. Metiu. *J. Chem. Phys.*, **95**:7392, (1991).
- [92] T. Sorevik, T. Birkeland, and G. Oka. *Adv. in Computational Mathematics*, **225**:56, (2009).
- [93] B. I. Schneider and N. Nygaard. *J. Phys. Chem. A*, **106**:10773, (2002).
- [94] R. Kosloff and Tal-Ezer H. *Physica A*, **284**:131, (2000).
- [95] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, and P. B. Flannery. *Numerical Recipes in C: The Art of Scientific Computing*. Cambridge University Press, 2002. [33](#)
- [96] P. García González, J. E. Alvarellos, and J. J. García Sanz. *Introducción al formalismo de la Mecánica Cuántica*. Universidad Nacional de Educación a Distancia, 2005.
- [97] D. J. Tannor. *Introduction to the Quantum Mechanic: A time-dependent perspective*. University Science Books, 2007.
- [98] B. H. Bransden and C. J. Joachain. *Introduction to quantum mechanics*. Londonman Group UK, 1995.
- [99] P. de Forcrand and M. Troyer. *Computational Quantum Physics*. ETH Zürich, 2008.
- [100] E. V. van der Zwan and M. Lein. *Phys. Rev. Lett.*, **108**:043004, (2012).
- [101] M. Frigo and S. G. Johnson. FFTW. <http://www.fftw.org/>.
- [102] A. Chacón. PULSESMAKER. <http://code.google.com/p/pulsemaker/>. [24](#)
- [103] J. Vázquez de Aldana. *Interaction with atoms with intense laser field: theoretical study and numerical model*, 2001. PhD. thesis, Universidad de Salamanca.
- [104] L. H. Thomas. *Elliptic Problems in Linear Differential Equations over a Network*. Columbia University, 1949.

-
- [105] A. Chacón, A. De la Calle, and C. Ruiz. BALAS. <http://code.google.com/p/balas/>. 24
- [106] M. Guizar-Sicairos and J. C. Gutiérrez-Vega. *J. Opt. Soc. Am. A*, **21**:53, (2004).
- [107] M. Puschel, J. Moura, E. Anderson, Z. Bai, L. S. Blackford, et al. Intel $\text{\textcircled{R}}$ math kernel library. <https://software.intel.com/en-us/intel-mkl>.
- [108] J. A. Pérez-Hernández, L. Plaja, and L. Roso. *Opt. Express*, **17**:9891, (2009).
- [109] C. Ruiz and A. Chacón. QFISHBOWL. <http://code.google.com/p/qfishbowl/>. 24
- [110] C. Ruiz, A. de la Calle, and A. Chacón. ASSAM. <http://code.google.com/p/qfishbowl/>. 24
- [111] A. Chacón and R. Morán. Qsphere. <http://code.google.com/p/quantum-sphere-tdse/>. 24
- [112] A. Chacón, R. Morán, and C. Ruiz. *Quantum Simulation Lab*. <http://www.quantumsimlab.es/>.
- [113] Advanced Simulation and Computing. VisIt Software: Visualization Tool. <https://wci.llnl.gov/simulation/computer-codes/visit/>.
- [114] M. R. Hermann and J. A. Fleck. *Phys. Rev. A.*, **38**:6000, (1988).
- [115] Ch. E. Dateo and H. Metiu. *J. Chem. Phys.*, **95**:7392, (1991).
- [116] A. G. Borisov. *J. Chem. Phys.*, **114**:7770, (2001).
- [117] P. J. Kostelec and D. N. Rockmore. SpharmonicKit. <http://www.cs.dartmouth.edu/%7Egeelong/sphere/>.
- [118] P. Emma, R. Akre, J. Arthur, et al. *Nature Photonics*, **4**:641, (2010). 29
- [119] Z. Huang and K.-J. Kim. *Phys. Rev. STAB*, **10**:034801, (2007). 29
- [120] E. M. Kosik, L. Corner, A. S. Wyatt, et al. *J. Mod. Opt.*, **52**:361, (2005). 29
- [121] M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayashi. *J. Opt. Soc. Am.*, **72**:156, (1982). 30
- [122] M. P. Rimmer and J. C. Wyant. *Appl. Opt.*, **14**:142, (1975). 30
- [123] J. Hartmann. *Objektivuntersuchungen*. Z. Instrumentenk, 1904. 30

BIBLIOGRAFÍA

- [124] E. Gaviola. *J. Opt. Soc. Am.*, **26**:163, (1936). [30](#)
- [125] A. M. Nugumanov, R. V. Smirnov, and V. I. Sokolov. *Quantum Electronics*, **435**:5, (2000). [30](#)
- [126] J. Primot and L. Sogno. *J. Opt. Soc. Am.*, **12**:2679, (1995). [30](#)
- [127] F. X. Kärtner, C. E. Ascheron, H. J. Koelsch, and W. Skolaut. *Few-cycle laser pulse generation and its applications in Characterization of ultrashort optical pulses*. Springer, 2004.
- [128] M. E. Anderson, A. Monmayrant, S.-P. Gorza, et al. *Laser Phys. Lett.*, **5**:259, (2008).
- [129] O. R. Wood II, W. T. Silfvast, W. K. Tom, et al. *Appl. Phys. Lett.*, **53**:654, (1988).
- [130] U. Fröhling, M. Wieland, M. Gensch, et al. *Nature Photonics*, **3**:523, (2009).
- [131] V. S. Yakovlev, J. Gagnon, N. Karpowicz, et al. *Phys. Rev. Lett.*, **105**:073001, (2009). [36](#)
- [132] Y. Mairesse, A. de Bohan, D. Bauer, L. J. Frasinski, et al. *Science*, **302**:1540, (2003).
- [133] M. F. Ciappina and T. Kirchner. *Comp. Phys. Comm.*, **183**:1832, (2012).
- [134] W. Gropp and E. Lusk. *The message passing interface (MPI) standard*. Springer, 2004. www.mcs.anl.gov/research/projects/mpi/.
- [135] J. Sanders and E. Kandrot. *CUDA by example, an introduction to general-purpose GPU programming*. Addison Wesley, 2010.
- [136] T. Witting, D. R. Austin, and I. A. Walmsley. *Opt. Letters*, **34**:881, (2009).
- [137] R. Thomas. *Attosecond electron wave packet interferences*, 2008. Doctoral Thesis Sweden.
- [138] O. Smirnova, A. S. Mouritzen, S. Patchkovskii, and M. Y. Ivanov. *J. Phys. B*, **40**:F197, (2007).
- [139] M. Ivanov and O. Smirnova. *Phys. Rev. Lett.*, **107**:213605, (2011).

-
- [140] J. Mauritsson, P. Johnsson, E. Gustafsson, et al. *Phys. Rev. Lett.*, **97**:013001, (2006). 33
- [141] U. Graf, M. Fieß, M. Schultze, et al. *Opt. Express*, **16**:18956, (2008). 33
- [142] J. W. Cooper. *Phys. Rev.*, **128**:681, (1962). 36
- [143] D. R. Austin, T. Witting, and I. A. Walmsley. *J. Opt. Soc. Am. B*, **26**:1818, (2009).
- [144] M. E. Anderson, L. E. E. de Araujo, and I. A. Kosik, E. M. Walmsley. *Appl. Phys. B*, **70**:S85–S93, (2000).
- [145] J. Primot. *Opt. Comm.*, **222**:81, (2003).
- [146] J. D’Errico. Inverse (integrated) gradient, (2006). <http://www.mathworks.com/matlabcentral/fileexchange>.
- [147] J. R. Birge, R. Ell, and F. X. Kärtner. *Opt. Lett.*, **31**:2063, (2006).
- [148] C. A. A. de Carvalho and H. M. Nussenzveig. *Phys. Rep.*, **364**:83, (2002).
- [149] J. Su, N. Hongcheng, A. Becker, and A. Jaron-Becker. *Phys. Rev. A*, **88**:023413, (2013).
- [150] S. Nagele, R. Pazourek, M. Wais, et al. *Time-resolve photoemission using attosecond streaking*, (2014). <http://arxiv.org/abs/1401.6328>.
- [151] R. Pazourek, S. Nagele, J. Feist, and J. Burgdöfer. *Phys. Rev. Lett.*, **108**:163001, (2012).
- [152] R. Pazourek, S. Nagele, and J. Burgdöfer. *Faraday Discuss.*, **163**:353, (2013). 43
- [153] Y. J. Chen, L. B. Fu, and J. Liu. *Phys. Rev. Lett.*, **111**:073902, (2013).
- [154] NIST. *National Institute of Standards and Technology*, (1901). <http://cccbdb.nist.gov/>.
- [155] E. Lötsedt, T. Kato, and K. Yamanouchi. *J. Chem. Phys.*, **138**:104304, (2013).
- [156] A. Etches and L. B. Madsen. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **43**:155602, (2010).
- [157] R. Pazourek, S. Nagele, K. Doblhoff-Dier, et al. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **388**:012029, (2012).