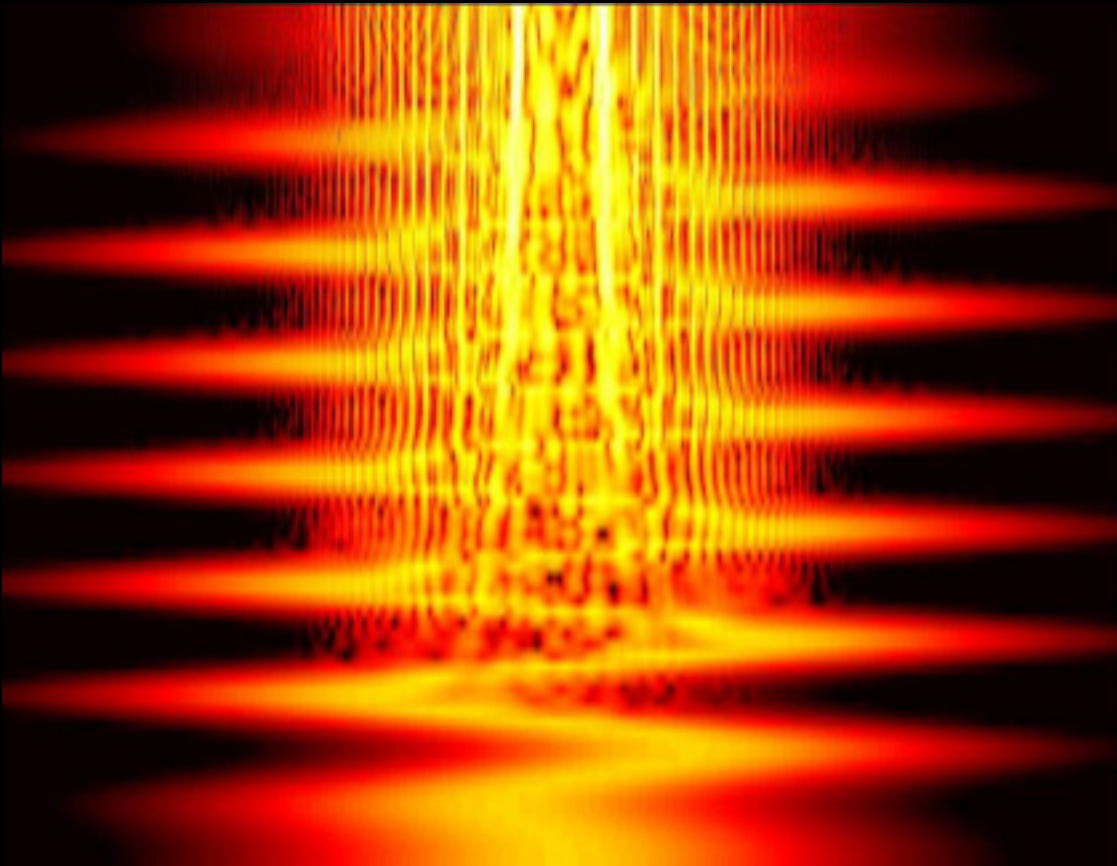


Dynamique de l'interaction laser-atome:

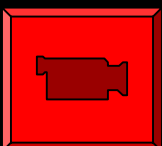
Moment canonique

et

Approximation du champ fort



Armelle de Bohan



Dynamics in momentum space: Electronic density probability as a function of time in momentum space when the atom is exposed to a strong laser field

Table des matières

Remerciements	5
Introduction	9
I Approche théorique de l'interaction laser-atome en champ fort	19
1 L'équation de Schrödinger dépendante du temps (ESDT)	21
1.1 Description semi-classique de l'interaction	21
1.2 Forme d'interaction et moment canonique	24
1.3 Le théorème d'Ehrenfest	26
1.4 Les états de Volkov	26
2 Approximation du champ fort	29
2.1 Juste un tunnel... entre les états essentiels	29
2.1.1 L'approximation de Keldysh	29
2.2 Détour par la dynamique classique	33
2.2.1 Condition de retour illustrée graphiquement	35
2.2.2 Caractérisation des trajectoires de la génération d'harmoniques d'ordre élevé (GHOE)	36
2.3 Modèle quantique du champ fort	41
2.3.1 Utilisation des états essentiels	41
2.3.2 Restriction à la forme longueur : $H_I(t) = \mathbf{E}(\mathbf{t}) \cdot \mathbf{R}$. . .	42
2.3.3 Application à la génération d'harmoniques d'ordre élevé	44
2.3.4 Champ fort et principe de moindre action	45
2.3.5 Loi de la coupure dans le modèle de Lewenstein	47
2.3.6 Evaluation du dipôle	47
2.4 Généralisation à l'étude de l'ionisation au-dessus du seuil (ATI)	53
2.5 Problème posé par l'approximation du champ fort	57

II	Le moment canonique et la dynamique de l'ionisation	61
3	L'ESDT dans l'espace des moments	63
3.1	Le problème aux valeurs propres généralisé	63
3.2	Solutions analytiques pour les états stationnaires	65
3.2.1	Les états liés	65
3.2.2	Le spectre continu	66
3.2.3	Les ondes partielles Coulombiennes dans l'espace des "p"	68
3.3	Formulation matricielle de l'ESDT dans la forme vitesse	69
3.3.1	Choix de la forme vitesse du Hamiltonien d'interaction	70
3.4	Approximation des solutions par des splines	71
3.4.1	Une fonction spline ?	71
3.4.2	L'espace $P_{k,\xi,\nu}$	72
3.5	Techniques numériques de résolution	73
3.5.1	Structure "par bloc" des matrices	73
3.5.2	"Raideur" du problème et représentation d'interaction	75
3.5.3	Propagation dans le temps	77
3.5.4	Le spectre des électrons éjectés	77
3.6	Caractéristiques des impulsions brèves	79
4	Rôle du potentiel Coulombien dans le mécanisme d'ionisation	81
4.1	Champ de Saturation de l'hydrogène	82
4.2	Définir l'intensité critique pour l'hydrogène	85
4.2.1	Vérifier la valeur de l'intensité de saturation	85
4.2.2	Définir le régime d'ionisation au-dessus de la barrière .	85
4.3	Un outil de visualisation de l'ionisation	87
4.3.1	Une analyse temps-énergie pour les électrons éjectés .	89
4.4	Mise à profit de l'observable vitesse	94
4.4.1	¿ Un autre critère "tunnel" ?	95
4.4.2	Analyse des contributions dominantes à l'ionisation . .	100
4.4.3	Interprétation de la limite en $2U_p$	103
4.4.4	Application aux impulsions ultra-brèves.	104
4.5	Analyse de la validité du modèle du champ fort	106
4.5.1	Régime d'ionisation intermédiaire.	106
4.5.2	De plus en plus... fort	113
4.6	Wigner et Monte-Carlo	117
4.7	Quand la barrière s'abaisse...	121
4.7.1	Evolution de la densité transverse	124
4.7.2	Mécanisme d'ionisation au voisinage de l'intensité cri- tique	128
4.7.3	Evaluation des contributions directes et indirectes . .	139
4.8	Conclusions	143

III	Influence de la phase sur la GHOE	149
5	GHOE et impulsions ultra-brèves	151
5.1	Défi des interactions femtosecondes	151
5.1.1	Premières études théoriques sur les impulsions brèves	152
5.2	Quelques outils théoriques supplémentaires	153
5.2.1	Définition d'une impulsion brève	153
5.2.2	Obtention des spectres de GHOE	157
5.2.3	Résolution de l'ESDT pour l'hydrogène	158
5.2.4	Modèle de Lewenstein généralisé aux impulsions brèves	159
5.2.5	Analyse temps-fréquence des harmoniques	160
6	Interprétation des effets de phase	163
6.1	Des impulsions de moins de $6fs$	163
6.2	Etude à $4.3fs$: le blason subfemtoseconde des effets de phase	164
6.2.1	Position de la coupure	165
6.2.2	Premier véritable effet de la phase absolue du champ .	165
6.2.3	Analyse dans le contexte semi-classique	169
6.2.4	Une seule impulsion dans le domaine attoseconde! . .	171
6.3	Interaction de $2.5fs$: le revers de la médaille?	173
6.3.1	Dépendance de la coupure vis-à-vis de la phase	173
6.3.2	Une "nouvelle pseudo-périodicité"	174
6.3.3	Interprétation de l'intensité relative des 2 plateaux . .	179
6.3.4	Une méthode de diagnostic de la phase	181
6.4	Considérations et calculs macroscopiques	184
6.4.1	Préliminaires macroscopiques	184
6.4.2	Survie macroscopique de l'effet de phase	184
6.5	Conclusions	188
IV	Etude macroscopique de la GHOE	191
7	Optimisation du processus de GHOE	193
7.1	Propagation des champs harmoniques dans le milieu gazeux .	193
7.1.1	Approximation des enveloppes lentement variables . .	193
7.1.2	Vers les solutions des équations de propagation	196
7.1.3	Correction non adiabatique	197
7.1.4	Conditions généralisées d'accord de phase	197
7.2	Génération d'harmoniques optimisée par processus résonnant	199
7.2.1	Objectif expérimental	199
7.2.2	Simulations théoriques de l'expérience	201
7.2.3	Analyse des résultats théoriques et expérimentaux . .	204
	Conclusion	209

A	Système d'unités	215
B	Structure atomique	217
B.1	Analyse en ondes partielles de l'équation aux valeurs propres	217
B.2	Etude du noyau de l'équation intégrale	218
B.2.1	Propriétés mathématiques des fonctions de Legendre du second genre	218
B.2.2	Implications physiques	220
B.3	Premiers états liés dans l'espace des impulsions	223
B.4	Le spectre continu et la théorie de la diffusion	224
B.4.1	Le spectre continu	224
B.4.2	Transformée de Fourier d'une onde Coulombienne	225
B.4.3	Couplage radiatif 1s-continuum $\langle 1s p_z \Psi_{kl}^{(+)} \rangle$	230
C	Approximation des solutions par des splines	233
C.1	Les fonctions B-splines	233
C.1.1	Différences divisées d'une fonction g	234
C.2	Propriétés	235
C.3	Evaluation numérique des B-splines	235
C.4	Théorème de Curry et Schoenberg	236
C.5	Construction de la base des B-splines	237
D	L'équation de Schrödinger dépendante du temps	241
D.1	Formulation matricielle	241
D.2	Evaluation des éléments de matrice	243
D.2.1	B-splines et fonction de Legendre du second genre	243
D.3	De la base des splines à la base atomique	247
D.4	Construction et contrôle du continuum	249
D.4.1	De ξ au continuum "libre"	249
D.4.2	Quelle figure imposée pour la densité?	250
D.5	Contrôle de la densité d'états du continuum	252
D.5.1	Densité exponentiellement décroissante	252
D.5.2	Densités définies par morceaux	252
D.5.3	Un continuum de grande densité	253
D.5.4	Représentation des états du continuum	253
D.6	Description de la méthode de propagation dans le temps	256
D.6.1	Méthode itérative de type Runge-Kutta	256
D.7	Convergence des résultats	260

Remerciements

Pour ceux qui s'apprêtent à parcourir ce manuscrit par intérêt ou par amitié, cette page est l'une des premières - courage ! - qu'ils liront. Elle rime pour moi avec la touche finale à un travail de quatre années qui n'aurait pu s'achever ni surtout commencer sans certaines rencontres. L'heure est enfin venue d'adresser un clin d'oeil reconnaissant pour l'aide, pour les encouragements.

Un bond de 5 années en arrière me ramène auprès de Mariko Dunseath dont le dynamisme, l'enthousiasme pour l'enseignement et la recherche ne sont certainement pas étrangers à l'entreprise... Les années passant, l'intérêt qu'elle a porté au déroulement de ma thèse, ses visites régulières à LLN en compagnie de Kevin m'ont toujours beaucoup touchée. Il me semble donc évident de commencer en leur témoignant ici toute mon amitié.

Bien évidemment, c'est à Bernard Piraux, mon promoteur, que j'adresse maintenant mes remerciements pour l'attention qu'il a portée à mon travail tout au long de ces années. Une thèse n'est pas une sinécure, il fut le premier témoin de mes doutes et sut m'apporter son soutien constant aussi bien scientifique qu'amical et m'a aidé à mener ce travail à son terme en me communiquant le goût de la rigueur tout en me concédant une latitude fantaisiste dans la conduite de mes recherches. Qu'il trouve ici le témoignage de ma profonde sympathie et qu'il soit remercié pour toutes les discussions sur le "pourquoi-du-comment-du-parce-que" de la Physique menées entre les bureaux d025 et d026... Merci Bernard pour votre patience devant mes incertitudes et mes blagues à 2 francs !

Je me dois de citer 2 autres personnes sans lesquelles également cette thèse aurait peut-être pris la direction d'une voie sans issue.

Philippe Antoine, tout d'abord, grâce auquel les harmoniques me sont

devenues familières ; un de mes regrets est de n'avoir pu achever cette thèse en sa sympathique compagnie. Alfred Maquet, ensuite, qui lors de ses nombreuses visites à LLN s'est intéressé à mon "cas" et m'a patiemment et gentiment indiqué la voie à suivre dans l'espace des moments. Merci à tous deux !

Ces quelques rencontres importantes me permettent aujourd'hui de présenter ce manuscrit aux membres du jury que je remercie pour leur lecture attentive et leurs commentaires constructifs sur mon travail. Merci donc aux Docteurs Henri Bachau, Pascal Salières, Philippe Antoine, aux Professeurs Alfred Maquet, Jean-Pierre Antoine, Xavier Urbain, André fayt et Bernard Piraux.

Merci aux membres de l'unité FYAM pour leur accueil, à Nicole Coisman pour son aide dans toutes les démarches administratives et à Jacques Lega en particulier pour ses multiples conseils en matière d'enseignement. Une pensée pour tous les étudiants dont j'ai croisé la route. Le souvenir amical de Stéphane Ghiste, d'Hubert Stoop, d'Hamid Nebdi, de Gérard Lagmago et de Thomas Grosjes, autres occupants de la "néanmoins non-regrettée" salle informatique.

Ces années de thèse ont constitué pour moi un cheminement difficile qu'il m'eût été pénible de parcourir seule. Elles ont coïncidé avec la découverte d'un nouvel environnement et de nouveaux amis. Plus qu'un clin d'oeil, le témoignage de mon affection envers Marc et Cécile grâce auxquels cette thèse a pris la couleur d'une amitié inconditionnelle. A mes compères et amis de la "maison du lac" : Elisabeth, Catherine, Yves, Bruno, Frédéric, Sophie, Nicolas, à Marieke et Jamal pour leur attachement à ma cause ! Un salut complice à mes deux amies et compatriotes Corinne et Lena, toute ma tendresse envers mes ami(e)s de toujours, Céline, Anne, Estelle et Laurent. Une pensée émue pour Fred... A vous tous qui donnez chaque jour plus de sens au mot amitié.

Comme un souffle d'air frais revigorant, il y a "le temps des confs" pour recharger les batteries et rencontrer des gens hors du commun... Certaines de ces rencontres resteront gravées dans ma mémoire. Je veux parler de ces "Dream Teams" ; celle d'Erice, tout d'abord : Valérie, Pascal, Jean-François, Pierre-Marie et Lino (very nice guys !!). Elle a peut-être la mention spéciale du renouveau, la lumière après le tunnel et le goût du Marsala... Je n'oublie pas non plus celle de Maratea avec Dominique, Richard et Pascal. La dernière en date, San Feliu, un peu nostalgique car c'est peut-être vraiment la dernière, où les équipes se remodelent avec un noyau dur aux couleurs de la fête. Toutes ces personnes m'ont non seulement accordé leur sympathie, mais m'ont aussi communiqué leur enthousiasme scientifique. Les

équipes de Pierre et Marie Curie et celle de Saclay ont pour moi le même dénominateur commun de qualités scientifiques et de grandes valeurs humaines.

Last but not least, je veux ici témoigner tout mon amour à ma famille, la présence vitale de mes parents, celle qui aplanit les doutes et apaise les moments d'angoisse. Merci à vous deux surtout pour les innombrables instants de bonheur et pour ce lien indestructible qui existe au sein de notre famille et s'est tissé entre mes soeurs Anne et Alix, mon frère Hervé et moi-même tout au long de notre enfance. Tout mon amour envers mes petits neveux, Côme, Victor et François et ceux à venir. Ma plus profonde tendresse également à mon cousin, mon ami, mon frère, Philippe, celui qui voit clair en moi.

Pour finir, à l'incertitude, moteur de ma vie...

Introduction

Les impulsions femtosecondes intenses

Les progrès réalisés dans le domaine des impulsions laser ultra-brèves et intenses lors des deux dernières décennies sont considérables. A l'heure actuelle des lasers pulsés émettant dans l'infrarouge proche, comme le laser Saphir dopé Titane (Ti : Saphir) ($\lambda = 800 \text{ nm}$), sont disponibles à l'échelle du laboratoire. Ils délivrent, sur une échelle de temps de l'ordre d'une vingtaine de femtosecondes¹, des énergies de l'ordre du millijoule donnant accès à des puissances laser de l'ordre de quelques centaines de Gigawatts (10^9 W) avec un taux de répétition d' 1 kHz ². L'obtention de telles puissances est liée au concept de l'amplification de l'impulsion par dérive de fréquence ("chirped-pulse-amplification" ou "CPA") proposé et développé par [Strickland *et al*, 85].

Chronologiquement, ce procédé permit, dans un premier temps, de délivrer des impulsions de quelques centaines de femtosecondes atteignant des puissances de l'ordre du Terawatt [Beaud *et al*, 93, Ditmire *et al*, 93], puis les développements consécutifs en matière de compression et étirement des impulsions³ ont conduit à la production de signaux de puissance comparable, d'une vingtaine de femtosecondes [Zhou *et al*, 95]. Plus récemment encore, la possibilité de produire une impulsion laser de 4 fs , dans le domaine subterawatt a été démontrée par [Cheng *et al*, 98]. Ces révolutions technologiques dont un portrait exhaustif est tracé par [Brabec *et al*, 00] signifient que l'on est, désormais, en mesure d'exposer la matière à des impulsions laser dont

¹ $1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$

²ou 10 Hz pour des énergies de quelques centaines de millijoules. Les puissances atteintes sont alors de l'ordre du TeraWatt $1 \text{ TW} = 10^{12} \text{ W}$

³technique d'auto-modulation de phase dans un guide d'onde rempli de gaz étirant le spectre de l'impulsion sur quelques centaines de nanomètres ($400 - 1000 \text{ nm}$) couplée à l'utilisation de miroirs multicouches permettant la compression de la partie infrarouge du spectre

l'intensité excède largement $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$ mais dont la durée est limitée à quelques cycles⁴ !

La considération de telles durées d'interaction nécessite d'introduire un autre paramètre laser négligé jusqu'à lors, il s'agit de la phase absolue du champ laser pouvant sensiblement modifier l'intensité pic de l'impulsion.

C'est dans ce contexte des impulsions ultra-brèves (caractérisées par leur phase), intenses et basse fréquence que nous plaçons notre étude théorique de l'interaction d'un atome d'hydrogène avec un champ laser. Les deux processus auxquels nous nous intéressons correspondent, d'une part, à la réponse non linéaire de l'atome à l'impulsion laser. Cette "stimulation" optique de l'atome peut résulter en l'émission des harmoniques de la fréquence incidente. Au cours des dernières années, la production d'harmoniques dont l'ordre atteint 300 fois la fréquence laser a été réalisée [Spielmann *et al.*, 97, Chang *et al.*, 97]. Ce phénomène est connu sous le nom de "génération d'harmoniques d'ordre élevé" (nous utilisons *très* souvent l'abréviation GHOE pour y faire référence).

D'autre part, ce phénomène, étant donné les intensités élevées que nous considérons, est en compétition avec le processus d'ionisation. Nous présentons maintenant ces deux processus et leur interprétation physique de manière à introduire notre problématique du point de vue de l'analyse de la dynamique de ces mécanismes à laquelle notre travail est consacré.

La génération d'harmoniques d'ordre élevé

A la fin des années 80, lors d'études expérimentales menées dans le cadre de l'interaction de lasers intenses impulsionnels avec différents gaz rares, *le spectre d'émission révéla, au-delà des quelques premières harmoniques de la fréquence incidente, la présence d'harmoniques d'ordre plus élevé dont l'intensité restait constante avec l'ordre et décroissait subitement au-delà de quelques dizaines de fois la fréquence du fondamental.* Cette observation du processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé, fut réalisée dans deux laboratoires [McPherson *et al.*, 87, Ferray *et al.*, 88].

Un spectre expérimental typique se compose tout d'abord de quelques harmoniques dont l'intensité décroît avec l'ordre suivant une loi perturbative, puis, sur quelques dizaines d'ordre consécutifs, les harmoniques sont émises avec une intensité comparable formant ce que l'on appella, dans toutes les langues, un "plateau" se terminant par une coupure abrupte.

⁴ 1 cycle optique = 1 période laser = T , pour le laser Ti :Saphir $T \approx 2.5 \text{ fs}$

Cette coupure se déplace vers de plus hautes fréquences de manière linéaire en fonction de l'intensité laser I_0 et du potentiel d'ionisation I_p du gaz rare considéré.

Des études théoriques non perturbatives donnèrent lieu, dans un premier temps, à l'obtention d'une loi "universelle" de la position de la coupure [Krause *et al*, 92] définissant l'énergie maximale des photons pouvant être émis par :

$$E_{ph}^{max} = I_p + 3.17 U_p, \quad (1)$$

U_p est l'énergie cinétique moyenne sur un cycle optique acquise par un électron libre oscillant dans le champ laser ; elle est appelée **potentiel pondéromoteur**. Cette loi trouva son interprétation physique dans un modèle semi-classique à un électron actif constitué de trois étapes⁵ :

1. lorsque le champ électrique atteint une valeur proche de son maximum, l'électron est éjecté par effet tunnel avec une vitesse initiale *nulle* à un instant t_0 .
2. Hors de l'influence du potentiel Coulombien, il oscille quasi-librement dans le champ laser acquérant de cette façon une énergie cinétique :

$$E_{kin} = \frac{q^2}{2m} (A(t) - A(t_0))^2,$$

où $A(t)$ est le potentiel vecteur associé au champ électrique.

3. Par renversement du champ, l'électron est ramené vers le noyau et peut se recombiner à un instant t_r , à l'état fondamental $|1s\rangle$. Cette recombinaison *radiative*, donne lieu à l'émission d'un photon harmonique d'énergie :

$$E_{ph} = E_{kin} + I_p.$$

$3.17 U_p$ correspond effectivement à l'énergie cinétique maximale qu'un électron classique peut acquérir sur une telle trajectoire. Spécifions que seules les harmoniques impaires peuvent être émises lors de la recombinaison. L'opérateur de transition dipolaire étant lui-même impair, dans une vision multiphotonique de la GHOE, avant la recombinaison, l'électron a dû absorber un nombre impair de photons de manière à pouvoir se recombiner directement vers l'état $|1s\rangle$.

D'un point de vue théorique, l'interaction laser-atome fut étudiée dans un cadre plus rigoureux. La théorie de Floquet [Potvliege *et al*, 89] et différentes méthodes de résolution numérique de l'équation de Schrödinger dépendante du temps (ESDT) à 1 dimension [Eberly *et al*, 89], dans un premier temps,

⁵[Corkum, 93, Kulander *et al*, 93]

puis à 3 dimensions [Kulander, 87b, LaGattuta, 90, De Vries, 90] s'employèrent à tester l'interprétation semi-classique. La loi de la coupure ainsi que l'allure typique des spectres des harmoniques émises furent confirmées par ces premières études. L'aspect classique de la GHOE fut validé par des analyses plus précises fondées sur des simulations de Monte-Carlo de l'interaction laser-atome [Bandarage *et al*, 92].

La loi de la coupure, extrêmement prometteuse en terme d'énergie de photons émis, et ce modèle semi-classique firent de la GHOE un des principaux axes de recherche théorique et expérimentale de la décennie qui vient de s'écouler. L'enjeu était de taille puisqu'il s'agissait de parvenir à comprendre dans les détails le mécanisme exact de la GHOE pour contrôler cette nouvelle source de rayonnement cohérent, naturellement accordable en fréquence sur une gamme spectrale extrêmement vaste et ce, à partir d'une source laser basse fréquence dont la technologie n'a cessé de s'améliorer.

Vers la fenêtre de l'eau... Le premier enjeu concerna bien évidemment l'extension du plateau vers des fréquences de plus en plus élevées. Elles peuvent être obtenues, selon la loi de la coupure, soit en augmentant le potentiel d'ionisation I_p , soit en augmentant l'intensité pic du laser. Ceci impose évidemment de se préoccuper du phénomène concurrent à la GHOE qui devient dominant pour la quasi-totalité des variétés neutres (exception faite de l'hélium et du néon) lorsque l'intensité dépasse $10^{14} - 10^{15} \text{ W/cm}^2$: l'ionisation. L'utilisation des impulsions femtosecondes est cruciale pour limiter ce processus car elle permet d'augmenter significativement l'intensité de saturation⁶ pour un gaz donné⁷.

Le graal s'appelle "la fenêtre de l'eau" ($2.7 \text{ nm} < \lambda < 4.4 \text{ nm}$), il s'agit du domaine spectral dans lequel le carbone absorbe plus que l'eau et est donc crucial du point de vue des applications possibles des harmoniques en Biologie.

L'utilisation des impulsions femtosecondes permet d'étendre le plateau jusqu'à plus de deux cents fois la fréquence incidente en comprimant la durée de l'impulsion du Ti : Saphir jusqu'à 27 fs [Chang *et al*, 97]. Avec une impulsion comprimée jusqu'à 7 fs , [Spielmann *et al*, 97] firent la démonstration expérimentale de photons d'énergie excédant 500 eV ($\lambda = 2.7 \text{ nm}!$). Ils mirent en évidence, par la même occasion, le rôle primordial tenu par la durée très brève de l'interaction pour

⁶valeur de l'intensité au-delà de laquelle l'ionisation est totale ($> 90\%$) à la fin de l'interaction.

⁷c'est-à-dire de limiter l'ionisation - néfaste à la GHOE - lors de l'interaction

pouvoir générer de telles fréquences. Ils montrèrent qu’une augmentation de 40% (variation de la durée de 7 à 10 fs) annihile totalement la probabilité de détecter des photons dans la gamme de 400 à 500 eV.

Aspect macroscopique de la GHOE La réponse collective du milieu gazeux est d’une importance cruciale - en fait, elle se trouve sur un pied d’égalité avec la réponse atomique - pour caractériser l’efficacité de conversion du processus. Comme le spécifient [Salières *et al*, 00] :

Il est indispensable de considérer les champs harmoniques mesurés comme des sommes cohérentes des champs émis par chaque atome au sein du gaz.

Ce qui signifie que l’influence de l’accord de phase entre les différentes sources microscopiques sur l’efficacité de conversion ou la cohérence de l’émission doit être systématiquement étudiée.

[L’Huillier *et al*, 92, L’Huillier *et al*, 93b] ouvrirent théoriquement et expérimentalement la voie en comparant l’intensité du dipôle atomique - la source microscopique des champs harmoniques - avec le nombre de photons mesurés pour une harmonique donnée et montrèrent l’influence de la propagation sur la position de la coupure. Celle-ci est extrêmement sensible à l’accord de phase entre la polarisation atomique et la phase géométrique⁸ du faisceau laser.

La cohérence spatio-temporelle du rayonnement constitue un autre aspect important du point de vue des applications. Le degré de cohérence spatiale⁹ est mesuré expérimentalement dans des expériences d’interférométrie [Ditmire *et al*, 96, Le Déroff *et al*, 99] par l’évaluation de la visibilité des franges obtenues. Une bonne cohérence spatiale correspond à une visibilité supérieure à 0.5. [Le Déroff *et al*, 99] obtinrent, pour la 13^e harmonique du Ti : Saphir, une bonne cohérence spatiale de tout le faisceau dans les conditions optimales de génération mais pouvant être fortement diminuée notamment par les effets d’ionisation.

[Bellini *et al*, 98] montrèrent la bonne cohérence temporelle des harmoniques tandis que [Zerne *et al*, 97] mirent en évidence la bonne cohérence mutuelle de deux sources séparées spatialement. Des franges

⁸ également appelée phase de Gouy

⁹ traduisant la corrélation *temporelle* entre deux champs harmoniques émis en deux points distincts dans l’espace

d'interférence très contrastées engendrées par deux sources d'harmoniques dont l'ordre variait entre 7 et 17 (d'un même laser Ti : Saphir) furent observées dans cette expérience.

Déjà un laser U.V.X. Ces nombreuses études expérimentales font des harmoniques une source cohérente dans l'U.V.X. avec une bonne efficacité de conversion [Constant *et al*, 99, Balcou *et al*, 00] qui permet leur utilisation dans des mesures de spectroscopie atomique et moléculaire. Dans ces expériences, leur durée extrêmement courte - à l'échelle femtoseconde - est mise à profit. La durée de vie d'états excités de l'hélium [Larsson *et al*, 95] ainsi que les sections efficaces absolues de photoionisation de l'hélium¹⁰ [Gisselbrecht *et al*, 99] ont été mesurées avec une grande précision.

Les propriétés de cohérence des harmoniques furent également utilisées pour effectuer une caractérisation dynamique (à l'échelle femtoseconde) de la densité d'électrons libres au sein d'un plasma dans une expérience d'interférométrie U.V.X.¹¹ [Salières *et al*, 99b].

L'ionisation

Le processus de photoionisation est un des plus importants phénomènes dans l'histoire de la mécanique quantique. L'explication de l'effet photoélectrique par [Einstein, 05], comme un processus où doit être postulée la quantification des niveaux d'énergie atomiques, a marqué le début de la révolution de la physique et l'avènement de la physique quantique. Mais l'effet photoélectrique ne peut avoir lieu que si l'énergie du photon incident est supérieure au premier seuil d'ionisation I_p (hautes fréquences).

L'ionisation multiphotonique (MPI), c'est-à-dire la possibilité d'éjecter un électron par absorption d'un nombre N de photons d'énergie $\hbar\omega \ll I_p$ a été prédite par [Göppert-Mayert, 31] dans le cadre de la théorie des perturbations et observée expérimentalement par [Voronov *et al*, 65]. Dans les premières expériences de photoionisation, seuls les ions résiduels étaient comptés. Les énergies effectivement atteintes par les électrons n'étant pas mesurées, l'interprétation du processus était par conséquent limitée.

[Agostini *et al*, 79], en mesurant les spectres en énergie des photoélectrons, observèrent **l'ionisation au-dessus du seuil (ATI)**. Il s'agit de la possibilité d'ionisation par absorption d'un excès de S photons en regard du

¹⁰à partir des états excités $1s2p\ ^1P$ et $1s3p\ ^1P$

¹¹mesure de la différence de chemins optiques de 2 faisceaux harmoniques, l'un généré avant, l'autre après formation du plasma.

minimum requis. Les spectres d'électrons étaient constitués de pics séparés de $\hbar\omega$ mais dont la position ne coïncidait pas avec les différents modèles théoriques proposés par [Keldysh, 65] dans l'approximation du champ fort, ou par [Kulander, 88] dans la résolution exacte de l'ESDT. La cause de cette différence fut bientôt imputée à l'utilisation d'impulsions laser nanosecondes ($10^{-9}s$). Ces durées d'interaction permettaient aux électrons éjectés de quitter la région d'interaction et d'acquérir, en plus de leur énergie d'éjection, une énergie pondéromotrice due au gradient spatial d'intensité du faisceau laser [Freeman *et al*, 92, Bucksbaum *et al*, 87].

L'introduction des technologies laser (sub)picosecondes ($< 10^{-12}s$) permet de pousser plus loin les investigations expérimentales et théoriques de l'ATI et d'observer d'autres caractéristiques du spectre des électrons comme la présence de structures dans les pics [Agostini *et al*, 93], liées à des couplages résonnants avec des états proches du seuil d'ionisation. Avec les intensités laser croissantes, la loi sur la position des pics $E_k = (N + S)\hbar\omega + I_p$ dut être modifiée en raison des décalages Stark dynamiques de l'état fondamental $\Delta_{1s} < 0$ et des états de Rydberg ($\Delta > 0$). Il en résulte que :

- la position en énergie des pics ATI est modifiée :

$$E_k = E_{1s} - Q + N\hbar\omega, \quad (2)$$

avec $Q = \Delta_{1s} - \Delta$ le décalage effectif du seuil d'ionisation. Il correspond *plus ou moins* au potentiel pondéromoteur $U_p = I/4\omega^2$ qui excède 0.01 *u.a.* (pour le Ti : Saphir) lorsque l'intensité du laser dépasse $I = 10^{13}W/cm^2$.

- En fonction de l'intensité, les premiers pics peuvent diminuer en intensité voire disparaître lorsque le nombre de photons correspondant ne permet plus de franchir le seuil [Muller *et al*, 92].

Mais venons-en maintenant aux plus récentes expériences, elles correspondent au domaine d'intensité dans lequel nous situons notre étude de la dynamique de l'ionisation, $I_{laser} \geq 10^{14}W/cm^2$. D'après la description précédente du processus ATI, plus l'intensité du laser augmente plus le nombre de pics ATI détectés est élevé.

Le domaine tunnel

L'augmentation de l'intensité du laser a permis l'observation d'une allure typique de spectre ATI [Paulus *et al*, 94, Walker *et al*, 96] : le spectre

est tout d’abord constitué de pics dont l’intensité décroît lentement jusqu’à un ordre correspondant à une énergie de $2U_p$. Au-delà de cette valeur, des pics de photoélectrons, bien que d’intensité plus faible, sont néanmoins détectables. Fait remarquable, cette intensité reste quasi-constante et de manière analogue au processus de GHOE, les pics ATI forment un plateau s’étendant lui jusque $10 - 12U_p$. Les simulations théoriques via la résolution numérique de l’ESDT [Cormier *et al.*, 97] sont en bon accord avec cette allure.

Les intensités utilisées dans ces expériences font “basculer” le régime d’ionisation du “multiphoton” au domaine tunnel ; la présence, dans les spectres d’électrons de pics séparés de l’énergie d’un photon s’explique alors par la périodicité (celle du laser) du mécanisme d’ionisation. Nous éclaircissons ce point dans notre étude.

Le modèle semi-classique [Corkum, 93] permet d’attribuer l’existence du second plateau ATI aux électrons qui, comme dans le cas de la GHOE, sont émis par effet tunnel, oscillent librement dans le champ et reviennent vers le noyau mais pour cette fois être rediffusés au lieu de se recombiner. Seule la rediffusion par le potentiel permet d’envisager l’accès à de telles énergies ($10 - 12 U_p$) pour l’électron éjecté.

L’approximation du champ fort et l’espace des moments.

Les méthodes théoriques que nous avons évoquées, bien qu’en accord avec les observations expérimentales, sont malheureusement trop “coûteuses” pour, par exemple, considérer le processus de GHOE sous ses deux aspects microscopique et macroscopique. Le dipôle atomique, terme source à introduire dans les équations de Maxwell pour rendre compte des effets de propagation sur les champs harmoniques générés dans le milieu gazeux, doit être évalué de manière plus efficace. D’autre part, une modélisation quantique “simplifiée” de l’interaction laser-atome est essentielle à la compréhension des différents mécanismes.

Deux modèles théoriques [Lewenstein *et al.*, 94, Becker *et al.*, 94], fondés sur l’approximation du champ fort [Keldysh, 65] que nous rappelons dans la première partie de notre travail, furent proposés pour simplifier l’évaluation des spectres d’harmoniques et d’électrons.

Ces théories connurent un énorme succès tant dans la description de la GHOE que dans celle de l’ATI. Elles établirent de plus, un lien entre la description quantique du système et le modèle semi-classique développé plus

haut.

L'approximation du champ fort s'est avérée être le thème central de notre travail de thèse. En effet, ayant pris le T.G.V. des harmoniques en marche, à l'époque où l'intérêt théorique se concentrait sur les impulsions femtosecondes, notre première étude de la GHOE nous a amenés à utiliser le modèle de Lewenstein pour évaluer le dipôle atomique en le comparant avec celui obtenu dans le cadre de la résolution numérique de l'ESDT. Nous avons pu constater l'adéquation qualitative de ce modèle pour décrire la dynamique du processus tandis qu'une différence significative d'un point de vue quantitatif persistait. L'approximation du champ fort, nous le détaillons bientôt, consiste essentiellement à négliger les effets éventuels de la structure atomique mais aussi et surtout à "oublier" la présence du potentiel Coulombien dans la dynamique du mécanisme d'émission et de propagation des électrons dans le champ laser. Cette approximation entraine dès lors en conflit avec la conviction selon laquelle *la présence du potentiel est essentielle à l'ionisation* associée à la certitude *qu'un électron libre ne peut ni absorber ni émettre de photons*. De plus, les taux d'ionisation que l'approximation du champ fort permet d'obtenir ne coïncident pas avec ceux obtenus par la résolution exacte de l'ESDT. Cette problématique a défini le fil conducteur de la suite de notre travail de thèse.

Le modèle de Lewenstein nous a offert l'occasion d'étudier ces différences en nous montrant l'importance du moment canonique dans la caractérisation de la dynamique de l'interaction. Nous avons donc naturellement opté pour une description de cette dynamique dans l'espace des moments, démarche équivalente à la résolution de l'ESDT dans l'espace des configurations. Notre principal objectif étant de montrer l'intérêt de cet espace du point de vue de l'analyse du mécanisme d'ionisation (ou d'éjection dans le continuum en ce qui concerne la GHOE) et de l'effet du potentiel Coulombien sur ce mécanisme. Nous voulons aussi étudier la validité de l'approximation du champ fort "à notre façon" en explicitant la démarche à utiliser pour interpréter physiquement nos résultats numériques dans l'espace des moments.

Le plan, non chronologique, de notre exposé traduit cet objectif.

- La première partie est consacrée à l'exposé de la résolution de l'ESDT dans l'approximation du champ fort appliquée, suivant le modèle de Lewenstein, aux processus de GHOE et d'ATI. Cet exposé nous permet de poser plus précisément les "lacunes" existant dans une telle approximation.
- Dans la deuxième partie, après quelques rappels inhérents à la représentation du système atomique dans l'espace des moments, nous expo-

sons la méthode de résolution numérique de l'ESDT que nous avons développée pour effectuer cette étude de la dynamique de l'interaction. Puis, finalement, nous présentons les résultats que nous avons obtenus, grâce à cette méthode, concernant l'influence du potentiel Coulombien sur le mécanisme d'ionisation et de manière plus générale sur l'adéquation entre l'approximation du champ fort et nos résultats numériques.

- “Forts” de cette analyse, nous exposons, dans la troisième partie, les études réalisées concernant l'influence de la phase absolue du champ laser sur le processus de GHOE lorsque la durée de l'interaction se réduit à une peau de chagrin (à quelques cycles optiques pour être plus précis). Nous montrons que, d'après nos résultats microscopiques, les harmoniques peuvent être à la base d'une méthode de diagnostic de cette phase à *condition que la propagation des harmoniques dans le milieu gazeux ne modifie pas significativement l'allure des spectres*.
- Pour compléter notre étude de la GHOE, un exemple de propagation macroscopique fait l'objet d'une parenthèse finale dans cet exposé. La simulation théorique que nous présentons est liée à une expérience réalisée au F.O.M. à Amsterdam par [Toma *et al*, 99]. Elle est à placer dans le contexte de la recherche de l'optimisation de l'efficacité de conversion des harmoniques tirant profit de résonances présentes à l'échelle microscopique dans le spectre des harmoniques.

Afin de nous concentrer sur l'analyse physique des résultats, nous choisissons de ne présenter dans le texte principal que les points essentiels de la méthode de résolution numérique de l'ESDT dans l'espace des moments. Les détails “techniques” de notre étude ainsi que des rappels sur la structure atomique dans l'espace des moments sont regroupés dans les appendices.

Première partie

Approche théorique de
l'interaction laser-atome en
champ fort

Chapitre 1

L'équation de Schrödinger dépendante du temps (ESDT)

Ce chapitre est une introduction tout à fait générale à l'ensemble de l'étude que nous menons pour décrire l'interaction d'un laser de puissance avec un atome d'hydrogène. Nous posons donc ici les équations générales du problème à résoudre pour décrire la dynamique de cette interaction.

1.1 Description semi-classique de l'interaction

Dans notre travail, nous considérons l'interaction d'un atome d'hydrogène - modélisant un système à un électron actif - avec un champ laser intense basse fréquence. Les intensités considérées sont de l'ordre de $10^{14-15} \text{ W/cm}^2$ tandis que le régime basse fréquence est défini par rapport au potentiel d'ionisation $I_p = 13.6 \text{ eV}$. Les fréquences laser ω considérées sont telles que :

$$\hbar\omega \ll I_p.$$

Typiquement, l'énergie d'un photon laser est $\hbar\omega \approx 1 \text{ eV}$. L'interaction laser-atome considérée dans notre travail est également caractérisée par sa très courte durée qui n'excède pas quelques cycles optiques (période laser). Etant donné les fréquences auxquelles nous nous intéressons, une période laser :

$$T \approx 2 \times 10^{-15} \text{ s} = 2 \text{ fs}.$$

Dans toute notre étude, l'hydrogène se trouve initialement dans son état fondamental, et au cours de l'interaction, l'évolution du système est donnée par l'équation de Schrödinger dépendante du temps (ESDT) :

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = \left[\frac{1}{2m} (\mathbf{P} - q\mathbf{A}(\mathbf{r}, t))^2 + V \right] |\Psi(t)\rangle. \quad (1.1)$$

où $\mathbf{P}$ est l'opérateur moment canonique, $(\mathbf{A}(\mathbf{r}, t), U(\mathbf{r}, t))$ les potentiel vecteur et scalaire associés au champ électrique par la relation :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) - \nabla U(\mathbf{r}, t).$$

q et m sont respectivement la charge et la masse de l'électron :

$$q = -1.60219 \times 10^{-19}C \text{ et } m = 9.10953 \times 10^{-31}kg;$$

elles correspondent aux unités atomiques de charge et de masse. L'interaction proton-électron est décrite, dans le cas de l'hydrogène par l'énergie potentielle Coulombienne "pure" :

$$V(r) = -\frac{q^2}{4\pi\epsilon_0 r},$$

où ϵ_0 est la permittivité du vide.

La résolution de l'ESDT s'inscrit dans le cadre semi-classique car en écrivant l'équation (1.1), nous traitons :

- le système atomique quantiquement,
- et le rayonnement laser classiquement.

En effet, un champ laser est caractérisé non seulement par une grande cohérence spatio-temporelle, mais aussi depuis une vingtaine d'années par des intensités de plus en plus élevées. Cela signifie, pour un laser quasi-monochromatique, que le nombre de photons associés au mode dominant est extrêmement élevé. En effet, le lien entre l'intensité d'un laser de pulsation ω et le nombre de photons est donné par la relation :

$$I(\omega) = \frac{N(\omega)\hbar\omega}{V}c,$$

où $c = 2.9979246 \times 10^8 m/s$ est la vitesse de la lumière. Par exemple, dans le cas d'un laser Ti :Saphir ($\lambda = 800 nm$) d'intensité $10^{15} W/cm^2$, le nombre de photons "contenus" dans un volume de $V = 1 cm^3$ vaut : $N(\omega) \approx 10^{23}$ photons ; un nombre aussi important de photons concentrés sur quelques modes justifiant une description quasi-classique du champ.

Pour résoudre l'ESDT, nous utilisons la jauge de Coulomb :

$$\nabla \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = 0,$$

$$U(\mathbf{r}, t) = U(0, t) = 0.$$

Ce choix coïncide physiquement avec l'approximation des grandes longueurs d'onde : l'extension spatiale de la fonction d'onde du système reste petite en regard de la longueur d'onde du laser. En effet, nous limitons notre étude à des lasers opérant dans l'infrarouge proche (Ti : Saphir, $\lambda = 800 \text{ nm}$). Malgré les intensités élevées intervenant dans nos calculs, nous pouvons négliger les variations spatiales du potentiel vecteur $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$. Même si l'ionisation est significative, les durées d'interaction que nous considérons sont suffisamment faibles pour que cette extension r_{max} n'excède pas quelques centaines de fois le rayon de la première orbite de Bohr $a_0 = 0.52 \times 10^{-10} \text{ m}$ ainsi :

$$\frac{r_{max}}{\lambda} \approx 10^{-2}.$$

Cette approximation des grandes longueurs d'onde est également appelée *approximation dipolaire* :

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \approx \mathbf{A}(0, t) = \mathbf{A}(t)$$

Dans la jauge de Coulomb, l'ESDT décrivant l'interaction d'un champ laser haute intensité et basse fréquence avec un atome d'hydrogène s'écrit donc :

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = \left[\frac{1}{2m} (\mathbf{p} - q\mathbf{A}(t))^2 + V \right] |\Psi(t)\rangle. \quad (1.2)$$

Nous pouvons réécrire formellement cette équation en séparant le Hamiltonien atomique :

$$H_0 = \frac{1}{2m} \mathbf{p}^2 + V, \quad (1.3)$$

du Hamiltonien d'interaction :

$$H_I(t) = \frac{q^2}{2m} \mathbf{A}^2(t) - \frac{q}{m} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{p}. \quad (1.4)$$

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = [H_0 + H_I(t)] |\Psi(t)\rangle. \quad (1.5)$$

Quel que soit le type de résolution de l'ESDT que l'on choisit d'adopter, analytique ou numérique, il est intéressant d'effectuer une transformation unitaire de cette équation de manière à supprimer le terme proportionnel à $\mathbf{A}^2(t)$ qui ne peut induire aucune transition radiative mais simplement une modification de la phase temporelle de la fonction d'onde. Les rapides oscillations de cette dernière qu'il provoque nuisent, par exemple, à la stabilité des méthodes numériques employées pour résoudre l'équation de Schrödinger. Dans ce cas, une transformation unitaire permettant de l'éliminer est indispensable. Nous rappelons maintenant deux formes du Hamiltonien d'interaction équivalentes à $H_I(t)$ en insistant sur la signification physique des différents opérateurs variant d'une forme à l'autre. Signalons que dans notre travail, l'opérateur qui se révèle être le plus important est le moment canonique. C'est donc sur sa signification physique dépendante de la forme utilisée que nous nous concentrons.

1.2 Forme d'interaction et moment canonique

De manière à lever toute ambiguïté lors de l'interprétation physique de nos résultats, il est essentiel de reprendre formellement le problème de la détermination et de la signification physique des différents termes du Hamiltonien total. Le moyen le plus rigoureux pour y parvenir est d'utiliser le formalisme Lagrangien [Cohen-Tannoudji, 87]. Nous reprenons la forme du Lagrangien standard de l'interaction d'une particule (de masse m et de charge q) avec le champ défini par les potentiels vecteur et scalaire ($A(\mathbf{r}, t)$, $U(\mathbf{r}, t)$) :

$$L = \frac{1}{2}m\dot{\mathbf{R}}^2 - V_{coulomb} + q\dot{\mathbf{R}} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) - qU(\mathbf{r}, t).$$

Le Hamiltonien standard associé s'écrit :

$$H = \mathbf{P}\dot{\mathbf{R}} - L = \frac{1}{2m} (\mathbf{P} - q\mathbf{A}(\mathbf{r}, t))^2 + V_{coulomb} + qU(\mathbf{r}, t).$$

Les opérateurs $\mathbf{R}$ et $\mathbf{P}$ vérifient la relation de commutation canonique :

$$[\mathbf{R}, \mathbf{P}] = i\hbar.$$

L'opérateur $\mathbf{P}$ est le moment canonique défini par :

$$\mathbf{P} = \frac{\partial L}{\partial \dot{\mathbf{R}}} = m\dot{\mathbf{R}} + q\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \boldsymbol{\pi} + q\mathbf{A}(\mathbf{r}, t).$$

$\boldsymbol{\pi} = m\dot{\mathbf{R}}$ est le moment mécanique associé à la vitesse de la particule et donc à l'énergie cinétique de la particule $\boldsymbol{\pi}^2/2m$. Pour résoudre l'ESDT nous pouvons définir une forme équivalente à la forme standard en appliquant la transformation unitaire :

$$T = \exp(iq\chi(\mathbf{r}, t)),$$

qui correspond à la transformation de Jauge :

$$\begin{cases} \mathbf{A}'(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) + \boldsymbol{\nabla}\chi(\mathbf{r}, t), \\ U'(\mathbf{r}, t) = U(\mathbf{r}, t) - \frac{\partial}{\partial t}\chi(\mathbf{r}, t). \end{cases}$$

Les Lagrangien et Hamiltonien L' et H' sont alors définis comme précédemment mais en substituant la jauge $(\mathbf{A}'(\mathbf{r}, t), U'(\mathbf{r}, t))$ à la jauge $(\mathbf{A}(\mathbf{r}, t), U(\mathbf{r}, t))$; nous nous plaçons dans la jauge de Coulomb qui est de toute façon vérifiée car $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}(t)$.

$$\boldsymbol{\nabla} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = 0.$$

Le potentiel scalaire $U(\mathbf{r}, t) = U(0, t) = 0$ dans ce qui suit. Considérons alors les deux transformations couramment utilisées :

$$\begin{aligned} T_v &= \exp\left(i\frac{q^2}{2m} \int^t dt' A^2(t')\right) \rightarrow \text{forme vitesse,} \\ T_l &= \exp(-i\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r}) \rightarrow \text{forme longueur,} \end{aligned}$$

La transformation T_l a été proposée par [Göppert-Mayert, 31]. Les opérateurs conjugués $\mathbf{P}$ et $\mathbf{R}$ sont invariants de jauge : dans la représentation de configurations, ils s'écrivent quelle que soit la forme considérée :

$$\mathbf{P}_v = \mathbf{P}_l = \frac{\hbar}{i} \nabla_{\mathbf{r}},$$

$$\mathbf{R}_v = \mathbf{R}_l = \mathbf{R}.$$

En revanche, leur interprétation physique peut varier d'une forme à l'autre, ce que nous résumons formellement dans le tableau ci-dessous :

Forme vitesse	Forme longueur
$-\frac{\partial}{\partial t} \chi_v(\mathbf{r}, t) = -\frac{q}{2m} \mathbf{A}^2(t)$	$\nabla \chi_l(\mathbf{r}, t) = -\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t)$
$L_v = L + \frac{q^2}{2m} \mathbf{A}^2(t)$	$L_l = \frac{1}{2} m \dot{\mathbf{R}}^2 - V_{coulomb} + q\mathbf{R} \cdot \mathbf{E}(t)$
$H_v = \frac{1}{2m} \mathbf{P}^2 + V_{coulomb} - \frac{q}{m} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{P}$	$H_l = \frac{1}{2} m \dot{\mathbf{R}}^2 + V_{coulomb} - q\mathbf{R} \cdot \mathbf{E}(t)$
$\mathbf{P}_v = \frac{\partial L_v}{\partial \dot{\mathbf{R}}} = \boldsymbol{\pi} + q\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$	$\mathbf{P}_l = \frac{\partial L_l}{\partial \dot{\mathbf{R}}} = \boldsymbol{\pi}$

En ce qui concerne le moment canonique, les conclusions à tirer de ce tableau sont très importantes.

Dans la forme vitesse : Le moment canonique $\mathbf{P}_v$ ne coïncide plus avec le moment mécanique $\boldsymbol{\pi}$, le Hamiltonien associé à la particule

$$\mathbf{P}^2/2m + V_{coulomb},$$

ne coïncide donc pas, pendant l'interaction, avec l'énergie propre de la particule :

$$\boldsymbol{\pi}^2/2m + V_{coulomb}.$$

Les états propres du Hamiltonien atomique H_0 ne décrivent pas les mêmes états physiques que ceux du Hamiltonien standard.

Dans la forme longueur : Le moment canonique $\mathbf{P}_l$ est également le moment mécanique de la particule. Dans cette forme, le Hamiltonien de la particule correspond à l'énergie propre de la particule, un état propre du Hamiltonien H_0 demeure un état physique.

1.3 Le théorème d'Ehrenfest

A partir du moment où la forme dans laquelle nous travaillons est fixée, nous pouvons étudier l'évolution temporelle de la moyenne de tout opérateur grâce au théorème d'Ehrenfest :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \langle \mathbf{A} \rangle = \langle \Psi | [\mathbf{A}, H] | \Psi \rangle + \left\langle \Psi \left| \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right| \Psi \right\rangle. \quad (1.6)$$

Pour des opérateurs indépendants du temps, le deuxième terme du membre de droite de l'équation précédente s'élimine. Ce théorème devient alors l'analogue quantique du principe de la mécanique classique *si* l'on s'intéresse à l'évolution du moment, qu'il soit mécanique ou canonique. La valeur moyenne du commutateur du membre de droite de l'équation (1.6) peut être interprétée physiquement comme la valeur moyenne d'une force. Mais l'interprétation physique est dépendante de la forme d'interaction puisque :

En forme vitesse :

$$\frac{d}{dt} \langle \mathbf{P} \rangle = \frac{1}{i\hbar} \langle [\mathbf{P}, H_v] \rangle = - \langle \nabla_{\mathbf{r}} V \rangle.$$

L'évolution du moment canonique traduit “uniquement” l'effet de l'opérateur gradient de potentiel Coulombien sur la fonction d'onde.

En forme longueur :

$$\frac{d}{dt} \langle \mathbf{P} \rangle = \frac{1}{i\hbar} \langle [\mathbf{P}, H_l] \rangle = - \langle \nabla_{\mathbf{r}} V \rangle + q\mathbf{E}(t).$$

$\mathbf{P}$ coïncidant dans cette forme avec $\boldsymbol{\pi}$, le rôle du potentiel Coulombien est découpé de celui du champ électrique du point de vue de l'interprétation en terme de forces.

Dans la forme vitesse, nous constatons tout de suite que, si le système $|\Psi\rangle$ considéré est tel que $-\langle \nabla_{\mathbf{r}} V \rangle = 0$, **le moment canonique devient une constante du mouvement**. Dans le cas de l'interaction laser-atome, un système satisfaisant immédiatement cette condition est celui d'une particule libre oscillant dans le champ laser, système auquel nous nous référons très souvent dans notre travail, il est donc important d'en rappeler les solutions qui ont l'extrême bon goût d'être analytiques.

1.4 Les états de Volkov

Indépendamment de la forme de l'interaction H_I , l'équation de Schrödinger, associée au mouvement d'une particule libre de charge q oscillant dans un champ laser, est donnée en unités atomiques¹ par :

¹Nous regroupons dans l'appendice A l'ensemble des grandeurs physiques définissant ce système d'unités

$$i \frac{\partial}{\partial t} \chi_{\mathbf{p}}(\mathbf{r}, t) = \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2} + H_I(t) \right) \chi_{\mathbf{p}}(\mathbf{r}, t). \quad (1.7)$$

Cette équation admet une solution analytique déterminée par [Volkov, 35] et s'écrivant :

$$\chi_{\mathbf{p}}(\mathbf{r}, t) = (2\pi)^{-3/2} e^{i\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}} e^{i\phi(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t)}. \quad (1.8)$$

Le terme de phase $\phi(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t)$ dépend de la forme d'interaction considérée :

forme vitesse :

$$\phi_l(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t) = -\mathbf{p} \cdot \boldsymbol{\alpha}(t); \quad (1.9)$$

Forme longueur :

$$\phi_v(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t) = -\mathbf{p} \cdot \boldsymbol{\alpha}(t) + \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r} - \frac{1}{2} \int_{t_0}^t dt' A^2(t'). \quad (1.10)$$

$$\boldsymbol{\alpha}(t) = \int_{t_0}^t dt' \mathbf{A}(t'),$$

correspond à l'excursion classique de l'électron dans le champ laser. t_0 est l'instant initial de l'interaction.

Nous considérons maintenant plus particulièrement la forme vitesse de l'interaction telle que :

$$\left[\mathbf{p}, \frac{\mathbf{p}^2}{2} + \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{p} \right] = 0;$$

le moment canonique $\mathbf{p}$ est une constante du mouvement. Considérons, alors, un système quantique préparé à l'instant t_0 dans une superposition de tels états de Volkov :

$$\Psi(\mathbf{r}, t_0) = \int d\mathbf{p} g(\mathbf{p}, \mathbf{p}_0) \chi_{\mathbf{p}}(\mathbf{r}, t).$$

$g(\mathbf{p}, \mathbf{p}_0)$ est une distribution, par exemple gaussienne, centrée autour d'une valeur $\mathbf{p}_0$ telle que :

$$\langle \Psi(t_0) | \mathbf{p} | \Psi(t_0) \rangle = \int d\mathbf{p} \mathbf{p} |g(\mathbf{p}, \mathbf{p}_0)|^2 = \mathbf{p}_0.$$

Si le système est *isolé*, la distribution g ainsi que la valeur moyenne $\mathbf{p}_0$ ne sont pas modifiées lors de l'interaction. Le moment canonique $\mathbf{p}$, dans la forme vitesse, est la valeur propre caractérisant un état de Volkov $\chi_{\mathbf{p}}(\mathbf{r}, t)$. Au cours de l'interaction entre la particule et le champ, cette grandeur n'a pas de signification physique, mais il est important de remarquer que si à la fin de l'interaction $\mathbf{A}(t_{fin}) = 0$ (ce qui est toujours le cas), ce moment

canonique redevient identique à la vitesse et donc une grandeur physique mesurable qui est, *dans la forme vitesse, une constante du mouvement* pour une particule *libre* oscillant dans le champ laser. Le moment mécanique $\boldsymbol{\pi}$ donné en unités atomiques par la relation :

$$\boldsymbol{\pi} = \mathbf{p} + \mathbf{A}(t), \quad (1.11)$$

évolue suivant la valeur du potentiel vecteur pendant l'interaction. Signalons dès maintenant que l'utilisation du système d'unités atomiques (la masse de l'électron $m = 1$) nous amène à confondre,

$$\boldsymbol{\pi} = m\mathbf{v} = \mathbf{v},$$

moment mécanique et vitesse de la particule.

Ces rappels sont indispensables pour la compréhension de notre étude. En effet, les états de Volkov sont à la base d'une méthode possible de résolution de l'ESDT associée à l'interaction laser-atome d'hydrogène que nous étudions dans le contexte des lasers de puissance qui porte le nom d'approximation du champ fort.

Chapitre 2

Approximation du champ fort

2.1 Juste un tunnel... entre les états essentiels

Les deux processus dominants ayant lieu lors de l'interaction d'un laser de puissance basse fréquence avec un système à un électron actif sont l'ionisation et la génération d'harmoniques d'ordre élevé (GHOE) que nous avons décrits dans l'introduction. Les plateaux observés dans le spectre des harmoniques émises par l'atome [McPherson *et al*, 87, Ferray *et al*, 88] et dans celui des électrons éjectés [Paulus *et al*, 94, Walker *et al*, 96] sont expliqués par l'approximation du champ fort - initialement proposée par [Keldysh, 65] - dans deux théories quantiques équivalentes élaborées par [Lewenstein *et al*, 94] pour la GHOE et [Becker *et al*, 94] pour l'ionisation ATI¹.

2.1.1 L'approximation de Keldysh

Le domaine de validité

Pour que cette approximation soit valable, nous devons considérer des lasers basse fréquence, tels que :

$$\hbar\omega \ll I_p.$$

Dans le cas de l'hydrogène, le potentiel d'ionisation $I_p = |E_{1s}| = 0.5 \text{ u.a.}$. La fréquence du laser Ti : Saphir, typiquement utilisé dans les expériences de GHOE ou d'ionisation, vaut $\omega = 0.057 \text{ u.a.}$. L'approximation requiert également que ω soit très inférieure à la fréquence de transition de l'état fondamental vers le premier état excité. Dans le cas de l'hydrogène, $E_{2p} - E_{1s} = 0.375 \text{ u.a.}$. Vis-à-vis de l'hydrogène (ou des gaz rares plus couramment

¹voir aussi [Faisal, 73, Reiss, 80].

utilisés expérimentalement), le Ti : Saphir satisfait aux conditions de validité de cette approximation. Dans son modèle du champ fort, Keldysh a défini un paramètre

$$\gamma = \frac{\omega}{E} \sqrt{2 I_p};$$

où E est l'amplitude du champ électrique, E , ω et I_p étant exprimés en unité atomique (voir appendice A). $\gamma \ll 1$ pour que son approximation soit valide. Pour interpréter ce paramètre, il nous faut stipuler maintenant la nature de cette approximation.

Nature de l'approximation

Dans les interactions que nous considérons, la fréquence du laser est trop faible pour qu'un transfert de population *significatif* vers des états excités de l'atome soit réalisé. Dans ce régime basse fréquence, il est légitime de ne pas tenir compte de la structure atomique à l'exception de l'état fondamental (!!). Dans le modèle de Keldysh, ce dernier est une source *directe* d'électrons émis par effet tunnel en dehors du puits de potentiel Coulombien. L'interaction laser-atome en champ fort basse fréquence est modélisée par une particule devant franchir une barrière formée par le potentiel Coulombien et le terme d'interaction dipolaire $\mathbf{E} \cdot \mathbf{R}$. Il est important de spécifier que le modèle de Keldysh est développé dans la forme longueur du Hamiltonien d'interaction. Si nous considérons un laser polarisé linéairement, la barrière formée est représentée sur la figure 2.1.

Dans un premier temps, nous considérons que l'ionisation reste faible : $I \ll I_{sat}$. I_{sat} est l'intensité du champ laser pour laquelle la barrière s'abaisse en-deçà de l'énergie du niveau fondamental, ce qui résulte en une ionisation totale sur moins d'une période optique. Nous nous plaçons donc dans un cas où :

- l'état fondamental n'est pas perturbé par le champ,
- tandis que les électrons émis par effet tunnel “naissent” trop loin du noyau pour ressentir l'effet du potentiel Coulombien.

Donc, ainsi que nous l'avons représenté sur la figure 2.1, les états essentiels à la description de l'interaction sont, dans *l'approximation du champ fort*, clairement séparés spatialement au moment de l'ionisation ou plus précisément au moment de “l'émission dans le continuum”. L'approximation du champ fort est une méthode de résolution de l'ESDT fondée sur l'utilisation, dans la description de la fonction d'onde du système, des états atomiques essentiels :

1. L'état fondamental, très localisé au niveau du noyau, n'est soumis qu'à l'effet du potentiel Coulombien.
2. Les états du continuum atteints par effet tunnel forment un paquet "quasi-libre" soumis uniquement à l'effet du champ électrique. L'influence du potentiel Coulombien sur ces états est tout à fait négligée. Les états du continuum, utilisés dans le modèle du champ fort pour décrire la dynamique de l'interaction, sont **les états de Volkov**.

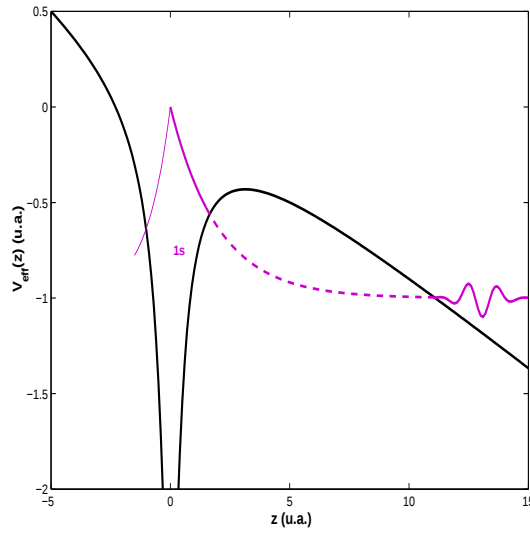


FIG. 2.1: Représentation schématique des états essentiels à l'instant d'émission d'un paquet "tunnel" dans le potentiel effectif dans la forme longue de l'interaction.

Revenons maintenant sur l'interprétation du paramètre γ introduit par Keldysh qui permet de définir le domaine de validité de l'approximation du champ fort coïncidant avec celui du régime d'ionisation par effet tunnel.

Le paramètre d'adiabaticité γ

En résumé, étant donné les basses fréquences considérées, le mécanisme d'éjection dans le continuum peut être envisagé en représentant le potentiel effectif classique constitué du potentiel Coulombien et de l'interaction dipolaire $\mathbf{E} \cdot \mathbf{R}$. Lorsque le champ - polarisé linéairement - atteint sa valeur maximale, le potentiel effectif forme une barrière dans la direction des z opposés à $\mathbf{E}$. Il existe alors une probabilité non nulle de transmission de l'état fondamental vers les états d'énergie positive par franchissement tunnel de cette barrière. Le critère de validité de ce modèle repose sur un raisonnement "classique" permettant d'évaluer un pseudo "temps tunnel"

τ_t : celui-ci correspondrait au temps classique que mettrait une particule à traverser une distance l_k équivalente à la largeur de la barrière formée par le champ électrique et le potentiel. En première approximation, cette distance

$$l_k = \frac{I_p (u.a.)}{E (u.a.)} \text{ en u.a..}$$

Cette barrière est franchie avec une vitesse moyenne de l'ordre de $v = \sqrt{2I_p}$, le temps tunnel peut donc s'écrire :

$$\tau_t = \frac{l_k}{v} = \frac{1}{E} \sqrt{\frac{I_p}{2}}.$$

Il s'agit d'un calcul très approximatif que Keldysh proposa pour essayer d'interpréter le paramètre γ qu'il introduisit dans ses calculs. C'est en comparant τ_t à la période laser que Keldysh définit son critère d'adiabaticité :

$$\frac{\tau_t}{T_{laser}} \propto \frac{\omega(u.a.)}{E(u.a.)} \sqrt{2I_p(u.a.)} = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} = \gamma, \quad (2.1)$$

où ω est la pulsation du champ, équivalente à l'énergie du photon en unité atomique. Pour que le régime tunnel soit atteint dans la démarche de Keldysh, il faut que $\gamma \ll 1$, c'est-à-dire que τ_t soit très petit comparé à T_{laser} . L'électron émis par effet tunnel ressent un champ *quasi-statique*. Si $\gamma \gg 1$, c'est-à-dire dans la limite des champs faibles (à basse fréquence), le "pseudo" temps tunnel est trop long et la barrière remonte avant qu'un paquet n'ait pu être émis. La fonction d'onde reste globalement localisée proche du noyau, l'interaction avec le potentiel permettant aux électrons d'absorber des photons pour gagner l'énergie suffisante pour pouvoir s'ioniser. Dans cette limite, c'est donc l'interprétation multiphotonique qui prévaut.

Pour pouvoir utiliser l'approximation du champ fort, les interactions étudiées doivent donc être au moins telles que :

$$\gamma = \frac{\omega}{E} \sqrt{2I_p} < 1 \text{ en u.a..}$$

Dans cette limite, la dynamique de l'interaction selon l'approximation du champ fort correspond finalement à la dynamique d'un électron **libre** oscillant dans un champ laser.

Le modèle semi-classique proposé par [Corkum, 93] pour expliquer le phénomène de GHOE, notamment, a effectivement mis en évidence, l'importance de cette dynamique pour comprendre les caractéristiques du spectre des harmoniques émises. Ce même modèle peut être invoqué dans le contexte de l'ionisation ATI, pour comprendre l'existence du deuxième plateau. Le

point fort de ce modèle, est qu'il révèle l'importance de la phase du champ à laquelle les paquets d'électrons sont injectés dans le continuum pour comprendre ces deux mécanismes. Avant d'exposer le modèle "de type Keldysh" que nous avons exploité dans le contexte de la GHOE et analysé dans celui de l'ionisation, il est indispensable de faire une mise au point sur la dynamique classique d'un électron oscillant dans un champ laser. Celle-ci s'avère en effet cruciale dans la compréhension de nos résultats.

2.2 Détour par la dynamique classique

Le processus de GHOE implique que l'électron, émis par effet tunnel à une phase $\phi_i = \omega t_i$, revienne vers le noyau à une phase $\phi_r = \omega t_r$; le retour pouvant se traduire par une recombinaison du paquet avec l'état fondamental conduisant à une transition radiative donnant lieu à l'émission d'une harmonique.

Le deuxième plateau dans le spectre ATI des électrons éjectés suppose de même que l'électron revienne vers le noyau et soit diffusé élastiquement en interagissant avec le potentiel à l'instant du retour.

Pour comprendre classiquement les deux processus, il est donc important de déterminer les phases ϕ_i et ϕ_r du champ pour lesquelles un retour classique vers le noyau est envisageable.

Supposons qu'un électron soit émis à la position du noyau $r_i = 0$ avec une vitesse $v_i = v_0$ *a priori* non nulle à l'instant t_i . Il n'est plus soumis dès lors qu'à la force exercée par le champ électrique de telle sorte que l'équation de Newton à résoudre pour traduire sa dynamique est simplement :

$$\frac{d}{dt}\boldsymbol{\pi} = \frac{d}{dt}\mathbf{v} = -\mathbf{E}(t).$$

Nous nous plaçons dans l'approximation adiabatique, l'intensité du champ électrique étant constante. Le champ électrique, le potentiel vecteur associé ainsi que l'excursion de l'électron dans le champ s'écrivent :

$$\left\{ \begin{array}{lcl} \mathbf{E}(t) & = & \mathbf{E}_0 \cos(\omega t) \quad (a) \\ \mathbf{A}(t) & = & -\frac{\mathbf{E}_0}{\omega} \sin(\omega t) \quad (b) \\ \boldsymbol{\alpha}(t) & = & \frac{\mathbf{E}_0}{\omega^2} \cos(\omega t) \quad (c) \end{array} \right. \quad (2.2)$$

Les trajectoires des électrons satisfaisant les conditions initiales précitées

s'écrivent donc :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \mathbf{a}(t) &= -\mathbf{E}_0 \cos(\omega t) & (a) \\ \mathbf{v}(t) &= \mathbf{v}_0 + \mathbf{A}(t) - \mathbf{A}(t_i) & (b) \\ \mathbf{r}(t) &= \boldsymbol{\alpha}(t) - \boldsymbol{\alpha}(t_i) + (\mathbf{v}_0 - \mathbf{A}(t_i)) \times (t - t_i) & (c) \end{array} \right. \quad (2.3)$$

Nous définissons alors le moment canonique

$$\mathbf{p} = \boldsymbol{\pi}(t) - \mathbf{A}(t) = \mathbf{v}(t) - \mathbf{A}(t);$$

tel que

$$\frac{d}{dt}\mathbf{p} = 0.$$

Analogiquement au cas quantique dans la forme vitesse de l'interaction, le moment canonique défini est une constante du mouvement de l'électron. Il possède une autre interprétation physique très intéressante. En effet, étant donné sa définition, l'électron émis en t_i est caractérisé par un moment canonique :

$$\mathbf{p}_0 = \mathbf{v}_0 - \mathbf{A}(t_i),$$

tout au long de sa trajectoire dans le champ classique, de telle sorte que l'on peut réécrire la position de l'électron à un instant t :

$$\mathbf{r}(t) = \mathbf{p}_0 \times (t - t_i) + \int_{t_i}^t dt' \mathbf{A}(t') = \mathbf{p}_0 \times (t - t_i) + \boldsymbol{\alpha}(t) - \boldsymbol{\alpha}(t_i).$$

Le terme linéaire $\mathbf{p}_0 \times (t - t_i)$ dans l'équation de la position domine rapidement le terme dû aux oscillations du champ, $\boldsymbol{\alpha}(t) - \boldsymbol{\alpha}(t_i)$ et par conséquent, indique la direction finale d'éjection de l'électron. Le moment canonique est, pour cette raison, associé à la **vitesse de dérive** de l'électron éjecté.

Dans le modèle semi-classique, proposé par [Corkum, 93], un électron est émis *par effet tunnel* à un instant t_i avec une vitesse initiale $\mathbf{v}_0 = 0$ (à la sortie du tunnel son énergie totale est égale à son énergie potentielle Coulombienne $\rightarrow$ son énergie cinétique est nulle). Dans ce cas, $\mathbf{p}_0 = -\mathbf{A}(t_i)$.

Pour qu'un électron, classiquement, puisse revenir vers le noyau à l'instant t_r qui correspondra quantiquement à l'instant de recombinaison et donc d'émission d'une harmonique, il suffit de résoudre l'équation :

$$\mathbf{r}(t_r) = 0,$$

c'est-à-dire d'après l'équation (2.3c) :

$$\boldsymbol{\alpha}(t_r) = \boldsymbol{\alpha}(t_i) - \mathbf{p}_0 \times (t_r - t_i). \quad (2.4)$$

La résolution de cette équation peut être effectuée de manière graphique. En traçant $\alpha(t)$, une trajectoire, amorcée à l'instant t_i , peut être représentée par une demi-droite de pente $-\mathbf{p}_0$ amorcée à la position $\alpha(t) = \alpha(t_i)$. S'il existe un temps $t_r > t_i$ tel que cette trajectoire repasse par l'origine, l'intersection de cette demi-droite avec la courbe de $\alpha(t)$ doit être non nulle. Cette démarche graphique va nous permettre dans un premier temps de distinguer les trajectoires que nous nommons **directes** c'est-à-dire qui ne repassent jamais par le noyau et qui par conséquent ne participent qu'au processus d'ionisation et celles dites **indirectes** ou "**recombinantes**" car elles satisfont la condition de retour $\mathbf{r}(t_r) = 0$. La distinction entre ces deux types de trajectoires se fait en terme de phase du champ et de valeur de moment canonique.

2.2.1 Condition de retour illustrée graphiquement

Si $I \ll I_{sat}$, l'éjection d'électrons dans le continuum ne peut se produire qu'aux environs du maximum du champ, nous considérons donc deux trajectoires typiques, l'une émise avant le maximum, l'autre après. Nous les représentons donc suivant la démarche expliquée ci-dessus sur la courbe $\alpha(t)$, la pente des demi-droites représentant chaque trajectoire étant donnée par la valeur du potentiel vecteur à l'instant d'éjection t_i considéré. Sur la figure 2.2, le potentiel vecteur est représenté à la même échelle que $\alpha(t)$, pour plus de clarté. Le champ électrique, directement proportionnel à $\alpha(t)$, n'est pas représenté. Nous constatons que la demi-droite correspondant à la trajectoire amorcée **avant** le maximum du champ ne possède pas d'intersection avec $\alpha(t)$, elle correspond donc à une ionisation directe, tandis que la trajectoire amorcée après le maximum recoupe au moins une fois la courbe $\alpha(t)$. Cette méthode nous permet donc de caractériser les trajectoires **directes** et **indirectes** ou "**recombinantes**" de la manière suivante :

Un électron direct est émis avant le maximum du champ, son moment canonique est de signe opposé à celui du champ électrique.

Un électron indirect est émis après le maximum du champ et son moment canonique est de même signe que le champ électrique.

Les seules trajectoires classiques pouvant contribuer soit à la GHOE, soit au deuxième plateau ATI sont les trajectoires **indirectes** ou "**recombinantes**". C'est dans le cadre de la GHOE, que nous exploitons quantitativement la théorie semi-classique. En ce qui concerne notre étude de l'ionisation, la distinction entre électrons directs et indirects suffit à notre analyse. Nous nous plaçons donc maintenant uniquement dans le contexte de la GHOE pour extraire de cette analyse classique d'autres informations sur le processus.

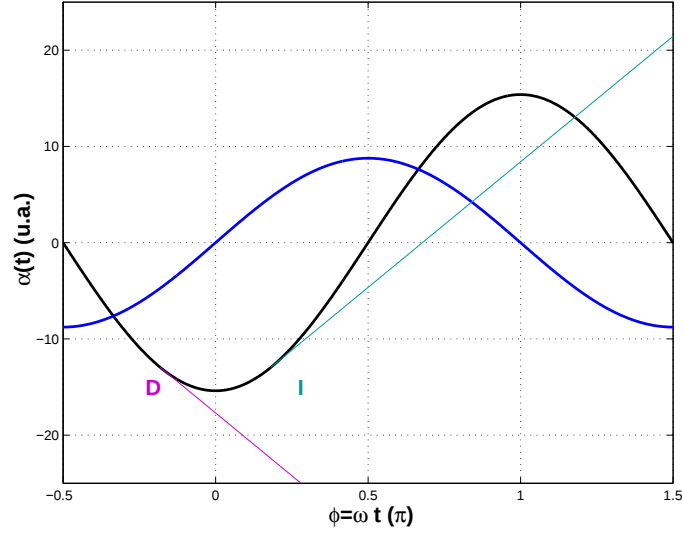


FIG. 2.2: Schématisation graphique pour déterminer les conditions de phase et de moment canonique des trajectoires directes et rediffusées. Le potentiel vecteur est représenté en bleu et $\alpha(t)$ en noir (le champ électrique étant directement proportionnel à $\alpha(t)$). Les lettres D et I indiquent les domaines respectifs des trajectoires directes et indirectes sur une demi-période laser.

2.2.2 Caractérisation des trajectoires de la génération d'harmoniques d'ordre élevé (GHOE)

Par le modèle semi-classique, c'est la partie haute fréquence du spectre des harmoniques émises qui peut être expliquée. Elle est constituée d'un plateau se terminant par une coupure brutale, dont la position évolue vers les hautes fréquences pour des intensités laser ou des potentiels d'ionisation croissants.

[Corkum, 93] a expliqué et déterminé la loi qui régit la position de cette coupure par cette méthode classique. Rappelons cette loi :

$$\hbar q_{max} \omega = I_p + 3.17 U_p, \quad (2.5)$$

où

$$U_p (u.a.) = \frac{I_0 (u.a.)}{4\omega^2 (u.a.)},$$

est le potentiel pondéromoteur, c'est-à-dire, l'énergie cinétique moyenne qu'un électron acquiert en oscillant dans le champ sur une période laser. I_0 est l'intensité du champ électrique et ω la fréquence du laser exprimées en unités atomiques². q_{max} est l'ordre maximal de l'harmonique pouvant

²L'unité atomique d'intensité de champ électrique étant de $3.5095 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ et l'unité atomique de fréquence valant $6.5797 \times 10^{15} \text{ Hz}$, voir appendice A.

être émise. La valeur $3.17 U_p$ correspond à l'énergie maximale qu'un électron éjecté après le maximum du champ peut acquérir avant de revenir vers le noyau et quantiquement de se recombiner avec le fondamental avec l'émission d'une harmonique.

Nous nous intéressons maintenant à l'énergie cinétique d'un électron “**re-combinant**”. Sur la figure 2.3(a), nous sélectionnons “au hasard” 3 trajectoires “recombinantes” amorcées après le maximum du champ, chacune étant représentée par une demi-droite d'équation :

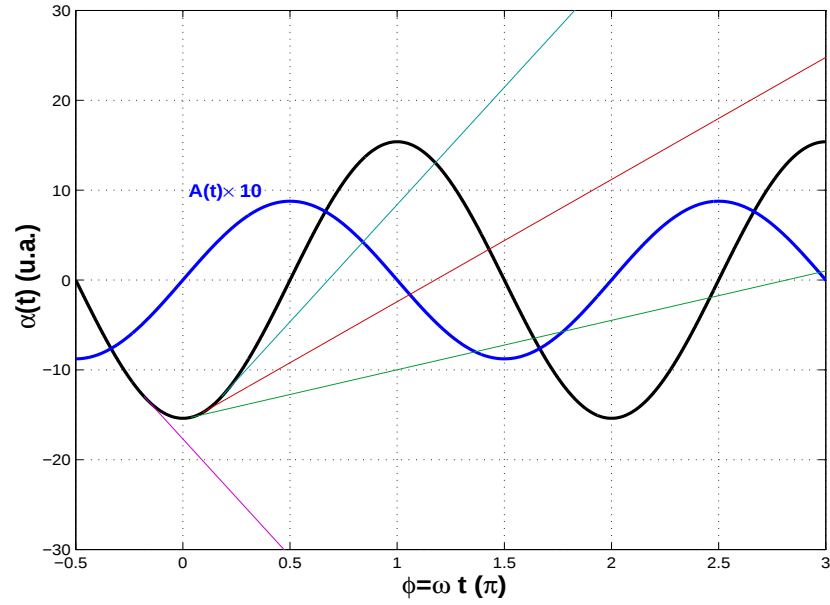
$$\boldsymbol{\alpha}(t) = \boldsymbol{\alpha}(t_i) - \mathbf{p}_0 \times (t - t_i).$$

Elles se distinguent par leur phase d'éjection $\phi_i = \omega t_i$ et donc par la valeur de leur moment canonique $\mathbf{p}_0 = -\mathbf{A}(t_i)$. Pour chaque trajectoire, nous évaluons ensuite l'énergie cinétique en fonction du temps (ou plutôt de la phase $\phi = \omega t$) que nous représentons sur la figure 2.3(b). Nous pouvons ainsi, en comparant les phases du champ auxquelles chaque demi-droite recoupe la courbe $\boldsymbol{\alpha}(t)$, connaître l'énergie cinétique de l'électron au moment de son retour vers le noyau.

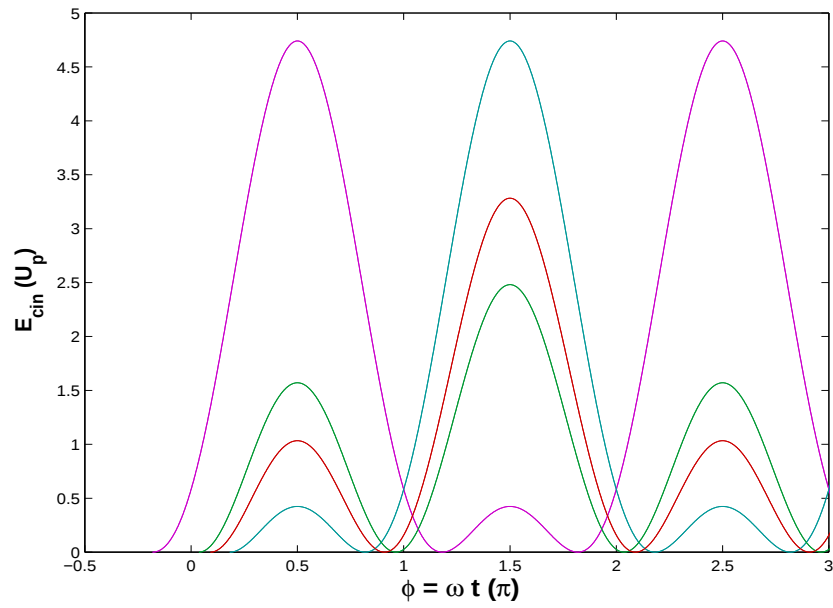
Ainsi, sur la figure 2.3b, la trajectoire rouge semble correspondre à la valeur limite de l'énergie cinétique que peut acquérir l'électron au moment de son retour vers le noyau. Elle est en effet de l'ordre de $3 U_p$, n'est atteinte qu'une seule fois sur une demi-période et correspond à un temps d'ionisation légèrement supérieur au maximum du champ $\phi_i \approx 0.1\pi$. Nous pouvons déjà ajouter que les trajectoires donnant lieu aux plus grandes valeurs d'énergie cinétique sont toutes amorcées dans un intervalle de phase extrêmement restreint $\phi_i \gtrsim 0$.

Pour être plus précis, nous résolvons l'équation (2.4) de manière plus systématique. En supposant que l'ionisation peut avoir lieu pour une phase du champ variant entre $\phi = -\pi/4$ et $\phi = \pi/4$, nous déterminons numériquement tous les instants de retour possibles et évaluons l'énergie cinétique associée. Le résultat est reproduit sur la figure 2.4. Nous avons vérifié numériquement que les phases du champ incluses dans l'intervalle $[-\pi/4, 0]$ ne donnent lieu à aucune trajectoire “recombinante”. Dans la théorie semi-classique, les temps de retour $\tau = t_r - t_i$ classiques sont **indépendants de l'intensité du champ**. La figure 2.3 est donc tout à fait générale.

En conclusion, du point de vue de la dynamique classique, l'énergie cinétique acquise par un électron revenant vers le noyau ne peut excéder $3.17 U_p$, cette valeur n'étant atteinte qu'une seule fois par demi-période laser pour une phase du champ $\phi = \omega t_r = 1.4\pi$. Nous vérifions grâce à cette courbe que les électrons les plus énergétiques : $E_{cin} \geq 2 U_p$ sont tous émis



(a) 4 trajectoires sélectionnées



(b) Energie cinétique en fonction du temps des 4 trajectoires

FIG. 2.3: (a) Sur la courbe $\alpha(t)$, nous représentons les demi-droites associées à 4 trajectoires dont 3 de “type indirect” (verte, rouge et bleu cyan émises successivement). La trajectoire mauve est une trajectoire directe. Le potentiel vecteur est représenté en bleu à la même échelle. (b) Pour ces 4 trajectoires : énergie cinétique en fonction de la phase du champ $\phi = \omega t$ (unité de π).

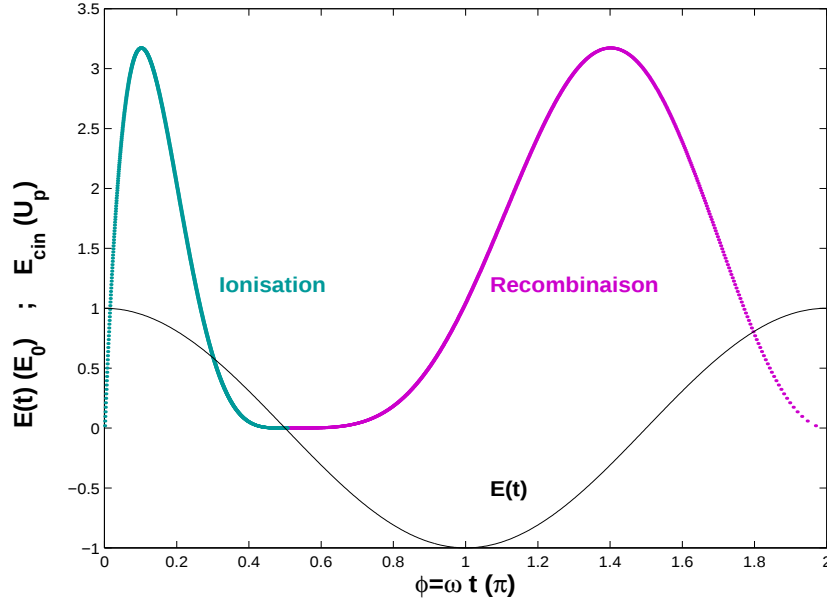


FIG. 2.4: Energie cinétique des électrons revenant vers le noyau reproduite en fonction de la phase d'éjection $\phi_i = \omega t_i$ en vert et dans la phase de "recombinaison" (de retour) en violet $\phi_r = \omega t_r$. L'énergie est représentée en unité de U_p . L'amplitude du champ est également représentée en noir normalisée en fonction de sa valeur maximale E_0 .

dans un intervalle de phase restreint :

$$0 < \phi_i \leq 0.2\pi.$$

En revanche, la courbe de recombinaison est beaucoup plus large. Il est intéressant de définir le temps de retour

$$\tau = t_r - t_i,$$

pour une énergie cinétique donnée qui correspond au temps d'oscillation de l'électron dans le champ. Cette grandeur, nous le verrons est importante dans la compréhension du spectre des harmoniques. Nous représentons donc sur la figure 2.5, l'énergie cinétique acquise par l'électron en fonction de la phase du champ associée au temps de retour $\phi = \omega\tau$.

Sur la figure 2.5, la valeur maximale $3.17 U_p$ correspond à une phase caractéristique $\omega\tau_{max} = 1.3\pi \approx 4.08$. Les énergies cinétiques inférieures sont, elles, caractérisées par deux temps de retour conventionnellement notés τ_1 τ_2 . Qualitativement, l'écart entre τ_1 et τ_2 augmente lorsque l'énergie cinétique de l'électron diminue.

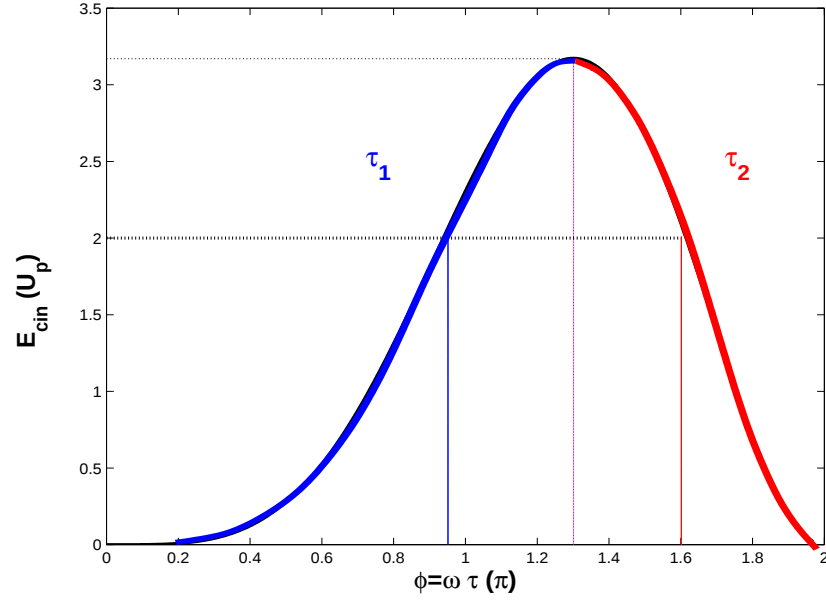


FIG. 2.5: Energie cinétique acquise par les électrons à leur retour au noyau en fonction de leur phase caractéristique correspondant au temps de retour des électrons, $\phi = \omega \tau = \omega \times (t_r - t_i)$. Une même énergie cinétique correspond à deux temps de retour sur une demi-période conventionnellement notés τ_1 (temps de retour le plus court) et τ_2 (temps de retour le plus long).

Toutes ces trajectoires émises *après* le maximum du champ sont donc susceptibles de participer au processus de génération d'harmoniques. Cette étude semi-classique des trajectoires se révèle cruciale pour comprendre les spectres de GHOE - que nous étudions dans le contexte des impulsions ultra-brèves - dans la troisième partie de ce travail.

Après cette analyse classique de la dynamique de l'électron oscillant dans le champ laser, nous pouvons maintenant introduire le modèle quantique fondé sur l'approximation du champ fort basse fréquence sur lequel nous concentrons notre attention [Lewenstein *et al*, 94]. Ce modèle avait pour objectif d'expliquer quantiquement l'existence du plateau dans le spectre des harmoniques émises mais il fut généralisé [Lewenstein *et al*, 95] afin d'expliquer l'existence du deuxième plateau présent dans les spectres ATI des électrons éjectés. Nous choisissons de présenter ce modèle pour deux raisons :

1. Dans notre étude de la GHOE consacrée aux effets non-adiabatiques observables dans le spectre des harmoniques émises lorsque la durée de l'impulsion laser considérée n'excède pas quelques cycles optiques, nous utilisons ce modèle pour comprendre nos résultats obtenus par la résolution numérique exacte de l'ESDT. Il est donc important de rap-

peler comment, dans cette théorie, le dipôle - quantité qui nous donne accès au spectre de puissance des harmoniques émises - est évalué dans le contexte adiabatique.

2. Nous analysons, dans notre étude dans l'espace des moments (deuxième partie de ce travail), la dynamique du mécanisme d'ionisation dans la limite des champs forts basse fréquence ($\gamma < 1$). Dans cette analyse, nous comparons souvent nos résultats avec les démarches "de type Keldysh" qui négligent l'effet du potentiel Coulombien dans le mécanisme d'ionisation. Le modèle de Lewenstein généralisé au mécanisme d'ionisation est donc adéquat comme outil de comparaison.

Nous exposons maintenant le modèle quantique de l'interaction d'un champ fort, basse fréquence avec un système à un électron actif, proposé par M. Lewenstein et ses collaborateurs, en présentant les principaux résultats obtenus grâce à ce modèle, dans le contexte de la GHOE d'une part, et de l'ionisation d'autre part.

2.3 Modèle quantique du champ fort

2.3.1 Utilisation des états essentiels

Dans l'esprit de l'approximation de Keldysh, [Lewenstein *et al*, 94] ont donc proposé un développement de la fonction d'onde d'un système à un électron actif sur les états atomiques essentiels. Les états excités ne sont pas pris en compte dans leur modèle. Seuls l'état $|1s\rangle$ et les états du continuum $|\mathbf{v}_{cb}\rangle$ interviennent dans le processus. Comme le système décrit est hydrogénoïde, nous tenons compte pour commencer des états du continuum *Coulombien* exacts de telle sorte que la base bien qu'incomplète reste orthogonale. De plus, nous avons les relations :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2} + V\right) |\mathbf{v}_{cb}\rangle &= \frac{v^2}{2} |\mathbf{v}_{cb}\rangle, \\ \text{et} \\ \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2} + V\right) |1s\rangle &= -I_p |1s\rangle. \end{aligned}$$

La fonction d'onde prend donc la forme suivante :

$$|\Psi(t)\rangle = e^{iI_p t} \left(a(t) |1s\rangle + \int d\mathbf{v}' b(\mathbf{v}', t) |\mathbf{v}'_{cb}\rangle \right). \quad (2.6)$$

I_p représente le potentiel d'ionisation de l'atome considéré. Cette fonction d'onde doit être solution de l'ESDT qui commence à nous être familière :

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = (H_0 + H_I(t)) |\Psi(t)\rangle. \quad (2.7)$$

L'insertion de la fonction (2.6) dans l'équation (2.7), et la projection respectivement sur l'état $\langle 1s |$ et $\langle \mathbf{v}_{cb} |$ conduit au jeu d'équations couplées :

$$\left\{ \begin{array}{l} i \frac{d}{dt} a(t) = \int d\mathbf{v}' b(\mathbf{v}', t) \langle 1s | H_I | \mathbf{v}'_{cb} \rangle \\ i \frac{\partial}{\partial t} b(\mathbf{v}, t) = \left(\frac{v^2}{2} + I_p \right) b(\mathbf{v}, t) \\ \quad + a(t) \langle \mathbf{v}_{cb} | H_I | 1s \rangle \\ \quad + \int d\mathbf{v}' \langle \mathbf{v}_{cb} | H_I | \mathbf{v}'_{cb} \rangle b(\mathbf{v}', t). \end{array} \right. \quad (2.8)$$

Pour continuer la démonstration, il est impératif de spécifier la forme du Hamiltonien d'interaction dans laquelle Maciej Lewenstein a développé son modèle. En effet, dans la mesure où une approximation sur le rôle joué par le potentiel Coulombien va être effectuée, les deux formes ($\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}$ et $\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}$) ne seront plus équivalentes. Le choix de la forme longueur s'explique ici physiquement par le fait que l'état fondamental $|1s\rangle$ “nu” y conserve sa signification physique. En d'autres termes, dans le cas où l'ionisation est faible, dans cette forme et dans celle-là seulement, il est justifié de considérer que l'amplitude $a(t) \approx 1$. Stipulons qu'il s'agit effectivement de l'amplitude et non de la norme, l'interprétation physique de cette approximation est que l'état fondamental “physique” même en présence du champ est très peu perturbé par ce dernier.

2.3.2 Restriction à la forme longueur : $H_I(t) = \mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{r}$

Le système d'équations (2.8) doit faire l'objet d'une première approximation : le terme intégrale intervenant dans la partie droite de l'équation régissant l'évolution des amplitudes $b(\mathbf{v}, t)$ fait intervenir, les éléments de transitions dipolaires entre deux états du continuum *Coulombien*. L'approximation effectuée par [Lewenstein *et al*, 94] correspond à remplacer les états du continuum par des ondes planes.

Cette approximation est tout à fait drastique, elle suppose en effet que quelle que soit l'énergie de l'état du continuum considéré, le potentiel Coulombien est sans effet sur la densité d'états injectés dans le continuum, nous analysons cette approximation dans la deuxième partie de notre travail. Toutefois, dans la mesure où le modèle est clairement destiné à expliquer la présence des hautes énergies que ce soit dans le spectre des harmoniques ou celui des électrons éjectés, cette approximation est tout à fait envisageable.

En effet, puisque ce terme intégral traduit la propagation de l'électron dans le continuum en présence du champ, cette approximation est justifiée pour les états de haute énergie auxquels l'électron peut accéder. Par conséquent, elle doit correctement décrire, par exemple, la fin du plateau des harmoniques correspondant aux électrons les plus énergétiques revenant vers le noyau dans le modèle semi-classique. Remarquons de plus que, dans cette approximation, l'orthogonalité de la base est perdue, puisque nous avons en effet :

$$\langle \mathbf{v} | 1s \rangle = C \frac{1}{(v^2 + 2I_p)^2}.$$

Pour qu'une quasi-orthogonalité soit assurée, il faut donc supposer que l'on s'intéresse aux états du continuum correspondant aux plus grandes valeurs de vitesse, ce qui est cohérent avec la remarque précédente.

Dans le jeu d'équations 2.8, l'approximation de Lewenstein, revient à effectuer la substitution :

$$|\mathbf{v}_{cb}\rangle \rightarrow |\mathbf{v}\rangle = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\mathbf{v}\cdot\mathbf{r}},$$

l'élément de transition dipolaire continuum-continuum se réduit alors à l'expression :

$$\langle \mathbf{v} | \mathbf{r} | \mathbf{v}' \rangle = -i\nabla_{\mathbf{v}'} \delta(\mathbf{v} - \mathbf{v}'). \quad (2.9)$$

Le système d'équations couplées 2.8 devient :

$$\begin{cases} i \frac{d}{dt} a(t) &= \int d\mathbf{v}' b(\mathbf{v}', t) \langle 1s | H_I | \mathbf{v}' \rangle, \\ i \frac{\partial}{\partial t} b(\mathbf{v}, t) &= \left(\frac{v^2}{2} + I_p \right) b(\mathbf{v}, t) + a(t) \langle \mathbf{v} | H_I | 1s \rangle \\ &+ i \mathbf{E}(t) \cdot \nabla_{\mathbf{v}} b(\mathbf{v}, t). \end{cases} \quad (2.10)$$

Pour le résoudre, puisque les amplitudes b dépendent de deux variables, il est intéressant de faire apparaître la différentielle totale par rapport au temps dans l'équation sur les b :

$$\frac{d}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} \cdot \nabla_{\mathbf{v}}.$$

Ce qui permet de découpler l'évolution de la vitesse en fonction du temps du terme d'amplitude b et de la mettre sous la forme simple :

$$\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} = -\mathbf{E}(t). \quad (2.11)$$

Cela signifie physiquement (comme l'approximation du champ fort l'impose) que le transfert de moment est assuré par le champ électrique et lui seul dès

que l'électron se trouve dans un état du continuum. Le système d'équations (2.10) se simplifie encore une fois sous la forme :

$$\begin{cases} i \frac{d}{dt} a(t) &= \int d\mathbf{v}' b(\mathbf{v}', t) \langle 1s | H_I | \mathbf{v}' \rangle; \\ i \frac{d}{dt} b(\mathbf{v}, t) &= \left(\frac{v^2}{2} + I_p \right) b(\mathbf{v}, t) + a(t) \langle \mathbf{v} | H_I | 1s \rangle. \end{cases} \quad (2.12)$$

Lorsque l'on néglige l'ionisation, $a(t) \approx 1$, on peut exprimer une solution pour les amplitudes b de la manière suivante :

$$b(\mathbf{v}(t), t) = -i \int_{t_0}^t dt' \mathbf{E}(t') \cdot \langle \mathbf{v}(t') | \mathbf{R} | 1s \rangle \exp[-iS(\mathbf{v}(t), t, t')], \quad (2.13)$$

où $S(\mathbf{v}(t), t, t') = \int_{t'}^t dt'' \left[\frac{1}{2} (\mathbf{v}^2(t'')) + I_p \right]$. Si nous considérons $\mathbf{A}(t)$, le potentiel vecteur associé au champ électrique tel que

$$\mathbf{E}(t) = -\frac{\partial \mathbf{A}(t)}{\partial t},$$

l'évolution temporelle de la vitesse devient, d'après l'équation (2.11),

$$\mathbf{v}(t) = \mathbf{v}' + \mathbf{A}(t) - \mathbf{A}(t').$$

Il s'agit simplement de l'équation régissant la vitesse d'un électron *libre* classique oscillant dans le champ électrique, si bien que $S(\mathbf{v}(t), t, t')$ correspond à l'action quasi-classique d'un électron sur la trajectoire amorcée à l'instant t' . Cette grandeur se révèlera particulièrement importante pour comprendre l'allure des spectres de GHOE et ATI. Signalons que ce terme de phase doit être modifié si l'on veut tenir compte du caractère Coulombien des états du continuum.

2.3.3 Application à la génération d'harmoniques d'ordre élevé

Pour avoir accès au spectre des harmoniques émises, il nous faut évaluer la valeur moyenne du dipôle en fonction du temps et effectuer ensuite sa transformée de Fourier :

$$\begin{aligned} \mathbf{d}(t) &= \langle \Psi(t) | \mathbf{R} | \Psi(t) \rangle \\ &= \int d\mathbf{v} \langle 1s | \mathbf{R} | \mathbf{v} \rangle b(\mathbf{v}, t) + c.c. \\ &+ \int d\mathbf{v} \int d\mathbf{v}' b^*(\mathbf{v}', t) \langle \mathbf{v}' | \mathbf{R} | \mathbf{v} \rangle b(\mathbf{v}, t). \end{aligned}$$

De manière à ce que le modèle reste cohérent, le dernier terme doit être négligé puisqu'il traduit une transition dipolaire entre deux états du continuum libre. Or, en l'absence de potentiel un électron ne peut ni absorber ni émettre de photons, ces transitions ne contribuent pas du tout au processus de génération d'harmoniques. Le dipôle s'écrit donc finalement :

$$\mathbf{d}^L(t) = \int d\mathbf{v} \langle 1s | \mathbf{R} | v \rangle b(\mathbf{v}, t) + c.c. \quad (2.14)$$

En utilisant la solution sur les amplitudes b donnée par l'équation (2.13), en intégrant sur les moments canoniques $\mathbf{p} = \mathbf{v}(t) - \mathbf{A}(t)$ plutôt que sur les vitesses, et en introduisant tout comme dans la démonstration classique la notion de temps de retour $\tau = t - t'$, nous arrivons à la formule finale du dipôle :

$$\begin{aligned} \mathbf{d}^L(t) &= -i \int_0^{t-t_0} d\tau \int d\mathbf{p} \langle 1s | \mathbf{R} | \mathbf{p} + \mathbf{A}(t) \rangle \\ &\times \mathbf{E}(t - \tau) \cdot \langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(t - \tau) | \mathbf{R} | 1s \rangle \\ &\times \exp[-iS(\mathbf{p}, t, t - \tau)] + c.c. \end{aligned} \quad (2.15)$$

Cette intégrale peut être interprétée dans l'esprit des intégrales de chemins de Feynman [Feynman et Hibbs, 65] : les chemins quantiques $(\mathbf{p}, t, t - \tau)$ contribuant au dipôle (et donc à la GHOE) sont ceux qui décrivent le mécanisme suivant :

après avoir quitté l'état $|1s\rangle$ par transition dipolaire, un électron évolue librement dans le champ laser ($\exp[-iS(\mathbf{p}, t, t - \tau)]$) depuis $t - \tau$ jusqu'à t , et se recombine avec le fondamental par une nouvelle transition dipolaire à l'instant t . La recombinaison donnant lieu à un rayonnement harmonique.

Cette interprétation est cohérente avec le modèle semi-classique. Les trajectoires classiques déterminées dans la section précédente sont mêlées à ces chemins quantiques, il faut encore une fois se replacer dans le contexte du champ fort de manière à les faire apparaître comme les contributions dominantes au calcul du dipôle.

2.3.4 Champ fort et principe de moindre action

L'approximation du champ fort permet de mettre en évidence un terme de propagation libre dans le champ laser qui fait explicitement intervenir l'action quasi-classique $S(\mathbf{p}, t, t - \tau)$. Ce qui est la clé du problème. En effet, cette quantité apparaît comme terme de phase dans l'intégrand de l'équation (2.15). Si cette phase évolue rapidement en fonction de la variable

d'intégration, l'intégrale résultera en une moyenne drastique de l'intégrand sur toutes valeurs de la variable faisant évoluer rapidement cette phase. Si bien que l'on peut facilement comprendre que les contributions dominantes au résultat de l'intégrale sont les chemins qui vont minimiser la variation de la phase c'est-à-dire qui vont la rendre stationnaire : la condition de stationnarité de la phase dans notre cas est :

$$\delta S(\mathbf{p}, t, \tau) = 0, \quad (2.16)$$

qui n'est autre que le "principe de moindre action" caractérisant les trajectoires classiques. La limite semi-classique du modèle quantique est donc atteinte. Parmi tous les chemins quantiques possibles c'est-à-dire les triplets $(\mathbf{p}, t, t - \tau)$, seuls seront sélectionnés ceux qui coïncident avec une trajectoire classique satisfaisant :

$$\begin{cases} \nabla_{\mathbf{p}} S(\mathbf{p}, t, t - \tau) = 0 & (a), \\ \frac{\partial}{\partial \tau} S(\mathbf{p}, t, t - \tau) = 0 & (b), \end{cases} \quad (2.17)$$

c'est-à-dire deux équations différentielles correspondant aux deux intégrales sur $\mathbf{p}$ et τ intervenant dans la dépendance temporelle du dipôle. Dans le formalisme Lagrangien de la mécanique classique, nous pouvons facilement montrer que l'équation (2.17)(a) peut également s'écrire :

$$\nabla_{\mathbf{p}} S(\mathbf{p}, t, \tau) = \mathbf{r}(t) - \mathbf{r}(t - \tau) = 0. \quad (2.18)$$

Effectuer l'intégrale sur $\mathbf{p}$ dans l'approximation des phases stationnaires revient à sélectionner les chemins fermés entre $t - \tau$ et t , ce qui corrobore le modèle semi-classique.

La deuxième équation possède une interprétation physique nettement moins évidente, et doit être prise "avec des pincettes". Nous présentons toutefois les résultats obtenus à partir de cette deuxième loi par Lewentsein et ses collaborateurs. Si nous utilisons l'expression de l'action que nous dérivons par rapport à τ en supposant $\mathbf{p}$ constant, il vient :

$$\frac{1}{2} (\mathbf{p} + \mathbf{A}(t - \tau))^2 + I_p = 0. \quad (2.19)$$

Si $I_p > 0$, il faut, pour que cette équation admette une solution, passer dans le plan complexe. τ doit acquérir une partie imaginaire interprétée comme un temps tunnel dans l'esprit des théories de Keldysh et A.D.K.³ (pour l'ionisation) [Ammosov *et al*, 86]. Cette dernière équation suggère, en effet, que pour pouvoir traverser la barrière par effet tunnel, l'électron doit acquérir une énergie cinétique *négative* à l'instant d'émission, d'où l'importance de travailler avec des τ complexes. Ces considérations purement quantiques sont à l'origine de la différence quantitative entre les modèles semi-classique et quantique sur la position de la coupure.

³ Ammosov, Delone et Krainov

2.3.5 Loi de la coupure dans le modèle de Lewenstein

Pour obtenir cette dernière, il faut considérer la transformée de Fourier du dipôle :

$$d^L(q\omega) = (2\pi)^{-1/2} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathbf{d}^L(t) e^{iq\omega t}. \quad (2.20)$$

Par conséquent, une intégrale sur la variable t donne lieu à l'équation de stationnarité de la phase suivante :

$$\frac{1}{2} (\mathbf{p} + \mathbf{A}(t))^2 - \frac{1}{2} (\mathbf{p} + \mathbf{A}(t - \tau))^2 + I_p = q\omega, \quad (2.21)$$

qui est la dernière étape du modèle semi-classique, la recombinaison de l'électron vers l'état fondamental s'effectue avec conservation de l'énergie totale par émission d'un photon harmonique. La résolution de ces trois équations dans le contexte tunnel c'est-à-dire $I_p > 0$, conduit à une loi de la coupure qui dépend de la valeur relative de I_p par rapport à U_p .

Lorsque $I_p \gg U_p$, la loi de la coupure exacte est donnée par :

$$(q\omega)_{max} = 3.17 U_p + 1.32 I_p, \quad (2.22)$$

tandis que si $I_p \geq U_p$ elle devient :

$$(q\omega)_{max} = 3.17 U_p + I_p F(I_p/U_p), \quad (2.23)$$

où $F(I_p/U_p)$ varie entre 1.32 et 1.2 pour I_p/U_p variant de 1 à 4.

2.3.6 Evaluation du dipôle

Dans la mesure où cette loi de la coupure modifiée est essentiellement obtenue en se basant sur l'équation (2.19) qui traduit l'émission dans le continuum c'est-à-dire "une pseudo-ionisation", il est important d'émettre quelques critiques à son sujet. D'une part, la méthode des phases stationnaires utilisée pour obtenir cette équation n'est valable que si ces phases n'induisent aucune singularité dans l'intégrand. Or nous devons rappeler l'expression de l'élément de transition dipolaire $1s \rightarrow \mathbf{v}$ pour un système hydrogénoïde :

$$\langle 1s | \mathbf{R} | \mathbf{p} \rangle = i \left(\frac{2^5 I_p^{5/4}}{\sqrt{2}\pi} \right) \frac{\mathbf{p}}{(\mathbf{p}^2 + 2I_p)^3}. \quad (2.24)$$

L'équation (2.19) des phases stationnaires par rapport à τ conduit à une singularité dans l'intégrand pour les atomes hydrogénoïdes. En effet, la solution de cette équation dans le plan complexe correspond à la position du pôle d'ordre 3 présent dans le couplage dipolaire $1s$ -continuum. La méthode

des phases stationnaires n'est donc pas applicable à l'intégration sur τ . L'équation (2.19) n'a donc pas de sens pour les systèmes hydrogéoïdes.

Qualitativement, maintenant, si l'on s'intéresse aux harmoniques les plus élevées, il est tout à fait correct de négliger l'effet du potentiel Coulombien *pendant la propagation de l'électron dans le champ*. Cette propagation est traduite par l'équation (2.18). Mais, à l'instant de l'ionisation, la vitesse de ces paquets est quasi-nulle, il est difficile dès lors de négliger l'influence du potentiel Coulombien sur l'évolution du paquet dans cette zone tunnel. Aux basses énergies, l'équivalence entre une onde plane et une onde Coulombienne est sans fondement. Dans le régime d'ionisation par un champ statique, [Scrinzi *et al*, 00] ont effectué des calculs où l'effet du potentiel Coulombien peut être supprimé, dans le même esprit que la démarche de [Lewenstein *et al*, 94]. La conclusion de ces calculs est que, d'une part, les taux d'ionisation sont sous-estimés d'un facteur 4 environ si le potentiel n'est pas pris en compte. De plus, le spectre en énergie des électrons est décalé en terme de moments canoniques, les contributions des faibles moments canoniques étant favorisées lorsque l'on tient compte du potentiel Coulombien. Ces considérations tout à fait qualitatives révèlent cependant que la distribution en moment canonique initiale du paquet émis doit être influencée de manière non négligeable par le potentiel. Or, ce dernier induit notamment une modification du terme de phase intervenant dans l'intégrand de l'équation (2.15) et par conséquent une modification des équations aux phases stationnaires.

Puisque nous nous intéressons aux harmoniques d'ordre élevé, cette méthode n'est véritablement applicable que pour effectuer l'intégration sur $\mathbf{p}$. Ce qui signifie que les moments canoniques dominants sont déterminés par la propagation et non par l'instant d'émission.

Dans le processus de GHOE, l'important est que la trajectoire soit fermée de manière à ce qu'une recombinaison avec l'état fondamental très localisé spatialement, soit possible. La sélection des τ correspondants est effectuée par la suite numériquement.

En ce qui concerne l'évaluation du dipôle, la méthode des phases stationnaires permet la simplification suivante :

$$\begin{aligned} \int d\mathbf{p} f(\mathbf{p}) \exp(-i S(\mathbf{p}, t, \tau)) &\approx \left(\frac{2\pi}{i\tau}\right)^{3/2} \exp(-i S(\mathbf{p}_{\text{stat}}, t, \tau)) \\ &\times \left(1 - \frac{i}{2\tau} \frac{\partial^2}{\partial \mathbf{p}^2} f(\mathbf{p})\right)_{\mathbf{p}=\mathbf{p}_{\text{stat}}}, \quad (2.25) \end{aligned}$$

où $\mathbf{p}_{stat}$ est donné par l'équation aux phases stationnaires (2.18) et s'écrit :

$$\mathbf{p}_{stat}(t, \tau) = -\frac{1}{\tau} \int_{t-\tau}^t dt' \mathbf{A}(t'). \quad (2.26)$$

Remarquons que jusqu'ici toutes les approximations effectuées dans le cadre adiabatique peuvent s'appliquer aux impulsions brèves, lorsque l'on inclut une enveloppe temporelle au champ. En revanche, l'intégration analytique sur τ relativement complexe dans le cas adiabatique devient encore plus difficile dans un cadre "non-adiabatique". Commentons, pour terminer, le résultat de l'intégration sur $\mathbf{p}$. Elle implique l'introduction d'un facteur de décroissance en $\tau^{-3/2}$ qui traduit le phénomène de diffusion quantique. Le paquet émis dans le continuum s'étale et réduit significativement les contributions de temps de retour supérieurs à une période laser (≈ 100 u.a.).

L'expression du dipôle dont nous tenons compte dans la suite de ce travail prend donc la forme suivante :

$$\begin{aligned} \mathbf{d}^L(t) &= i \int_0^{t-t_0} d\tau \left(\frac{2\pi}{\varepsilon + i\tau} \right)^{3/2} \langle 1s | \mathbf{R} | \mathbf{p}_{stat} + \mathbf{A}(t) \rangle \\ &\times \langle \mathbf{p}_{stat} + \mathbf{A}(t - \tau) | \mathbf{R} | 1s \rangle \cdot \mathbf{E}(t - \tau) \\ &\times \exp[-iS(\mathbf{p}_{stat}, t, \tau)] \\ &+ \text{c.c.}, \end{aligned} \quad (2.27)$$

qui ne contient aucune singularité dans la mesure où l'intégration finale sur τ est effectuée sur l'axe réel.

En conclusion à cette introduction théorique du modèle que nous avons utilisé dans le cas d'impulsions femtosecondes, il est intéressant de signaler que le modèle quantique de GHOE permettant d'obtenir une expression quasi-analytique du dipôle atomique est tout à fait cohérent avec le modèle semi-classique si l'on excepte les effets dus à la diffusion quantique et au processus d'émission tunnel. Ce dernier processus se révèle, toutefois, être le talon d'Achille du modèle de Lewenstein. Néanmoins, lorsque l'intégrale sur τ est effectuée numériquement, il apparaît clairement que les temps de retour déterminés de manière classique jouent un rôle dominant dans le dipôle atomique. Dans le modèle de Lewenstein, la méthode des phases stationnaires permet de sélectionner les trajectoires classiques caractérisées par leur temps de retour c'est-à-dire τ_{max} pour les harmoniques de la coupure correspondant à une énergie cinétique de $3.17 U_p$, et τ_1, τ_2 pour les harmoniques du plateau correspondant à des énergies cinétiques de l'ordre de $2 \rightarrow 3.17 U_p$.

On peut donc considérer une approximation extrêmement “crue” du dipôle atomique sous la forme :

$$\mathbf{d}^{\mathbf{L}}(t) \approx \sum_i F(t, \tau_i) e^{-iS(t, \tau_i)} \quad (2.28)$$

où i dénote toutes les trajectoires classiques satisfaisant l'équation des phases stationnaires sur $\mathbf{p}$. Dans l'expression de l'action quasi-classique $S(t, \tau_i)$ il est facile d'isoler le terme $U_p \tau_i$, le reste étant une fonction relativement complexe mais oscillante que nous posons sous la forme : $g(t, \tau_i)$, tandis que la fonction $F(t, \tau_i)$ correspond à l'amplitude relative de chaque trajectoire correspondant à l'intégrand de l'équation (2.27). De cette manière, [Salières *et al*, 99, Antoine *et al*, 96b] ont mis en évidence que la q^e composante de Fourier du dipôle peut s'écrire sous la forme simplifiée :

$$\mathbf{d}^{\mathbf{L}}(q\omega) = \sum_i a(q\omega, \tau_i) e^{-iU_p \tau_i}, \quad (2.29)$$

c'est-à-dire pour une harmonique du plateau :

$$\mathbf{d}^{\mathbf{L}}(q\omega) = a(q\omega, \tau_1) e^{-iU_p \tau_1} + a(q\omega, \tau_2) e^{-iU_p \tau_2}. \quad (2.30)$$

L'amplitude a est évidemment complexe et peut par conséquent modifier le terme de phase $-U_p \tau_i$ mais ce dernier reste le terme dominant qui caractérise la *phase intrinsèque* de la q^e harmonique. Elle possède une dépendance linéaire en fonction de l'intensité du champ. Par conséquent elle est cruciale du point de vue de la propagation des harmoniques dans le milieu gazeux (cf. la quatrième partie de notre travail). Cette formule “simpliste” du dipôle permet d'autre part de comprendre l'allure qualitative du spectre d'harmoniques dans la fin du plateau et de définir la position exacte de la coupure par le critère suivant :

- l'ultime harmonique du plateau correspond classiquement à deux temps de retour très proches mais distincts. En se référant à la figure 2.4, il est clair que les trajectoires correspondantes sont amorcées et refermées à des amplitudes de champ électrique comparables. Dans la formule du dipôle précédente, les amplitudes associées aux deux trajectoires sont donc identiques en bonne approximation. Formellement, l'intensité d'une harmonique du plateau peut s'écrire sous la forme :

$$|\mathbf{d}^{\mathbf{L}}(q\omega)|^2 = |a_1|^2 + |a_2|^2 - 2|a_1||a_2|\cos(U_p(\tau_2 - \tau_1)). \quad (2.31)$$

Comme $\tau_2 - \tau_1 \approx 0$, l'amplitude de cette harmonique doit être réduite comparativement à celle de l'harmonique définissant la position de la coupure en raison de cette interférence quantique entre les deux trajectoires. Cette diminution peut être observée sur un spectre de GHOE

obtenu en résolvant numériquement l'ESDT mais également en utilisant le modèle de Lewenstein comme le montre la figure 2.6.

En conclusion, pour déterminer la position de la coupure, il faut rechercher, en fait, la position du dernier minimum dans l'amplitude des harmoniques émises, l'harmonique suivante étant celle définissant la coupure. En procédant de cette manière, il est possible de vérifier que la position de la coupure est très bien reproduite par la loi : $I_p + 3.17 U_p$ (cf. figure 2.6)

Signalons de plus que la dominance de ces deux trajectoires a également été validée à l'échelle macroscopique [Gaarde *et al*, 99]. D'après la simplification précédente, $U_p \tau_1$ et $U_p \tau_2$ dominent la phase intrinsèque du dipôle intervenant dans les études de propagation dans le milieu. Donc, les deux temps de retour pondèrent en quelque sorte la réponse de chaque trajectoire au gradient d'intensité existant au sein du faisceau laser. En modifiant la position du jet par rapport au foyer du faisceau, il est possible de réduire significativement le rôle de l'une ou l'autre des trajectoires [Salières *et al*, 99]. Une expérience de cohérence temporelle des harmoniques [Bellini *et al*, 98] a clairement mis en évidence deux régions distinctes dans les franges d'interférences obtenues coïncidant avec le comportement distinct des deux trajectoires par rapport au gradient d'intensité radial existant au sein du faisceau.

Il faut donc retenir de cette description quantique du processus de GHOE qu'elle permet de reproduire de manière précise, à l'exception d'un facteur d'échelle, le spectre des harmoniques obtenu de manière exact pour les harmoniques les plus élevées comme le montre la figure 2.6. Si la description de l'émission dans le continuum présente des lacunes car le potentiel Coulombien est inexistant dans le modèle, cela n'a qu'une faible incidence sur le comportement de ces harmoniques. Ce modèle donne accès à une évaluation presque analytique du dipôle dont la phase permet de plus de comprendre le comportement des harmoniques du point de vue de la propagation dans le milieu. Et finalement, en ce qui concerne l'étude qui va suivre dans le cadre des impulsions brèves, il est important de se rappeler que les approximations effectuées dans un contexte adiabatique, s'applique toujours lorsque l'on inclut une enveloppe temporelle dans la description du champ électrique. Ainsi, nous utilisons le modèle de Lewenstein, dans la troisième partie de notre travail, comme un outil théorique pour expliquer l'allure des spectres de GHOE en considérant des impulsions de quelques cycles optiques entre l'atome et le champ laser.

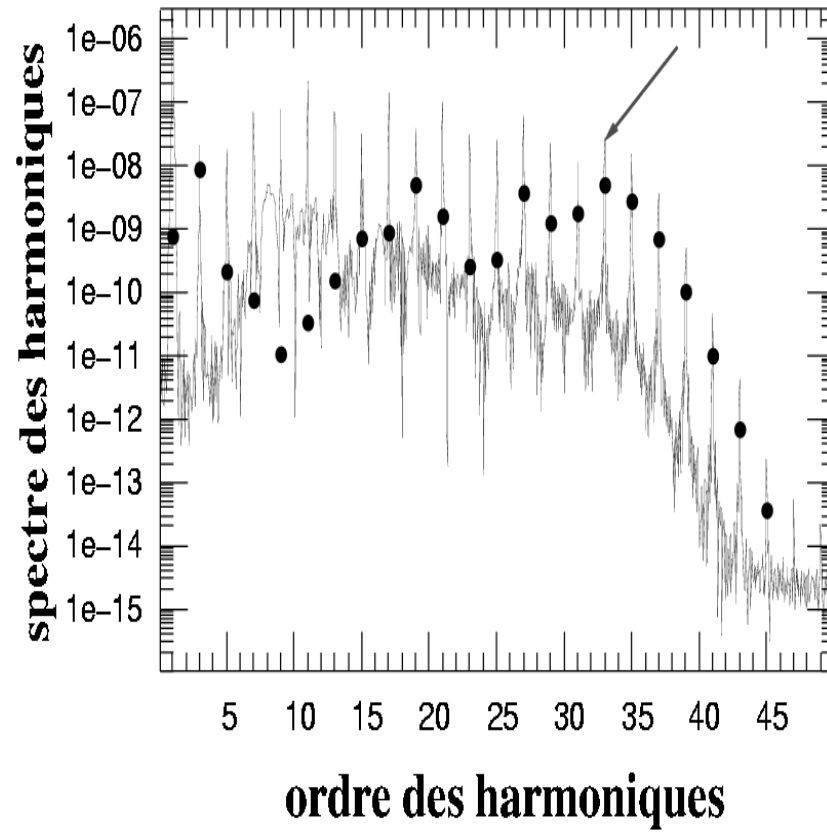


FIG. 2.6: Exemple de spectre de GHOE obtenu par la résolution exacte de l'ESDT (en trait plein) et dans le modèle de Lewenstein (points) extrait de [Antoine *et al*, 97]. La fréquence utilisée est de 0.047 u.a. et l'intensité de 10^{14} W/cm^2 . La flèche indique la position de la coupure en se basant sur le principe d'interférence quantique pour la dernière harmonique du plateau (détaillé dans le texte).

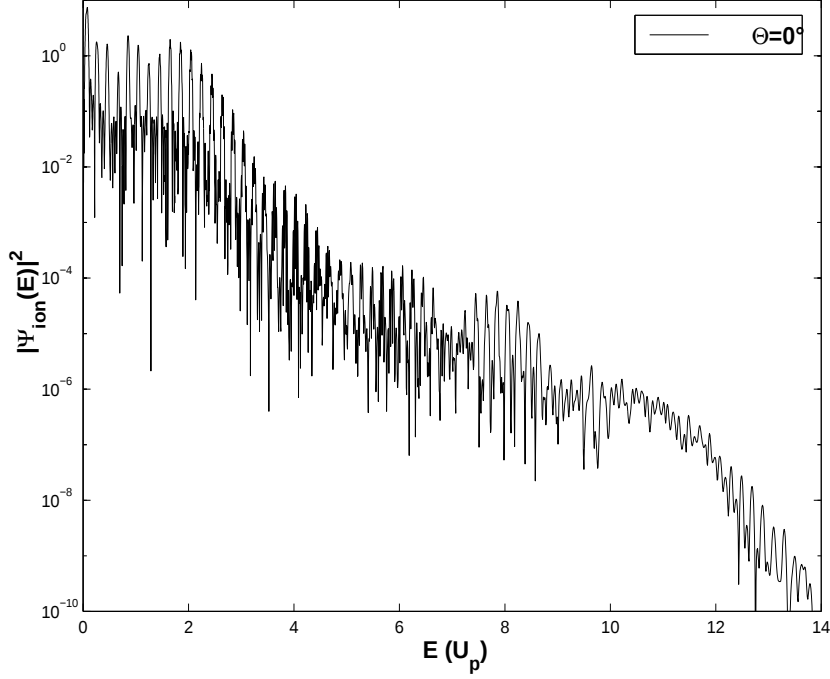


FIG. 2.7: Spectre des électrons éjectés vers l'avant après une interaction de 8 cycles optiques de l'hydrogène avec un laser polarisé linéairement, d'intensité $I = 1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et de fréquence $\omega = 0.057 \text{ u.a.}$. L'énergie cinétique est évaluée en fonction du potentiel pondérateur $U_p = 0.286 \text{ u.a.}$.

2.4 Généralisation à l'étude de l'ionisation au-dessus du seuil (ATI)

A titre d'exemple, nous présentons les principales caractéristiques d'un spectre d'électrons qu'il est possible d'interpréter dans le modèle quantique du champ fort. Le spectre d'électrons représenté sur la figure 2.7 est évalué par la méthode de résolution numérique de l'ESDT dans l'espace des moments que nous exposons dans la deuxième partie de ce travail. Il correspond à une interaction de 8 cycles optiques pour une intensité laser de $I = 1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, le laser étant polarisé linéairement. Le spectre est ici représenté pour une direction d'éjection particulière des électrons, en l'occurrence vers l'avant, suivant l'axe de polarisation ($\theta = 0$). La durée de l'interaction extrêmement brève justifie la résolution très faible des derniers pics ATI situé vers $10 - 12 U_p$.

Ce spectre reflète tout à fait les caractéristiques des spectres ATI tels que l'on peut en mesurer actuellement. Il est donc essentiellement formé de deux "plateaux". Chaque plateau est constitué de pics séparés par l'énergie d'un photon $\hbar\omega$, ce que l'on peut comprendre dans l'image multiphotonique

du processus d'ionisation. Dans notre analyse de la dynamique de l'ionisation, nous proposons une interprétation détaillée de ces spectres, nous nous concentrons maintenant sur leur allure générale. Le premier plateau s'étend jusqu'en $E_k \approx 2U_p$, il est suivi d'une coupure brutale, l'intensité des pics diminue très rapidement de trois ou quatre ordres de grandeur, mais se forme alors un second plateau qui s'étend lui jusqu'en $10U_p$. C'est donc ce deuxième plateau qui justifie la généralisation du modèle du champ fort décrit précédemment. En effet, du point de vue de l'interprétation semi-classique, la deuxième partie du spectre ATI ne peut être comprise que si l'on tient compte du processus de rediffusion des électrons par le potentiel au moment où ils reviennent vers le noyau. Nous précisons ce mécanisme en décrivant la généralisation du modèle du champ fort proposée par [Lewenstein *et al*, 95].

Nous avons montré que, dans le cas de la GHOE, les états du continuum considérés sont simplement des ondes planes c'est-à-dire des états de Volkov durant l'interaction ; l'effet du potentiel Coulombien sur les états du continuum étant tout à fait négligé. La généralisation du modèle pour décrire les processus ATI consiste à inclure perturbativement une contribution du potentiel dans les amplitudes de transition vers des états du continuum. Pour expliquer la présence du deuxième plateau cette démarche perturbative se justifie par l'intensité des pics ATI dans cette gamme d'énergie (4 ordres de grandeurs en-dessous du premier "plateau"). Cette correction est effectuée en modifiant les termes de couplages continuum-continuum intervenant dans l'évolution des amplitudes de transition $b(\mathbf{v}, t)$:

$$\begin{aligned} i \frac{\partial}{\partial t} b(\mathbf{v}, t) &= \left(\frac{v^2}{2} + I_p \right) b(\mathbf{v}, t) \\ &+ a(t) \langle \mathbf{v} | \mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{R} | 1s \rangle \\ &+ \int d\mathbf{v}' \langle \mathbf{v} | \mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{R} | \mathbf{v}' \rangle b(\mathbf{v}', t). \end{aligned} \quad (2.32)$$

En supposant que l'ionisation reste faible $a(t) \approx 1$. Les couplages dipolaires continuum-continuum doivent maintenant s'écrire :

$$\langle \mathbf{v} | \mathbf{R} | \mathbf{v}' \rangle = -i \nabla_{\mathbf{v}'} \delta(\mathbf{v} - \mathbf{v}') + \mathbf{g}(\mathbf{v}, \mathbf{v}'). \quad (2.33)$$

Le premier terme est identique à celui utilisé dans le modèle de la génération d'harmoniques d'ordre élevé, tandis que le second terme tient compte des processus de diffusion élastique ($v^2/2 = v'^2/2$) et inélastique par le potentiel. Ce développement correspond à la première approximation de Born que nous évoquons dans la section 3.2.2, rappelons par la même occasion qu'un tel développement n'est envisageable dans le cas du potentiel Coulombien pur que si les énergies considérées sont élevées. Le modèle s'attachant à expliquer

l'existence du deuxième plateau, nous nous intéressons ici à des énergies de l'ordre de $10 U_p \approx 77 \text{ eV}$ dans l'exemple de la figure 2.7, cette approximation peut donc être envisagée même dans le cas du potentiel Coulombien. L'évolution des amplitudes b peut à nouveau s'écrire :

$$\begin{aligned} i \frac{\partial}{\partial t} b(\mathbf{v}, t) &= \left(\frac{v^2}{2} + I_p \right) b(\mathbf{v}, t) + E(t) \cdot \langle \mathbf{v} | z | 1s \rangle \\ &+ i \mathbf{E}(t) \cdot \nabla_{\mathbf{v}} b(\mathbf{v}, t) \\ &+ \int d\mathbf{v}' g_z(\mathbf{v}, \mathbf{v}') b(\mathbf{v}', t). \end{aligned} \quad (2.34)$$

Les spectres des électrons émis s'obtiennent en déterminant les amplitudes de transition à la fin de l'interaction $b(\mathbf{v}, t = \Delta t) = b(\mathbf{v})$. Cette démarche perturbative permet de définir deux contributions $b(\mathbf{v}) = b_0(\mathbf{v}) + b_1(\mathbf{v})$, où :

1. la contribution d'ordre zéro :

$$\begin{aligned} b_0(\mathbf{v}) &= i \int_0^{\Delta t} dt' E(t') \langle \mathbf{v} - \mathbf{A}(t') | z | 1s \rangle \\ &\times \exp [-i S(\mathbf{v}, \Delta t, t')] , \end{aligned} \quad (2.35)$$

peut être interprétée comme une transition dipolaire directe vers un état de Volkov à l'instant t' suivi d'une propagation libre jusqu'à la fin de l'interaction. Les effets du potentiel dans ce mécanisme sont supposés négligeables, le moment canonique acquis au moment de l'émission dans le continuum n'est donc pas modifié et est égal à $\mathbf{v}$. Les électrons ionisés par un tel mécanisme sont appelés **électrons directs ou indirects** ; l'énergie maximale pouvant être acquise lors d'un tel processus n'excédant pas $2 U_p$.

2. La contribution d'ordre 1 est obtenue en insérant la contribution b_0 dans l'équation (2.34), la solution de l'équation différentielle obtenue s'écrit alors :

$$\begin{aligned} b_1(\mathbf{v}) &= - \int_0^{\Delta t} dt' \int_0^{t'} dt'' \int d\mathbf{v}' E(t') \\ &\times g_z(\mathbf{v} - \mathbf{A}(t'), \mathbf{v}' - \mathbf{A}(t')) \\ &\times \exp [-i S(\mathbf{v}, \Delta t, t')] \\ &\times E(t'') \langle \mathbf{v}' - \mathbf{A}(t'') | z | 1s \rangle \\ &\times \exp [-i S(\mathbf{v}', t', t'')] \end{aligned} \quad (2.36)$$

L'interprétation de cette approximation du premier ordre correspond au mécanisme d'ionisation suivant : à l'instant t'' , l'électron est émis

dans le continuum par une transition dipolaire d'amplitude :

$$E(t'') \langle \mathbf{v}' - \mathbf{A}(t'') | z | 1s \rangle.$$

Il se propage ensuite librement jusqu'au temps t' où il est diffusé par le potentiel puis à nouveau effectue une propagation libre dans le champ jusqu'à la fin de l'interaction. Les électrons ionisés par un tel mécanisme sont les **électrons rediffusés**.

Ce deuxième mécanisme a permis de justifier l'existence du deuxième plateau. [Lewenstein *et al*, 95] ont de plus montré que l'extension de ce dernier jusqu'à $10 U_p$ était essentiellement due à une diffusion élastique vers l'arrière : le moment mécanique de l'électron change de signe au moment de la rediffusion sans que l'énergie cinétique ne soit modifiée. Cette démarche a permis d'expliquer qualitativement les spectres d'électrons. Les figures d'interférence visibles aux hautes énergies sur les spectres, par exemple en $E \approx 7 U_p$ sur la figure 2.7 sont expliquées en terme d'interférences quantiques de plusieurs natures :

- lorsque l'on évalue la probabilité de transition

$$|b(\mathbf{v})|^2 = |b_0(\mathbf{v}) + b_1(\mathbf{v})|^2.$$

Dans une gamme d'énergie proche de $2U_p$ des électrons provenant des deux différents mécanismes peuvent donner lieu à la même énergie cinétique finale avec des amplitudes comparables mais des phases différentes, ce qui donne lieu à une interférence destructive pour le pic correspondant.

- On peut, comme dans le cas de la GHOE, effectuer formellement l'approximation des phases stationnaires et extraire les contributions dominantes aux amplitudes de transitions b_0 et b_1 . Comme pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé, ces contributions dominantes, en tous les cas pour les hautes énergies accessibles, correspondent aux trajectoires classiques qui satisfont les conditions suivantes⁴ :

$$\left. \begin{aligned} (\mathbf{p} + \mathbf{A}(t''))^2 &= -2 I_p \} \rightarrow b_0 \\ \mathbf{p} \times (t' - t'') &= - \int_{t''}^{t'} \mathbf{A}(\tau) d\tau \\ (\mathbf{p} + \mathbf{A}(t'))^2 &= (\mathbf{k} + \mathbf{A}(t'))^2 \end{aligned} \right\} \rightarrow b_1 \quad (2.37)$$

La première équation est la condition sur le temps d'émission dans le continuum, devant acquérir une partie imaginaire pour qu'il existe

⁴ $\mathbf{p}$ et $\mathbf{k}$ désignent ici les moments *canoniques*

une solution. *Pour cette raison, on attribue ce mécanisme d'ionisation à l'effet tunnel.* La deuxième équation traduit la condition de retour vers le noyau à l'instant t' et finalement la troisième correspond à la diffusion élastique par le potentiel avec modification du moment canonique mais pas de l'énergie cinétique. Pour rester succinct, la résolution de ce système d'équations donne systématiquement lieu à des paires de solutions sur une période laser pour chaque énergie accessible. [Kopold *et al*, 00], par exemple, ont prouvé que ces deux chemins quantiques associés à deux temps d'ionisation différents interféraient de manière destructive pour certaines valeurs de l'énergie, ce qui permet de comprendre qualitativement les minima obtenus dans la partie haute énergie du spectre.

2.5 Problème posé par l'approximation du champ fort

Ce modèle d'approximation du champ fort nous amène à soulever le problème suivant : l'approximation d'ordre zéro exposée ci-dessus est l'approximation effectuée par Keldysh pour rendre compte du taux d'ionisation global, lors de l'interaction de l'hydrogène avec des champs intenses. Le taux obtenu prend la forme (F désigne ici l'amplitude du champ électrique) :

$$w(F) \propto \sqrt{F} \exp\left(-\frac{2}{3F}\right),$$

lorsque l'on intègre la solution $b_0(\mathbf{v})$ sur toutes les vitesses. Mais, cette approximation conduit à une sous-estimation de l'ionisation obtenue lors de la résolution numérique de l'ESDT.

Une correction du taux de Keldysh fut proposée par [Perelomov *et al*, 67] et généralisée aux atomes complexes par [Ammosov *et al*, 86]. Ce taux est couramment désigné sous le nom de taux A.D.K. et s'écrit dans le cas de l'hydrogène atomique ($\gamma \ll 1$) :

$$w(F) = |C_{nl}|^2 \left(\frac{3F}{\pi}\right)^{1/2} \left(\frac{2}{F}\right)^{2n-m-1} f(l, m) I_p \exp\left(-\frac{2}{3F}\right), \quad (2.38)$$

où

$$|C_{nl}|^2 = \frac{2^{2n}}{n(n+l)!(n-l-1)!},$$

$$f(l, m) = \frac{(2l+1)(l+|m|)}{2^{|m|}(|m|)!(l-|m|)!}.$$

Il s'agit d'un taux moyenné sur un cycle optique. Nous le comparons maintenant avec les résultats que nous obtenons par résolution numérique de l'ESDT (par la méthode décrite dans la deuxième partie). Le taux A.D.K. peut être comparé à la largeur Stark du fondamental $\bar{\Gamma}_{1s}$ telle que :

$$|a_{1s}(t)|^2 \approx \exp[-\bar{\Gamma}_{1s} \times (t - t_0)]$$

avec $|a_{1s}(t)|^2$, la population dans l'état fondamental "nu" en fonction du temps. Pour réaliser cette comparaison, nous utilisons une impulsion pendant laquelle l'intensité I du laser reste constante sur 6 cycles optiques. Nous extrayons $\bar{\Gamma}_{1s}$ sur cet intervalle de temps. Nous la comparons également avec l'approximation basse fréquence de la quasi-énergie $\tilde{E}_{ac}(F, \omega)$ de l'état $1s$ [Pont *et al*, 92]. Cette approximation correspond à un développement en puissance de ω^2 de $\tilde{E}_{ac}(F, \omega)$:

$$\tilde{E}_{ac}(F, \omega) = \sum_m E^{(m)}(F) \omega^{2m},$$

la partie imaginaire de $\tilde{E}_{ac}(F, \omega)$ correspondant à $\bar{\Gamma}_{1s}(F, \omega)$.

Les coefficients du développement $E^{(m)}(F)$ sont évalués numériquement et tabulés dans [Pont *et al*, 92] pour la gamme d'intensité

$$I = 3 \times 10^{13} W/cm^2 \rightarrow 3 \times 10^{14} W/cm^2.$$

La validité de cette formule est également donnée en fonction du paramètre de Keldysh $\gamma \lesssim 1$. Nous pouvons donc la comparer avec nos résultats numériques pour la fréquence $\omega = 0.057 \text{ u.a.}$. Dans notre cas, l'intervalle d'intensité étudié est

$$10^{14} W/cm^2 \rightarrow 8 \times 10^{14} W/cm^2.$$

Les 3 méthodes sont comparées sur la figure 2.8. Nous remarquons que l'accord entre l'approximation en ω^2 et nos résultats numériques est très bon. Aux hautes intensités, les résultats numériques sont une extrapolation de la formule proposée par [Pont *et al*, 92]. En revanche, nous constatons que le taux A.D.K. surestime largement la valeur des taux numériques. Signalons toutefois que, dans le cas d'atomes complexes, la formule A.D.K. d'[Ammosov *et al*, 86] s'avère être en accord qualitatif avec les résultats expérimentaux [Augst *et al*, 91]. Quelles sont donc les raisons de ce désaccord quantitatif ?

Il nous faut rappeler que ce taux fut obtenu par [Perelomov *et al*, 67] en introduisant dans la démarche de Keldysh une *correction Coulombienne* à l'action quasi-classique $S(\mathbf{p}, t, t')$ mise en évidence dans le modèle du champ

fort. Ce qui signifie que l'influence du potentiel Coulombien est traitée perturbativement lors de la propagation de l'électron dans le champ laser. Ceci implique que les paquets d'électrons injectés par effet tunnel dans le continuum doivent "naître" *loin* du noyau pour que cette approche perturbative soit valable. Cette condition est d'ailleurs bien spécifiée dans l'approche de Keldysh. Aux intensités laser considérées $I \ll I_{sat}$, la barrière formée par le potentiel Coulombien et le champ électrique doit être *large* comparativement à la première orbite de Bohr.

Nous constatons donc que cette approche perturbative conduit dans le domaine d'intensité qui nous intéresse à une surestimation du taux d'ionisation, car nous nous trouvons en fait dans une gamme d'intensité $I \leadsto I_{sat}$. Nous rappelons dans la deuxième partie de notre travail que $I_{sat} \approx 8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ pour l'hydrogène⁵, valeur obtenue par [Shakeshaft *et al*, 90]. Cette gamme d'intensité, dans le cas de l'hydrogène atomique, est pourtant celle où le processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé est important comme nous l'étudions dans la troisième partie de notre travail. Or, l'interprétation physique de ce processus est liée au modèle "tunnel" proposé par Keldysh.

Une étude systématique des différents modèles théoriques existants pour caractériser l'ionisation a été effectuée par [Bauer *et al*, 99]. Elle a montré que la plupart de ces modèles - tous de type "Keldysh" - échoue dans l'évaluation des taux que l'on peut comparer aux résultats exacts obtenus par résolution de l'ESDT. Une de nos motivations est donc de comprendre les raisons de ce désaccord quantitatif. C'est le mécanisme d'injection dans le continuum c'est-à-dire la dynamique de l'ionisation que nous voulons étudier qualitativement dans la suite de ce travail, dans un domaine d'intensité proche de la valeur de saturation. Notre problématique est donc la suivante :

- lorsque l'intensité tend vers l'intensité de saturation et donc lorsque la barrière Coulombienne "s'amincit", quel est le rôle joué par le potentiel Coulombien dans le mécanisme d'ionisation ?
- Bien que $\gamma < 1$, la théorie de Keldysh (ionisation par effet tunnel) explique-t-elle réellement le mécanisme dominant de l'ionisation ?

C'est pour tenter de répondre à ces questions que nous développons une méthode de résolution de l'ESDT directement dans l'espace des moments. Nous venons de montrer que le moment canonique joue un rôle important dans la compréhension des processus ayant lieu lors de l'interaction atome

⁵ ce qui correspond à l'intensité nécessaire pour tout ioniser en moins d'une période laser.

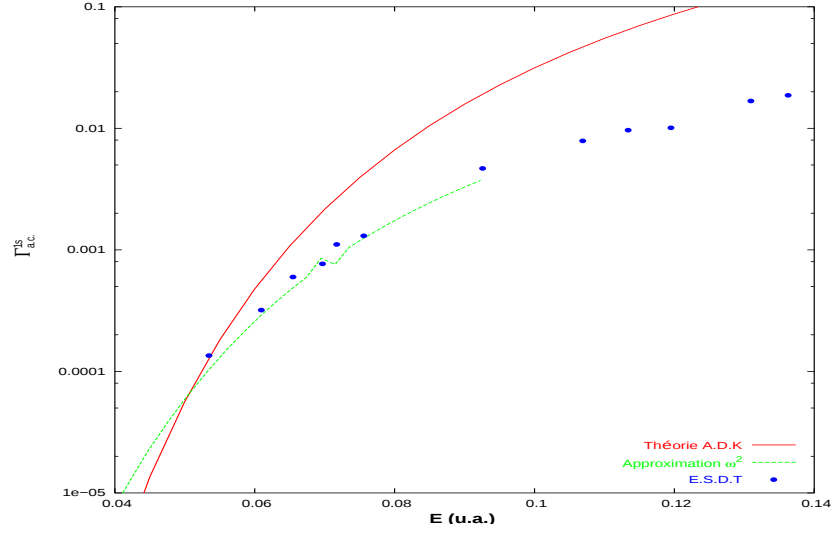


FIG. 2.8: Taux d'ionisation moyen obtenu en utilisant la théorie ADK [Ammosov *et al*, 86], le développement en ω^2 proposé par [Pont *et al*, 92], et nos résultats obtenus par la résolution de l'ESDT dans l'espace des moments (méthode développée dans la deuxième partie de ce travail). Les taux sont représentés en fonction de l'amplitude F du champ électrique en u.a. avec la conversion $E(u.a.) = \sqrt{I(W/cm^2)}/3.5 \times 10^{16}$, I est l'intensité du laser.

d'hydrogène-champ fort basse fréquence. Nous voulons également montrer que l'espace des moments s'avère être un outil très intéressant pour étudier la dynamique du mécanisme d'ionisation.

Deuxième partie

Le moment canonique et la dynamique de l'ionisation

Chapitre 3

L'ESDT dans l'espace des moments

Le spectre de l'atome d'hydrogène fait partie de l'enseignement de base de la physique atomique, il a fait l'objet de développements analytiques exacts qu'il est superflu de rappeler en général. Les paragraphes qui suivent se justifient par le simple fait que nous nous sommes attachés à la description de ce système de référence en Physique Atomique, du point de vue des moments et non en terme de positions. Or la structure de l'hydrogène et la démarche analytique pour l'obtenir sont rarement évoquées dans le cursus d'un atomiste, il est donc utile, à notre avis, de rappeler la nature du problème et les moyens utilisés pour le résoudre [Bethe, 57, Bransden *et al*, 83]. Nous effectuons ces rappels de structure également pour montrer dans quelle mesure l'approximation du champ fort que nous venons de développer s'avère inexacte pour décrire correctement les états du continuum Coulombien.

3.1 Le problème aux valeurs propres généralisé

Le Hamiltonien d'un atome à un électron actif dans la représentation des positions est composé de l'opérateur énergie cinétique et de l'opérateur correspondant au potentiel Coulombien attractif associé à la charge nucléaire Z . En supposant que $\Psi(\mathbf{r})$ est un état stationnaire du système correspondant à l'énergie E , il doit par conséquent satisfaire l'équation :

$$-\frac{\nabla^2}{2} \Psi(\mathbf{r}) + V(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{r}) = E\Psi(\mathbf{r}). \quad (3.1)$$

Nous nous intéressons à la forme équivalente de cette dernière dans la représentation des impulsions. Elle est obtenue en effectuant la transformée de Fourier :

$$\Psi(\mathbf{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \int d\mathbf{p} \Phi(\mathbf{p}) e^{i(\mathbf{p}\cdot\mathbf{r})}. \quad (3.2)$$

Insérons l'équation (3.2) dans l'équation (3.1) nous obtenons alors :

$$\int d\mathbf{p}' \frac{\mathbf{p}'^2}{2} \Phi(\mathbf{p}') + \int d\mathbf{p}' V(\mathbf{r}) \Phi(\mathbf{p}') e^{i\mathbf{p}'\cdot\mathbf{r}} = E \int d\mathbf{p}' \Phi(\mathbf{p}') e^{i\mathbf{p}'\cdot\mathbf{r}}, \quad (3.3)$$

et finalement, en projetant l'équation (3.3) sur une onde plane $\frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{-i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}}$ particulière, on obtient le problème aux valeurs propres généralisé dans l'espace des impulsions :

$$\frac{\mathbf{p}^2}{2} \Phi(\mathbf{p}) + \int d\mathbf{p}' \tilde{V}(\mathbf{p}' - \mathbf{p}) \Phi(\mathbf{p}') = E \Phi(\mathbf{p}), \quad (3.4)$$

où

$$\tilde{V}(\mathbf{p}' - \mathbf{p}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int d\mathbf{r} V(\mathbf{r}) e^{i(\mathbf{p}' - \mathbf{p})\cdot\mathbf{r}} \quad (3.5)$$

est la transformée de Fourier du potentiel considéré. La forme intégrale de l'équation (3.4) est due à la non-localité *a priori* du potentiel dans la représentation des moments. Une condition de linéarisation de l'équation (3.4) serait d'imposer que son noyau (le potentiel) tende "au sens des distributions" vers une fonction delta : $\tilde{V}(\mathbf{p}' - \mathbf{p}) = \tilde{V}(\mathbf{p}) \delta(\mathbf{p}' - \mathbf{p})$. En Physique atomique, et particulièrement dans la description d'un atome hydrogénoïde, les transformées de Fourier des potentiels couramment utilisés ne satisfont pas cette condition. Le potentiel Coulombien $V(\mathbf{r}) = -\frac{Z}{r}$ décrivant exactement le système hydrogénoïde n'échappe pas à la règle. En effet sa transformée de Fourier s'écrit :

$$\tilde{V}(|\mathbf{p}' - \mathbf{p}|) = -\frac{Z}{2\pi^2(\mathbf{p}' - \mathbf{p})^2}. \quad (3.6)$$

Le caractère central du potentiel considéré dans la représentation des positions $V(\mathbf{r}) = V(r)$ implique que sa transformée de Fourier ne dépende que du module du transfert d'impulsion $q = |\mathbf{p}' - \mathbf{p}|$. Il implique également qu'une solution $\Psi(\mathbf{r})$ à l'équation (3.1) puisse se mettre sous la forme :

$$\Psi(\mathbf{r}) = R_{El}(r) Y_{lm}(\theta_r, \phi_r), \quad (3.7)$$

où (r, θ_r, ϕ_r) sont les coordonnées sphériques correspondant à la position $\mathbf{r}$. Il est, de ce fait, très simple de prouver que la solution duale $\Phi(\mathbf{p})$ peut, elle aussi, s'écrire avec le jeu de coordonnées sphériques (p, θ_p, ϕ_p) correspondant à l'impulsion $\mathbf{p}$:

$$\Phi(\mathbf{p}) = F_{El}(p) Y_{lm}(\theta_p, \phi_p). \quad (3.8)$$

Il reste à rappeler l'équation satisfaite par la solution radiale $F_{El}(p)$ en revenant à l'équation (3.4). [Bransden *et al*, 83] rappellent que la démarche

standard pour l'obtenir est de considérer le développement en polynômes de Legendre du noyau :

$$\tilde{V}(|\mathbf{p}' - \mathbf{p}|) = \sum_{l=0}^{+\infty} T_l(p, p') P_l(\cos(\theta)), \quad (3.9)$$

$$\text{où } \cos(\theta) = \frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{p}'}{pp'} = x \text{ et}$$

$$T_l(p, p') = \frac{2l+1}{2} \int_{-1}^{+1} dx P_l(x) \tilde{V}(|\mathbf{p}' - \mathbf{p}|). \quad (3.10)$$

La démonstration est résumée dans l'appendice B.1, et nous amène à la forme finale de l'équation intégrale que doit satisfaire $F_{EL}(p)$ de manière à représenter la partie radiale d'un état stationnaire du système hydrogénoïde associé à l'énergie E :

$$\left(\frac{\mathbf{p}^2}{2} - E \right) F_{El}(p) = \frac{Z}{\pi p} \int_0^{+\infty} dp' p' Q_l \left(\frac{p^2 + p'^2}{2pp'} \right) F_{El}(p') \quad (3.11)$$

qui est appelée “équation intégrale homogène de Fredholm du second genre”.

Le noyau $Q_l \left(\frac{p^2 + p'^2}{2pp'} \right)$ est une fonction de Legendre du second genre dont l'allure pour quelques valeurs du moment angulaire l est représentée sur la figure 3.1. Dans l'appendice B.2, nous revenons en détails sur la nature et les différentes propriétés de ce noyau, car la précision de la méthode que nous développons dans ce chapitre pour déterminer numériquement les états propres du Hamiltonien dépend fortement des techniques numériques utilisées pour l'évaluer. Nous rappelons maintenant les solutions analytiques du problème aux valeurs propres généralisé.

3.2 Solutions analytiques pour les états stationnaires

3.2.1 Les états liés

Le problème aux valeurs propres généralisé pour le spectre lié fut résolu par [Fock, 35], directement dans l'espace des impulsions. Du point de vue radial, les états propres liés s'expriment en terme de polynômes de Gegenbauer de la manière suivante :

$$F_{nl}(p) = \left[\frac{2}{\pi} \frac{(n-l-1)!}{(n+l)!} \right]^{1/2} n^2 2^{2l+2} l!$$

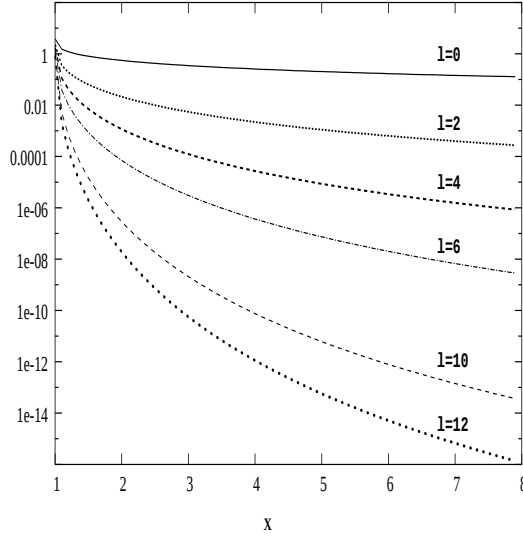


FIG. 3.1: Fonction de Legendre du second genre $Q_l(x)$, pour différentes valeurs de l .

$$\times \frac{p^l n^l}{(n^2 p^2 + 1)^{l+2}} C_{n-l-1}^{l+1} \left(\frac{n^2 p^2 - 1}{n^2 p^2 + 1} \right). \quad (3.12)$$

L'énergie propre associée à ces états prenant la forme bien connue :

$$E_n = -\frac{Z^2}{2n^2}. \quad (3.13)$$

A titre indicatif, les quelques premières fonctions d'ondes sont données explicitement en appendice B.3.

3.2.2 Le spectre continu

Si l'on considère un potentiel de courte portée V_{sr} , tout comme nous le signalons dans l'appendice B.2.2, la détermination des états stationnaires de diffusion (ou états propres du continuum associé à V_{sr}) peut être effectuée à partir de l'équation de [Lippmann *et al*, 50]. Nous en rappelons l'obtention dans l'espace des impulsions¹ en appendice B.4. Elle correspond à l'équation intégrale que doit satisfaire un état du continuum associé à $E = k^2/2$:

$$\psi_k^\pm(\mathbf{p}) = \delta(\mathbf{p} - \mathbf{k}) + \chi_k^\pm(\mathbf{p}) \quad (3.14)$$

$$\chi_k^\pm(\mathbf{p}) = \frac{2}{(k + i\epsilon)^2 - p^2} \int d\mathbf{p}' \psi_k^\pm(\mathbf{p}') V(\mathbf{p} - \mathbf{p}') \quad (3.15)$$

qui est analogue à l'équation (3.4) mais qui contient un terme supplémentaire inhomogène : la fonction delta de Dirac $\delta(\mathbf{p} - \mathbf{k})$. A chaque prescription ($\pm$)

¹ voir aussi [Bethe, 57]

est associée une base complète - si l'on y ajoute le spectre lié - d'états propres de H . Choisir la prescription positive revient à choisir un ensemble d'ondes "sortantes", nous nous limitons par la suite à ce choix.

D'autre part, pour le potentiel Coulombien, [Guth *et al*, 51] ont déterminé l'expression exacte d'une onde Coulombienne dans l'espace des " $\mathbf{p}$ ", par transformation de Fourier de la représentation spatiale de cette dernière. Ils ont obtenu la relation suivante qui est à comprendre au sens des distributions :

$$\psi_k^+(\mathbf{p}) = -\frac{1}{2\pi^2} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \frac{d}{d\epsilon} \left\{ \frac{[p^2 - (k + i\epsilon)^2]^{-iZ/k}}{[(\mathbf{p} - \mathbf{k})^2 + \epsilon^2]^{1-iZ/k}} \right\}. \quad (3.16)$$

Il est indispensable de rappeler qu'une démarche plus globale basée sur la théorie des groupes permet d'obtenir les états propres des spectres lié et continu de l'hydrogène [Antoine, 66].

D'autre part, il est intéressant de constater [Chen *et al*, 72] que l'équivalence entre les équations (3.14, 3.15 et 3.16) ne peut être établie exactement dans le cas du potentiel Coulombien en raison de la portée infinie de ce dernier (dans l'espace des configurations) qui n'est pas compatible avec l'utilisation d'une onde plane incidente comme état asymptotique de diffusion (et donc avec la démarche de Lippmann et Schwinger). Cette ambiguïté a été levée par [Dollard, 64] en définissant correctement le Hamiltonien asymptotique dans le cas Coulombien qui ne coïncide pas avec le Hamiltonien libre $\mathbf{p}^2/2$. Les états asymptotiques sont des ondes planes "déformées" par une phase logarithmique Coulombienne.

Cette remarque est importante par rapport à notre analyse de l'approximation du champ fort. En effet, l'équation (3.15) correspond à l'expression utilisée par M. Lewenstein pour définir les états du continuum. Le comportement asymptotique attribué à ces états est défini au sens de Lippmann et Schwinger et non au sens correct proposé par [Dollard, 64]. Néanmoins, l'équivalence entre l'onde plane et l'onde plane déformée existe partiellement dans l'approximation $\frac{Z}{k} \ll 1$ [Bethe, 57] qui permet d'extraire la fonction de Dirac $\delta(\mathbf{p} - \mathbf{k})$ de l'équation (3.16). Nous pouvons donc conclure, grâce à ces rappels, que cette expression n'est valable que dans l'approximation des grands moments pour le potentiel Coulombien pur. L'extraction de l'onde plane, pour les faibles moments, n'est en toute rigueur pas envisageable pour les états du continuum de l'hydrogène.

3.2.3 Les ondes partielles Coulombiennes dans l'espace des "p"

Notre étude du système hydrogénoïde est fondée sur une décomposition sur les harmoniques sphériques de la fonction d'onde et par conséquent du Hamiltonien total. Il nous est nécessaire de connaître l'expression des ondes partielles du continuum Coulombien dans l'espace des impulsions de manière à les comparer avec celles que nous serons en mesure de représenter avec la méthode que nous exposons dans les sections suivantes. Dans la démarche de Lippman et Schwinger, le même raisonnement que dans le cas tridimensionnel est possible conduisant à la solution en ondes partielles :

$$\Phi_{kl}^{(+)}(p) = \delta(p - k) + \chi_{kl}^{+}(p). \quad (3.17)$$

Le calcul exact de la transformée de Fourier d'une onde Coulombienne :

$$R_{kl}^{(+)}(r) = C_{kl} r^l e^{-ip \cdot r} M\left(l + 1 + \frac{iZ}{k}, 2l + 2; 2ikr\right), \quad (3.18)$$

doit être effectué pour essayer d'en extraire un comportement identique à celui proposé par Lippmann et Schwinger. Une évaluation directe des états du continuum dans l'espace des impulsions a été réalisée par [Antoine, 66, Bander *et al* , 66] dans le cadre de la théorie des groupes, mais leur démarche nous est, il faut bien l'avouer, restée obscure. Par conséquent, nous avons adopté une démarche plus standard qui nous permet de faire apparaître après quelques efforts la forme suivante pour l'onde Coulombienne partielle (les calculs font l'objet de l'appendice B.4.2) :

$$\Phi_{kl}^{(+)}(p) = N_{kl} \frac{e^{i\phi_l}}{(p+k)^2} \times \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \left\{ 2 \frac{\varepsilon}{\varepsilon^2 + (p-k)^2} \text{Re}(\bar{a}) - \frac{p+k}{p} \frac{p-k}{\varepsilon^2 + (p-k)^2} \text{Im}(\bar{a}) \right\}, \quad (3.19)$$

avec :

$$\bar{a} = \left(\frac{\varepsilon - i(p-k)}{\varepsilon - i(p+k)} \right)^{\frac{iZ}{k}} \quad (3.20)$$

et :

$$\phi_l = \sum_{s=1}^l \arg\left(s + \frac{iZ}{k}\right). \quad (3.21)$$

Nous avons rappelé en appendice B.4.2 une des représentations possibles d'une distribution de Dirac (l'équation (B.59)) et une de celles d'une partie principale de Cauchy (l'équation (B.60)). Nous pouvons constater que ces deux représentations sont présentes dans l'équation (3.21), mais ne peuvent être extraites exactement. A nouveau, pour isoler la partie delta, il nous faut faire l'approximation $\frac{Z}{k} \ll 1$, c'est-à-dire se placer dans l'approximation des

hautes énergies ou d'une charge effective très faible. L'expression ci-dessus nous est très utile pour valider la méthode d'approximation que nous utilisons pour résoudre l'équation de Schrödinger dépendante du temps formulée dans le chapitre 1.

Pourquoi une démarche numérique ?

Le problème que nous venons de décrire est donc entièrement analytique. Cependant, dans la suite de cette thèse, nous allons proposer une démarche numérique et donc par définition approximative, pour décrire un système hydrogénoïde interagissant avec un champ laser.

Un des objectifs principaux de cette deuxième partie est d'analyser, en terme d'impulsions, la dynamique de cette interaction. Nous sommes donc amenés à résoudre l'équation de Schrödinger dépendante du temps, le Hamiltonien faisant dès lors intervenir le couplage de l'atome avec le champ laser.

Durant l'interaction, les états stationnaires de l'hydrogène ne sont plus des états propres du Hamiltonien total, d'autant moins que les intensités laser que nous considérons - au-delà de 10^{14}W/cm^2 - n'autorisent plus à traiter l'interaction de manière perturbative.

La méthode que nous choisissons d'adopter est de type "spectral" par opposition aux méthodes de grille. Le terme est abusif, certes, mais il traduit le fait que la fonction d'onde doit être développée sur une base de fonctions de carré sommable. Les coefficients de ce développement étant ensuite propagés dans le temps en imposant comme condition initiale que le système se trouve dans l'état fondamental $1s$.

3.3 Formulation matricielle de l'ESDT dans la forme vitesse

Une des méthodes possibles pour résoudre numériquement l'équation de Schrödinger dépendante du temps introduite dans le chapitre 1, est de considérer le développement de la fonction d'onde sur une base de fonctions de carré sommable pour chaque dimension. Nous souhaitons résoudre le problème tridimensionnel :

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Phi_V(\mathbf{p}, t) = \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2} + \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{p} + V \right) \Phi_V(\mathbf{p}, t), \quad (3.22)$$

en utilisant le développement suivant :

$$\Phi_V(\mathbf{p}, t) = \sum_{i=1}^n \sum_{l=0}^{l_{max}} \sum_{m=-l}^l a_i^{lm}(t) f_i(p) Y_{lm}(\theta_p, \phi_p). \quad (3.23)$$

Le choix des harmoniques sphériques pour représenter le comportement angulaire de Φ_V se justifie par l'étude précédente de la structure atomique.

3.3.1 Choix de la forme vitesse du Hamiltonien d'interaction

Nous avons montré, dans le chapitre 1, que dans la forme vitesse, l'opérateur moment canonique $\mathbf{P}$ ne coïncide plus avec le moment mécanique $\boldsymbol{\pi}$ pendant l'interaction. C'est cet argument que [Cormier *et al*, 96] ont utilisé pour expliquer l'intérêt numérique que représente la forme vitesse devant la forme longueur. En effet, lorsque l'on développe la partie angulaire de la fonction Ψ en terme d'harmoniques shériques, le nombre de moments angulaires l_{max} qu'il faut utiliser de manière à assurer la convergence des résultats est quasiment décuplé lorsque l'on passe de la forme vitesse à la forme longueur. Cela peut se comprendre en observant que le moment angulaire l est associé à l'opérateur moment cinétique :

$$\mathbf{L} = \mathbf{R} \times \mathbf{P}.$$

Lorsque l'ionisation est significative, comme c'est le cas dans les interactions qui nous intéressent, le moment mécanique $\boldsymbol{\pi}$ peut osciller avec une amplitude $-q\mathbf{A}(t)$: la vitesse classique que possède une particule de charge q dans le champ.

En évaluant la variance de l'opérateur $\mathbf{L}^2$, [Cormier *et al*, 96] ont montré que celle-ci était ≈ 10 fois moins grande dans le cas de la forme vitesse puisque n'intervient dans le moment cinétique que le moment canonique $\mathbf{P}$ c'est-à-dire le moment mécanique auquel on a retranché le terme $-q\mathbf{A}(t)$ responsable de la variance importante du moment cinétique dans la forme longueur. Ceci justifie, par conséquent, l'utilisation de la forme vitesse d'un point de vue numérique. Nous montrons dans notre analyse de la dynamique de l'ionisation que la non-coïncidence de $\mathbf{P}$ et $\boldsymbol{\pi}$ est également exploitable dans l'interprétation physique des résultats.

Les fonctions "radiales" f_i choisies font l'objet d'une présentation plus longue dans les sections qui suivent. Signalons toutefois que ces fonctions forment une base complète mais non orthonormale. Par conséquent, l'introduction du développement (3.23) dans l'équation de Schrödinger, nous conduit à la formulation matricielle du problème :

$$i\mathbf{S}\frac{d}{dt}\Phi_{\mathbf{V}}(t) = (\mathbf{H}_{cin} + \mathbf{V} + \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{P}) \Phi_{\mathbf{V}}(t). \quad (3.24)$$

Ainsi, c'est le vecteur $\Phi_{\mathbf{V}}(\mathbf{t})$ formé des coefficients $a_i^{lm}(t)$ qui fait l'objet d'une propagation dans le temps. $\mathbf{S}$ est la matrice de recouvrement des fonctions de base radiales. Dans l'appendice D.1, nous détaillons le calcul des éléments de matrice associés aux différents opérateurs.

Notre étude est consacrée uniquement à des lasers polarisés linéairement. Cette restriction permet (*cf.* appendice D.1) de réduire singulièrement la dimension du vecteur à propager. En effet, si l'axe de polarisation est l'axe z :

$$\mathbf{A}(t) = A(t) \mathbf{z},$$

le nombre quantique m ne peut être modifié pendant l'interaction.

3.4 Approximation des solutions par des splines

Les différents termes du Hamiltonien sont maintenant définis sans ambiguïté. Nous projetons la fonction d'onde sur la base des harmoniques sphériques pour décrire sa partie angulaire :

$$\Phi_V(\mathbf{p}, t) = \sum_{l,m} \phi_{lm}(p, t) Y_{lm}(\theta_p, \phi_p).$$

Il reste à définir une base complète qui permette de développer $\phi_{lm}(p, t)$ en séparant les variables p et t . Dans l'espace des configurations, [Huens, 96] a utilisé la base des fonctions Sturmienne qui possèdent la propriété intéressante de rendre diagonale la matrice associée au potentiel Coulombien. Nous adoptons une autre méthode intensivement utilisée dans *l'espace des configurations* pour des systèmes aussi bien mono- que polyélectroniques. Il s'agit d'approximer la fonction $\phi_{lm}(p, t)$ par une fonction spline sur un segment $[0, p_{max}]$. Explicitons ce terme “spline” et la zoologie qui s'y rapporte sans plus tarder.

3.4.1 Une fonction spline ?

Une “**spline**” appartient au champ sémantique de la théorie de l'approximation et de l'interpolation. Il s'agit d'un objet mathématique $S_{\Delta}(f; x)$ associé à une séquence discrète de points $\Delta = \{x_i \in [a, b]; i = 1, \dots, n\}$ sur laquelle une fonction $f(x)$ que l'on souhaite interpoler est connue. $S_{\Delta}(f, x)$ est la spline d'interpolation associée à f sur Δ si elle satisfait la relation intégrale suivante :

$$\int_a^b |f''(x)|^2 dx = \int_a^b |S''_{\Delta}(f; x)|^2 dx + \int_a^b |f''(x) - S''_{\Delta}(f; x)|^2 dx. \quad (3.25)$$

La relation précédente définit une “**spline**” comme étant la meilleure approximation de la fonction f dans le sens où elle satisfait le principe de courbure minimale. Un intermède anecdotique ne nuira point à la compréhension de la définition précédente. Dans le chapitre introductif de leur livre sur la théorie des splines, [Alhberg *et al*, 67] nous rappellent l'origine du mot “**spline**” choisi par [Schoenberg, 46] pour désigner l'outil d'approximation qu'il venait de construire. Une “**spline**” en Anglais, désigne un objet flexible utilisé par les dessinateurs pour relier “sans irrégularité” un certain nombre de points. L'objet était, à cet effet, fixé rigidement aux différents points et sa flexibilité lui permettait de prendre une courbure “naturelle” c'est-à-dire minimale puisqu'elle se modifiait de manière douce lorsque l'on déplaçait légèrement les points d'ancrage.

Les fonctions polynômiales définies par morceaux sont des splines, et une espèce bien à part de telles fonctions appelées ‘‘B-splines’’ peuvent, dans certaines conditions, former une base de l'espace engendré noté $\mathbf{IP}_{k,\xi,\nu}$.

3.4.2 L'espace $P_{k,\xi,\nu}$

Définition 1 Soit une séquence de points d'arrêt strictement croissante :

$$\xi := \{\xi_i \in [0, p_{\max}]\}_{i=1}^{l+1};$$

et une séquence quelconque de l polynômes d'ordre k :

$$P_1(p), \dots, P_l(p)$$

tels que :

$$F(p) = P_i(p) \text{ si } \xi_i < p < \xi_{i+1}.$$

$F(p)$ est alors une fonction polynômiale d'ordre k par morceaux. Soit $\mathbf{IP}_{k,\xi}$: l'espace des polynômes par morceaux d'ordre k et définis sur la séquence ξ ,

$$F(p) \in \mathbf{IP}_{k,\xi}.$$

Pour le moment, le choix de l'espace $\mathbf{IP}_{k,\xi}$ n'est pas suffisamment restrictif, car aucune condition de raccordement aux points d'arrêt n'est imposée. Or les solutions $\phi_{lm}(p) \equiv F(p)$ doivent y être *au moins* continues. Il nous faut ajouter une contrainte supplémentaire aux données ξ et k c'est-à-dire restreindre l'espace $\mathbf{IP}_{k,\xi}$ à un sous-espace $\mathbf{IP}_{k,\xi,\nu}$ défini comme suit :

Définition 2 Soit $\mathbf{IP}_{k,\xi,\nu}$, l'espace des polynômes par morceaux d'ordre k associés à la séquence de points d'arrêt

$$\xi := \{\xi_i\}_{i=1}^{l+1}$$

à laquelle on impose les conditions de continuité

$$\nu := \{\nu_i\}_{i=1}^{l+1};$$

$$F(p) \in \mathbf{IP}_{k,\xi,\nu} \text{ si :}$$

$$\frac{\partial^{j-1}}{\partial p^{j-1}} F \quad \text{est continue en } \xi_i, \quad j = 1, \dots, \nu_i.$$

A l'aide de la séquence de points d'arrêt $\{\xi_i\}$ associée à la séquence de conditions de continuité (de la fonction polynômiale et de ses dérivées) $\{\nu_i\}$, les fonctions B-splines peuvent être définies. Il existe de plus un théorème permettant de les associer à une base de l'espace $\mathbf{IP}_{k,\xi,\nu}$ et d'établir une équivalence entre une fonction spline et une fonction polynômiale par morceaux. Ce théorème, ainsi que la définition des B-splines et la construction pratique de la base des B-splines à partir des séquences $\{\xi_i\}$ et $\{\nu_i\}$ sont rappelés dans l'appendice C.1. A l'aide de ces rappels, nous pouvons sans ambiguïté définir la base des B-splines (que l'on note $B_i^k(p)$) sur laquelle est développée la partie radiale de la fonction d'onde $\phi_{lm}(p, t)$:

$$\phi_{lm}(p, t) = \sum_{i=1}^n a_i^{lm}(t) B_i^k(p).$$

3.5 Techniques numériques de résolution

3.5.1 Structure “par bloc” des matrices

La base des B-splines étant construite, il est justifié, dorénavant, de considérer le développement :

$$\Phi_V(\mathbf{p}, t) = \sum_{i=1}^n \sum_{l=0}^{l_{max}} \sum_{m=-l}^l a_i^{lm}(t) B_i(p) Y_{lm}(\theta_p, \phi_p), \quad (3.26)$$

qui permet de formuler le problème de manière matricielle :

$$i\mathbf{S} \frac{d}{dt} \Phi_V(t) = (\mathbf{IH}_{cin} + \mathbf{V} + \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{IP}_z) \Phi_V(t). \quad (3.27)$$

Les éléments de matrice associés à chaque opérateur sont tout d'abord évalués. Cette évaluation pour le potentiel Coulombien pose des difficultés

numériques. Nous exposons la méthode numérique utilisée pour résoudre ces problèmes dans l'appendice D.2.

Calcul de structure

Avant de s'intéresser à la propagation dans le temps, il est nécessaire de considérer les résultats obtenus concernant la description de la structure atomique à l'aide de la méthode d'approximation que nous utilisons.

Une fois les éléments de matrice du Hamiltonien atomique calculés, ce dernier est diagonalisé et nous pouvons comparer les états et valeurs propres numériques à leurs expressions analytiques. L'intérêt de travailler dans l'espace des moments est de pouvoir contrôler - qualitativement et quantitativement - la discrétisation du continuum d'énergie. Nous prouvons cette affirmation dans l'appendice D.4. D'autre part, puisque les interactions auxquelles nous nous intéressons mettent en jeu les états du continuum, c'est leur description, à l'aide des B-splines, que nous analysons à titre d'exemple dans l'appendice D.5.4.

Nous rappelons maintenant brièvement les points essentiels de la méthode de propagation dans le temps.

Schématisation du problème

En polarisation linéaire, la projection m du moment angulaire sur l'axe z , ne peut être modifiée. Par conséquent, le vecteur $\Phi_{\mathbf{V}}$ sera représenté par :

$$\Phi_{\mathbf{V}} = \begin{pmatrix} \Phi_0 \\ \vdots \\ \Phi_1 \\ \vdots \\ \Phi_{l_{\max}} \end{pmatrix} \quad \text{avec} \quad \Phi_1 = \begin{pmatrix} a_1^l \\ \vdots \\ a_i^l \\ \vdots \\ a_n^l \end{pmatrix}.$$

La structure bloc-tridiagonale du Hamiltonien total peut être résumée grâce à la figure 3.2 (voir l'appendice D.1).

- Les blocs diagonaux $\mathbf{H}_1$ correspondent au Hamiltonien atomique $\mathbf{H}_1 = \mathbf{P}^2/2 + \mathbf{V}_1$.
- Les blocs subdiagonaux $A(t) \mathbf{I}(\mathbf{1}, \mathbf{1} + \mathbf{1})$ correspondent au Hamiltonien d'interaction tels que $A(t) \mathbf{I}(\mathbf{1}, \mathbf{1} + \mathbf{1}) = A(t) \mathbf{I}^\dagger(\mathbf{1} + \mathbf{1}, \mathbf{1})$.

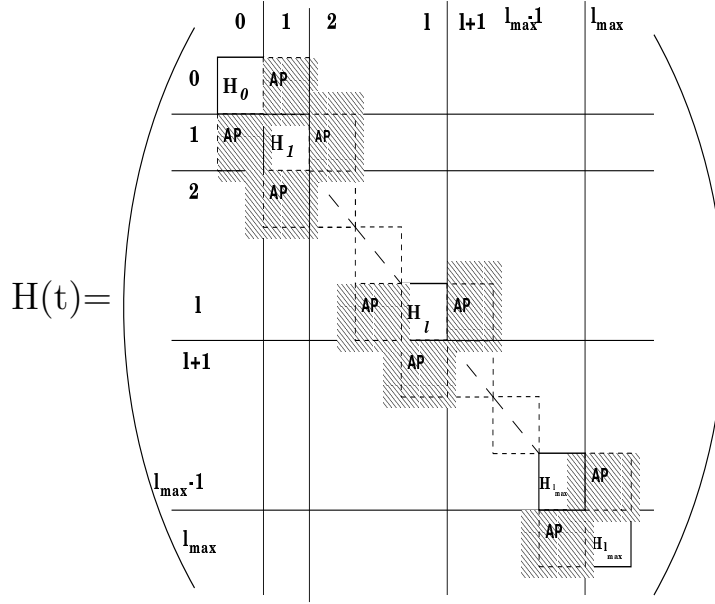


FIG. 3.2: Structure bloc tridiagonale du Hamiltonien complet, les blocs subdiagonaux symétriques sont transposés conjugués.

Ceci nous permet décomposer le problème par moment angulaire l :

$$\begin{aligned}
 i\mathbb{S} \frac{d}{dt} \Phi_l(t) &= \mathbb{H}_l \Phi_l(t) \\
 &+ A(t) \mathbb{P}(l, l+1) \Phi_{l+1}(t) \\
 &+ A(t) \mathbb{P}^\dagger(l-1, l) \Phi_{l-1}(t).
 \end{aligned} \tag{3.28}$$

3.5.2 “Raideur” du problème et représentation d’interaction

Quel que soient les domaines d’intensité et de fréquence considérés, la résolution du système d’équations linéaires sous la forme (3.27), c’est-à-dire sur la base des B-splines n’est pas stable. On dit aussi que le problème est raide. Le problème de raideur est traité par [Hairer *et al*, 91] et fait l’objet d’une discussion intéressante dans la thèse de Doctorat de [Huens, 96]. Ce concept est en fait, difficile à définir. Dans notre étude, il se manifeste par une diminution drastique du pas d’intégration lorsque la dimension du système à résoudre augmente.

Pour le mettre en évidence, nous considérons l’atome initialement dans une superposition de ses états propres :

$$|\Phi(t_0)\rangle = \sum_{i=1}^m a_i(t_0) |\Phi_i\rangle. \tag{3.29}$$

L'évolution libre - sans champ laser - du système est simplement donnée par :

$$i \frac{d}{dt} |\Phi(t)\rangle = \mathbf{IH} |\Phi(t)\rangle,$$

qui admet la solution :

$$|\Phi(t)\rangle = e^{-i\mathbf{IH}(t-t_0)} |\Phi(t_0)\rangle,$$

c'est-à-dire :

$$|\Phi(t)\rangle = \sum_{i=1}^m a_i(t_0) e^{-iE_i(t-t_0)} |\Phi_i\rangle. \quad (3.30)$$

E_i est l'énergie associée à l'état propre $|\Phi_i\rangle$. On comprend par cette dernière expression, que si des états de haute énergie interviennent dans la superposition initiale, le spectre de la fonction d'onde totale contiendra de très hautes fréquences. Dans la base des B-splines, le problème différentiel (3.27) devient "raide" puisque les hautes fréquences, "disséminées" sur tous les coefficients $a_i^{lm}(t)$ de (3.26), ne peuvent être extraites aussi simplement que dans (3.30).

Cet écueil est évité en transformant le problème matriciel dans la base des états atomiques, chaque fréquence propre est alors associée à un seul coefficient. Ce "découplage" permet d'obtenir une bonne stabilité numérique lorsque le système d'équations différentielles est résolu par une méthode explicite. Remarquons toutefois que ce passage dans la base atomique présente le désavantage de perdre le caractère bande de la matrice associée au Hamiltonien d'interaction, celle-ci devenant pleine. Cet inconvénient est la limitation majeure de la méthode de résolution à haute intensité, domaine qui requiert d'augmenter considérablement le nombre maximum de moments angulaires pour assurer la convergence des résultats.

Représentation d'interaction

D'autre part, une fois la transformation dans la base atomique effectuée, il est intéressant de travailler dans la représentation d'interaction qui correspond à la nouvelle transformation :

$$|\Phi_{int}(t)\rangle = e^{+i\mathbf{IH}(t-t_0)} |\Phi_V(t)\rangle \quad (3.31)$$

Puisque l'équation différentielle à résoudre devient alors :

$$i \frac{d}{dt} |\Phi_{int}(t)\rangle = [\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{IP}_z]_{int} |\Phi_{int}(t)\rangle. \quad (3.32)$$

Le Hamiltonien de couplage laser-atome se transforme selon :

$$[\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{IP}_z]_{int} = e^{+i\mathbf{IH}(t-t_0)} [\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{IP}_z] e^{-i\mathbf{IH}(t-t_0)}. \quad (3.33)$$

Formellement, nous nous sommes placés dans *la représentation d'interaction*, les oscillations rapides de la fonction d'onde dues à l'évolution libre des états propres du Hamiltonien atomique n'interviennent plus dans $|\Phi_{int}(t)\rangle$. Le problème est d'autant plus stable numériquement dans cette "image" d'interaction et le pas d'intégration à considérer d'autant plus grand.

3.5.3 Propagation dans le temps

Résoudre le système revient finalement à propager les vecteurs $\Phi_1(t)$ dans le temps, en se basant sur une condition initiale de la forme (3.29). Nous avons effectué cette propagation en utilisant une méthode explicite de type Runge-Kutta d'ordre élevé. En utilisant un schéma "predictor-corrector", le pas de propagation s'adapte automatiquement en fonction de la précision requise sur la solution. Cette méthode² est décrite en appendice D.6.

L'adaptation automatique du pas d'intégration se révèle très pratique dans le régime tunnel. En effet, c'est dans ce régime que des hautes fréquences (les harmoniques d'ordre élevé) sont émises; du moins, tant que l'ionisation n'est pas significative. L'émission de hautes fréquences émises implique nécessairement un pas d'intégration très petit mais qui n'a plus lieu d'être dès que la saturation est atteinte. Une méthode d'intégration à pas constant serait finalement plus coûteuse en temps de calcul que notre méthode itérative car le pas très fin utilisé pour détecter des harmoniques devrait être conservé jusqu'à la fin de l'interaction de manière superflue.

3.5.4 Le spectre des électrons éjectés

Dans les études expérimentales de l'ionisation, l'information la plus importante est le spectre en énergie des électrons éjectés. Si l'espace des moments s'avère délicat à utiliser directement pour le traitement des états liés - et essentiellement l'état fondamental - lorsque l'on en vient à parler d'ionisation, l'utilisation de cet espace prend tout son sens. En effet, à la fin de l'interaction ($t = \Delta t$), la probabilité de détecter un électron possédant une énergie comprise entre E et $E + dE$ s'écrit :

$$\frac{\partial P(E)}{\partial E} = \sum_l |\langle \Psi_{El} | \Psi(\Delta t) \rangle|^2.$$

où $|\Psi_{El}\rangle$ est un état propre du Hamiltonien atomique d'énergie $E > 0$ et de moment angulaire l . Puisque la propagation de la fonction d'onde totale est réalisée dans la base atomique, il est aisé de construire le spectre en énergie des électrons si on ne souhaite avoir aucune information sur la distribution

²[Van der Houwen *et al*, 90]

angulaire. Mais du point de vue expérimental, c'est cette dernière qui est détectée. Il faut donc, pour l'obtenir, projeter la fonction d'onde totale sur chaque état Coulombien de moment $\mathbf{k} = (k, \theta_{\mathbf{k}}, \phi_{\mathbf{k}})$ associé à l'énergie $E = \frac{k^2}{2}$ de telle sorte que

$$\frac{\partial P(E, \theta_{\mathbf{k}}, \phi_{\mathbf{k}})}{\partial \theta_{\mathbf{k}} \partial \phi_{\mathbf{k}}} = |\langle \Psi_{\mathbf{k}} | \Psi(\Delta t) \rangle|^2$$

Une méthode de type spectrale (par opposition aux méthodes de grille) permet, dans les deux espaces - moments et configurations - l'évaluation directe de cette distribution à la fin de l'interaction puisqu'il nous suffit d'éliminer de la fonction d'onde toutes ses composantes (dans la base atomique) correspondant aux états liés. Nous obtenons ainsi la fonction que nous notons $\Psi_{ion}(\mathbf{p})$ qui contient toute l'information sur l'ionisation. Ψ_{ion} est alors projetée sur la base des B-splines en utilisant la transformation inverse à celle donnée par l'équation (D.26); ce qui permet d'obtenir les coefficients a_i^{lm} nécessaires au développement :

$$\Psi_{ion}(\mathbf{p}, \Delta t) = \sum_{i=1}^n \sum_{l=0}^{l_{max}} a_i^{lm}(\Delta t) B_i(p) Y_{lm}(\theta_p, \phi_p). \quad (3.34)$$

Ce dernier effectué, en conservant uniquement le module carré $|\Psi_{ion}(\mathbf{p}, \Delta t)|^2$, nous obtenons bien la distribution angulaire des électrons. Cette démarche suppose que les états du continuum soient correctement normalisés. Numériquement, lors de la diagonalisation du Hamiltonien atomique (voir l'appendice D.3), cette étape est "automatiquement" franchie. Les états du continuum sont normalisés à l'unité (dans une boîte de dimension p_{max}) en terme de moments et non en terme d'énergies : si nous considérons deux états du continuum Coulombien (analytiques) $|\Psi_{\mathbf{k}}\rangle$ et $|\Psi_{\mathbf{k}'}\rangle$, ils doivent satisfaire la relation d'orthonormalité :

$$\langle \Psi_{\mathbf{k}} | \Psi_{\mathbf{k}'} \rangle = \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}').$$

Nous abordons le problème de la représentation des états du continuum par notre méthode de résolution numérique dans l'appendice D.5.4.

L'ionisation est ainsi caractérisée à la fin de l'interaction, mais nous sommes aussi et surtout intéressés par *les mécanismes* d'ionisation c'est-à-dire ce qu'il se passe *pendant* l'interaction.

Nous utilisons donc également la densité de probabilité totale $|\Psi(\mathbf{p}, t)|^2$, ces quantités sont représentées dans le système de coordonnées cylindriques :

$$\mathbf{p} = (p_z, p_n, \phi),$$

étant donné la symétrie du problème. D'autre part, puisque nous effectuons la propagation dans la base atomique, nous avons accès aux populations des états atomiques qui peuvent être utilisées à titre indicatif, mais n'ont un sens physique que lorsque le potentiel vecteur est nul au cours de l'interaction.

3.6 Caractéristiques des impulsions brèves

Nous nous concentrons désormais sur des interactions de courte durée entre l'hydrogène et un champ laser défini par sa fréquence ω . Dans tous nos calculs, nous nous limitons à des lasers polarisés linéairement, nous utilisons la fréquence du laser Ti : Saphir, $\omega = 0.057 \text{ u.a.}$ qui est une des fréquences les plus couramment utilisées dans les expériences de GHOE et d'ATI. La période laser vaut alors $T = 110.2 \text{ u.a.} \approx 2.7 \text{ fs}$. Dans la mesure où nous nous intéressons à des intensités laser "au voisinage" de l'intensité de saturation (de manière à ce que le processus d'ionisation que nous souhaitons analyser soit suffisamment efficace), les impulsions brèves sont adaptées à notre étude car le processus aura lieu sur une courte échelle de temps (quelques cycles optiques). Il est donc tout à fait inutile de considérer des impulsions supérieures à une dizaine de cycles optiques. Toutefois, puisque nous nous intéressons au mécanisme d'ionisation en lui-même plus qu'aux effets non-adiabatiques, nous voulons nous affranchir de ces effets, en utilisant dans notre étude une impulsion laser définie par un champ électrique :

$$\mathbf{E}(t) = E_0 \times \left(1 - \cos^8\left(\frac{\pi}{NT}t\right)\right) \times \cos(\omega t + \phi)\mathbf{z}, \quad (3.35)$$

où N est le nombre de cycles optiques total, et ϕ la phase absolue du champ laser. $E_0 \text{ (u.a.)} = \sqrt{I_0/3.5 \times 10^{16}}$ est l'amplitude du champ électrique et I_0 son intensité en W/cm^2 . Cette forme de champ électrique est ensuite intégrée pour obtenir le potentiel vecteur $\mathbf{A}(t)$. Elle est intéressante car elle permet de simuler une impulsion brève dont l'intensité reste constante sur quelques cycles optiques sans introduire de problèmes de discontinuité dans la partie montante et descendante de l'impulsion ("turn-on et turn-off") qui peuvent apparaître lorsque l'on utilise une forme d'impulsion trapézoïdale.

D'autre part, de manière à simuler une impulsion brève plus réaliste, nous considérons également des impulsions de la forme :

$$\mathbf{A}(t) = A_0 \times \cos^2\left(\frac{\pi}{NT}t\right) \times \sin(\omega t + \phi)\mathbf{z}. \quad (3.36)$$

Signalons que dans les 2 cas, le temps initial de l'interaction est en fait :

$$t_0 = -\frac{NT}{2},$$

de telle manière que le temps $t = 0$ corresponde au centre de l'impulsion. D'après [Brabec *et al*, 00], la forme temporelle de l'impulsion considérée doit être telle que :

$$\int_{t_0}^{t_0+NT} dt' E(t') = 0,$$

pour que l'impulsion laser puisse se propager c'est-à-dire :

$$A(t_0 + NT) = 0,$$

ce qui est le cas pour les deux formes d'impulsions précédemment citées.

Dans les chapitres suivants, nous présentons les résultats obtenus à l'aide de cette méthode numérique de résolution de l'ESDT dans le cadre de l'interaction de l'hydrogène atomique avec un laser haute intensité, basse fréquence.

Chapitre 4

Rôle du potentiel Coulombien dans le mécanisme d'ionisation

Nous souhaitons analyser la dynamique du processus d'ionisation lorsque celui-ci est dominant, donc dans un domaine d'intensité proche de l'intensité de saturation. Dans ce domaine, nous avons montré dans le chapitre 2 que ni l'approximation du champ fort de Keldysh ni la théorie A.D.K. n'étaient adéquates pour rendre compte du taux d'ionisation obtenu pour l'hydrogène. Il nous faut clairement définir le domaine d'intensité auquel nous faisons référence, en revenant sur les méthodes qui permettent d'obtenir (pour cet atome) la valeur exacte de l'intensité de saturation. La démarche usuelle appliquée pour déterminer cette valeur est de considérer l'ionisation par un champ statique, en supposant que l'intensité de saturation correspond à la valeur pour laquelle le point de selle du potentiel effectif¹

$$V(\rho, z) = \frac{\hbar^2 m^2}{2\mu\rho^2} - \frac{Ze^2}{\sqrt{\rho^2 + z^2}} - eFz,$$

en coordonnées cylindriques (ρ, z) , coïncide avec l'énergie du fondamental :

$$-I_P - \Delta_{dc}$$

(Δ_{dc} est le décalage Stark de l'état fondamental en champ statique). Une telle démarche pour l'hydrogène [Shakeshaft *et al*, 90] donne les valeurs suivantes :

$$F_{sat} = 0.067 \text{ u.a.} = 3.45 \times 10^8 \text{ V/cm} \text{ soit } I_{sat} = 1.57 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2,$$

pour le champ et l'intensité de saturation².

¹ associé à l'état initial de nombre quantique magnétique m . μ est la masse réduite.

² Dans la section suivante, nous utilisons la notation F pour désigner le champ électrique afin de ne pas le confondre avec l'énergie

Mais en fait, si cette détermination du champ de saturation s'avère correcte pour les couches externes d'atomes complexes, il n'en va pas de même pour l'atome d'hydrogène que nous utilisons dans notre étude de la dynamique de l'ionisation. En fait, il existe une symétrie supplémentaire dans le cas de cet atome qui rend le problème séparable en coordonnées paraboliques. Comme nous nous intéressons à la dynamique de l'ionisation dans un domaine d'intensité excédant la valeur $F_{sat} = 0.067 u.a.$, cette détermination plus rigoureuse de l'intensité de saturation de l'hydrogène est cruciale et conduit à une valeur beaucoup plus élevée que celle précitée. Nous suivons donc maintenant la démarche proposée par [Shakeshaft *et al*, 90] qui évaluèrent la valeur du champ de saturation $F_{sat} = 0.16 u.a.$ La différence d'un facteur > 2 entre ces deux valeurs justifie en soi de rappeler le raisonnement utilisé par R. Shakeshaft. Selon cet auteur, l'intensité de saturation est définie *comme la valeur pour laquelle l'ionisation est totale en moins d'une période laser. Nous adoptons cette définition tout au long de notre travail.*

4.1 Champ de Saturation de l'hydrogène

Dans le cas de l'interaction de l'atome d'hydrogène avec un champ statique polarisé linéairement, l'utilisation des coordonnées paraboliques : (ξ, η, ϕ) telles que :

$$\begin{cases} \xi = r + z, \\ \eta = r - z, \\ \phi = \arctan\left(\frac{y}{x}\right), \end{cases} \quad (4.1)$$

permet d'effectuer une séparation des variables dans le problème stationnaire :

$$\left(-\frac{1}{2}\Delta - \frac{eZ}{r} + F \cdot z\right) \Psi = E\Psi,$$

en posant : $\Psi(\xi, \eta, \phi) = f_1(\xi)f_2(\eta)e^{im\phi}$ et en utilisant les constantes de séparation β_1, β_2 telles que $\beta_1 + \beta_2 = Z$. En définissant les fonctions

$$\chi_1(\xi) = f_1(\xi)/\sqrt{\xi}$$

et

$$\chi_2(\eta) = f_2(\eta)/\sqrt{\eta},$$

le problème est donc séparé sous la forme :

$$\begin{aligned} \frac{d^2}{d\xi^2} \chi_1 + \left(\frac{E}{2} + \frac{\beta_1}{\xi} - \frac{m^2-1}{4\xi^2} - \frac{F}{4}\xi\right) \chi_1 &= 0, \\ \frac{d^2}{d\eta^2} \chi_2 + \left(\frac{E}{2} + \frac{\beta_2}{\eta} - \frac{m^2-1}{4\eta^2} + \frac{F}{4}\eta\right) \chi_2 &= 0, \end{aligned} \quad (4.2)$$

qui correspondent à deux équations de Schrödinger unidimensionnelles associées à l'énergie $\frac{E}{4}$. Pour chaque coordonnée, il est possible d'associer un

potentiel effectif :

$$\begin{aligned} U_1(\xi) &= -\frac{\beta_1}{2\xi} + \frac{m^2-1}{4\xi^2} + \frac{F}{8}\xi, \\ U_2(\eta) &= -\frac{\beta_1}{2\eta} + \frac{m^2-1}{8\eta^2} - \frac{F}{8}\eta. \end{aligned} \quad (4.3)$$

Dans les deux équations en η et ξ , l'énergie est considérée comme un paramètre fixé, les constantes de séparation β_1 et β_2 devenant les valeurs propres des opérateurs. Si F est positif, un mur de potentiel se forme suivant la coordonnée ξ (la particule reste liée suivant ξ) tandis qu'une barrière de potentiel dont la largeur diminue avec le champ se forme suivant η , ce qui signifie que suivant cette coordonnée, l'effet tunnel unidimensionnel pour l'hydrogène est une modélisation exacte du processus. C'est la démarche que [Landau, 67(III)] avait utilisée pour évaluer la probabilité d'ionisation tunnel en champ statique et que [Shakeshaft *et al*, 90] a reprise pour déterminer l'intensité de saturation. Dans ce but, connaissant maintenant le potentiel effectif unidimensionnel $U_2(\eta)$, il faut évaluer la position η_0 de son maximum : ce faisant, nous obtenons la condition :

$$F\eta_0 = \frac{4\beta_2}{\eta_0} + \frac{2}{\eta_0^2}. \quad (4.4)$$

D'autre part, pour que l'intensité de saturation soit atteinte, il faut que

$$U_2(\eta_0) = \frac{E}{4},$$

ce qui nous donne la deuxième condition :

$$F\eta_0 = (-2E) - \frac{4\beta_2}{\eta_0} - \frac{1}{\eta_0^2}. \quad (4.5)$$

d'où la position du maximum en :

$$\eta_0 = \frac{2}{(-E)} \left(\beta_2 + \sqrt{\beta_2^2 - \frac{3E}{8}} \right). \quad (4.6)$$

Dans les études de [Landau, 67(III)] et [Shakeshaft *et al*, 90], la constante de séparation β_2 est évaluée par la méthode des perturbations, lorsque $F = 0$, $\beta_1 = \beta_2 = (-2E)^{1/2}/2$ pour l'état fondamental $1s$. Par application de la théorie des perturbations³, nous pouvons déterminer les corrections en F et F^2 à la valeur de β_2 :

$$\beta_2^{(1)} = -\frac{F}{(-4E)} \text{ et } \beta_2^{(2)} = -\frac{9}{8(-2E)^{5/2}} F^2$$

³Nous avons vérifié à l'aide des calculs exacts en champ statique effectués par [Scrinzi, 00b], que la théorie des perturbations est valable jusque $F \approx 0.17 u.a.$ (cf. figure 4.1)

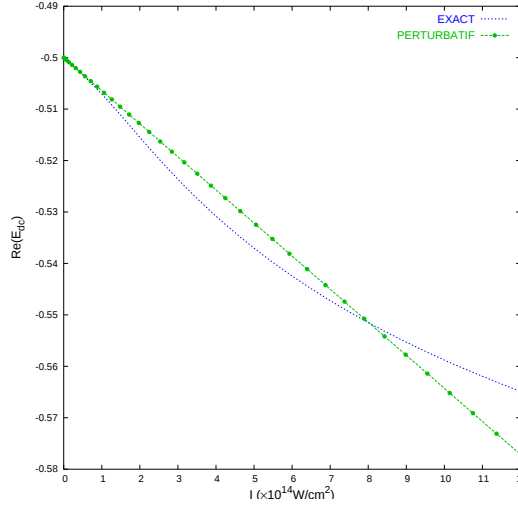


FIG. 4.1: Evolution de la partie réelle de l'énergie de l'état fondamental de l'hydrogène en champ statique d'après les calculs effectués par rotation complexe du Hamiltonien [Scrinzi, 00b] et suivant la loi perturbative : $Re(E_{dc}) = -0.5 + (9/4) I$. Même si l'évolution de l'énergie exacte n'est pas linéaire, les prédictions données par la loi perturbative ne diffèrent pas de plus de 10% des valeurs "exactes" jusqu'à $8 \times 10^{14} W/cm^2$. Au delà de $I = 1.2 \times 10^{15} W/cm^2$, les deux courbes divergent nettement.

soit finalement la relation entre β_2 , F et E :

$$\beta_2 = \frac{(-2E)^{1/2}}{2} - \frac{F}{(-4E)} - \frac{9}{8(-2E)^{5/2}} F^2. \quad (4.7)$$

L'insertion des équations (4.7, 4.6) dans l'équation (4.5), et la résolution numérique de l'équation résultante permet à [Shakeshaft *et al*, 90] d'obtenir un champ critique pour l'hydrogène dans l'état $|1s\rangle$:

$$F_{sat} \approx 0.159 u.a. \Rightarrow I_{sat} \approx 7.9 \times 10^{14} W/cm^2.$$

Signalons qu'à l'ordre 0 des perturbations :

$$\beta_2 = 1/2 \rightarrow \eta_0 = 4.65 u.a. \rightarrow F_{sat} = 0.112 u.a.;$$

ce qui signifie que la prise en compte du décalage Stark de l'état $|1s\rangle$ induit une correction de l'ordre de 30% sur la valeur du champ critique à l'ordre 0 du champ ; on peut considérer raisonnablement que la théorie des perturbations est encore valable.

Nous constatons que la symétrie supplémentaire qui existe dans le cas de l'hydrogène(1s) induit selon le calcul précédent une valeur d'intensité critique qui excède de plus de deux fois la valeur prévue par l'analyse du

potentiel effectif classique en coordonnées cylindriques. L'interprétation de R. Shakeshaft de cette valeur anormale du champ de saturation est “*qu'en coordonnées paraboliques les mouvements des paquets suivant les deux axes sont décorrélés, tandis qu'en coordonnées cylindriques le franchissement du tunnel suivant l'axe z est couplé au mouvement dans le plan perpendiculaire*”. Nous devons, dans un premier temps, vérifier l'adéquation de cette valeur avec nos résultats numériques. De plus, cette intensité de saturation correspond à la valeur qu'il faut atteindre pour que l'ionisation ait lieu en moins d'une période laser. Elle ne correspond pas selon nous à la valeur de l'intensité pour laquelle le régime d'ionisation au-dessus de la barrière est amorcé. Nous nommons cette dernière *intensité critique* et dans la section qui suit, nous déterminons un critère classique pour la définir exactement.

4.2 Définir l'intensité critique pour l'hydrogène

4.2.1 Vérifier la valeur de l'intensité de saturation

L'*intensité de saturation*, pour laquelle on considère que le fondamental est dépeuplé en moins d'une période doit donc être définie numériquement. Si la durée de l'interaction est de quelques femtosecondes, l'évaluation précise de cette quantité devient cruciale. Nous considérons, dans ce but, une impulsion plus intense de manière à ce que cette valeur soit atteinte au moins deux fois pendant l'interaction. Nous utilisons une forme temporelle d'impulsion donnée par l'équation (3.36) de 4 cycles optiques (identique à celle de la figure 4.11) et d'intensité pic égale à $I_0 = 10^{15} \text{ W/cm}^2$. Avec cette impulsion, l'intensité définie par R. Shakeshaft est atteinte ou dépassée sur une période. La résolution numérique de l'ESDT nous a permis d'obtenir une ionisation de 90% au centre de l'interaction soit une demi-période après que I_{sat} ait été atteinte. Ce résultat numérique est en assez bon accord avec la valeur⁴

$$I_{sat} \approx 8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2 \rightarrow E_{sat} = 0.16 \text{ u.a.}$$

comme détermination de l'intensité de saturation de l'hydrogène.

4.2.2 Définir le régime d'ionisation au-dessus de la barrière

Nous nous intéressons maintenant à la valeur de l'intensité *critique*. Afin de déterminer cette intensité où le régime “au-dessus de la barrière” est atteint, nous comparons tout d'abord, pour l'interaction de 8 cycles optiques, l'ionisation obtenue en fonction de l'intensité quantiquement et classiquement⁵. Cette comparaison est effectuée sur la figure 4.2. Le premier

⁴nous adoptons à nouveau, et ce, jusqu'à la fin de notre exposé la notation E pour désigner l'amplitude du champ électrique.

⁵nous évoquons la méthode classique utilisée dans la section 4.6

constat frappant est l'important décalage des seuils d'ionisation quantique et classique. Quantiquement, pour cette durée d'interaction, il est inférieur à 10^{14} W/cm^2 , tandis que classiquement, il se situe vers $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Cette différence est compréhensible puisque nous savons que classiquement, l'ionisation sera significative uniquement si le régime au-dessus de la barrière est installé. C'est l'argument que nous utilisons pour définir l'intensité critique recherchée. Lorsque l'ionisation classique est amorcée, le régime au-dessus de la barrière est atteint. Nous considérons par conséquent une intensité critique de :

$$I_{crit} \approx 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2 \rightarrow E_{crit} = 0.11 \text{ u.a.}$$

Signalons que cette valeur du champ critique est en bon accord avec la valeur obtenue également par des considérations classiques en champ statique [Bauer, 97]. Dans cet article,

$$E_{crit} = 1/9 \text{ u.a.} \rightarrow I_{crit} = 4.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$$

était l'intensité pour laquelle l'énergie d'un électron classique coïncide avec le sommet de la barrière tandis que son énergie compensée (énergie totale moins énergie potentielle due à l'interaction dipolaire) reste négative ; ce qui, selon nous, est effectivement le critère d'initialisation du régime d'ionisation *classique* au-dessus de la barrière.

La figure 4.2 montre également une évolution différente en fonction de l'intensité. L'augmentation dans le cas quantique est globalement plus rapide. Cette différence peut être comprise qualitativement par l'approximation quasi-statique de l'évaluation du pourcentage d'ionisation à la fin de l'interaction :

$$P(\Delta t) = \exp \left(- \int_0^{\Delta t} \Gamma(t') dt' \right).$$

Classiquement, tant que l'intensité reste proche de l'intensité critique, l'ionisation a lieu quasiment ponctuellement dans le temps, une fois par demi-période lorsque le champ atteint son maximum. Quantiquement, le taux d'ionisation étant non nul pour des valeurs inférieures à l'intensité critique, l'ionisation peut avoir lieu sur une fraction plus large d'une demi-période, d'où l'évolution plus rapide du pourcentage d'ionisation en fonction de l'intensité.

Ces deux valeurs d'intensité, cruciales pour notre étude du mécanisme d'ionisation, sont maintenant clairement définies pour l'hydrogène ; nous pouvons commencer l'analyse de la dynamique du processus en démontrant l'efficacité de l'espace des moments pour la caractériser.

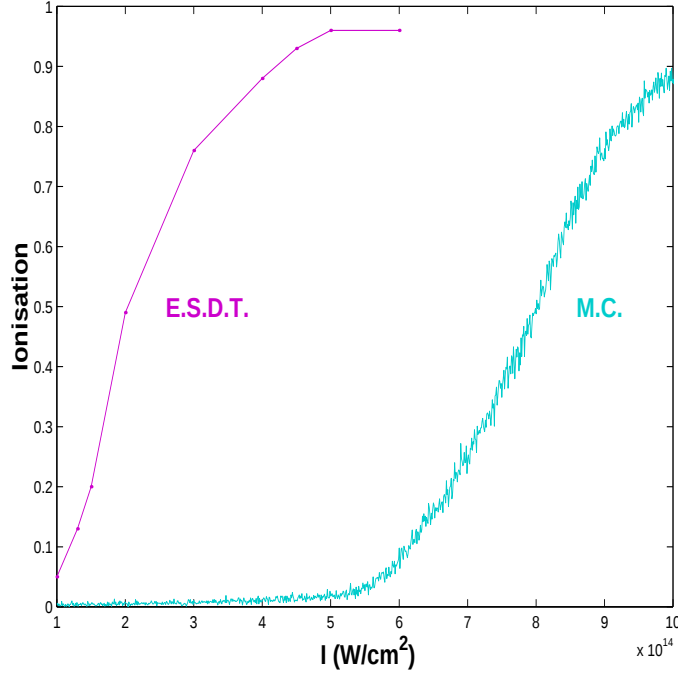


FIG. 4.2: Pourcentage d'ionisation obtenu à la fin d'une interaction de 8 cycles optiques en fonction de l'intensité du laser. Ces pourcentages sont évalués soit en résolvant numériquement l'ESDT, soit en effectuant une simulation classique de Monte-Carlo.

4.3 Un outil de visualisation de l'ionisation

A notre connaissance, l'étude de la dynamique des interactions laser-atome, par résolution de l'ESDT, a toujours été effectuée dans l'espace des configurations. En particulier, l'ionisation, comme nous l'avons rappelé un peu plus haut, est définie par rapport à l'éloignement du paquet d'onde ionisé. Nous voulons maintenant, en illustrant notre raisonnement par l'étude d'un cas relativement académique, montrer l'intérêt de l'espace des moments pour caractériser *la dynamique* de l'ionisation et si possible de manière instantanée.

Nous commençons notre analyse en signalant que pour les résultats numériques que nous présentons, une base de $n = 1100$ B-splines, $p_{max} = 100$ *u.a.* et de $l_{max} = 25$ moments angulaires a été utilisée. Nous nous assurons de la convergence de nos résultats en les comparant avec la méthode de résolution développée par [Huens *et al*, 97], quelques exemples sont illustrés dans l'appendice D.7.

Nous considérons l'atome d'hydrogène initialement dans son état fon-

damental interagissant avec un laser Ti : Saphir ($\omega = 0.057u.a.$), pendant 8 cycles optiques. La forme temporelle du champ électrique est définie par l'équation (3.35). De cette manière, l'intensité laser reste constante sur 4 cycles optiques, $I = 1.3 \times 10^{14} W/cm^2$. Nous représentons sur la figure 4.3, la densité de probabilité $|\Psi(p_z, t)|^2$, c'est-à-dire que nous restreignons temporairement l'analyse aux électrons possédant uniquement un moment canonique suivant l'axe de polarisation, la composante transverse $p_n = 0$.

Lors d'une telle interaction, la probabilité d'ionisation totale est de 13%. Toute la fonction d'onde est utilisée pour représenter la densité. En effet, étant donné que nous travaillons dans la forme $\mathbf{A} \cdot \mathbf{P}$ du Hamiltonien d'interaction, retirer des états, par exemple liés, pour avoir accès à une information plus restreinte sur le continuum n'aurait pas de sens pendant l'interaction.

Commençons par la caractéristique dominante de ce graphe :

- *La densité de probabilité présente des oscillations dont la périodicité correspond à celle du champ laser. Nous avons superposé le potentiel vecteur $A(t)$ à cette densité de probabilité et nous constatons que le maximum de la densité s'avère être en exacte opposition de phase avec le potentiel vecteur. Cette allure est caractéristique du régime basse fréquence que nous considérons, nous y revenons un peu plus loin car elle présente un grand intérêt du point de vue de la définition du régime tunnel. Nous nous concentrons pour le moment sur la manifestation de l'ionisation dans l'espace des " $\mathbf{p}$ ".*
- **Après 2.5 périodes, des stries, dont la position reste en bonne approximation constante sur l'axe p_z en fonction du temps, apparaissent.**

Elles constituent un des points clés de notre analyse dans l'espace des moments. Elles correspondent à une fraction de la fonction d'onde caractérisée par un moment canonique **constant** dans le temps. D'après le théorème d'Ehrenfest appliqué dans la forme vitesse de l'interaction, nous savons donc que **pour cette fraction** de $\Psi(\mathbf{p}, t)$:

$$\frac{d}{dt} \langle \mathbf{P} \rangle = -i \langle [\mathbf{P}, H] \rangle = - \langle \nabla V \rangle \approx 0. \quad (4.8)$$

Ces stries sont donc **des états de Volkov**, tels que nous les avons définis dans le chapitre 1. Ces états libres par rapport à l'interaction Coulombienne sont donc la manifestation **instantanée** de l'ionisation. En effet, même s'il est difficile de le percevoir, la position de ces stries sur la figure 4.3 coïncide parfaitement avec la position des pics sur le spectre des électrons éjectés à la fin de l'interaction représenté sur la fi-

figure 4.4. L'énergie associée à chaque strie $p^2/2$ correspond à l'énergie cinétique des électrons *mesurable* lors de la détection des électrons, ainsi que l'ont montré [Bucksbaum *et al*, 87].

L'espace des moments associé à la forme vitesse de l'interaction est donc une représentation privilégiée pour étudier la dynamique de l'ionisation.

C'est le critère que nous utilisons désormais pour caractériser la dynamique de l'ionisation. Les fractions de la densité de probabilité caractérisées par un moment canonique constant correspondent à la partie ionisée de la densité de probabilité.

- Un dernier constat “évident” est que la densité de probabilité $|\Psi|^2$ reste localisée au cours de l'interaction. Cette localisation s'avère intéressante lorsque l'on travaille à haute intensité. En “**r**”, les paquets éjectés dans le continuum peuvent avoir une amplitude d'oscillation de l'ordre de $\alpha_0 = E_0/\omega^2$ (excursion classique d'un électron dans le champ laser). Lorsque l'intensité laser augmente, ces amplitudes de plus en plus élevées sont numériquement problématiques à reproduire (et ce quelle que soit la méthode considérée). Ici, la localisation de la fonction d'onde associée à une méthode de type “grille” permettrait à haute intensité de “simplifier” la résolution numérique de l'ESDT.

4.3.1 Une analyse temps-énergie pour les électrons éjectés

Ces premières visualisations de la fonction d'onde dans l'espace des moments ont une conséquence immédiate et presque évidente mais qu'il est bon d'explicitier. Dans la troisième partie de ce travail, les analyses temps-fréquence que nous utilisons pour comprendre les effets de phase sur les spectres des harmoniques se montrent extrêmement importantes pour justifier la validité du modèle du champ fort. Elles permettent en effet d'avoir accès *aux temps d'émission des harmoniques* que l'on peut ensuite comparer avec les prédictions du modèle.

Puisque nous travaillons dans l'espace des moments, l'étude dynamique que nous réalisons de la densité de probabilité n'est rien d'autre qu'une analyse temps-énergie. Cela suppose que nous nous intéressions à une fraction de la densité de probabilité dont l'énergie est déjà définie. Pour la partie ionisée de la fonction d'onde une telle analyse est possible puisque nous travaillons en terme de moment canonique - identique à l'énergie cinétique finale des électrons. En traçant sur la figure 4.3, $|\Psi(p_z, p_n = 0, t)|^2$ en fonction du temps, nous avons simplement accès aux instants d'apparition des énergies des états ionisés. Notre méthode est, en quelque sorte, l'équivalent

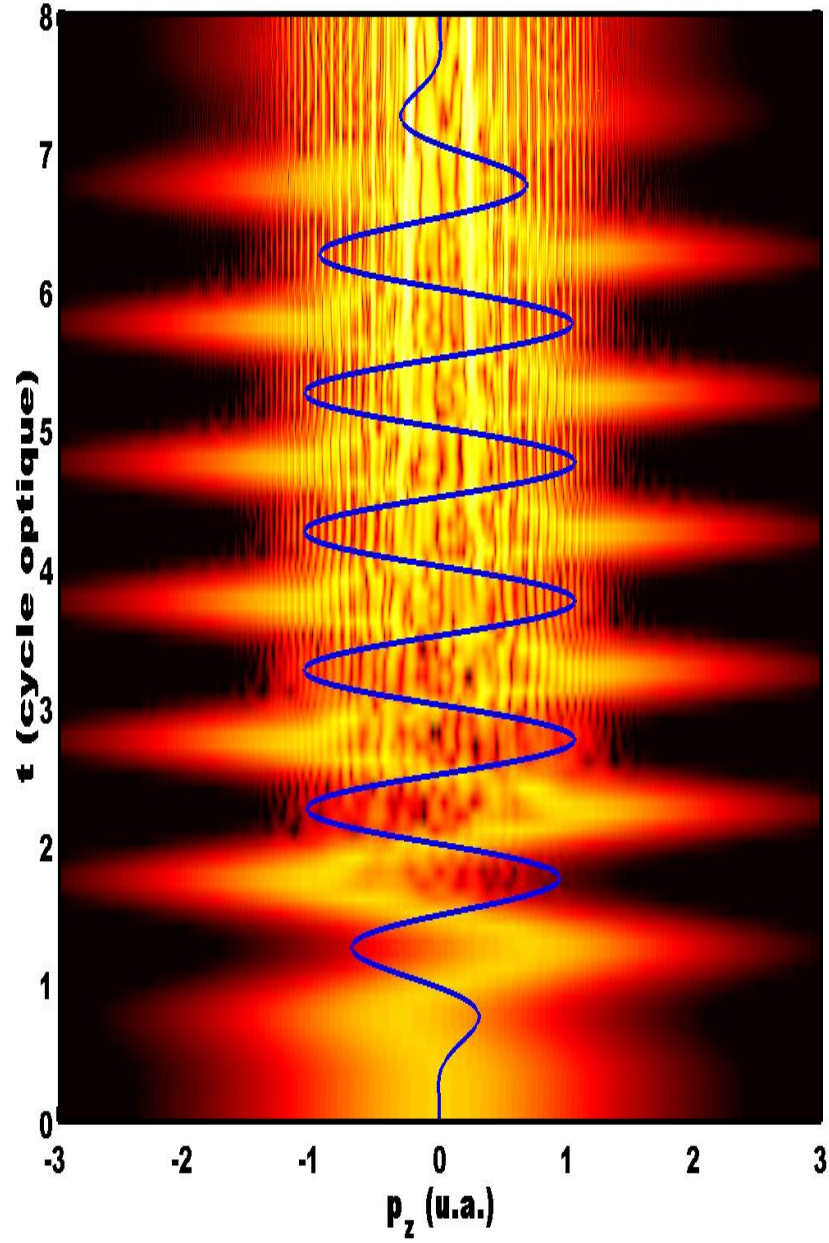


FIG. 4.3: Densité de probabilité $|\Psi(p_z, p_n = 0, t)|^2$ en échelle logarithmique pour une interaction de 8 cycles optiques, $\omega = 0.057 u.a.$, $I_0 = 1.3 \times 10^{14} W/cm^2$. Le potentiel vecteur $A(t)$ est superposé en bleu.

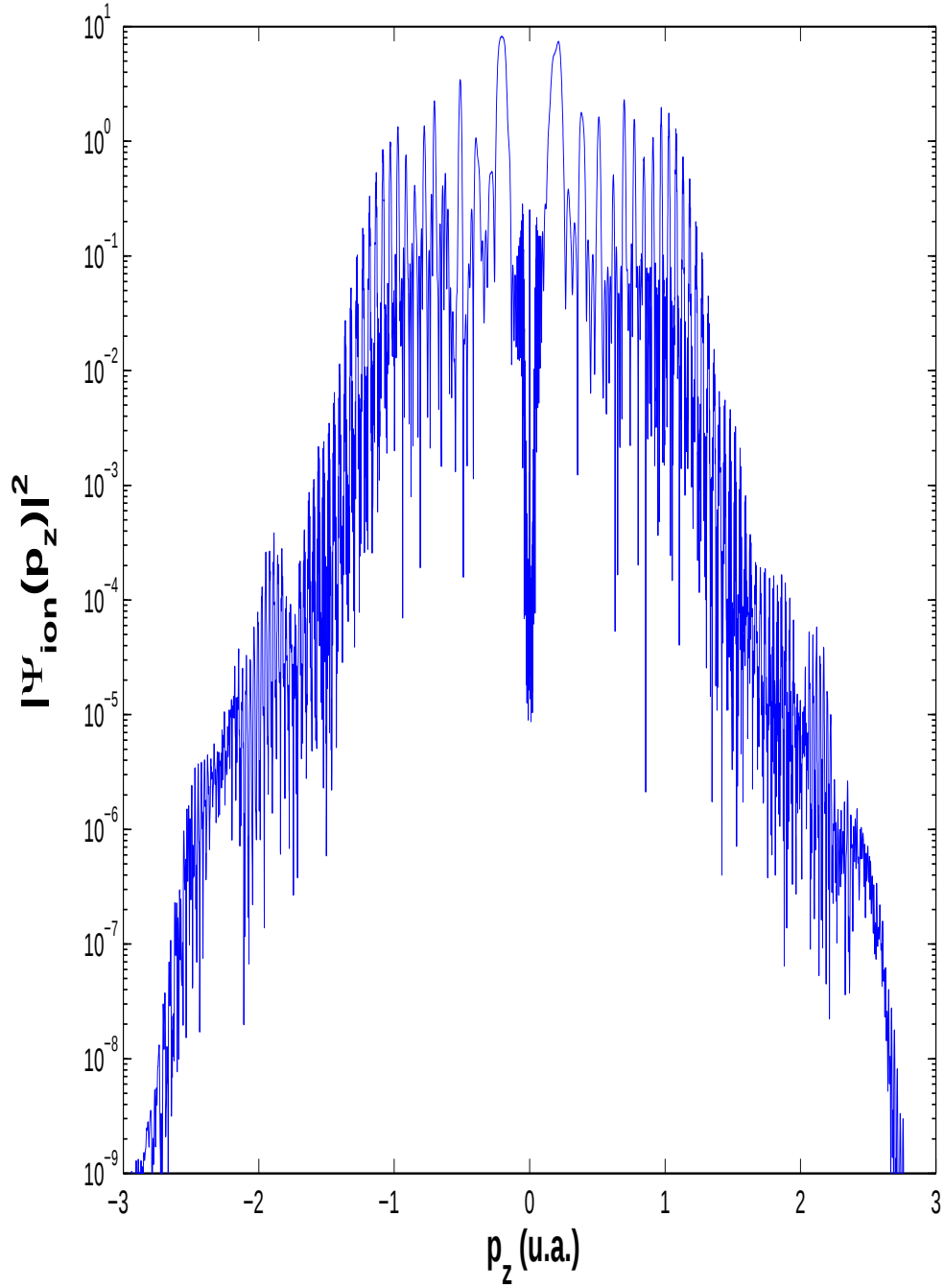


FIG. 4.4: Spectre des électrons éjectés à la fin de l'interaction. $|\Psi_{ion}(p_z, p_n = 0, t)|^2$ est obtenu en supprimant tous les états liés de la fonction d'onde.

- pour la partie ionisée de la fonction d'onde - de l'analyse temps-fréquence effectuée pour le spectre des harmoniques émises.

Structure en ω des spectres

Une application immédiate de cette remarque consiste à expliquer la structure ATI des spectres des électrons éjectés du point de vue de l'évolution temporelle de la densité de probabilité. Pour l'interaction considérée sur les figures 4.3 et 4.4, nous représentons (sur la figure 4.5), à la fin de l'interaction, le spectre en énergie des électrons éjectés sur l'axe de polarisation (vers l'avant $p_z > 0$ et vers l'arrière $p_z < 0$). Nous avons déjà expliqué qualitativement l'allure de ce spectre dans le chapitre 2. Nous constatons ici, que les spectres obtenus vers l'avant et vers l'arrière ne sont pas symétriques du point de vue de l'amplitude des pics ATI (essentiellement dans la partie haute énergie du spectre). Sans pousser plus loin l'analyse, cette asymétrie peut *a priori* être attribuée à la brièveté de l'interaction. La caractéristique sur laquelle nous nous concentrons maintenant est la séparation de l'énergie d'un photon ω entre les pics ATI.

Nous avons schématisé, dans l'introduction, le processus d'ionisation multiphotonique et ATI par l'absorption successive de plusieurs photons ; ce qui nous permet de comprendre immédiatement pourquoi en terme d'énergie, le spectre final est constitué de pics espacés de l'énergie d'un photon. Il est intéressant de rappeler ce à quoi cela correspond du point de vue dynamique. Si nous observons, sur la figure 4.3, la position et la formation des stries que nous avons associées à l'ionisation, leur espacement en p_z correspond à une énergie de ω . Ces stries apparaissent seulement au bout de 2-3 cycles optiques. Il est difficile de le distinguer sur la figure mais tous les pics ATI jusqu'en $2U_p$ sont déjà présents dans le spectre. Si nous nous référons à la population dans les états du continuum en fonction du temps, 1% de la fonction d'onde a été ionisé entre 1 et 2 cycles optiques mais aucune structure n'est apparue à cet instant. De plus nous voyons que la structure des pics est de mieux en mieux définie lorsque le nombre de cycles optiques augmente. Nous pouvons donc vérifier que la structure en ω des spectres d'électrons correspond à la répétition du même événement toutes les périodes. En fonction du signe du champ, les électrons sont émis soit du côté positif (vers l'avant) soit du côté négatif (vers l'arrière) conduisant finalement du point de vue énergétique à une périodicité en ω .

Cette analyse "temps-énergie" nous permet, d'autre part, un peu plus loin de tester la validité du modèle du champ fort. Ainsi que nous l'avons rappelé dans le chapitre 2, ce modèle suggère que les différents paquets d'électrons sont éjectés à une phase bien définie du champ électrique. Nous

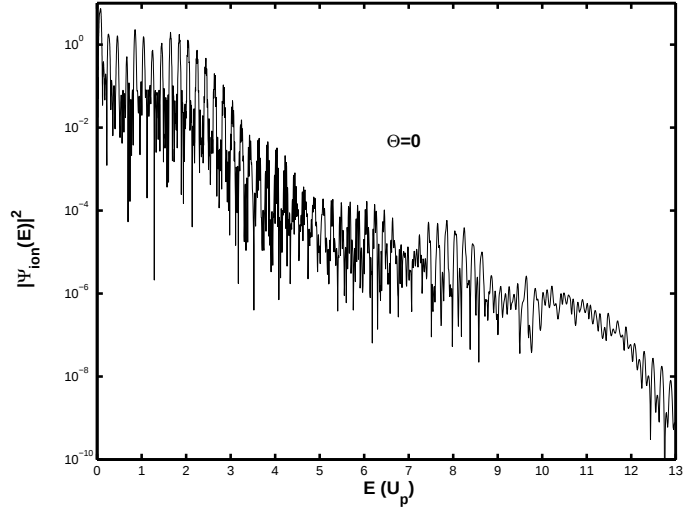
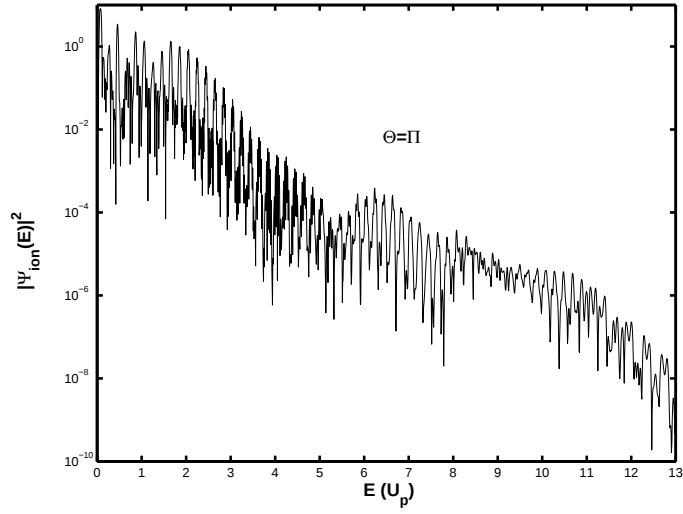
(a) $\theta = 0$ (b) $\theta = \pi$

FIG. 4.5: Spectre des électrons éjectés vers l'avant et vers l'arrière en fonction de l'énergie cinétique acquise au moment de l'éjection. L'énergie est évaluée en fonction du potentiel pondérateur $U_p = 0.286 \text{ u.a.}$

avons ici accès à ces phases d'apparition des paquets ionisés et pouvons, par conséquent, effectuer ce test très simplement.

Le cas à $I = 1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, que nous avons considéré jusqu'ici, pose cependant un problème du point de vue de l'approximation du champ fort. A la fréquence laser que nous utilisons, le paramètre de Keldysh vaut $\gamma = 0.93$. Le critère du champ fort ($\gamma \ll 1$) n'est donc pas *a priori* applicable, nous nous trouvons dans un régime d'ionisation intermédiaire entre le multiphoton et le tunnel. Notre but est maintenant de définir une intensité seuil (un “ γ -seuil”) au-delà de laquelle nous pouvons considérer que nous nous trouvons dans le domaine du champ fort. Nous proposons, dans ce dessein, de revenir à l'autre caractéristique de la densité de probabilité de la figure 4.3, c'est-à-dire son mouvement global en opposition avec $A(t)$.

4.4 Mise à profit de l'observable vitesse

Puisque la fraction de la densité de probabilité qui reste à moment canonique constant en fonction du temps peut être associée à la partie ionisée, en raisonnant par l'absurde - ou logiquement, c'est selon... - ce qui bouge *en terme de moment canonique* doit rester lié! Nous constatons de plus que le maximum global de la densité de probabilité évolue comme $-A(t)$. Puisque nous nous trouvons dans le régime basse fréquence, l'état fondamental doit être le seul état lié physique jouant un rôle dans l'interaction, s'il n'y a pas de transitions radiatives effectives vers des états excités. Ceci n'est vrai que dans l'approximation du champ fort c'est-à-dire dans le modèle tunnel. C'est ce qui distingue finalement le régime tunnel du régime multiphotonique. Dans le cas où le seul état lié physique jouant un rôle dominant dans l'interaction est l'état fondamental, nous pouvons écrire :

$$\langle v_z \rangle_{li\acute{e}} \approx 0. \quad (4.9)$$

Etant donné le lien entre vitesse et moment canonique, nous en déduisons :

$$\langle p_z \rangle_{li\acute{e}} \approx -A(t),$$

dans l'approximation du champ fort, basse fréquence. De loin, de nuit par temps de brouillard, la densité de probabilité sur la figure 4.3 semble satisfaire ce critère. Plus sérieusement, il nous faut donc évaluer la valeur moyenne de la vitesse suivant z pour vérifier ce critère. Ce que nous effectuons sur les figures 4.6 et 4.7 pour 3 intensités ($I = 1.3 \times 10^{14}$, 2×10^{14} et $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$). Evidemment, nous tenons compte dans la valeur moyenne de toute la fonction d'onde et par conséquent des états ionisés. Sur chaque figure, le potentiel vecteur a été multiplié par un facteur d'échelle qui correspond plus ou moins au pourcentage d'ionisation final. Nous constatons que

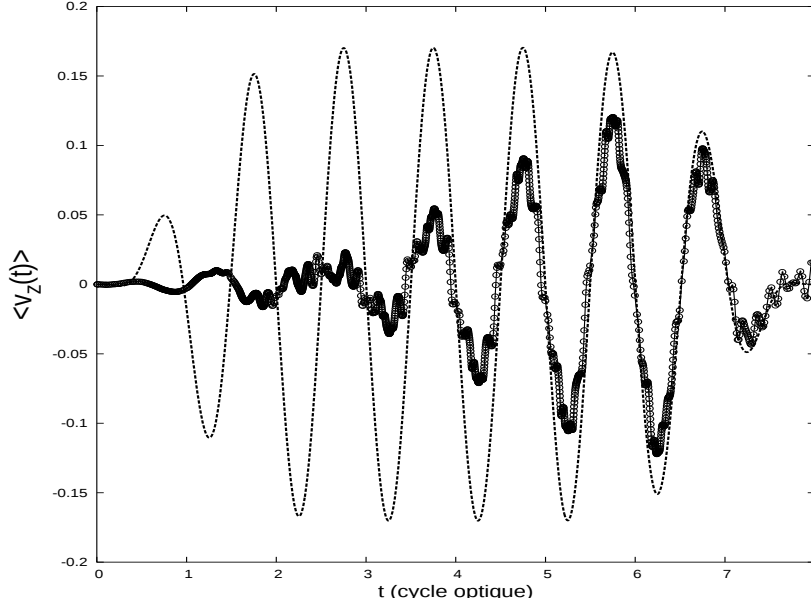


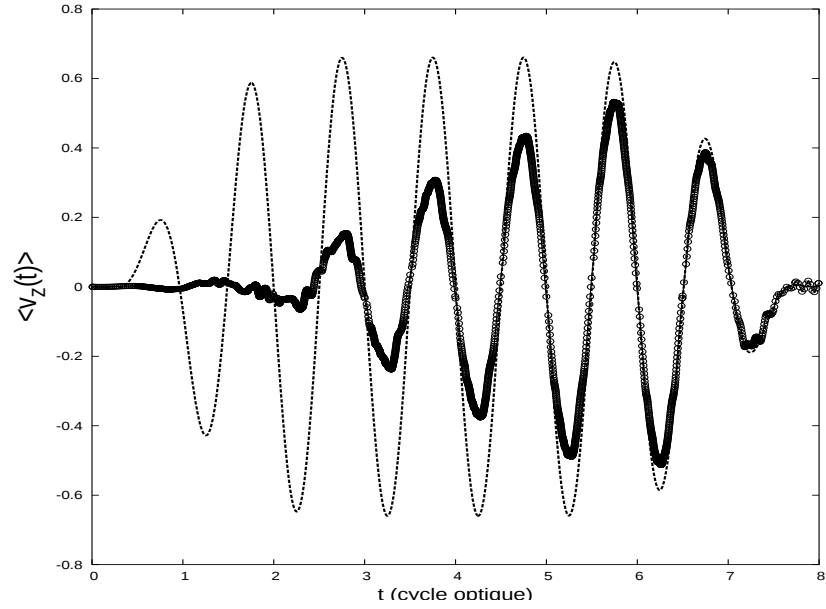
FIG. 4.6: Valeur moyenne de la vitesse $\langle v_z(t) \rangle$ en fonction du temps superposée au potentiel vecteur $A(t)$ multiplié par un facteur d'échelle r . $I = 1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $r = 0.1$. $\langle v_z(t) \rangle$ (ligne+cercle) et $A(t)$ (pointillés).

lorsque l'intensité augmente, l'allure de la vitesse moyenne coïncide de mieux en mieux avec le potentiel vecteur, les deux quantités sont bien en phase, tandis que dans le cas $I = 1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, la vitesse moyenne est une fonction beaucoup plus complexe du temps mais dont le comportement à la fin de l'interaction s'accorde mieux avec le potentiel vecteur. Nous avons, d'autre part, vérifié que l'amplitude instantanée de la vitesse pouvait s'expliquer en multipliant le potentiel vecteur par le taux d'ionisation instantané (que nous considérons comme étant égal à $1 - |a_{1s}(t)|^2$, où $a_{1s}(t)$ est l'amplitude du fondamental évaluée à l'instant où le potentiel vecteur est nul). Il semble qu'il existe un lien "évident" entre $\langle v_z(t) \rangle$ et le potentiel vecteur, faisant intervenir ce taux. Il n'existe pas de démonstration exacte de ce lien, mais nous proposons une démonstration formelle basée sur l'approximation du champ fort.

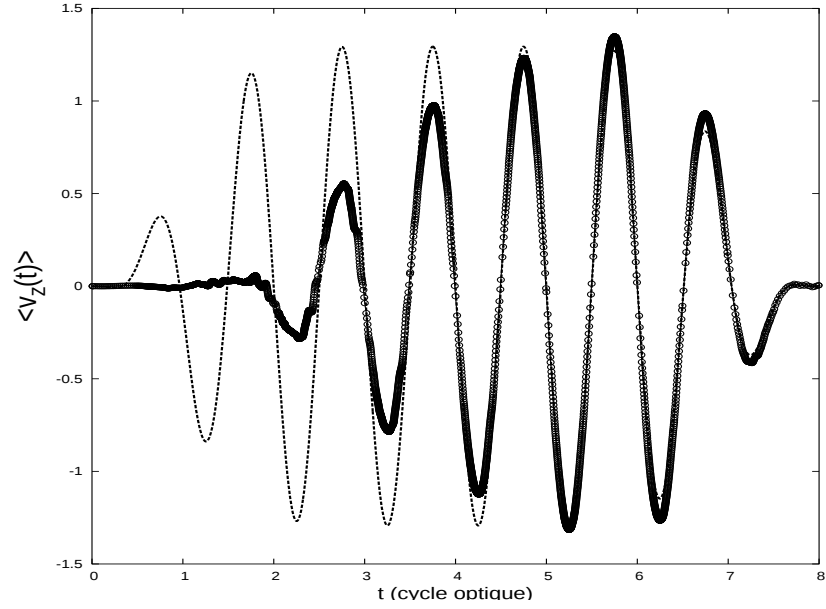
4.4.1 Un autre critère "tunnel" ?

Considérons le modèle du champ fort où seul l'état fondamental $|1s\rangle$ et les états du continuum $|\mathbf{k}\rangle$ sont utilisés pour décrire la fonction d'onde à l'instant t :

$$|\Psi(t)\rangle = a_{1s}(t) |1s\rangle + \int d\mathbf{k} g(\mathbf{k}, t) |\mathbf{k}\rangle, \quad (4.10)$$



(a) $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $r = 0.5$. $\langle v_z(t) \rangle$ (ligne+cercle) et $A(t)$ (pointillés).



(b) $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $r = 0.8$. $\langle v_z(t) \rangle$ (ligne+cercle) et $A(t)$ (pointillés).

FIG. 4.7: Valeur moyenne de la vitesse $\langle v_z(t) \rangle$ en fonction du temps superposée au potentiel vecteur $A(t)$ multiplié par un facteur d'échelle r .

Nous nous plaçons *dans la forme longueur de l'interaction* mais définissons toujours un opérateur moment canonique $\mathbf{P}$ tel que :

$$\mathbf{v} = \mathbf{P} + \mathbf{A}(t).$$

Ainsi, les états du continuum en champ fort basse fréquence sont des états de Volkov :

$$\text{orthogonaux au } |1s\rangle : \langle 1s | \mathbf{k} \rangle = 0;$$

$$\text{états propres du moment canonique : } \mathbf{P} | \mathbf{k} \rangle = \mathbf{k} | \mathbf{k} \rangle.$$

A un instant t quelconque, la valeur moyenne de la vitesse s'écrit :

$$\begin{aligned} \langle v_z(t) \rangle &= a_{1s}^*(t) \int d\mathbf{k} g(\mathbf{k}, t) \langle 1s | v_z | \mathbf{k} \rangle + c.c. \\ &+ \int d\mathbf{k} \int d\mathbf{k}' g(\mathbf{k}, t) g^*(\mathbf{k}', t) \langle \mathbf{k}' | v_z | \mathbf{k} \rangle; \end{aligned} \quad (4.11)$$

où nous avons tenu compte de la condition (4.9) sur la vitesse moyenne de la partie liée. Le premier terme se simplifie en raison de l'orthogonalité des états, reste donc l'intégrale double sur $\mathbf{k}$ faisant intervenir l'élément de matrice :

$$\langle \mathbf{k} | v_z | \mathbf{k}' \rangle = \langle \mathbf{k} | P_z + A(t) | \mathbf{k}' \rangle; \quad (4.12)$$

c'est-à-dire

$$\langle \mathbf{k} | v_z | \mathbf{k}' \rangle = k_z \delta(\mathbf{k}' - \mathbf{k}) + A(t) \delta(\mathbf{k}' - \mathbf{k}),$$

et donc

$$\langle v_z(t) \rangle = \int d\mathbf{k} k_z |g(\mathbf{k}, t)|^2 + A(t) \int d\mathbf{k} |g(\mathbf{k}, t)|^2. \quad (4.13)$$

Le premier terme correspond à la valeur moyenne en fonction du temps du moment canonique dans les états du continuum "ionisés". A chaque demi-période, dans le cadre d'une interaction à intensité constante, la même population $|g(\mathbf{k}, t)|^2$ est injectée dans le continuum de telle sorte que cette valeur moyenne est *nulle*. Cet argument de symétrie n'est plus valable pour des interactions brèves en raison de la forme de l'impulsion qui, nous l'étudions un peu plus loin engendre une asymétrie dans le spectre. Toutefois, ce terme induit un décalage de la valeur moyenne $\langle v_z(t) \rangle$ variant plus lentement que $A(t)$ et par conséquent, il est facilement détectable dans la valeur moyenne $\langle v_z(t) \rangle$. Nous "l'oublions" devant le terme dominant :

$$\langle v_z(t) \rangle = A(t) \int d\mathbf{k} |g(\mathbf{k}, t)|^2. \quad (4.14)$$

En bonne approximation, dans le modèle du champ fort, la vitesse moyenne suivant l'axe de polarisation est proportionnelle à $A(t)$ et à la densité d'états

injectés dans le continuum. Cette approximation est intrinsèquement liée au modèle tunnel proposé par Keldysh car nous sommes partis du principe qu'un seul état lié est présent dans la description de l'atome et que donc ce qui est lié reste *immobile* (*vitesse nulle*) en moyenne.

La relation (4.14) indique que dans le régime tunnel, puisque l'injection dans le continuum a lieu *essentiellement* au maximum du champ ($A(t) = 0$), la vitesse moyenne suivant z doit présenter une relation de phase avec $A(t)$. En effet, dans le modèle du champ fort, le terme

$$\Gamma(t) = \int d\mathbf{k} |g(\mathbf{k}, t)|^2,$$

est une fonction qui croît par “paliers” successifs toutes les demi-périodes, lorsque le champ électrique atteint son maximum. Sur chaque palier de cette fonction, $\langle v_z(t) \rangle$ est proportionnelle à $A(t)$; ce que nous observons sur les figures 4.6 et 4.7. Nous pouvons, tout d'abord, à partir de nos résultats numériques, évaluer la quantité $\Gamma_{num}(t) = \langle v_z(t) \rangle_{num} / A(t)$, pour vérifier si nous obtenons effectivement une allure en “marche d'escalier” pour cette fonction. Numériquement, évidemment, cette évaluation est problématique étant donné que le potentiel vecteur passe périodiquement par zéro. Nous la représentons toutefois pour $I = 3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ sur la figure 4.8, en éliminant les points pour lesquels $A(t) \rightarrow 0$. Sur cette figure, $|A(t)|$ est également représentée.

Nous pouvons conclure qu'en bonne approximation, $\Gamma_{num}(t)$ est effectivement une fonction quasi-constante lorsque $A(t) \neq 0$. Pour un “palier” donné, les fluctuations observables sur la figure n'excèdent jamais 5 – 10%. Même si nous ne connaissons pas leur origine physique exacte, elles sont négligeables devant l'accroissement des paliers toutes les demi-périodes.

La relation de phase existant *dans le domaine du champ fort basse fréquence* entre $\langle v_z(t) \rangle$ et $A(t)$ semble se vérifier numériquement. Mais il existe une manière à la fois plus amusante, moins ambiguë, et à notre avis plus précise de vérifier cette relation de phase. Nous pouvons, en effet, simplement représenter $\langle v_z(t) \rangle$ en fonction de $A(t)$. Le résultat est reproduit sur les figures 4.9 et 4.10 pour 4 intensités : $I = 1, 1.3, 2$ et $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Nous indiquons sur chaque figure, le pourcentage d'ionisation et le paramètre de Keldysh correspondant.

Ce faisant, d'après l'analyse précédente, si le régime du champ fort (par opposition au régime multiphotonique) est atteint, la densité ionisée $\Gamma(t)$ ne peut croître que lorsque $A(t) \approx 0$. A chaque passage par cette valeur, cette densité est incrémentée de ce qui vient d'être ionisé. Si l'ionisation n'a pas lieu significativement lorsque $A(t) \neq 0$, $\langle v_z(t) \rangle$ doit être une fonction

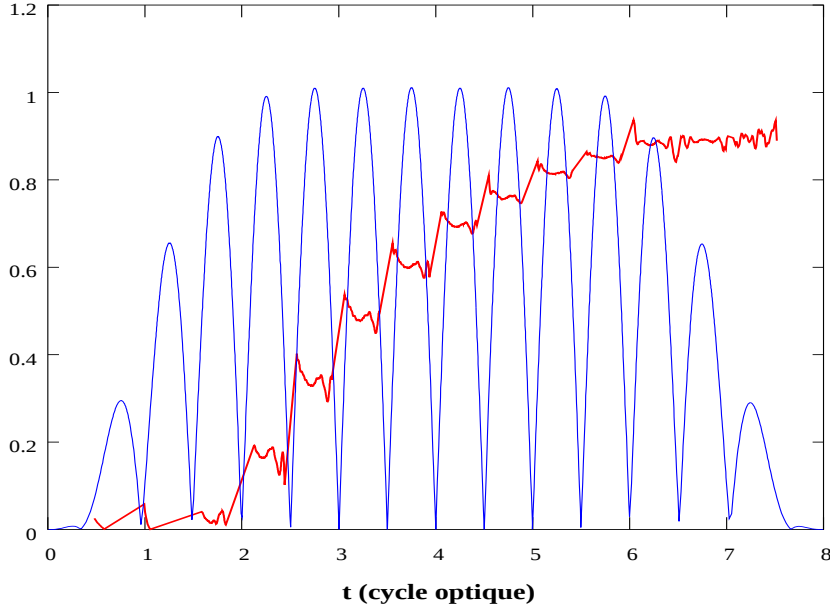


FIG. 4.8: En rouge, $\Gamma_{num}(t) = \langle v_z(t) \rangle / A(t)$ en fonction du temps superposé à $|A(t)|/A_0$, en bleu, dans le cas d'une interaction de 8 cycles optiques pour une intensité de $I = 3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

quasi-linéaire de $A(t)$. Chaque demi-période peut être distinguée par une “demi-droite” de pente correspondant à l'ionisation.

Sur la figure 4.9(a), nous pouvons constater qu'à 10^{14} W/cm^2 , aucune relation de phase n'est visible (et c'est un euphémisme!). L'injection dans le continuum a donc eu lieu à une phase quelconque du champ, tout ce qui a été ionisé l'a donc été par processus multiphotonique. A 1.3×10^{14} , une figure plus sensée commence à se dessiner, des branches apparaissent dont la pente (la fraction ionisée) augmente, signe que la relation (4.14) commence à prendre un sens. Nous voyons que pour les deux plus hautes intensités, la tendance se confirme nettement. A l'exception de la région $|A(t)| \approx 0$ (où l'ionisation a lieu), les différentes branches peuvent être raisonnablement approximées par des demi-droites, dont la différence des pentes est une **bonne indication sur le taux moyen d'ionisation par demi-période!**

On peut raisonnablement objecter que ce comportement est dû à un taux d'ionisation important (50% et 76%) à la fin de l'interaction pour $I = 2 - 3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Certes, mais quoi qu'il en soit, ce qui distingue vraiment le régime multiphoton du régime tunnel c'est finalement, le fait que l'ionisation multiphotonique peut avoir lieu à n'importe quelle phase du champ électrique, tandis que des électrons “tunnel” ne sont émis significativement que lorsque le champ est maximum.

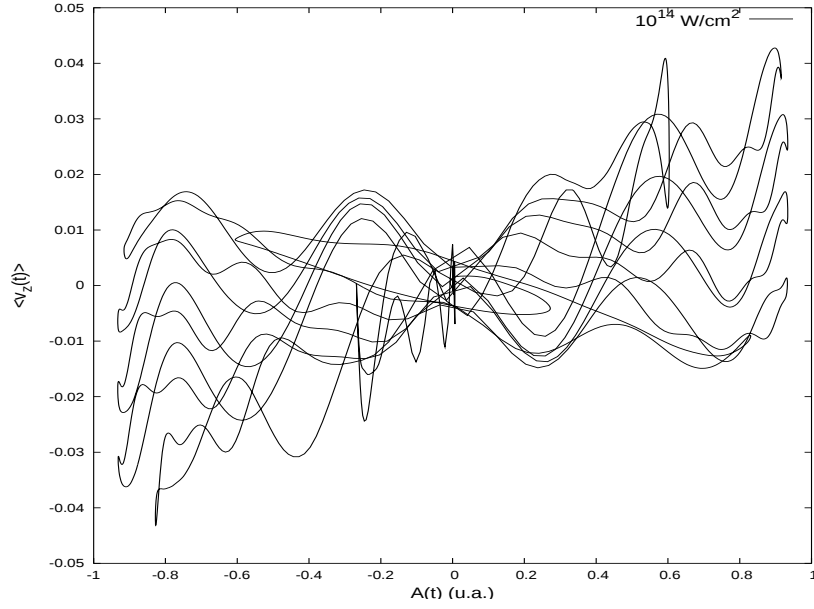
Nous suggérons donc que ce critère de relation de phase entre $\langle v_z(t) \rangle$ et $A(t)$ peut être utilisé comme critère du champ fort. Ce faisant, nous pouvons raisonnablement conclure que pour $I = 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, le régime “tunnel” est le processus d’ionisation dominant. Il nous faut être prudent avec cette appellation “tunnel” car nous montrons dans la suite de cet exposé que le mécanisme est plus complexe qu’il n’y paraît en raison de la présence du potentiel Coulombien. Nous entendons par régime tunnel, un régime d’ionisation qui implique 1 et 1 seul état lié en bon accord avec l’approximation du champ fort. Remarquons de plus que notre critère est moins restrictif que le critère imposé par Keldysh, puisque pour $I = 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\gamma = 0.75$.

4.4.2 Analyse des contributions dominantes à l’ionisation

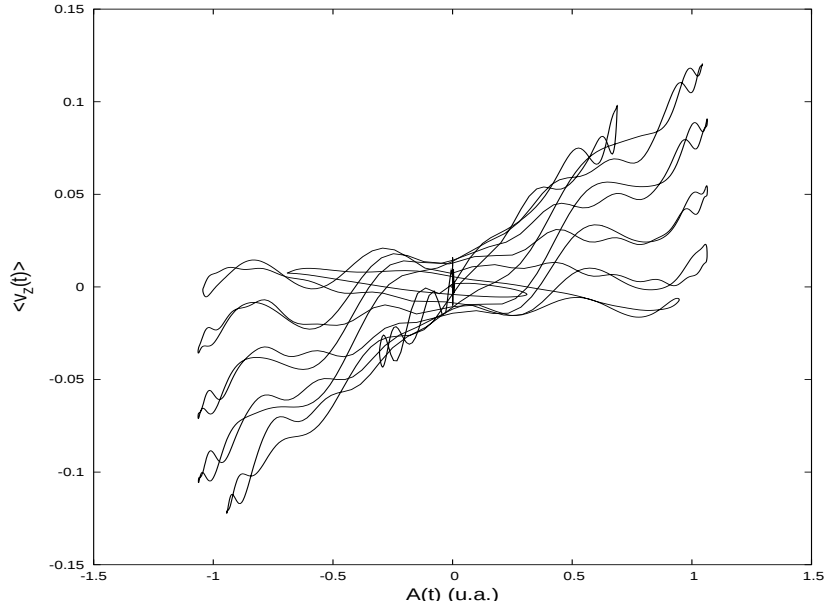
Ce critère nous permet donc de définir clairement le domaine d’intensité pour lequel le régime du champ fort est atteint. Nous nous intéressons dans les sections suivantes au mécanisme dominant du processus d’ionisation. Ainsi que nous l’avons mentionné dans le chapitre 2, le problème posé par l’approximation du champ fort est qu’il ne permet pas de comprendre quantitativement le mécanisme d’ionisation. Pour cerner les raisons de ce désaccord quantitatif, nous devons donc dans un premier temps vérifier l’approximation du champ fort du point de vue de la dynamique du processus. Notre méthode est en effet tout à fait adaptée à cette analyse.

Il nous faut confirmer tout d’abord (en nous référant au modèle exposé dans le chapitre 2) l’existence des électrons directs et indirects en nous appuyant sur les phases du champ auxquelles de tels “paquets” d’électrons peuvent être créés. D’autre part, le modèle prédit la possibilité d’interférences quantiques entre ces deux “sources” d’électrons ; interférences responsables des structures visibles dans les spectres ATI. Notre méthode, nous le montrons un peu plus loin, nous permet de vérifier l’existence de telles interférences.

Puisque nous nous intéressons aux contributions dominantes à l’ionisation, les spectres de la figure 4.5 indiquent clairement que la majorité des électrons éjectés possèdent une énergie cinétique inférieure à $2U_p$. C’est donc sur cette gamme d’énergie que nous nous concentrons désormais. Avant d’analyser, à proprement parler, la validité de l’approximation du champ fort, nous montrons comment, à l’aide de notre méthode, il est possible de comprendre cette limite - un peu paradoxale dans le modèle - en s’appuyant sur le mouvement global de la densité de probabilité en fonction du temps. Nous appliquons ensuite cette analyse dans le cadre des impulsions ultrabrèves (où la forme temporelle de l’enveloppe du champ devient cruciale) pour extraire une information sur les paramètres non-adiabatiques de l’im-

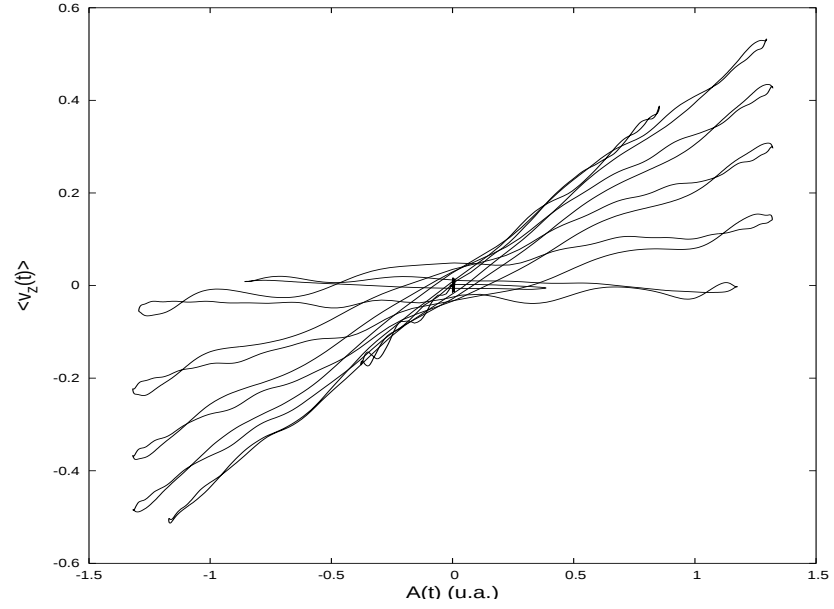


(a) 10^{14} W/cm^2 , $\gamma = 1.07$ et $P_{ion} = 5\%$.

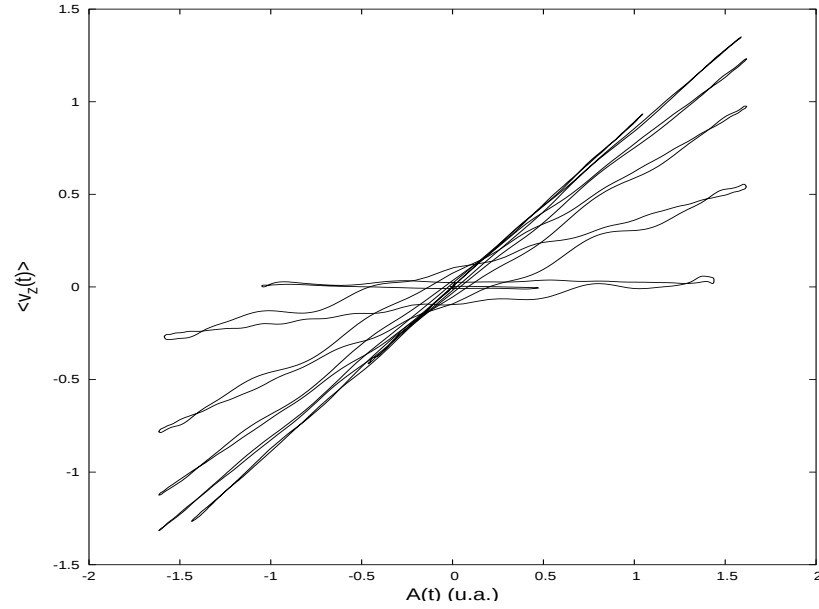


(b) $1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\gamma = 0.93$ et $P_{ion} = 14\%$.

FIG. 4.9: Valeur moyenne de la vitesse $\langle v_z(t) \rangle$ en fonction de $A(t)$. γ est le paramètre de Keldysh et P_{ion} est le pourcentage d'ionisation à la fin de l'interaction.



(a) $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\gamma = 0.75$ et $P_{ion} = 50\%$.



(b) $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\gamma = 0.61$ et $P_{ion} = 77\%$.

FIG. 4.10: Valeur moyenne de la vitesse $\langle v_z(t) \rangle$ en fonction de $A(t)$. γ est le paramètre de Keldysh et P_{ion} est le pourcentage d'ionisation à la fin de l'interaction.

pulsion laser.

4.4.3 Interprétation de la limite en $2U_p$

A $I = 1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, le régime du champ fort n'est pas tout à fait atteint, cependant, les spectres d'électrons de la figure 4.5 obtenus pour cette intensité sont caractéristiques de ceux obtenus à des intensités plus élevées. Le premier plateau limité à l'énergie de $2U_p$ peut donc être interprété dans le modèle du champ fort. Dans ce dernier, la limite de ce plateau est un peu paradoxale pour la raison suivante. Comme nous l'avons rappelé dans le chapitre 2, son existence peut être comprise dans l'approximation d'ordre zéro du potentiel Coulombien. Les paquets sont émis dans le continuum par effet tunnel, et la méthode des phases stationnaires prédit qu'ils acquièrent, au moment de leur éjection un moment canonique devant satisfaire :

$$(\mathbf{p}_0 + \mathbf{A}(t))^2 = -2I_p.$$

Ces paquets ne réinteragissent pas, d'après le modèle, avec le potentiel Coulombien, de telle sorte que le moment canonique $\mathbf{p}_0$ correspond à leur énergie cinétique finale $p_0^2/2$. Puisque le modèle du champ fort est lié au mécanisme d'ionisation par effet tunnel, l'existence des électrons les plus énergétiques ($2U_p$) est un peu paradoxale puisque la résolution de l'équation précédente implique qu'ils doivent "naître" à une phase telle que le champ électrique est identiquement nul ! Sans prendre le modèle au pied de la lettre, nous pouvons lever ce pseudo-paradoxe à l'aide de notre méthode.

Le mouvement global de la densité de probabilité, opposé à $A(t)$ suivant l'axe de polarisation, nous permet de comprendre directement l'existence de cette limite. Sur la figure 4.3, parce que la basse fréquence considérée empêche les transitions radiatives significatives vers les états excités, le maximum de la densité de probabilité se déplace donc suivant $-A(t)$ de manière à ce que la vitesse moyenne de la partie liée reste nulle.

Puisque nous travaillons dans la forme vitesse de l'interaction, la limite en $2U_p$ est moins problématique en raison de ce déplacement de la densité de probabilité. Au moment où le maximum de la densité atteint la valeur $-A_0$, le terme d'interaction ($A_0 P_z$) dans l'équation de Schrödinger devient maximum. Une transition effective vers les états du continuum est alors possible pour un paquet caractérisé par un moment canonique

$$\mathbf{p}_0 = -\mathbf{A}_0.$$

L'effet tunnel n'est donc pas nécessaire - il est même "nuisible" - à la compréhension de l'existence des électrons les plus énergétiques ($2U_p$). Remarquons, d'après le théorème d'Ehrenfest, que le moment canonique moyen ne peut

varier que sous l'influence du potentiel Coulombien. Puisque les pics en $-A_0$ correspondent au déplacement maximal de la densité de probabilité, on peut attribuer leur présence à l'influence du potentiel Coulombien dans le mécanisme d'ionisation. Le champ électrique étant nul à cet instant, le transfert de moment nécessaire à l'ionisation est assuré par le potentiel. Cette conclusion est en fait à replacer dans le cadre de l'approximation dipolaire que nous utilisons pour résoudre l'ESDT. En effet, cette approximation - $\nabla_{\mathbf{r}} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = 0$ - signifie que le champ électrique ne peut être à l'origine de cette variation de moment.

En l'occurrence, donc, les électrons qui sont éjectés avec un moment canonique $\mathbf{p}_0 = -\mathbf{A}_0$ doivent faire une collision inélastique avec le noyau et non s'échapper par effet tunnel. Une telle collision à cette phase du champ autorise donc l'éjection d'électrons avec une énergie cinétique finale :

$$E_{cin} = \frac{p_0^2}{2} = \frac{A_0^2}{2} = 2U_p.$$

La limite en $2U_p$ du premier "plateau" ATI est une caractéristique du régime du champ fort basse fréquence due au fait que $\langle v_z(t) \rangle_{lié} = 0$. Elle est, de plus, une première signature de l'importance de la présence du potentiel Coulombien dans le mécanisme d'ionisation même si ce pic en $2U_p$ est une contribution mineure à l'ionisation totale.

L'existence de ce premier plateau dans le spectre des électrons de la figure 4.5 montre aussi clairement que le régime du champ fort pour $I = 1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ est quasi-dominant dans la dynamique de l'interaction.

4.4.4 Application aux impulsions ultra-brèves.

Dans notre étude de la GHOE (voir le chapitre 6), nous montrons qu'il est possible de tirer parti du spectre des harmoniques émises pour extraire une information sur la phase absolue du champ. Mais cette extraction est compliquée par les effets de propagation dans le milieu partiellement ionisé. Dans le cas de l'ionisation, il n'est pas nécessaire de prendre ces effets macroscopiques en considération. De plus, dans la mesure où l'ionisation devient le processus dominant à haute intensité, il est clair qu'une sensibilité du spectre des électrons à la phase du champ - notamment - donnerait une méthode de détermination de cette dernière beaucoup plus aisée. [Dietrich *et al*, 00] ont proposé un scénario de détermination de la phase fondé sur l'observation des spectres ATI. Il requiert l'utilisation d'un laser polarisé circulairement, auquel cas la direction d'éjection des électrons fournit une information très précise sur la valeur de la phase. Notre étude dans l'espace des moments permet également d'extraire une information sur cette valeur, dans le cas d'un laser polarisé linéairement. Nous considérons maintenant une impulsion de

4 cycles optiques définie par un potentiel vecteur dont la forme temporelle est donnée par l'équation (3.36) et pour deux phases : $\Phi = 0$ et $\Phi = \pi/2$. L'évolution temporelle du potentiel vecteur est représentée sur la figure 4.11. Nous résolvons l'ESDT dans ces deux cas et évaluons les spectres des électrons éjectés vers l'avant, ils sont représentés sur la figure 4.12.

La sensibilité à la phase du champ est évidente. La première observation est l'absence de périodicité en ω pour les électrons les plus rapides dans le cas de la phase nulle. Nous pouvons d'ailleurs évaluer sur le spectre la limite en énergie où la périodicité disparaît pour cette phase. Nous l'évaluons en $E = 1.25 U_p$, ce qui correspond à $p_z = 1.65 \text{ u.a.}$. Une coupure dans le spectre des électrons pour $\Phi = 0$ est visible en $2 U_p$, ce qui correspond à un moment canonique $p_z = 2.1 \text{ u.a.}$.

La deuxième observation est le décalage de la fin du premier plateau vers les basses énergies dans le cas $\Phi = \pi/2$. La coupure se situe dans ce cas à $E_{max} = 1.6 U_p$, soit $p_z = 1.9 \text{ u.a.}$. La compréhension de ces résultats est immédiate grâce à l'analyse que nous avons effectuée dans la section précédente. La coupure du premier plateau est donnée comme nous l'avons vu, par la valeur maximale du potentiel vecteur atteinte pendant l'interaction.

Pour déterminer la fin du premier plateau, il suffit de connaître cette valeur pour les deux phases. Etant donné que nous nous sommes limités aux électrons éjectés vers l'avant, nous devons nous référer aux valeurs négatives du potentiel vecteur. Dans le cas $\Phi = \pi/2$, la valeur $A_0 = -1.8 \text{ u.a.}$ est atteinte deux fois pendant l'interaction. Ce qui concorde bien avec la limite du premier plateau pour cette phase. De plus, dans la mesure où cette valeur est atteinte deux fois, l'argument de périodicité évoqué dans la section 4.3.1 nous permet de comprendre que la structure en ω soit visible sur toute l'extension du plateau. Le même argument nous permet de comprendre l'allure du spectre des électrons éjectés pour le cas $\Phi = 0$. Dans ce cas, le potentiel vecteur présente deux minima distincts en $A_1 = -2 \text{ u.a.}$ et $A_2 = -1.5 \text{ u.a.}$. Les électrons dont le moment canonique est inclus dans l'intervalle $[1.5, 2]$, n'ont donc été éjectés qu'une seule fois, ce qui concorde avec la limite en $p_z = 1.65 \text{ u.a.}$ au-delà de laquelle la périodicité n'est plus visible.

L'observation des spectres des électrons éjectés vers l'arrière nous permet de déterminer de la même manière les maxima locaux du potentiel vecteur. Grâce à ces arguments extrêmement simples mais reposant sur notre étude précédente, il est donc possible finalement d'avoir quasiment accès à la forme temporelle de l'impulsion ! Une information nous manque malheureusement, il s'agit de la durée de l'impulsion. Mais celle-ci peut être obtenue par d'autres méthodes telle que la technique de corrélation croisée.

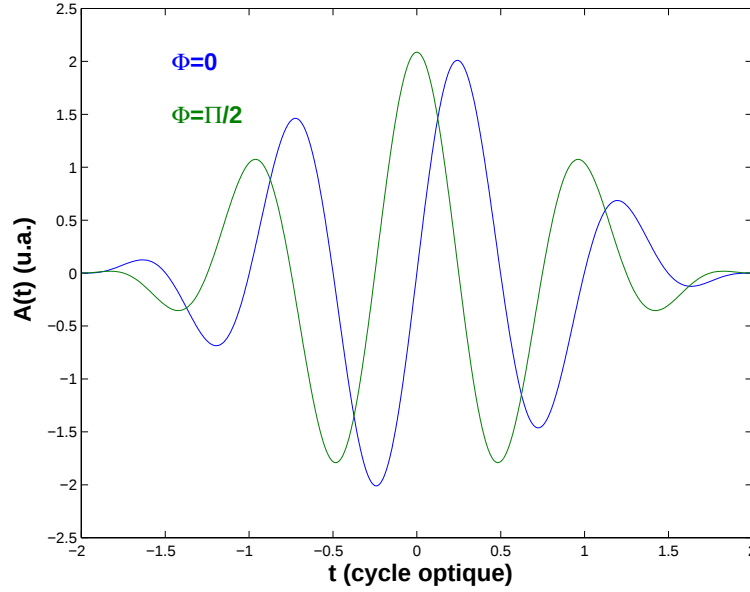


FIG. 4.11: Potentiel vecteur en fonction du temps pour une impulsion laser de 4 cycles optiques, pour deux phases différentes. L'intensité pic utilisée est $I_0 = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

En conclusion, la dépendance du spectre des électrons vis-à-vis de la phase est extrêmement simple, beaucoup plus simple que dans le cas de la génération d'harmoniques d'ordre élevé et sans considération macroscopique. Dans la mesure où il s'agit du processus dominant à haute intensité une technique de diagnostic de phase par analyse de ces spectres conduirait certainement à des résultats très fiables sur la mesure de celle-ci. Mais nous pouvons prendre le problème à l'envers. A l'heure actuelle, des techniques permettant de donner à l'impulsion laser une forme temporelle quelconque [Bartels *et al*, 00] sont utilisées pour tenter d'optimiser la GHOE, ces techniques pourraient être mises à profit pour permettre de favoriser l'émission des électrons vers l'avant ou vers l'arrière, compte tenu de ces résultats, rien ne s'y oppose, ce pourrait être amusant...

4.5 Analyse de la validité du modèle du champ fort

4.5.1 Régime d'ionisation intermédiaire.

D'après le critère que nous venons d'établir, le cas $I = 1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ utilisé pour illustrer notre démarche dans l'espace des moments, corres-

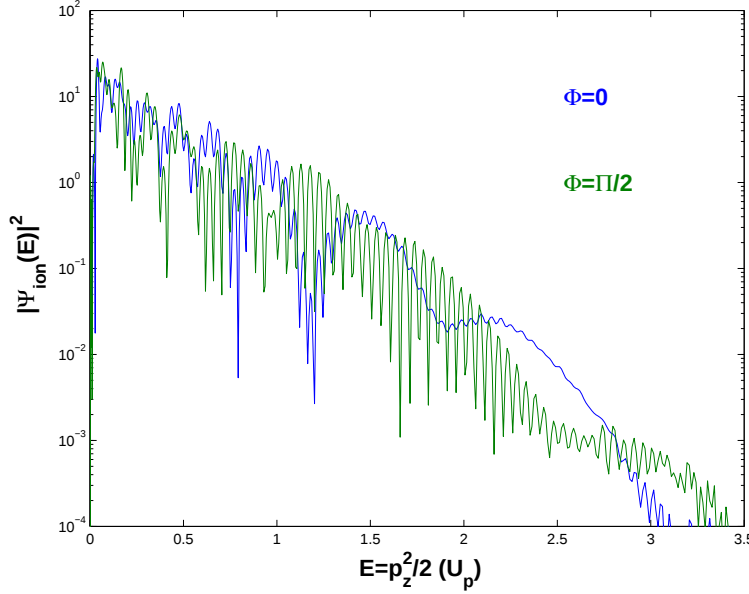


FIG. 4.12: Spectre des électrons éjectés vers l'avant pour les deux impulsions lasers considérées sur la figure 4.11.

pond à un régime d'ionisation intermédiaire entre le multiphoton et le “tunnel”. Toutefois, la distribution en (p_z, p_n) des électrons éjectés que nous représentons sur la figure 4.13, présente de “trop jolies” structures qui méritent que nous essayons d'en déterminer l'origine physique. Puisque nous sommes dans un régime intermédiaire, le modèle du champ fort peut être néanmoins utilisé pour effectuer cette analyse.

Dans ce modèle, l'origine du premier plateau est associée à l'approximation d'ordre zéro b_0 donnée par l'équation (2.35). Le mécanisme d'ionisation est alors décrit par une transition dipolaire 1s-continuum directe suivi d'une propagation libre jusqu'à la fin de l'interaction, la répétition périodique du phénomène expliquant la structure ATI clairement visible dans la distribution de la figure 4.13. Si nous nous référons à la dynamique classique étudiée dans le chapitre 2, nous savons qu'il existe deux contributions possibles à ce mécanisme, l'une venant d'électrons émis avant le maximum du champ, “baptisés” **directs**, et l'autre venant d'électrons émis après, appelés **indirects**. Ces deux contributions, comme nous l'avons rappelé dans le chapitre 2, peuvent éventuellement interférer donnant lieu à des structures dans la distribution angulaire. Nous pensons que ce phénomène est à l'origine des structures très nettes notamment pour le premier pic ATI visibles sur la figure 4.13.

Pour vérifier cette assertion ainsi que la validité partielle du modèle du

champ fort pour cette interaction, nous superposons les premiers contours de la distribution angulaire de b_0 induite par le terme de couplage dipolaire $\langle \mathbf{v} | z | 1s \rangle$ (cf. équation 2.35) mais en utilisant les ondes Coulombiennes et non les ondes planes pour évaluer ce couplage. D'après l'appendice B.4.3, ce couplage donne lieu à une distribution angulaire

$$|\Phi_0(\mathbf{p})|^2 \propto \frac{p}{1 - e^{-2\pi/p}} \frac{e^{-\frac{4}{p} \text{Atan}(p)}}{(p^2 + 1)^5} \cos^2 \theta_p. \quad (4.15)$$

C'est une approximation très "crue" de la distribution angulaire de b_0 puisque nous négligeons le terme de phase qui induit des modulations dans cette distribution ainsi que l'intégrale sur le temps qui peut induire un décalage de cette distribution le long de l'axe de polarisation. Mais nous voulons juste avoir une idée de son enveloppe. Une première conclusion à l'analyse de la figure 4.13, est de confirmer la validité *partielle* du modèle du champ fort puisque l'allure générale du spectre des électrons émis concorde qualitativement avec les deux "anneaux" de la distribution $p_n |\Phi_0|^2$. On peut notamment comprendre les maxima d'intensité présents dans la distribution exacte dans les régions

$$[p_z = \pm 0.5, p_n = 0.3]$$

qui coïncident avec les maxima de la distribution $p_n |\Phi_0|^2$. Mais la distribution exacte est beaucoup plus complexe évidemment.

Les premiers pics ATI présentent une structure d'interférences *-a priori* - très marquée. Nous pouvons essayer de comprendre son origine exacte en effectuant une analyse dynamique du processus sur une demi-période ; ce que nous représentons sur la figure 4.14 tous les 1/10 de période entre 2.5 et 3 cycles optiques. Pendant cette demi-période, la formation de stries sur l'axe de polarisation a été observée. Toute la densité de probabilité est représentée sur ces figures. Pour faciliter l'analyse, nous représentons sur la figure 4.15, l'évolution de la forme de la barrière de potentiel sur cette demi-période. Nous y schématisons par des flèches la possibilité de créer des paquets d'électrons par un processus direct (en vert) ou indirect (en bleu) suivant les prédictions du modèle du champ fort, le sens des flèches indique la direction d'éjection finale des électrons, leur taille indique qualitativement la grandeur du moment canonique associé à chaque paquet créé.

A 2.5 cycles, le champ électrique est maximum et négatif. A cet instant, moment canonique et vitesse coïncident exactement. Nous observons, superposées à l'état fondamental, des stries se former, de part et d'autre de $p_z = 0$, et provenant du maximum de la distribution ($p_n \approx 0.5 \text{ u.a.}$). Du côté $p_z < 0$, une structure ATI est déjà visible sous forme annulaire (indiquée par la flèche blanche).

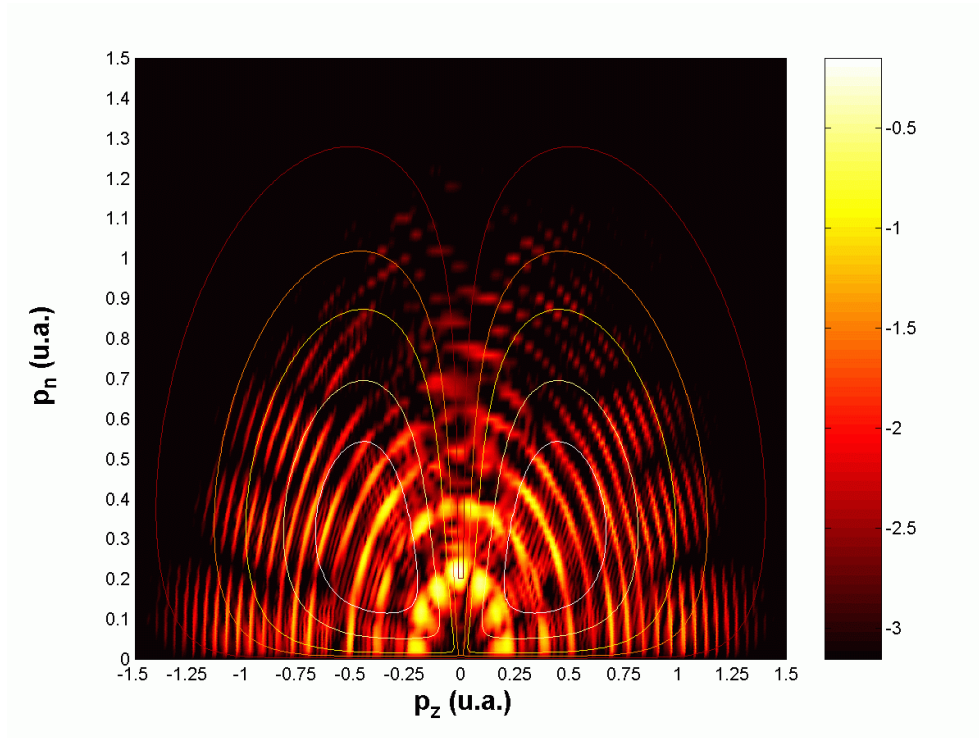


FIG. 4.13: Distribution angulaire des électrons éjectés après l'interaction de 8 cycles optiques et d'une intensité de $1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Représentation sur une échelle logarithmique. Les contours de la distribution modèle $p_n |\Phi_0(p_z, p_n)|^2$ donnée par l'équation (4.15) sont superposés à titre indicatif.

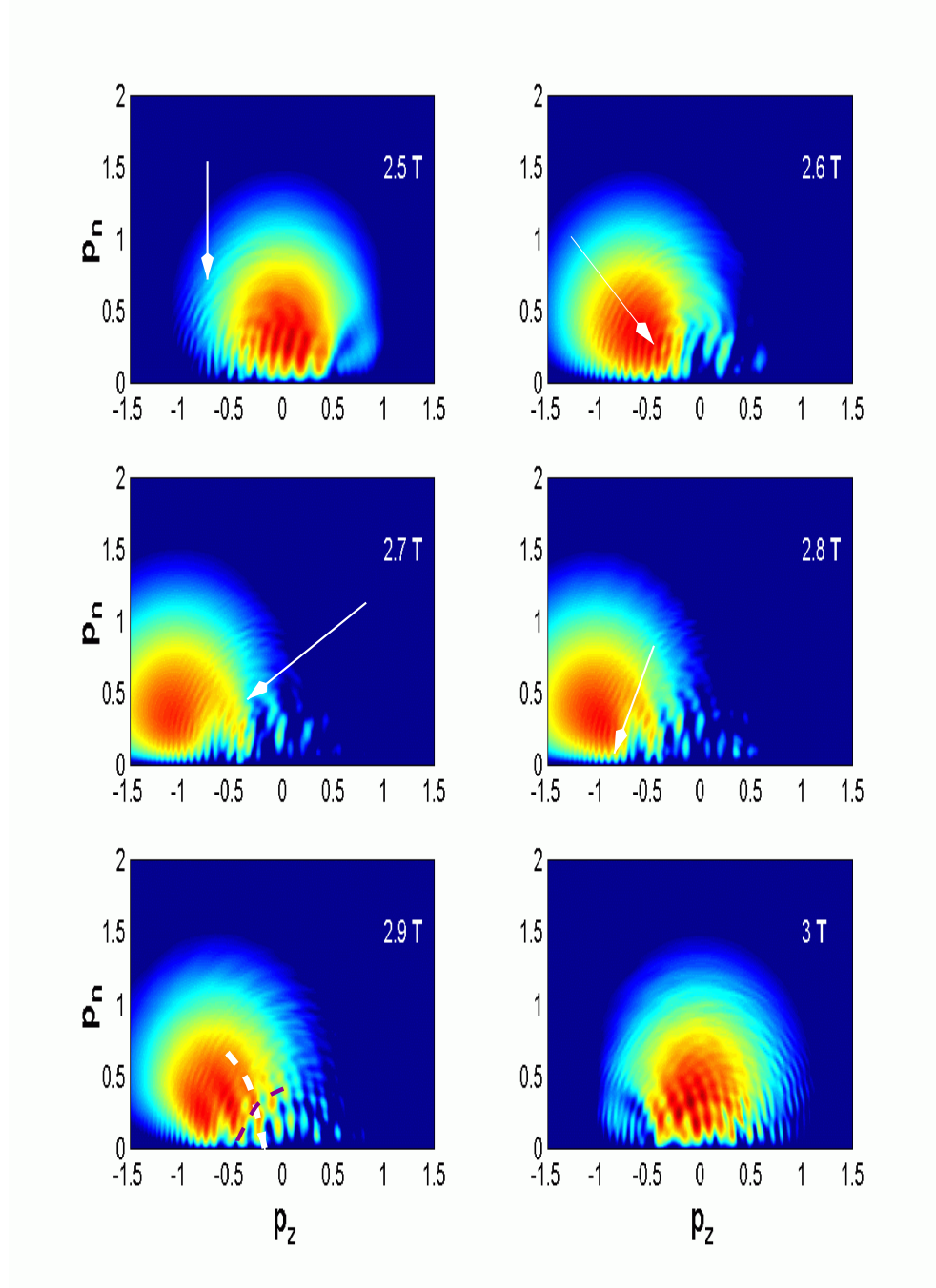


FIG. 4.14: Densité de probabilité en coordonnées cylindriques tous les $1/10$ de période entre 2.5 et 3 cycles optiques, pour l'interaction de 8 cycles optiques à $1.3 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$. Les flèches et arcs de cercle sont dessinés pour faciliter l'analyse des figures (cf. texte).

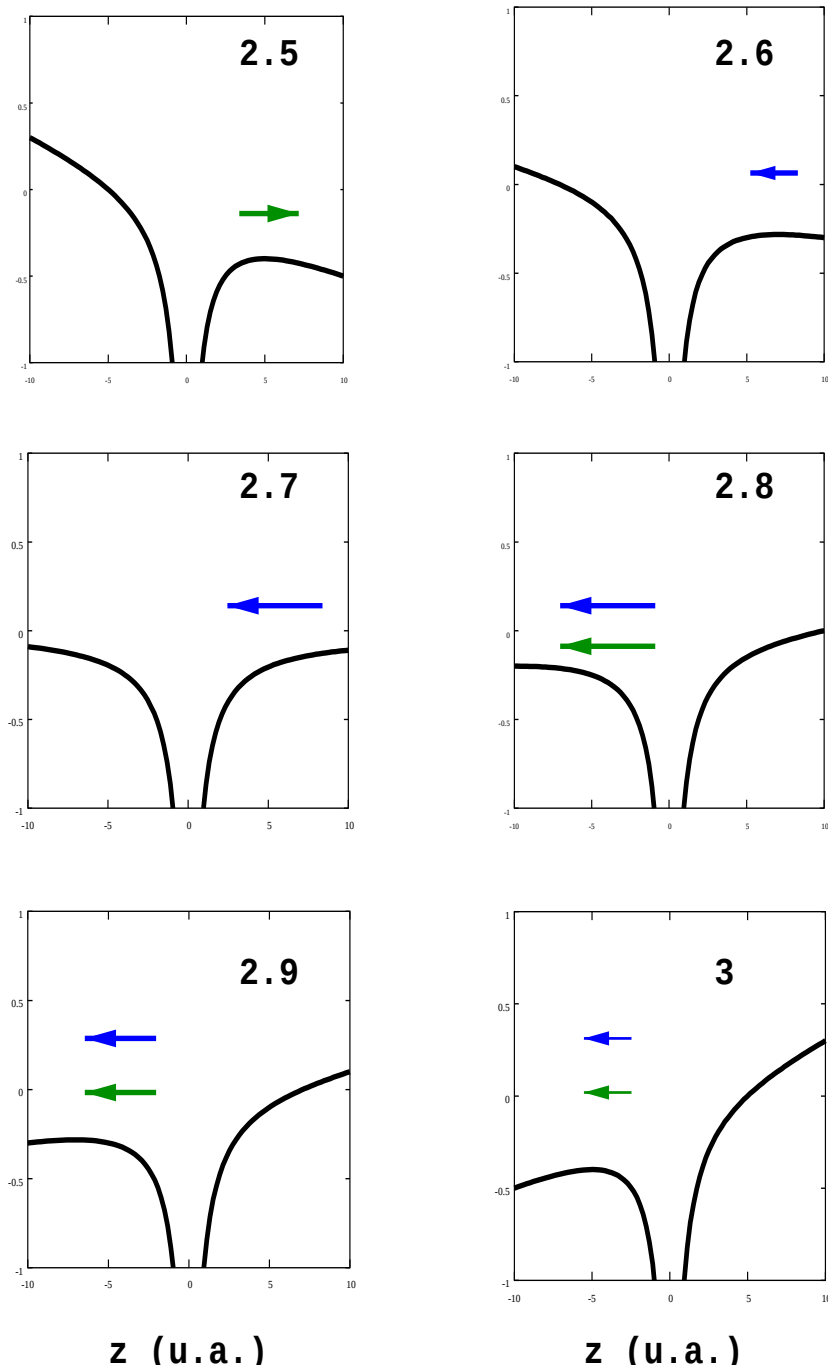


FIG. 4.15: Evolution de la barrière de potentiel en fonction du temps, pour la demi-période considérée sur la figure 4.14. Les temps sont également indiqués sur chaque figure. Les flèches indiquent la probabilité d'ionisation directe (vert) ou indirecte (bleu). Le sens de la flèche indique la direction d'éjection finale.

Il s'agit du premier instant de l'interaction auquel cette structure ATI apparaît, mais nous constatons que tous les pics (pour $p_z < 0$) se forment simultanément, contrairement aux prévisions du modèle du champ fort ; ce qui met en évidence la contribution du processus multiphotonique dans le mécanisme d'ionisation.

Toutefois, sur les clichés suivants, ($2.6T$ et $2.7T$) le mouvement du fondamental opposé au potentiel vecteur autorise tout à fait un mécanisme tunnel (création consécutive des différents pics au passage du maximum de la densité de probabilité). A $2.6T$, la flèche blanche indique la formation de pics de nature “indirecte” en bon accord qualitatif avec le modèle du champ fort. Le couplage direct $1s - \text{continuum}$ permet de comprendre la construction des pics (pour un p_z fixé, Φ_0 est maximum pour une valeur de $p_n \approx 0.3 - 0.5 \text{ u.a.}$). Etant donné le signe négatif du champ électrique, ce sont les paquets **indirects** qui partiront finalement vers l'arrière que nous voyons apparaître en premier.

A 2.7 cycles, la barrière est relevée et ces électrons indirects sont clairement visibles (signalés par la flèche). Leur distribution angulaire est compréhensible en se référant au lobe gauche de la distribution angulaire de $p_n |\Phi_0|^2$ sur la figure 4.13.

A $2.8T$, la barrière est en train de s'abaisser vers l'arrière et, d'après la figure 4.15, des paquets **directs** (pour les grandes valeurs de moments canoniques tout d'abord) peuvent être éjectés. Nous constatons sur la figure 4.14, à $2.9T$, la présence de deux réseaux d'anneaux (schématisés par les arcs de cercle blanc et violet). Selon nous, le premier réseau (violet) correspond aux paquets **indirects** et le deuxième, aux paquets **directs**. En effet, au moment du changement de signe du champ (entre 2.7 et $2.8T$), le mouvement global de la densité de probabilité s'inverse suivant p_z , nous voyons distinctement un point de “rebroussement” apparaître à $2.8T$ (flèche blanche). Si la projection directe du $1s$ vers le continuum domine le processus d'ionisation, le lobe droit de la distribution $p_n |\Phi_0|^2$ (qui pointe vers les $p_z > 0$ peut donner lieu, au-delà de $2.8T$, aux fronts d'onde schématisés par l'arc blanc. Tandis que le réseau schématisé par l'arc violet, (front d'onde pointant vers les $p_z < 0$) coïncide plutôt avec le lobe gauche de $p_n |\Phi_0|^2$ (projection du $1s$ vers le continuum entre 2.5 et $2.7T$).

A $2.9T$, ces deux systèmes d'anneaux se croisent engendrant une figure d'interférences superposée à la densité du fondamental à $3T$; ces interférences sont similaires à celles observées sur le spectre des électrons éjectés à la fin de l'interaction de la figure 4.13. Signalons que la présence de ces anneaux n'est pas caractéristique du régime du champ fort, nous revenons sur cette différence dans la section suivante.

La dynamique complexe de cette interaction sur une demi-période permet toutefois, selon nous, d'expliquer la structure angulaire des premiers pics ATI. La complexité de la dynamique est accrue dans la mesure où le régime d'ionisation considéré est intermédiaire entre le multiphoton et le tunnel. Nous ne menons donc pas plus loin l'analyse de cette interaction et nous nous concentrons maintenant sur des intensités plus élevées pour lesquelles le régime du champ fort est clairement atteint. Ce cas à $1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ peut nous être tout de même utile du point de vue de la dynamique pour distinguer les différences dans le mécanisme d'ionisation, lorsque l'intensité augmente.

4.5.2 De plus en plus... fort

Le critère concernant le régime d'ionisation que nous avons défini plus haut, nous permet de considérer qu'à $I = 3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, le régime du champ fort est effectivement atteint. Pour analyser qualitativement la validité du modèle, nous considérons maintenant une impulsion laser de même forme temporelle mais d'intensité $I = 3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Nous nous concentrons sur la validité de l'approximation b_0 du champ fort, en observant en particulier :

1. quelles sont les phases d'apparition des différents paquets ionisés,
2. la signature des interférences quantiques entre les deux chemins possibles (direct et indirect),
3. l'allure de la distribution angulaire finale de la densité de probabilité ionisée,
4. et finalement la signature du mouvement quasi-classique des paquets ionisés par une analyse de la distribution dans l'espace des phases.

La figure 4.16 représente la distribution angulaire de la densité de probabilité ionisée à la fin de l'interaction sur une échelle logarithmique. Globalement, comme dans le cas à $1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, elle correspond à la distribution angulaire donnée par l'approximation $p_n |\Phi_0|^2$ mais contrairement au cas précité, le premier lobe de la distribution - mis en évidence de part et d'autre de $p_z = 0$ par les traits pointillés bleus sur la figure 4.16 - est dominant, excepté pour le premier pic, où une figure d'interférences est encore une fois clairement distincte. La simple observation de ce spectre indique donc qu'avec l'augmentation de l'intensité, l'éjection sur l'axe est favorisée, ce qui est physiquement compréhensible, mais n'est pas inclus dans l'approximation b_0 du

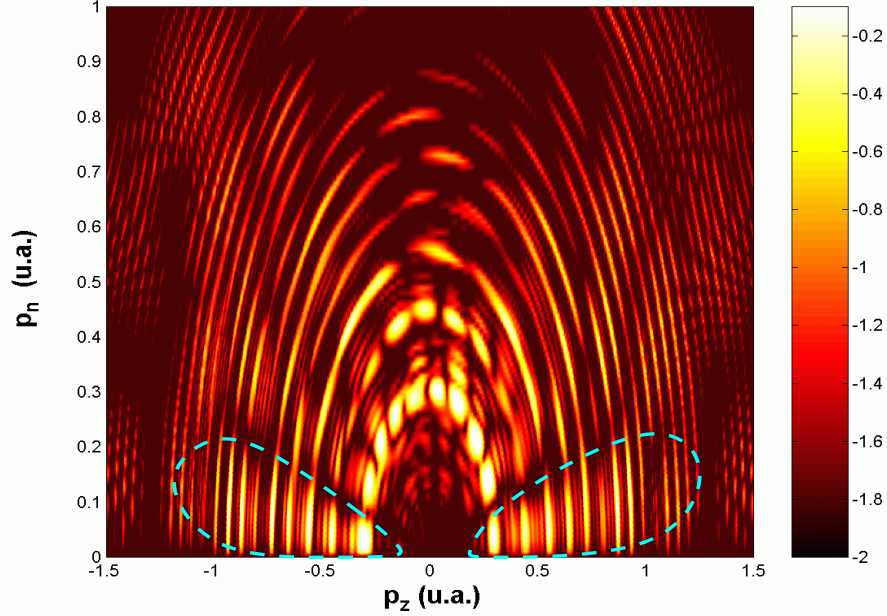


FIG. 4.16: Densité de probabilité ionisée $p_n \times |\Psi_{ion}(p_z, p_n)|^2$ à la fin d'une interaction de 8 cycles optiques, $I = 3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ sur une échelle logarithmique. Les traits pointillés sont expliqués dans le texte.

champ fort. En effet, d'après l'allure de la densité $p_n |\Phi_0|^2$ de la figure 4.13, le maximum de probabilité doit se situer dans la région $|p_z| \in [0.25, 0.75]$ mais surtout pour $p_n \in [0.2, 0.5]$ c'est-à-dire au-delà du premier lobe dominant à $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (lobe présent dans les deux cas analysés). L'observation de cette "focalisation" fait l'objet d'une analyse détaillée dans les dernières sections de ce chapitre, car nous pensons qu'elle traduit l'effet du potentiel Coulombien lors du mécanisme d'ionisation.

Grâce à la dynamique du processus, nous pouvons vérifier les phases de champ (prédites par le modèle du champ fort) auxquelles les paquets ionisés sont créés ainsi que le phénomène d'interférences.

Nous représentons sur la figure 4.17 la densité de probabilité totale en fonction du temps sur une demi-période (échelle logarithmique). Nous ne nous lançons évidemment pas dans une étude détaillée de ces images mais nous nous concentrons sur les points précités. La figure 4.15 peut être également utilisée car la séquence étudiée est la même du point de vue de l'évolution temporelle de la forme de la barrière de potentiel.

1. En ce qui concerne les phases d'apparition de ces différents paquets,

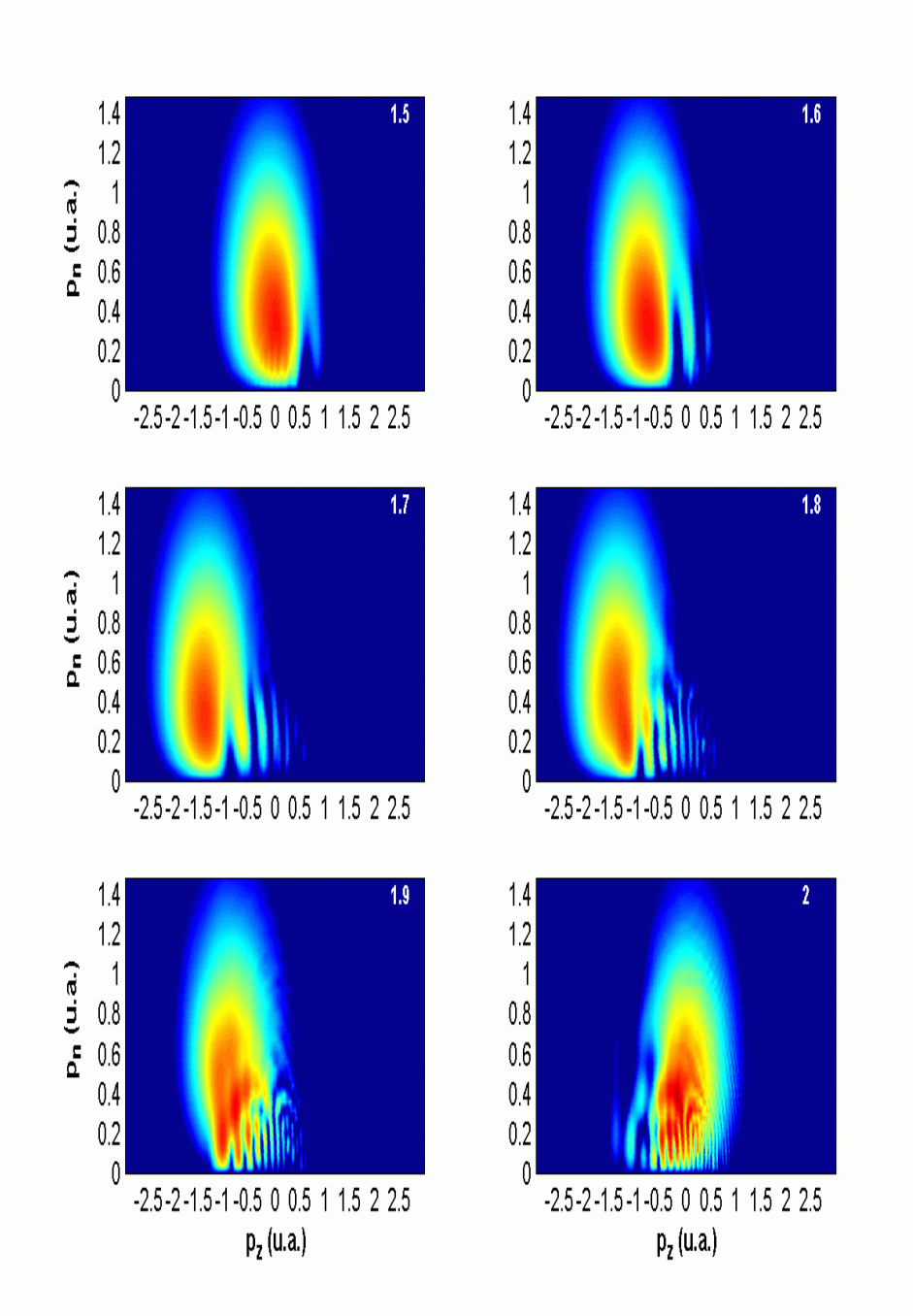


FIG. 4.17: Densité de probabilité $p_n \times |\Psi(p_z, p_n, t)|^2$ (échelle logarithmique) pour une interaction de 8 cycles optiques, $I = 3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ tous les $1/10 T$ entre 1.5 et $2T$.

nous constatons qu'ils apparaissent systématiquement après le passage du fondamental à leur position suivant p_z , en bon accord avec la séquence proposée sur la figure 4.15. Ainsi, par exemple, à $1.7 T$, un paquet est "déposé" en $p_z = -0.5 \text{ u.a.}$ avec une largeur en $p_n \approx 0.4 \text{ u.a.}$. Or, cela correspond à la position du maximum de la densité de probabilité en p_z l'instant d'avant. Nous pouvons raisonnablement penser que ce paquet a été créé en $t \approx 1.6 T$, satisfaisant ainsi la condition de phase d'ionisation :

$$p_z + A(t) = 0,$$

et non,

$$(p_z + A(t))^2 = -2 I_p,$$

comme invoqué par le modèle du champ fort. Il est intéressant de constater que dans cette représentation des moments, il n'est pas nécessaire d'utiliser des temps complexes pour satisfaire cette condition d'ionisation (et donc "l'argument tunnel"), mais simplement le fait que les paquets sont créés avec une vitesse nulle car la valeur moyenne $\langle v_z(t) \rangle$ de l'état fondamental dont ils sont issus est nulle suivant l'axe de polarisation. Remarquons de plus que chaque paquet possède une symétrie cylindrique, en bon accord avec l'idée d'un couplage dipolaire direct entre le 1s et le continuum.

En effet, en comparant cette figure avec le cas à $1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, nous constatons une nette modification du régime d'ionisation. Dans ce dernier cas, les paquets éjectés formaient des réseaux annulaires clairement distincts sur la figure 4.14 mais ceux-ci ont disparu à $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ pour laisser place à cette symétrie cylindrique attendue dans le régime du champ fort. Par transition dipolaire directe du 1s vers le continuum, p_z est fixé par la condition de phase précédemment citée et le terme de couplage impose la distribution en p_n , ce que nous observons clairement à $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Les réseaux d'anneaux présents à $1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ seraient donc une signature d'un processus multiphotonique. En nous basant sur la théorie de [Kroll et al, 73], il est probable qu'après l'émission dans le continuum, les paquets diffusent inélastiquement sur le potentiel c'est-à-dire en absorbant ou émettant des photons. L'appendice B.2.2 est consacrée à quelques rappels sur cette théorie ; nous nous basons, de plus, sur la forme du noyau du potentiel Coulombien en "**p**" (fonction Q_l) pour montrer que la diffusion de type "*s*" (isotrope) est la plus probable. Elle peut donc être à l'origine de tels anneaux. Il est difficile d'apporter une image du processus exact à $1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, cependant, il est intéressant de conclure *qu'une simple observation de la densité de probabilité nous permet de distinguer clairement les deux régimes d'ionisation.*

2. Entre $1.5T$ et $1.7T$, ce sont des paquets **indirects** qui sont émis, suivant p_z , nous constatons qu'ils sont relativement larges, rappelons qu'il s'agit de la première fois qu'un paquet est créé dans cette direction au cours de cette interaction. Les paquets **directs** sont émis au-delà de $1.8T$, et nous constatons alors une modification de la périodicité du côté des p_z négatifs. C'est le signe d'une interférence quantique entre les paquets directs et indirects. Nous observons que les paquets formés en $1.9T$ quand le fondamental se décale maintenant vers les $p_z > 0$ sont de plus en plus larges lorsque $|p_z|$ augmente. On peut comprendre cette évolution en invoquant la relation d'incertitude temps-énergie.

Considérons, en effet, deux paquets (respectivement) indirect et direct correspondant à un même moment canonique p_{z0} . Ils sont formés à deux instants (respectivement) t_1 et t_2 tels que :

$$p_{z0} = -A(t_1) = -A(t_2).$$

Les pics les plus énergétiques ($p_{z0} \approx -A_0$) sont donc émis dans un intervalle de temps $\Delta t = t_2 - t_1$ très court, tandis que les pics de plus basse énergie sont quasiment séparés d'une demi-période. La relation :

$$\Delta t \Delta E > \hbar$$

implique que les pics engendrés à haute énergie (vers $2U_p$) doivent être plus larges que les pics engendrés à basse énergie. Nous résolvons donc, en terme de moment, les 2 contributions (directe et indirecte) participant à un même pic.

D'après ces observations, cette analyse qualitative de la dynamique est cohérente avec le modèle du champ fort, mais nous devons nous assurer que les paquets créés en $\mathbf{p}$ possèdent effectivement un mouvement dans l'espace des phases $(\mathbf{r}, \mathbf{p})$ conforme aux prédictions de ce modèle (c'est-à-dire un mouvement classique une fois émis dans le continuum).

4.6 Wigner et Monte-Carlo

En mécanique classique, une particule possède une vitesse et une position bien définies de telle manière qu'elle peut, dans l'espace des phases $(\mathbf{r}, \mathbf{p})$, être représentée par un point. En mécanique quantique, une représentation ponctuelle d'une particule est impossible puisque vitesse et position doivent satisfaire la relation d'incertitude d'Heisenberg :

$$\Delta r \Delta p \geq \hbar = 1 \text{ u.a.}$$

De manière à tout de même pouvoir observer la distribution quantique dans l'espace des phases, [Wigner, 32] proposa d'associer à une fonction d'onde $\Psi(\mathbf{p})$, une distribution $W_\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{p})$ telle que⁶ :

$$W_\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{p}) = \frac{1}{\pi^3 \hbar^3} \int d\mathbf{p}' \Psi^*(\mathbf{p} - \mathbf{p}') \Psi(\mathbf{p} + \mathbf{p}') \exp(2i \mathbf{p}' \cdot \mathbf{r}). \quad (4.16)$$

Cette distribution peut être définie comme une quasi-probabilité car elle possède les propriétés suivantes :

1.

$$\begin{cases} \int d\mathbf{p} W_\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{p}) &= |\Psi(\mathbf{r})|^2, \\ \int d\mathbf{r} W_\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{p}) &= |\Psi(\mathbf{p})|^2. \end{cases}$$

En réintégrant sur l'une des coordonnées on retrouve la densité de probabilité suivant l'autre coordonnée, ce qui permet effectivement d'attribuer à la distribution de Wigner la fonction de quasi-probabilité.

2. Cette distribution est invariante lors de transformations Galiléennes :

$$\begin{cases} \Psi(\mathbf{r}) &\rightarrow \Psi(\mathbf{r} + \boldsymbol{\alpha}) \\ W_\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{p}) &\rightarrow W_\Psi(\mathbf{r} + \boldsymbol{\alpha}, \mathbf{p}) \end{cases} \quad \begin{cases} \Psi(\mathbf{p}) &\rightarrow \Psi(\mathbf{p} + \mathbf{A}) \\ W_\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{p}) &\rightarrow W_\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{p} + \mathbf{A}) \end{cases}$$

Cette invariance est importante dans notre cas puisque $\mathbf{p}$ désigne le moment canonique lié à la vitesse par la relation $\mathbf{p} = \boldsymbol{\pi} - \mathbf{A}(\mathbf{t})$. Pour évaluer la distribution de Wigner en $(\mathbf{r}, \boldsymbol{\pi})$, il nous suffit de l'évaluer en $(\mathbf{r}, \mathbf{p})$ et de translater la distribution suivant $\mathbf{p}$ de la quantité $\mathbf{A}(\mathbf{t})$.

3. Si l'on considère deux états Ψ et Φ et leur distribution de Wigner associée, il est possible de montrer que :

$$\left| \int d\mathbf{p} \Psi^*(\mathbf{p}) \Phi(\mathbf{p}) \right|^2 = \int d\mathbf{r} \int d\mathbf{p} W_\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{p}) W_\Phi(\mathbf{r}, \mathbf{p}).$$

Par conséquent, si l'on considère deux états orthogonaux, cette dernière égalité devient identiquement nulle. Ce qui signifie que les distributions de Wigner présentent des zones négatives. Mais ces zones ne peuvent être comprises que si l'on tient compte de phénomènes d'interférence entre les deux fonctions d'onde, effet purement quantique. Pour cette raison, les distributions de Wigner ont été utilisées dans le contexte de la stabilisation en champ fort [Watson *et al*, 95b] mais aussi pour étudier l'ionisation en champ statique [Czirják *et al*, 00] ou encore les effets non adiabatiques dans la GHOE [Kim *et al*, 01].

⁶une définition analogue peut être donnée à partir de la représentation des configurations

Nous avons évalué, à partir de notre fonction d'onde $\Psi(\mathbf{p}, t)$, la distribution de Wigner à différents temps durant l'interaction. Il faut bien évidemment se restreindre à un seul axe de coordonnées, nous évaluons donc cette distribution sur l'axe de polarisation (z, p_z) :

$$\widetilde{W}_\Psi(z, p_z) = \frac{1}{\pi} \int dp'_z \Psi^*(p_z - p'_z) \Psi(p_z + p'_z) \exp(2i p'_z z). \quad (4.17)$$

Ce faisant, certes, nous avons simplifié à *outrance* l'évaluation de cette distribution en conservant uniquement l'information sur l'axe de polarisation. Mais, nous avons pu vérifier grâce aux calculs de distribution de Wigner effectués par A. Scrinzi dans le même contexte, que nos distributions simplifiées correspondaient qualitativement à l'évaluation exacte. Puisque nous ne souhaitons effectuer qu'une analyse qualitative de ces distributions, l'évaluation de $\widetilde{W}(z, p_z)$ nous suffit amplement.

Nous voulons vérifier la validité du comportement semi-classique, il est donc intéressant d'effectuer des simulations classiques de la même interaction et de confronter les résultats obtenus dans l'espace des phases. Les simulations classiques que nous utilisons sont obtenues par une méthode plus rigoureuse que celle que nous avons utilisée dans le contexte de la GHOE. D'une part, elle inclut l'interaction Coulombienne dans les équations de Newton, et surtout, elle utilise une distribution de Monte-Carlo des trajectoires classiques de manière à simuler la distribution en position et vitesse caractéristique de l'état fondamental. Ainsi, l'énergie associée aux trajectoires correspond à l'énergie de liaison de l'hydrogène, $E = -0.5 \text{ u.a.} = -13.6 \text{ eV}$. Cette méthode a notamment été utilisée dans le contexte de la GHOE par [Bandarage *et al*, 92] et [Gajda *et al*, 92].

Ces calculs ont été réalisés par L. Ponce⁷, pour la même forme d'impulsion que celle utilisée dans nos calculs quantiques. Mais nous devons signaler que les intensités utilisées dans les deux cas sont différentes : $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ dans le cas quantique et 10^{15} W/cm^2 dans le cas classique. Ces valeurs sont choisies de manière à obtenir le même pourcentage d'ionisation à la fin de l'interaction dans les deux cas.

Puisque nous ne travaillons pas à la même intensité les axes z et p_z ont été normalisés respectivement en fonction de l'excursion classique de l'électron dans le champ laser $\alpha_0 = E_0/\omega^2$ et en fonction de l'amplitude du potentiel vecteur $A_0 = E_0/\omega$.

La comparaison entre les deux méthodes est illustrée sur la figure 4.18 pour deux instants de l'interaction. Au centre de la figure, l'état fondamental

⁷du laboratoire de Chimie Physique de l'université P. et M. Curie, Paris VI

est visible : il possède une distribution étroite suivant z en e^{-2z} et une distribution beaucoup plus large en p_z en $(p_z^2 + 1)^{-4}$ suivant les fonctions d'onde respectives de l'état $1s$ dans l'espace des configurations et des moments. La normalisation effectuée permet d'obtenir un bon accord entre les distributions quantiques et classiques. En plus de la trace du fondamental, deux branches apparaissent sur les distributions. L'une émerge du fondamental du côté où la barrière s'abaisse (à gauche à $t = 2T$ et à droite à $t = 2.5T$). L'autre est détachée du fondamental et est localisée du côté opposé en z .

Il est logique d'associer cette branche, dans les deux cas, à des paquets d'électrons émis sur la demi-période précédente. La simulation classique reproduisant très bien la dynamique de ces branches, nous pouvons l'utiliser pour connaître leur évolution exacte au cours du temps. Nous sélectionnons donc trois trajectoires dans la distribution classique dont les positions sur la figure 4.18(b) sont les suivantes :

trajectoire 1 :

$$\begin{aligned} z(t = 2.5T) &\approx 0 \\ p_z(t = 2.5T) &= 0.75 A_0 \end{aligned}$$

trajectoire 2 :

$$\begin{aligned} z(t = 2.5T) &= -1.5\alpha_0 \\ p_z(t = 2.5T) &= 0.2 A_0 \end{aligned}$$

trajectoire 3 :

$$\begin{aligned} z(t = 2.5T) &\gtrsim 0 \\ p_z(t = 2.5T) &\lesssim 0.1 A_0 \end{aligned}$$

L'évolution au cours du temps de ces 3 trajectoires est représentée sur les figures 4.19, 4.20 et 4.21.

A $t = 2.5T$, le moment canonique et la vitesse de l'électron sont identiques car le potentiel vecteur est nul. Les trajectoires 1 et 2 possèdent donc une vitesse de dérive positive mais sont localisées dans la région des $z < 0$, par conséquent, il s'agit de trajectoires **indirectes** qui vont repasser par le noyau avant d'être effectivement ionisées. En utilisant leur évolution en fonction du temps sur les figures 4.19 et 4.20, nous constatons qu'elles ont quitté leur orbite aux environs de $t = 2T$, elles appartenaient donc à cet instant à la branche localisée à gauche du fondamental sur la distribution de Wigner de la figure 4.18(a). En revanche, l'évolution en fonction du temps de la trajectoire 3 nous indique qu'il s'agit d'une ionisation **directe** sans nouveau passage par le noyau.

En ce qui concerne les deux trajectoires indirectes, leur mouvement classique impose que plus le moment canonique est faible plus l'excursion dans le champ est grande, ce constat est important pour l'analyse de l'effet du potentiel Coulombien sur les trajectoires.

En conclusion, ces comparaisons entre résultats quantiques et classiques montrent clairement la validité du modèle du champ fort pour décrire la dynamique de l'électron dans le champ laser. Mais remarquons tout de même que les trajectoires considérées sont toutes déjà caractérisées par un moment canonique constant c'est-à-dire qu'elles sont déjà ionisées dans notre terminologie. Ce que nous voulons visualiser plutôt c'est le mécanisme d'ionisation en lui-même. Nous constatons grâce à cette étude dans l'espace des phases que ce qu'il advient de la densité de probabilité après ionisation est bien décrit par la dynamique classique.

Pour faire le bilan des précédentes sections, nous avons constaté que lorsque le régime "tunnel" est atteint, le modèle du champ fort est validé dans l'espace des phases, mais nous avons pu observer deux différences significatives :

- La condition d'éjection des paquets est, d'après nos observations, donnée par $p_z + A(t_i) = 0$ et non $(p_z + A(t_i))^2 = -2 I_p$ c'est-à-dire que nous n'avons pas mis en évidence la présence de l'effet tunnel, mais celle-ci est *a priori* difficile dans l'espace des moments.
- Le spectre final des électrons éjectés est plus focalisé sur l'axe que ne le prédit l'approximation b_0 du champ fort. Cette focalisation en p_n ne peut, d'après le théorème d'Ehrenfest, être dû qu'à un effet du potentiel Coulombien. C'est ce "rétrécissement" que nous étudions maintenant en fonction de l'intensité laser, en nous rapprochant de la valeur critique de l'intensité.

4.7 Quand la barrière s'abaisse...

Lorsque l'intensité augmente, dans l'espace des configurations, la barrière de potentiel s'abaisse de telle manière que son sommet s'approche de l'énergie de l'état fondamental. Lorsqu'il passe en dessous de cette valeur, il est usuel de considérer que l'ionisation est alors très rapide, le paquet d'électrons s'échappant directement de manière classique au-dessus de la barrière. Cette conviction d'une ionisation quasi-instantanée et directe est renforcée par l'existence, dans le cas quantique, de la possibilité d'éjection par effet tunnel qui peut se produire alors que l'énergie de l'état fondamental est encore

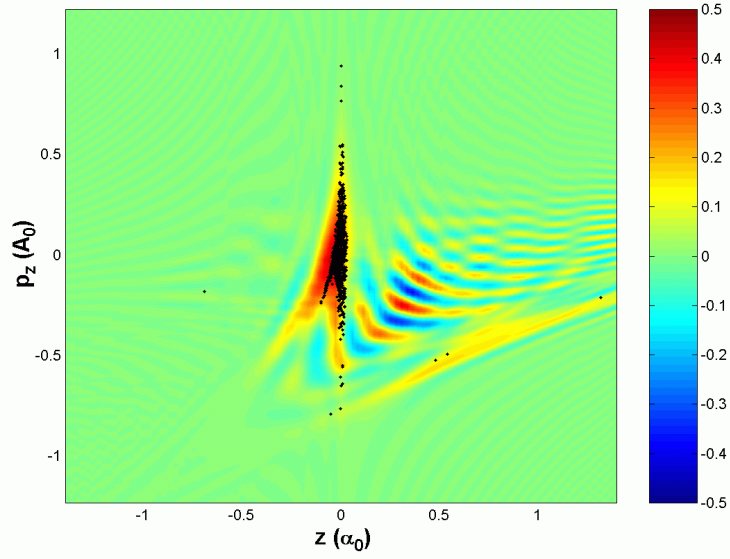
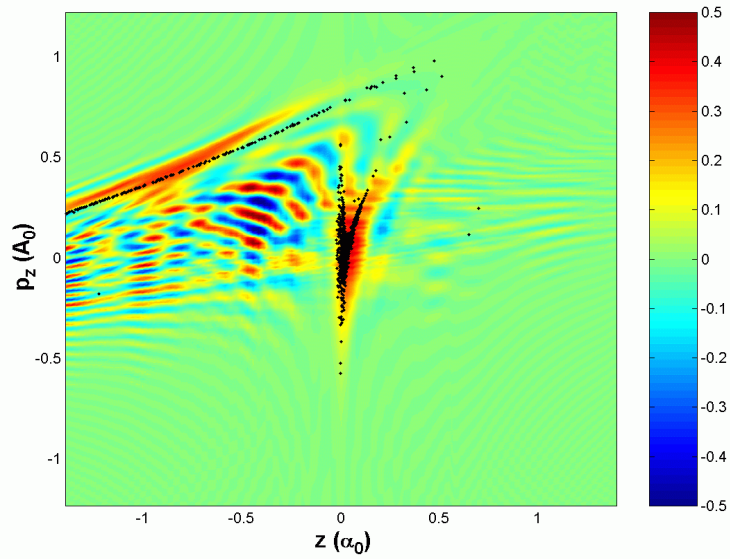
(a) $t = 2T$ (b) $t = 2.5T$

FIG. 4.18: Distribution de Monte-Carlo (points) et de Wigner (échelle de couleur) pour une interaction de 8 cycles optiques, $I = 3 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$ dans le cas quantique et $I = 10^{15} \text{W/cm}^2$ classiquement. L'ionisation, à la fin de l'interaction, est identique et vaut 80%.

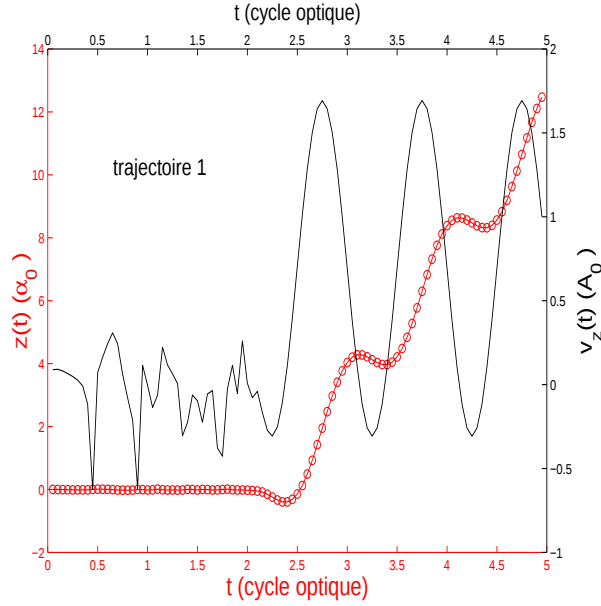


FIG. 4.19: Evolution en fonction du temps de la trajectoire classique 1 ($z(t), v_z(t)$) sélectionnée sur la figure 4.18(a) aux coordonnées $z \approx 0$ et $v_z = +0.75 u.a.$

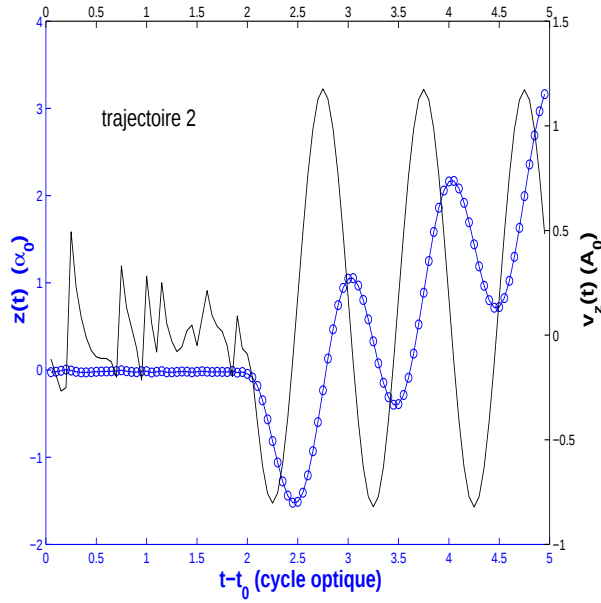


FIG. 4.20: Evolution en fonction du temps de la trajectoire classique 2 ($z(t), v_z(t)$) sélectionnée sur la figure 4.18(b) aux coordonnées $z \approx -1.5\alpha_0$ et $v_z = 0.2 A_0$.

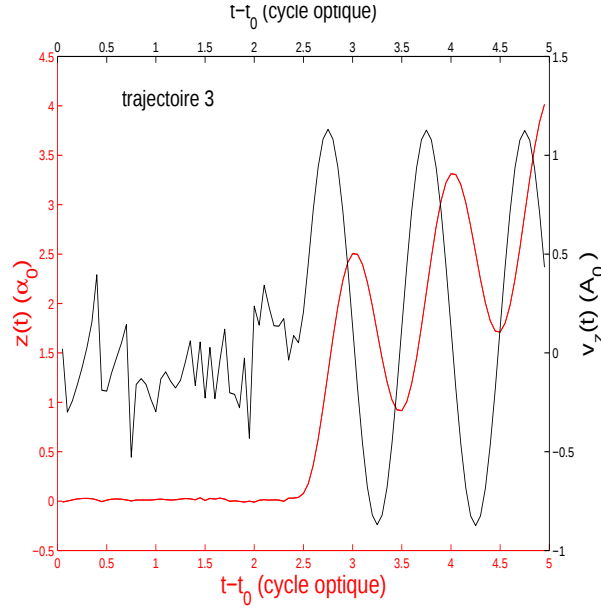


FIG. 4.21: Evolution en fonction du temps de la trajectoire classique 3 ($z(t), v_z(t)$) sélectionnée sur la figure 4.18(b) aux coordonnées $z \gtrsim 0$ et $v_z \lesssim 0.1 A_0$.

inférieure au sommet de la barrière. Quantiquement, le mécanisme d'ionisation est alors une projection directe de la population du $1s$ sur les états du continuum. *A priori*, le potentiel Coulombien ne joue pas un rôle dominant dans le mécanisme si ce n'est au travers de la distribution en moment de la densité injectée dans le continuum caractéristique de l'état $1s$ et de largeur $\Delta p = 0.5 \text{ u.a.}$.

Dans les résultats obtenus à $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, l'accord qualitatif entre le modèle de Lewenstein et notre étude dynamique laisse supposer que cette largeur caractéristique doit être détectable dans nos résultats et s'améliorer lorsque l'on considère des intensités de plus en plus élevées (γ diminuant). Nous poursuivons donc notre analyse par l'étude de l'évolution de la densité transverse des électrons éjectés en fonction de l'intensité.

4.7.1 Evolution de la densité transverse

Nous résolvons l'ESDT pour une interaction de 8 cycles optiques de forme identique à celle que nous avons utilisée jusqu'ici, pour des intensités de 1.3×10^{14} , 2×10^{14} , $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Les taux d'ionisation obtenus sont respectivement de 14%, 50%, 80% et 99% pour les 4 intensités.

Nous savons, grâce au critère déterminé dans la section 4.4, que l'approximation du champ fort (critère "tunnel") est valable au-delà d'une intensité

$I = 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Nous voulons donc étudier, dans un premier temps, la “focalisation” observée à $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et voir si elle se confirme aux intensités plus élevées. Nous savons de plus que tant que $I \leq 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, nous nous trouvons dans un régime d’ionisation au-dessous de la barrière, donc *a priori* tunnel dans la gamme d’intensité $2 - 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

Pour simplifier l’étude de la “focalisation”, nous évaluons, pour la densité de probabilité ionisée à la fin de l’interaction, la densité transverse :

$$P(p_n) = p_n \int dp_z |\Psi_{ion}(p_z, p_n)|^2; \quad (4.18)$$

de cette manière, nous obtenons l’enveloppe de la distribution angulaire des électrons, même si nous perdons évidemment l’information sur l’énergie des électrons éjectés. Ceci nous permet de comparer nos résultats numériques avec l’approximation b_0 du modèle du champ fort représentée, en bonne approximation, par $p_n |\Phi_0|^2$ (l’équation (4.15)). Elle correspond à une projection **directe** du $1s$ vers les états du continuum sans que le potentiel Coulombien n’influe après cette projection sur la distribution transverse. Si l’intensité est suffisamment élevée pour que cette injection ait lieu à des instants où le champ n’est pas maximum, cela peut conduire à une distorsion de cette distribution mais avec des amplitudes inférieures, de telle sorte que la distribution angulaire symétrique par rapport à $p_z = 0$ nous donne une indication sur le comportement dominant d’un couplage direct $1s - \text{continuum}$. En intégrant $p_n |\Phi_0|^2$ sur p_z nous pouvons nous affranchir de la vitesse d’éjection inconnue suivant l’axe pour ne tenir compte que de la distribution globale suivant la direction transverse.

Nous évaluons donc également $P(p_n)$ suivant l’équation (4.18) à partir de $p_n |\Phi_0(\mathbf{p})|^2$, ces deux précédentes densités sont, de plus, comparées au résultat obtenu par une simulation classique de Monte-Carlo. Ces informations sont regroupées sur la figure 4.22. Nous avons normalisé toutes les densités à l’unité pour nous concentrer essentiellement sur leur allure.

Sur la figure 4.22(a), les cas quantiques à 1.3×10^{14} et $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ sont comparés avec la simulation de Monte-Carlo obtenue pour une interaction de $8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ correspondant à un taux d’ionisation de 50%, associée à l’approximation d’ordre zéro ($p_n |\Phi_0(\mathbf{p})|^2$, notée $1s - cc$). Sur la figure 4.22(b), les densités obtenues pour des intensités de 3×10^{14} et $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ sont comparées avec les deux précédentes quantités.

Analysons tout d’abord, l’évolution de la densité transverse obtenue numériquement en fonction de l’intensité. La tendance de “focalisation” observée à $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ se confirme. Lorsque l’intensité augmente, la probabilité d’éjection proche de l’axe augmente alors qu’elle est minoritaire

à 1.3×10^{14} . En effet, le pic situé en $p_n = 0.05 \text{ u.a.}$ présent dans toutes les simulations quantiques devient dominant dans la distribution. Jusqu'à $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, les structures ATI sont toujours nettes et nous observons que pour $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, la densité radiale devient de plus en plus uniforme même si des pics sont toujours visibles. Avec l'augmentation de l'intensité, nous constatons que la distribution transverse acquiert effectivement une largeur de $\Delta p_n \approx 0.5 \text{ u.a.}$ concordant avec celle obtenue par l'approximation $p_n |\Phi_0|^2$.

En revanche, les densités obtenues numériquement sont nettement resserrées sur l'axe de polarisation. Le maximum de la densité est décalé vers l'axe de 0.25 u.a. par rapport à l'approximation du champ fort. Il nous faut être prudent avec les conclusions que nous pouvons tirer de cette analyse (même si nous tenons compte exactement des couplages directs 1s-continuum *Coulombien*). Il semble, d'après cette comparaison, qu'une fois cette transition effectuée, la propagation favorise singulièrement l'éjection le long de l'axe de polarisation. Nous pouvons raisonnablement supposer que le potentiel Coulombien est à l'origine de cette "focalisation" puisque les états du continuum Coulombien de faible moment sont les plus sensibles à sa présence. Autrement dit, lorsque le moment considéré est proche de zéro, *un état du continuum Coulombien ne peut pas être approximé par une onde plane*.

La simulation *classique* réalisée à $8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ est intéressante à considérer pour essayer de comprendre l'origine physique de la "focalisation". Dans ce cas, le seul mécanisme d'ionisation dominant est le mécanisme d'ionisation au-dessus de la barrière. Aux intensités inférieures considérées quantiquement, l'ionisation classique reste quasiment nulle. C'est la raison pour laquelle, nous avons considéré une intensité de $8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ pour laquelle l'ionisation est importante (50%). Signalons que la distribution classique représentée contient *toutes* les trajectoires, ionisées ou non. Mais nous avons pu attribuer la première bosse qui présente un maximum en $p_n = 0.2 \text{ u.a.}$ aux trajectoires ionisées et la deuxième plus large aux trajectoires restant liées. Nous constatons donc que cette distribution se trouve à une position intermédiaire entre nos résultats et l'approximation d'ordre zéro. La distribution est plus étroite que les deux autres mais elle semble indiquer, puisqu'elle est, elle aussi, décalée vers les plus faibles valeurs de p_n , qu'il est possible d'interpréter avec des arguments classiques l'effet de "focalisation" induit par le potentiel. Il ne s'agit, pour le moment, que d'hypothèses concernant le mécanisme d'ionisation que nous précisons maintenant. Nous nous basons sur le fait que, classiquement, seul le potentiel Coulombien est à l'origine d'un transfert de moment selon la coordonnée transverse à la direction de polarisation.

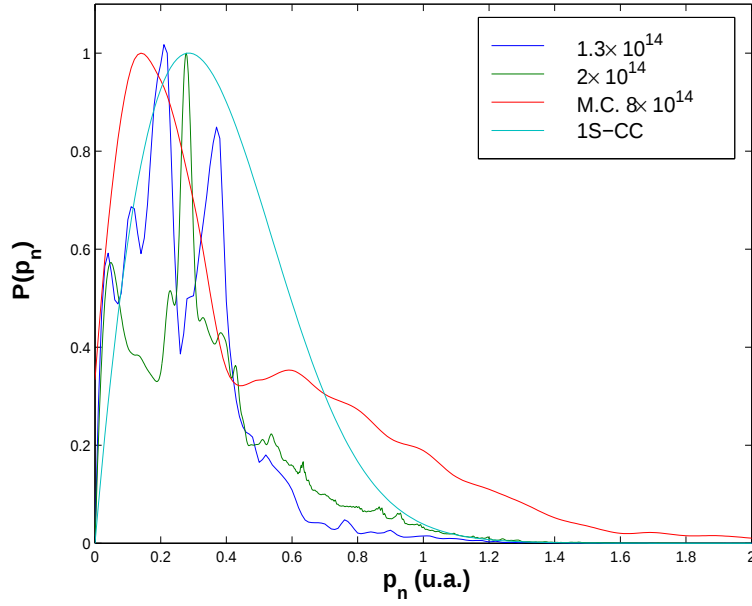
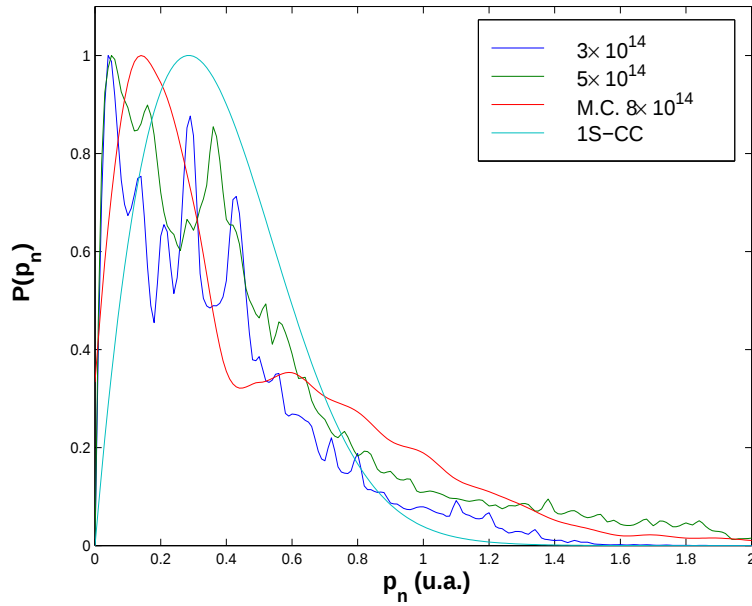
(a) $I = 1.3 \times 10^{14}$ et $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.(b) $I = 3 \times 10^{14}$ et $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

FIG. 4.22: $P(p_n)$ donnée par l'équation (4.18) pour la partie ionisée de la fonction d'onde après une interaction de 8 cycles optiques, à 4 intensités différentes. Sont superposées, la densité radiale obtenue par simulation classique ainsi que $P(p_n)$ évaluée à partir de $\Phi_0(\mathbf{p})$ donnée par l'équation (4.15).

4.7.2 Mécanisme d'ionisation au voisinage de l'intensité critique

Pour effectuer cette étude du mécanisme d'ionisation et essayer de mettre en évidence le rôle joué par le potentiel Coulombien lors de ce processus, il est important de considérer la densité de probabilité obtenue par résolution de l'ESDT en fonction du temps et ce, simultanément dans l'espace des configurations et des moments.

Nous avons mis en évidence que l'espace des moments permet de détecter l'ionisation quasi-instantanément, mais nous perdons alors toute information sur la localisation du paquet. Bien évidemment, il s'agit de mécanique quantique, par conséquent, nous ne sommes pas en mesure d'attribuer à une partie précise de la fonction d'onde dans l'espace des configurations, un moment défini. Toutefois, en juxtaposant les images obtenues dans les deux représentations sur une même échelle de densité, nous sommes en mesure de dire si les paquets ionisés se situent à l'intérieur ou à l'extérieur de la zone d'interaction Coulombienne (limitée par le sommet de la barrière de potentiel effectif).

Venons-en donc à l'explicitation de notre démarche. L'ESDT est résolue dans les deux représentations pour une interaction de 4 cycles optiques ($\omega = 0.57 \text{ u.a.}$), à une intensité pic de $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Nous pensons qu'il est possible d'apporter un argument quasi-classique au mécanisme d'ionisation c'est-à-dire que l'observation simultanée du gradient de potentiel effectif :

$$V_{eff}(z, r_n) = -\frac{1}{\sqrt{z^2 + r_n^2}} + E(t)z,$$

peut nous permettre de comprendre la formation des paquets d'électrons éjectés. Sur les figures 4.23 à 4.27 que nous allons commenter, nous représentons la densité de probabilité⁸ dans l'espace des configurations sur laquelle est superposée le gradient de potentiel effectif : $-\nabla V_{eff}(z, r_n)$, c'est-à-dire, classiquement, la force effective induite par le couplage champ-potential Coulombien sur le nuage électronique. Cette superposition nous permet entre autre de visualiser la position du sommet de la barrière qui délimite la région de l'espace dans laquelle l'interaction Coulombienne n'est pas négligeable. Nous juxtaposons la densité de probabilité dans l'espace des moments. Les instants auxquels sont effectués ces analyses sont indiqués sur les figures 4.23 à 4.27.

⁸La quantité représentée est obtenue à partir du système de coordonnées sphériques, il s'agit en fait de $r^2 |\Psi(r, \theta)|^2$ interpolée sur une grille en (z, r_n) , le facteur $\sin \theta$ est omis dans cette représentation.

Nous nous concentrons sur le mécanisme d'éjection entre 1.5 et $2.375 T$ soit un peu moins d'une période laser. Nous avons choisi cet intervalle car, il s'agit du premier de l'interaction pendant lequel, le régime du champ fort est atteint. Nous essayons, à l'aide des figures précitées, de dégager les étapes essentielles du mécanisme d'ionisation.

Sur les figures “ $(\mathbf{r}, \mathbf{p})$ ”, nous avons tenu compte de contributions très faibles ($\approx 10^{-4}$) à la densité de probabilité, tandis que sur la figure 4.24 où seule la densité en “ $\mathbf{r}$ ” est représentée, nous avons restreint les contributions à l'échelle d'intensité $10^{-2} - 10^{-1}$ de manière à ne tenir compte que des contributions à l'ionisation excédant 1%.

1. Nous voulons tout d'abord mettre en évidence que les paquets indirects qui contribuent significativement à l'ionisation n'ont pas le mouvement classique attendu. Dans ce but, il est intéressant d'observer la figure 4.23. L'ionisation directe a lieu vers l'arrière. Le champ est maximum, le fondamental dans l'espace des moments est centré autour de $p_z = 0$. A cet instant, se forme du côté positif une structure ATI qui n'était pas présente aux instants antérieurs, signe que l'ionisation de ce côté vient de se produire une seconde fois. Etant donné le signe du champ, les paquets créés vers les $p_z > 0$ sont des paquets indirects. On s'attend, d'après le modèle du champ fort, à ce qu'ils s'échappent d'abord vers la gauche, ce qui d'après l'allure de la densité en “ $\mathbf{r}$ ” est probable à cet instant. Mais nous constatons sur cette figure, la présence d'un paquet de forme plus ou moins cylindrique dans la région d'interaction proche du noyau. Sa forme nous indique qu'il n'appartient plus au fondamental. Puisque nous savons, d'après la distribution en “ $\mathbf{p}$ ”, que des paquets indirects viennent d'être créés, nous devons suivre le mouvement de ce paquet en “ $\mathbf{r}$ ”. Sur la figure 4.24, nous constatons qu'à $t = 1.625 T$, une partie de la densité de probabilité s'échappe vers la gauche, mais deux zones sont clairement distinctes. L'une est à gauche du sommet de la barrière (situé en $z = -3 \text{ u.a.}$ à cet instant), l'autre reste clairement dans la zone d'interaction. Aux temps suivants, nous constatons que le paquet qui a franchi la barrière s'éloigne et nous avons vérifié qu'au-delà de $t = 1.875 T$, aucune contribution dominante ne revient vers le noyau depuis les $z < 0$:

les paquets indirects qui s'échapperont finalement vers la droite sont restés dans la zone d'interaction, ils se sont majoritairement réfléchis sur la barrière au lieu de la franchir par effet tunnel.

2. Ceci étant maintenant évident, nous revenons à l'analyse en “ $\mathbf{r}, \mathbf{p}$ ” à l'instant $t = 1.875 T$ (figure 4.25). Nous constatons sur cette échelle

de densité plus large que des paquets reviennent des $z < 0$, mais dans une proportion nettement moindre. Il y a donc eu émission par effet tunnel vers $t = 1.5 T$ mais il ne s'agit pas du processus dominant qui permet d'expliquer l'intensité des pics sur l'intervalle $p_z \in [0, 0.5] \text{ u.a.}$ pour lequel l'ionisation par processus direct n'a pas pu avoir lieu (le fondamental est centré en $p_z \approx 1.5 \text{ u.a.}$ à $t = 1.875 T$ sur la figure en “**p**”).

3. Pour cette interaction, la valeur du champ critique n'est atteinte qu'une seule fois en $t = 2 T$. Nous considérons maintenant la densité de probabilité après que cette valeur ait été franchie. Sur la figure 4.26, nous constatons sur la densité en “**r**” que le fondamental a été largement dépeuplé ($\pm 30\%$ sur la demi-période venant de s'écouler). Il est intéressant sur cette figure de constater que la densité de probabilité suit remarquablement l'allure du gradient de potentiel. On peut notamment observer le resserrement de cette densité à la position du sommet de la barrière, délimitant à cet instant, les paquets transmis et réfléchis puisque la barrière Coulombienne est en train de se relever.

Grâce à la distribution en **p**, nous pouvons constater que des paquets qui partiront finalement vers la gauche ont été créés. A nouveau, nous constatons la présence des paquets de forme cylindrique proches du noyau et focalisés autour de l'axe de polarisation, le même argument que dans le premier point nous amène à penser que ces paquets restent majoritairement dans la zone d'interaction avant d'être finalement émis dans la “bonne” direction. Mais étant donné que la valeur critique du champ a été franchie en $t = 2 T$, le mouvement des paquets indirects a pu être modifié. Effectivement, nous observons sur la figure 4.27 qu'un paquet de contribution non négligeable est en train de revenir depuis les $z > 0$ alors que la barrière est à nouveau en train de s'abaisser vers l'arrière. Le mouvement de ce paquet est donc en meilleur accord avec le modèle du champ fort **parce qu'il a été créé dans un régime d'ionisation au-dessus de la barrière !**

4. Les paquets **indirects** contribuant à l'ionisation, restent majoritairement dans la zone d'interaction tant que la valeur critique du champ n'a pas été atteinte. Ces paquets doivent donc subir au cours de leur formation, l'effet du potentiel effectif, notamment le gradient transverse. Nous sommes habitués au rôle diffuseur du potentiel Coulombien, mais nous pensons que la “focalisation” de la densité de probabilité transverse que nous avons étudié dans la section précédente correspond à son effet inverse.

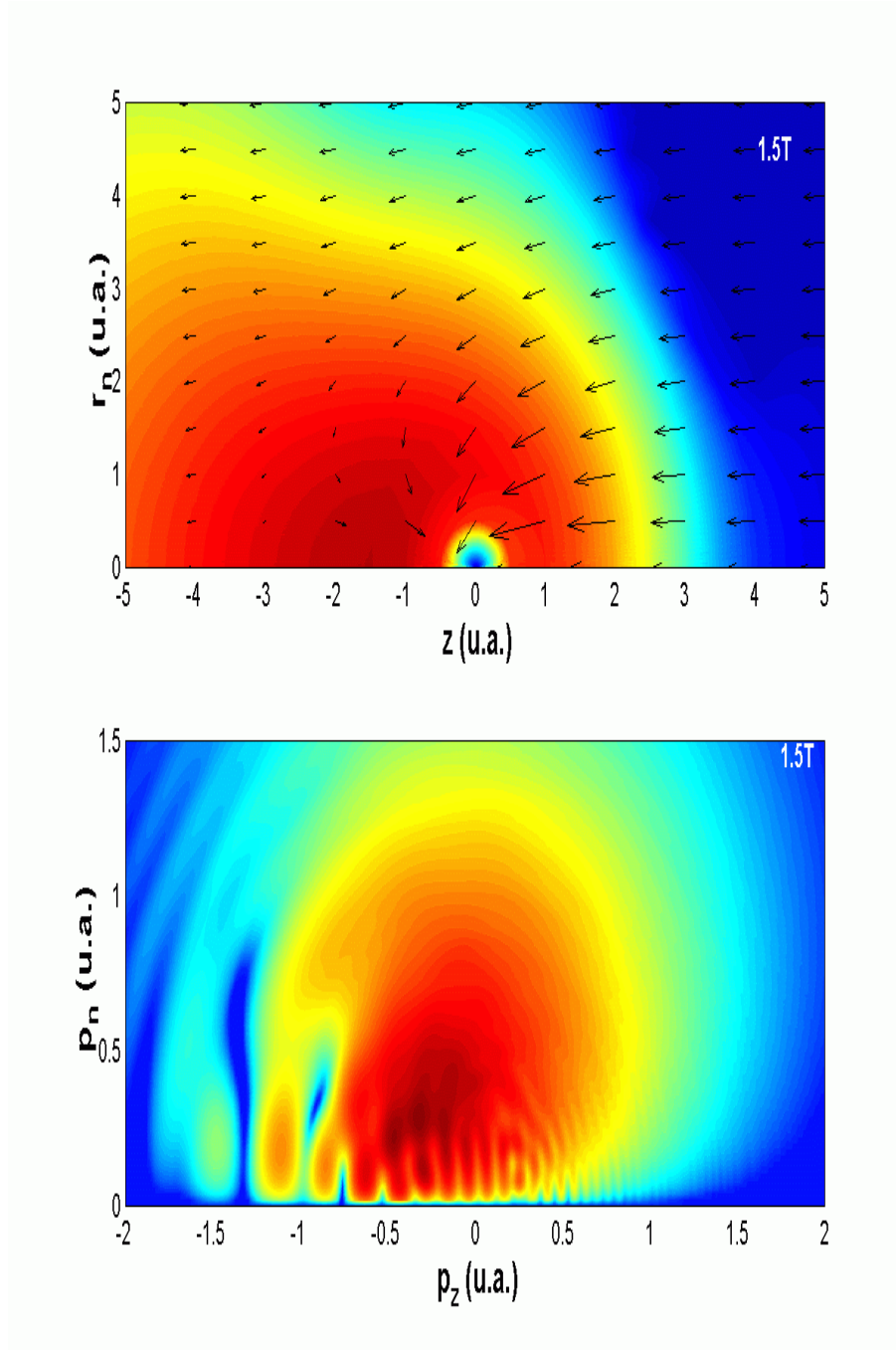


FIG. 4.23: Densité de probabilité en (z, r_n) et (p_z, p_n) , échelle logarithmique entre 10^{-4} et 10^{-1} .

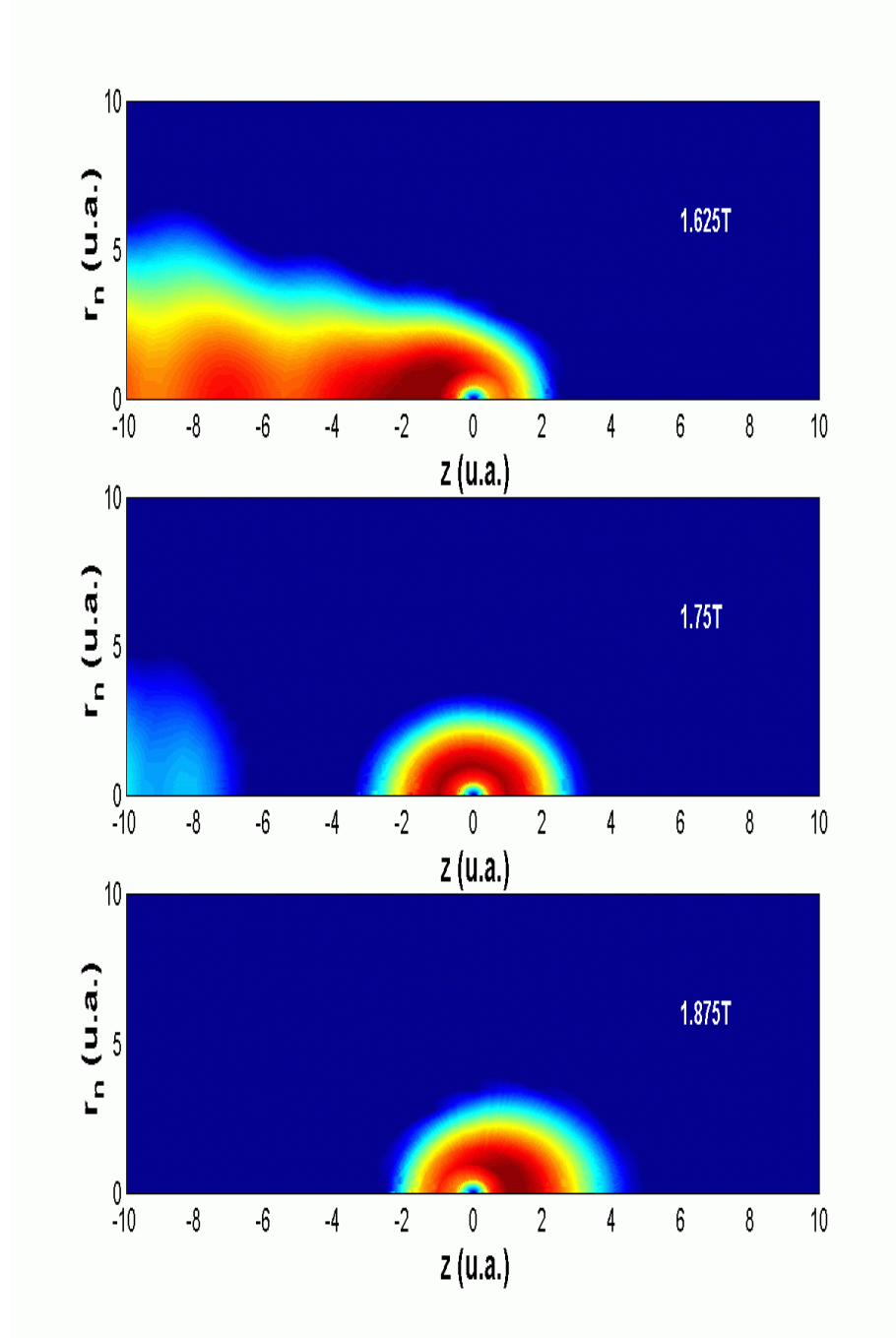
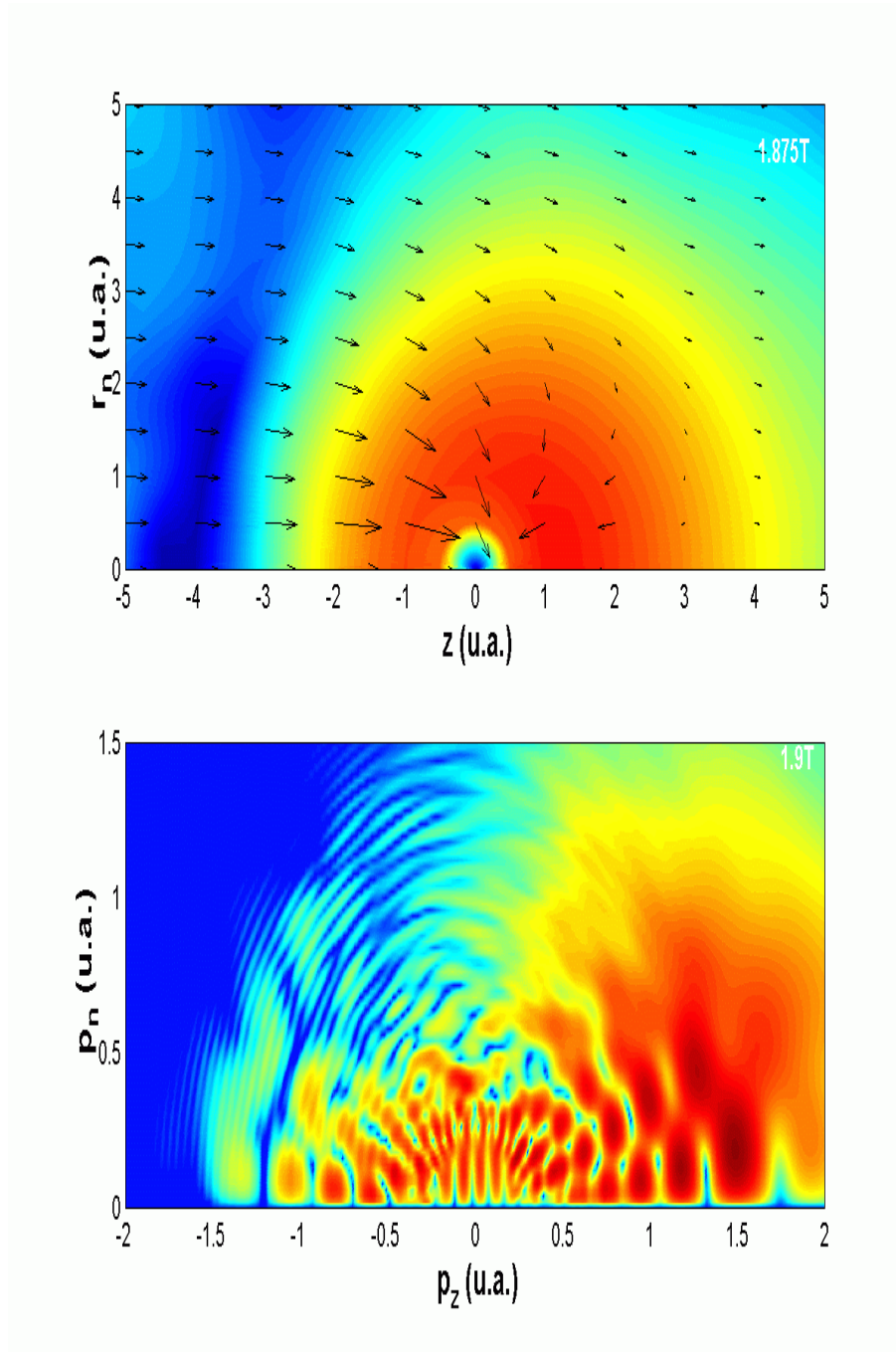
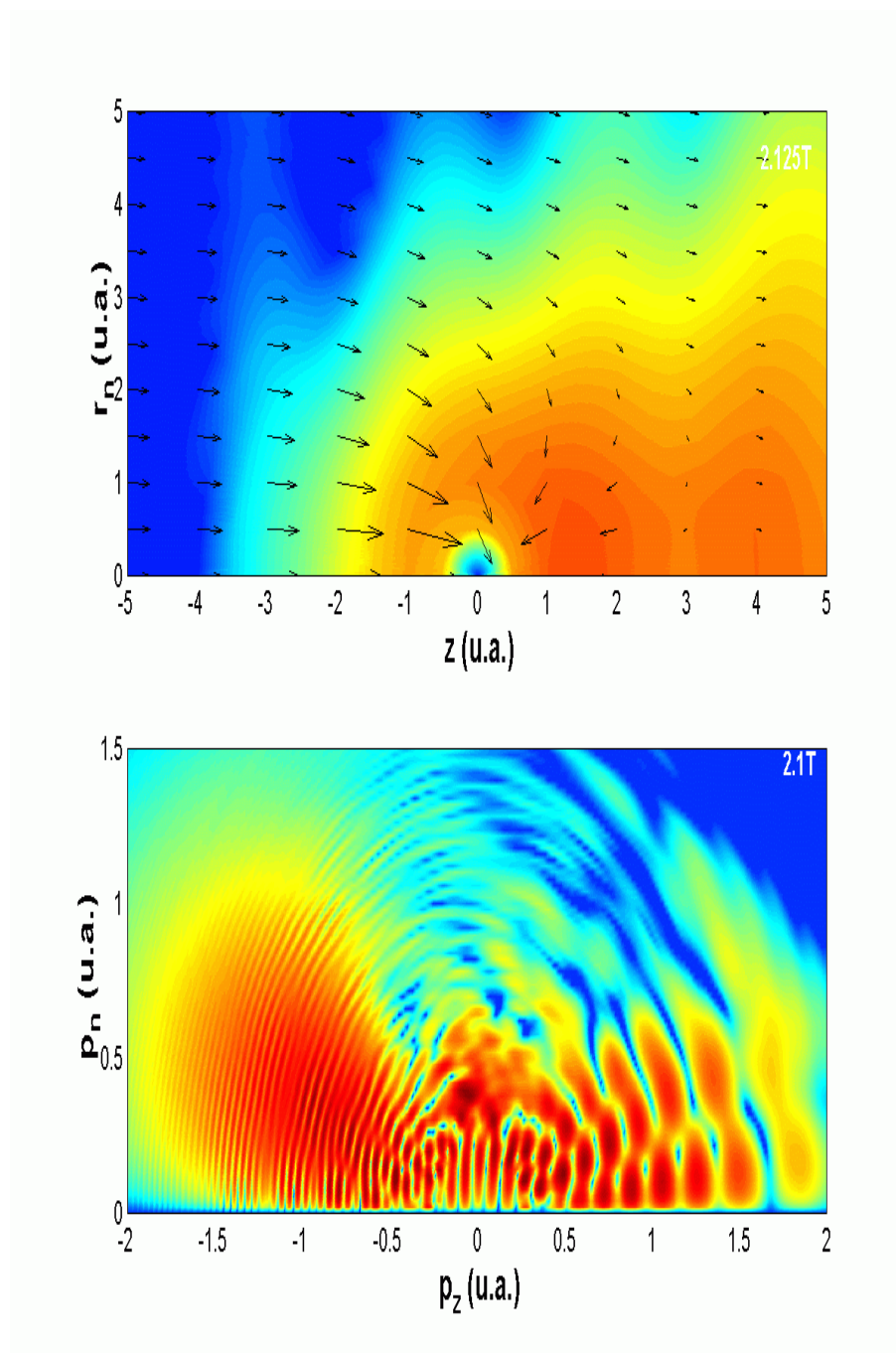
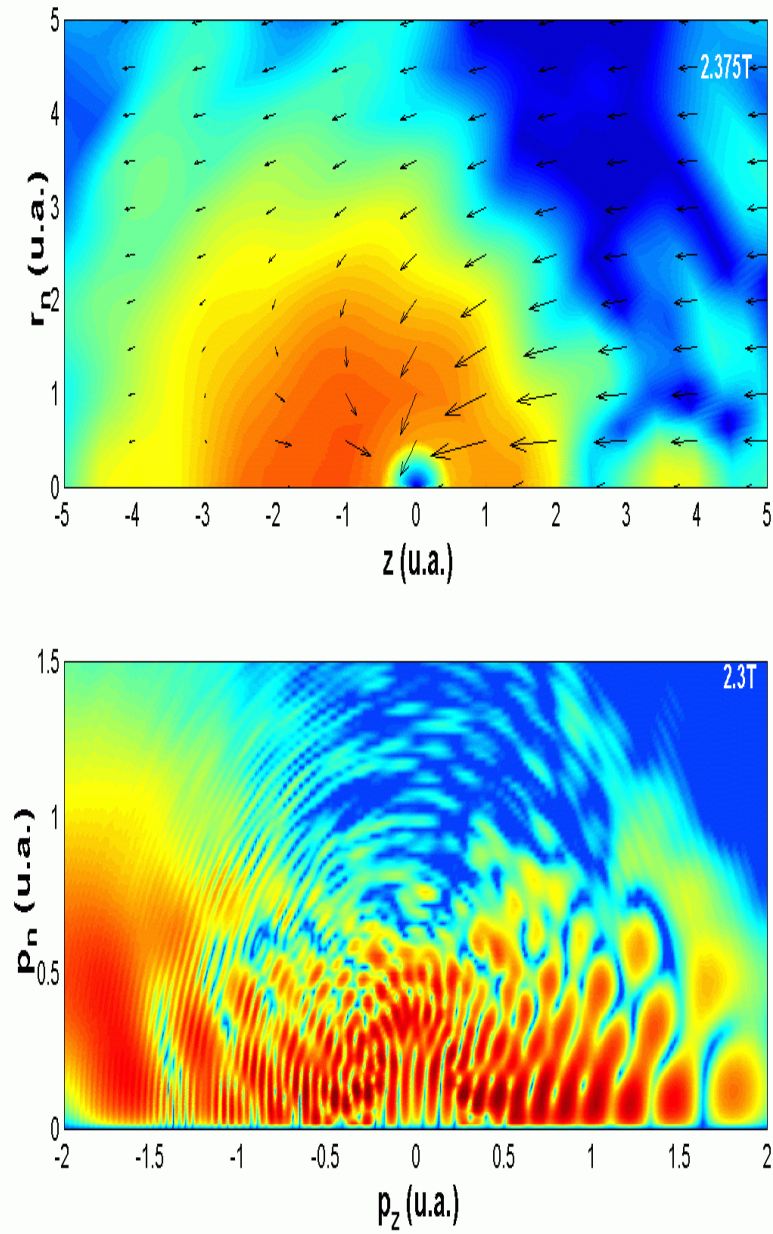


FIG. 4.24: Densité de probabilité en (z, r_n) , échelle logarithmique entre 10^{-2} et 10^{-1} .

FIG. 4.25: Densité de probabilité en (z, r_n) et (p_z, p_n) .

FIG. 4.26: Densité de probabilité en (z, r_n) et (p_z, p_n) .

FIG. 4.27: Densité de probabilité en (z, r_n) et (p_z, p_n) .

Signification de la “focalisation” .

Il nous faut donc expliciter le mécanisme qui permet de justifier cette “focalisation”. Nous partons pour se faire du théorème d’Erhenfest suivant la coordonnée transverse :

$$\frac{d}{dt} \langle \mathbf{p}_n \rangle = - \langle \nabla_n V \rangle .$$

D’un point de vue classique, une fraction de la densité de probabilité se déplaçant dans le coeur du potentiel subira donc une variation

$$\langle \Delta p_n \rangle = - \langle \nabla_n V \rangle \Delta t;$$

c’est-à-dire une “focalisation” si elle se dirige vers le coeur du potentiel et un élargissement si elle s’en éloigne. L’utilisation de cet argument classique se justifie par les similitudes que nous avons observées entre nos résultats quantiques et les simulations classiques dans la section précédente.

Nous simplifions l’étude de la “focalisation” en analysant seulement la densité transverse $P(p_n, t)$ donnée par l’équation (4.18). Nous considérons une interaction de $I = 10^{15} \text{ W/cm}^2$ et de 4 cycles optiques (même forme d’impulsion que précédemment). Dans ce cas, la valeur du champ critique est dépassée, les paquets indirects une fois formés, peuvent donc être transmis au-dessus de la barrière. Quoi qu’il en soit, la même “focalisation” est visible sur le spectre des électrons à la fin de l’interaction.

Au cours de celle-ci, l’allure de $P(p_n, t)$ sur la figure 4.28 est donc caractérisée par :

- une largeur $\Delta p_n \approx 0.5 \text{ u.a.}$, une fois que tout a été ionisé (cf. population du fondamental sur la figure 4.28) qui est la trace du couplage direct 1s-continuum ;
- un pic en $p_n \approx 0.25-0.3 \text{ u.a.}$, toutes les demi-périodes (quand le champ est maximal). $p_n = 0.3 \text{ u.a.}$ correspond au maximum de probabilité de l’approximation $p_n |\Phi_0|^2$ (voir la figure 4.22 de la section précédente), la première étape du mécanisme d’ionisation est donc effectivement une projection directe du 1s vers le continuum. *Mais* suite à cette projection, nous observons, par exemple entre 1.5 et 1.75 T , sur la figure 4.28, une “focalisation” de ce premier pic vers l’axe de polarisation. D’après l’étude précédente, dans cet intervalle de temps, des paquets indirects sont créés. **Ils sont ionisés suivant p_z , mais subissent un rétrécissement en p_n ,** cette focalisation est suivie entre 1.75 et 2 T d’un élargissement (rediffusion), la direction du champ étant favorable à leur éjection, ils s’éloignent du noyau, leur distribution en p_n peut

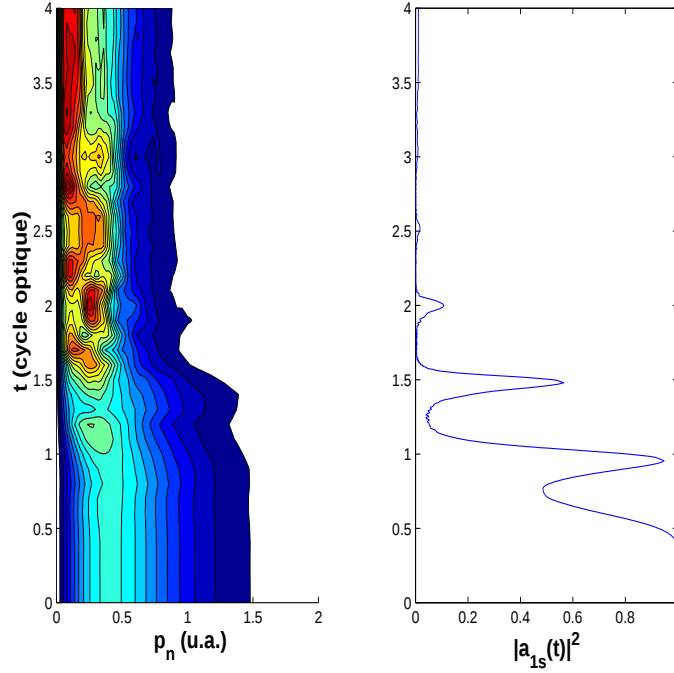


FIG. 4.28: $P(p_n, t)$ pour une interaction de 4 cycles optiques et $I = 10^{15} \text{ W/cm}^2$, la population instantanée de l'état fondamental est juxtaposée, son enveloppe donne une indication sur l'ionisation au cours de l'interaction.

subir un nouvel élargissement.

Cette séquence, projection - “focalisation” sur l'axe de polarisation - re-diffusion, nous amène à la conclusion suivante, sur le mécanisme d'ionisation que nous schématisons sur la figure 4.29. Ce schéma peut être associé à la figure 4.24 en regard de la création et de l'évolution des paquets indirects au cours du temps.

Nous suggérons donc après cette analyse qualitative du mécanisme d'ionisation, que les paquets indirects naissent par transition dipolaire du $1s$ vers le continuum. mais il faut alors distinguer deux contributions :

- Les paquets proches de la barrière qui s'échappent directement par effet tunnel, processus indiqué par la flèche en pointillés sur la figure 4.29, ce processus n'est pas dominant, d'après nos résultats.
- Des paquets peuvent naître à droite du cœur via une collision inélastique assistée par le laser, le mouvement de ce paquet (vers le centre du potentiel) autorisant alors dans la direction transverse, une focalisation sur l'axe de polarisation (mouvement vers un gradient transverse

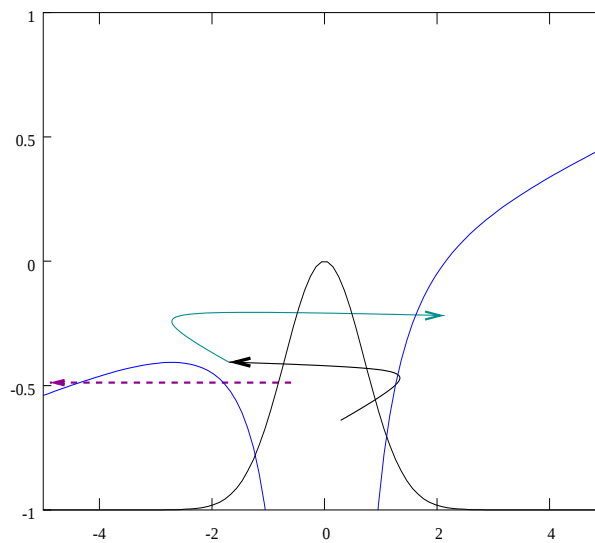


FIG. 4.29: Schématisation du mécanisme d'ionisation que nous suggérons. La flèche en pointillés correspond au mécanisme tunnel, les flèches en trait plein indiquent les deux étapes que nous estimons être responsables de la contribution dominante dans la création des paquets rediffusés. L'état fondamental et le potentiel effectif suivant z sont schématisés en trait plein.

de potentiel croissant).

- Le paquet ainsi focalisé mais retardé par rapport au paquet “tunnel” va essentiellement se réfléchir sur la barrière, il possède alors sa direction d'éjection finale et est éjecté finalement vers la droite lorsque le champ abaisse la barrière Coulombienne dans la “bonne” direction.

En conclusion, **le potentiel Coulombien, en induisant cette “focalisation” favorise finalement la contribution des paquets indirects.**

C'est ce que nous voulons maintenant, pour terminer, essayer de visualiser plus quantitativement. Dans la troisième partie de ce travail, nous étudions le processus de GHOE en utilisant le modèle du champ fort. Nous avons rappelé dans le chapitre 2, que ce sont les paquets indirects qui peuvent contribuer à ce processus. Or, nous effectuons notre étude dans la même gamme d'intensité que celle analysée ici, quand le champ électrique atteint sa valeur critique. L'étude quantitative de la contribution des électrons indirects constituent donc le dernier point important de notre analyse, lorsque le régime de suppression de la barrière est atteint. Nous aurions tendance à dire que si ce dernier est installé, les contributions des électrons directs devraient devenir dominantes dans le mécanisme d'ionisation. Cependant, l'étude que nous venons de réaliser concernant la formation des paquets met

déjà un bémol à cette hypothèse. Nous montrons maintenant comment, à l'aide de notre étude dans l'espace des “ $\mathbf{p}$ ”, il est possible de quantifier les contributions relatives des électrons directs et indirects.

4.7.3 Evaluation des contributions directes et indirectes

Au moment où le champ interagit avec le potentiel, des pics d'ionisation apparaissent dans la distribution en $\mathbf{p}$ de la densité de probabilité, indiquant instantanément la direction finale d'éjection de l'électron. En considérant la densité de probabilité totale au cours du temps, nous définissons la fonction :

$$F(p_{z1}, p_{z2}, t) = 2\pi \int_{p_{z1}}^{p_{z2}} dp_z \int dp_n p_n |\Psi(p_z, p_n, t)|^2 \times C(p_{z1}, p_{z2}). \quad (4.19)$$

où $C(p_{z1}, p_{z2})$ est une fonction créneau égale à 1 sur $[p_{z1}, p_{z2}]$ ($\forall p_n$) et nulle partout ailleurs. En évaluant cette quantité, nous pouvons quantifier en fonction du temps les contributions directes et indirectes. L'idée étant que, lorsque le fondamental ne se trouve pas dans la région sur laquelle $F(p_{z1}, p_{z2}, t)$ est évaluée, la densité de probabilité correspond à la fraction ionisée de la densité.

Pour clarifier cette technique, nous représentons sur les figures 4.30(b) et 4.31(b), la fonction $F(p_{z1}, p_{z2}, t)$ pour deux intervalles indiqués en légende. Pour chaque figure, les intervalles symétriques par rapport à zéro sont considérés.

D'autre part, sur les figures 4.30(a) et 4.31(a), le champ électrique est tracé ainsi que l'opposé du potentiel vecteur en fonction du temps (ramené à la même échelle que $E(t)$). Cette quantité nous permet de connaître le signe du moment canonique d'un électron éjecté à un instant quelconque t de l'interaction. D'après les observations des sections précédentes, des paquets ionisés sont “déposés” dans un intervalle $[p_{z1}, p_{z2}]$ lors du passage du fondamental. Il est donc seulement possible d'évaluer la densité de probabilité ionisée dans un intervalle donné après cet événement. Etant donné que nous considérons des moments canoniques faibles, nous nous concentrons sur les intervalles de temps autour du maximum du champ électrique. Nous avons délimité de telles zones sur les figures 4.30(a) et 4.31(a) à l'aide des traits (+ flèches) oranges. Pour chaque zone, les lettres D et I indiquent la possibilité d'ionisation par processus direct ou indirect, le code de couleur bleu-vert permettant de conclure sur la direction finale des électrons éjectés :

$$\begin{aligned} \text{bleu} &\rightarrow z < 0 \\ \text{vert} &\rightarrow z > 0. \end{aligned}$$

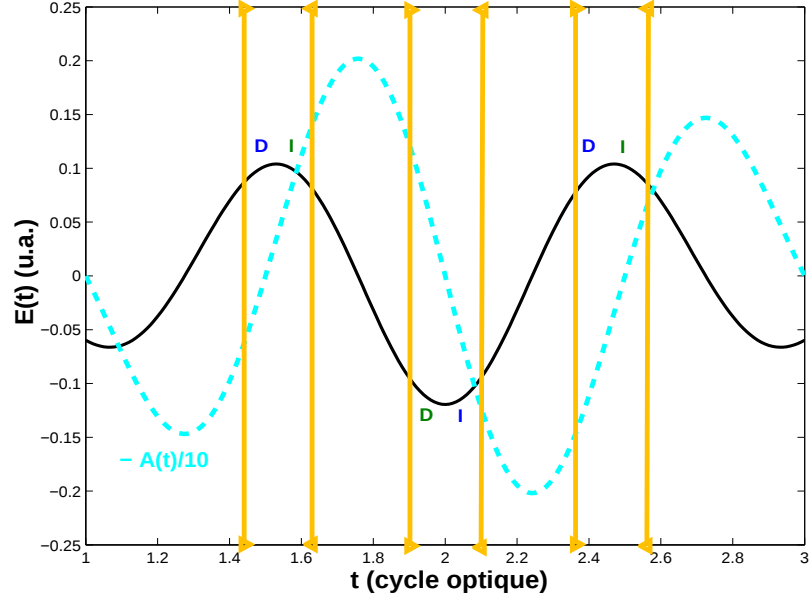
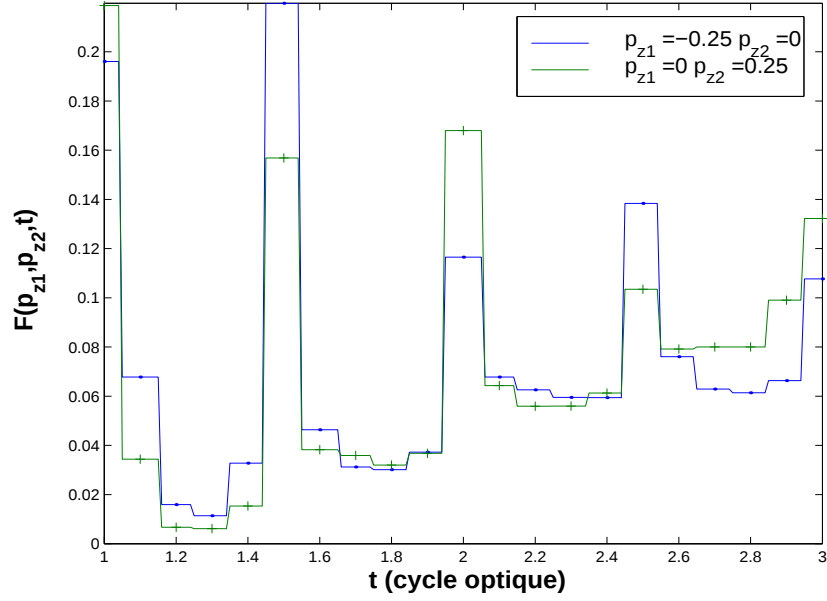
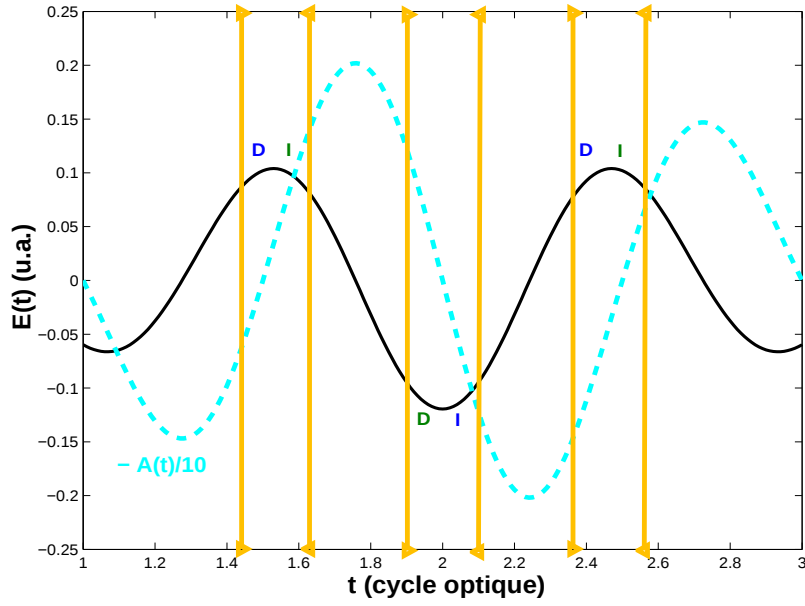
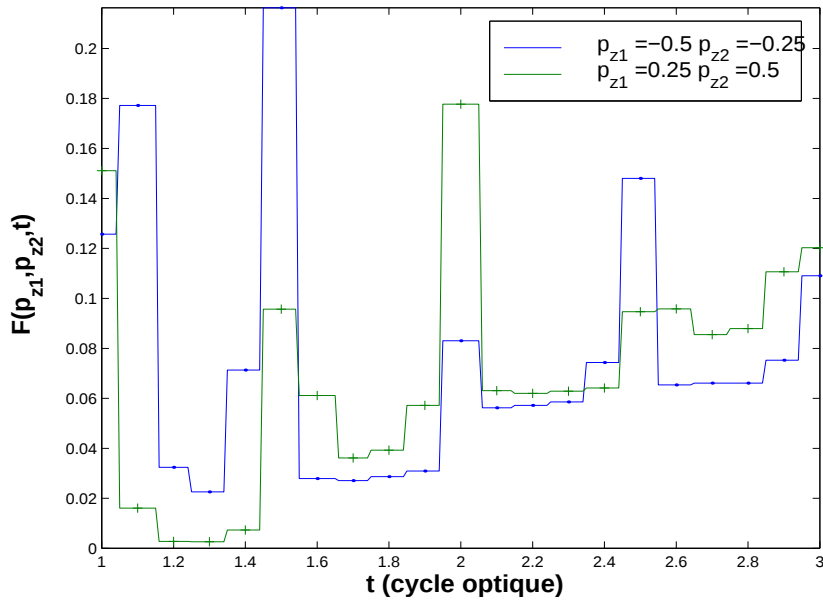
(a) $E(t)$ (trait plein noir) et $-A(t)$ (pointillés bleus)(b) $0 < |p_z| < 0.25$

FIG. 4.30: (a) $E(t)$ et $-A(t)/10$. Les traits verticaux oranges (ainsi que la direction des flèches) délimitent les différents intervalles de temps dans lesquels l'ionisation a lieu. La couleur des lettres D et I donnent la direction d'éjection finale ($z < 0$ en bleu, $z > 0$ en vert) des électrons par un processus direct (D) ou indirect (I) sur chaque demi-période. (b) $F(p_{z1}, p_{z2}, t)$ est donnée par l'équation (4.19). Interaction de 4 cycles, $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

(a) $E(t)$ (trait plein noir) et $-A(t)$ (pointillés bleus)(b) $0.25 < |p_z| < 0.5$ FIG. 4.31: (a) identique à la figure 4.30(a). (b) $F(p_{z1}, p_{z2}, t)$ donnée par l'équation (4.19). Interaction de 4 cycles, $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

Dans chaque intervalle représenté, $F(p_{z_1}, p_{z_2}, t)$ augmente brutalement en raison du passage du fondamental. Nous voyons que cette augmentation est quasi-simultanée pour tous les domaines considérés en raison de l'étalement important du $1s$ dans l'espace des moments et parce que nous considérons des régions consécutives en p_z . Systématiquement, après le passage du $1s$, la fonction présente des paliers que nous pouvons attribuer à l'ionisation. En nous aidant des indications D et I sur la figure 4.30(a), nous pouvons attribuer une nature directe ou indirecte à l'accroissement des différents paliers d'une demi-période à l'autre. Il est important de considérer les accroissements respectifs dans les deux directions car les processus d'ionisation sont *toujours* distincts sur une demi-période.

Ainsi, par exemple, entre 1.9 et $2.1T$, d'après la figure 4.30(a), il est possible d'ioniser par un processus direct vers les $z > 0$ et par un processus indirect vers les $z < 0$. Si nous observons l'accroissement des paliers dans les deux directions sur la figure 4.30(b) de 1.8 à $2.2T$, nous constatons que les contributions directes et indirectes sont quasi-identiques, la contribution indirecte étant légèrement supérieure. Un tel raisonnement sur les autres intervalles, nous permet de faire les constats suivants :

1. Bien que le champ critique ait été atteint ($t = 2T$), les contributions directes ($z > 0$) et indirectes ($z < 0$) sont identiques tandis qu'après $2.5T$ ($E < E_{crit}$), la contribution directe ($z < 0$) est quasiment nulle. La seule contribution à l'ionisation est une contribution indirecte ($z > 0$) dans la même proportion que lorsque le régime au-dessus de la barrière a été atteint.
2. La dominance des contributions indirectes semble encore plus importante pour l'intervalle $0.25 < |p_z| < 0.5$ (figure 4.31(b)). En effet, après $1.5T$, 4% ont été ionisés par la voie indirecte et seulement 2% par la voie directe lorsque le champ critique est atteint du côté positif.
3. Tous les intervalles que nous avons pu analyser avec cette méthode confirme la dominance de la voie d'ionisation indirecte dans le régime au-dessous de la barrière et sa persistance lorsque le régime critique est atteint.

Pour vérifier si ce résultat se confirme à plus haute intensité, nous effectuons cette analyse pour une intensité de $I = 10^{15} \text{W/cm}^2$, la forme du champ électrique est la même que sur la figure 4.30(a) mais cette fois-ci le champ critique est atteint en $t = 1.5T$. L'ionisation est de 98% en $t = 2.5T$ comme le montre la figure 4.33(b). $F(p_{z_1}, p_{z_2}, t)$ est représentée sur la figure 4.32 pour cette interaction. Puisque le régime au-dessus de la barrière est atteint, nous nous attendons à des contributions directes importantes, elles

existent, en effet, mais sont bien concurrencées par les contributions indirectes qui, en fait, dominent légèrement.

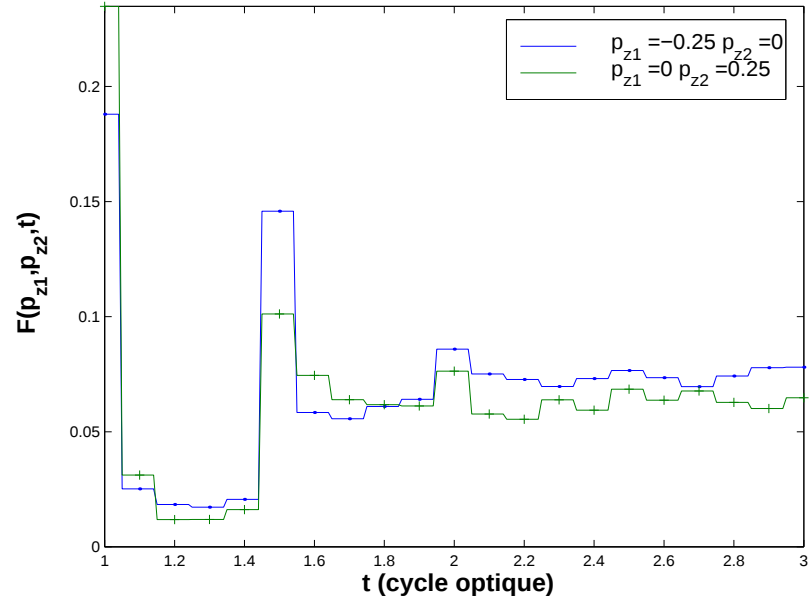
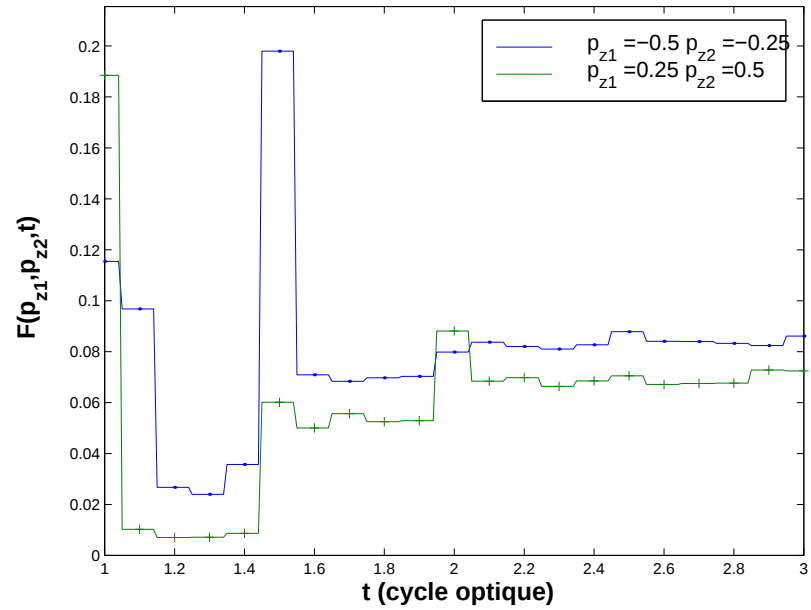
4.8 Conclusions

Notre méthode de résolution de l'ESDT directement dans l'espace des moments nous a donc permis d'effectuer une analyse de la dynamique du processus d'ionisation. L'utilisation de la représentation de la fonction d'onde en terme de moments canoniques s'est révélée efficace pour étudier ce mécanisme **de manière instantanée**, contrairement à l'espace des configurations dans lequel l'ionisation ne peut être définie qu'en terme d'éloignement du paquet d'onde par rapport au noyau. L'espace des moments s'avère donc être l'espace privilégié pour étudier le mécanisme d'ionisation, le moment canonique que nous utilisons dans la forme vitesse de l'interaction étant relié, pour la fraction "ionisée" de la densité de probabilité, à l'énergie cinétique finale de l'électron éjecté.

L'utilisation du moment canonique nous a également permis de déterminer un critère sur l'intensité du laser à utiliser, de façon à ce que l'approximation du champ fort soit valable et puisse donc être analysée par notre méthode. Rappelons que pour la fréquence du Ti : Saphir, le paramètre de Keldysh évalué pour l'hydrogène est juste inférieur à 1 pour les premières intensités que nous avons considérées. Le critère $\langle v_z(t) \rangle \propto A(t)$, basée sur l'approximation du champ fort selon laquelle 1 et 1 seul état lié participe effectivement à l'interaction, nous a permis de définir qu'à partir de $I = 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ($\omega = 0.057 \text{ u.a.}$), l'approximation du champ fort doit être valable bien que $\gamma = 0.75$ dans ce cas ; notre critère est donc moins restrictif que le critère proposé par Keldysh.

Nous devons faire référence au travail similaire de [Scrinzi *et al*, 99] qui s'intéressèrent également au critère de Keldysh. Leur raisonnement était fondé sur la validité de l'approximation quasi-statique⁹ de l'ionisation au cours de l'interaction intrinsèquement liée à la validité du régime du champ fort. En effet, comme nous l'avons également mis en évidence, dans ce régime, l'ionisation a lieu essentiellement au maximum du champ et non à n'importe quelle phase de celui-ci comme dans un schéma d'ionisation multiphotonique. Nous arrivons à la même conclusion qu'eux du point de vue de l'intensité ($\gtrsim 1.3 - 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, pour la même fréquence $\omega = 0.057 \text{ u.a.}$) au-delà de laquelle le régime du champ fort doit être dominant.

⁹taux d'ionisation $W(t) = \exp\left(-\int_{t_0}^t dt' \Gamma(|E(t')|)\right)$ où $\Gamma(|E|)$ est le taux d'ionisation statique exact associé à un champ électrique d'amplitude $|E|$.

(a) $0 < p_z < 0.25$ (b) $0.25 < p_z < 0.5$ FIG. 4.32: $F(p_{z1}, p_{z2}, t)$ pour une interaction de 4 cycles, $I = 10^{15} \text{ W/cm}^2$.

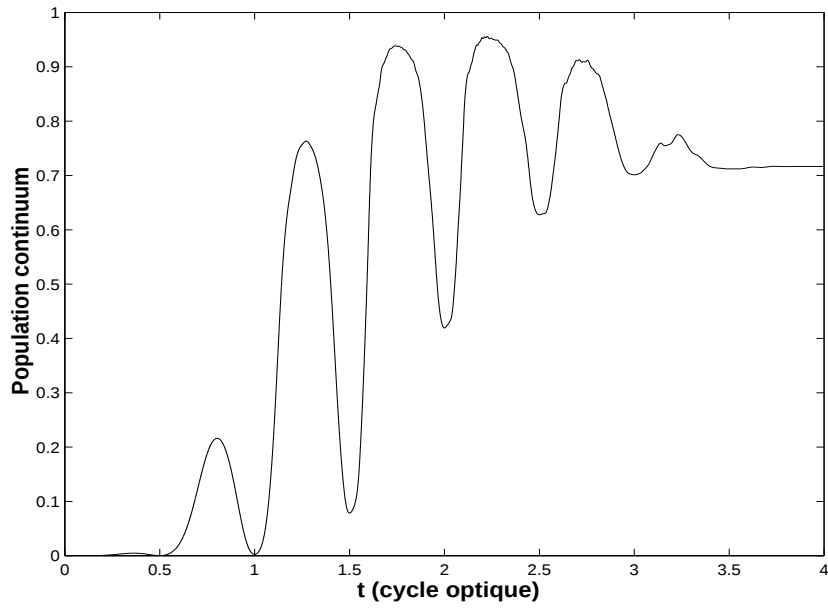
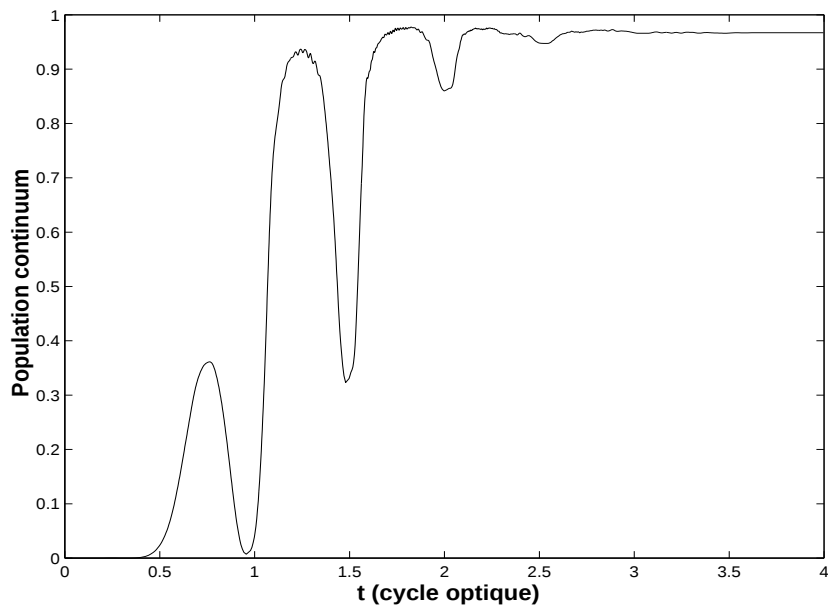
(a) $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (b) $I = 10^{15} \text{ W/cm}^2$

FIG. 4.33: Population dans les états du continuum coulombien en fonction du temps. L'enveloppe inférieure de cette fonction donne une évaluation de l'ionisation en fonction du temps.

Remarquons, d'ailleurs, que notre critère est également lié à la validité de l'approximation quasi-statique. Mais nous devons signaler une nuance importante dans les conclusions tirées par ces auteurs. Selon eux, en effet, l'intensité $1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ est l'intensité *critique* pour l'hydrogène, ils ont donc conclu que la validité de l'approximation quasi-statique est due au régime d'ionisation au-dessus de la barrière. Les considérations classiques que nous avons utilisées prédisent cependant que cette intensité *critique* est en fait de l'ordre de $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ en bon accord avec les résultats de [Bauer, 97]. Nos propres conclusions sont donc qu'au-delà de $1.3 - 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, le régime du champ fort (1 seul état lié impliqué dans le mécanisme d'ionisation) est atteint, *mais le régime d'ionisation au-dessus de la barrière n'est "amorcé" qu'à partir de $I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.*

Au-delà de $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, nous avons pu vérifier un assez bon accord qualitatif entre l'approximation du champ fort et nos résultats numériques du point de vue des prédictions sur les phases d'éjection des différents paquets à la nuance importante, que nous n'avons pas à proprement parler, à inclure le concept d'effet tunnel pour comprendre la création des paquets, la condition d'éjection étant donnée simplement par :

$$p_z + A(t) = 0.$$

Cette nuance importante n'a cependant pas d'incidence sur la validité de l'approximation du champ fort dans la description de la dynamique du paquet dans le champ laser. Le mouvement semi-classique existe bien, nous avons pu le vérifier dans l'espace des phases. Cependant, et c'est là le point essentiel de notre analyse, si ce mouvement existe, il ne correspond pas à la contribution dominante à l'ionisation. Dans nos résultats, il apparaît que les paquets indirects, auxquels on attribue en général un mouvement classique, restent dans la zone d'interaction du potentiel tant que la direction du champ n'est pas favorable à leur éjection. Ce constat est associé à un net resserrement de la densité de probabilité par rapport aux prédictions du modèle du champ fort. D'après le mouvement des paquets que nous avons pu observer, cette focalisation peut être un effet du potentiel Coulombien, le mécanisme d'ionisation doit donc selon ces résultats être décrit par trois étapes successives :

- collision inélastique assistée par le laser et mise en évidence dans la focalisation de la densité de probabilité le long de l'axe de polarisation.
- Suivie d'une propagation *dans le potentiel Coulombien*,
- puis finalement éjection avec possibilité de rediffusion aux plus grands angles.

Dans un tel mécanisme, la contribution des trajectoires indirectes est favorisée.

Nous avons finalement constaté que les trajectoires indirectes adoptaient un mouvement classique de manière plus significative, une fois la valeur du champ critique dépassée. Ce résultat est très important, car il signifie que dans le cas de l'ionisation au-dessus de la barrière, l'image simple du paquet qui s'échappe directement du noyau sans y revenir avec par conséquent une contribution dominante des trajectoires directes devant les trajectoires indirectes n'est pas du tout validée par nos résultats. Les contributions indirectes favorisées par le potentiel Coulombien peuvent également participer au mécanisme de génération d'harmoniques d'ordre élevé. Les travaux de [Scrinzi *et al*, 00] ont effectivement montré que dans le cadre de la GHOE, le rôle du potentiel Coulombien était essentiellement d'augmenter l'intensité des harmoniques les plus élevées par rapport aux prédictions du champ fort. Ces deux résultats sont très importants pour l'analyse de la GHOE que nous effectuons dans la troisième partie de ce travail car le domaine d'intensité considéré est le même que celui que nous avons utilisé pour analyser la dynamique de l'ionisation.

Nous nous intéressons maintenant au deuxième processus important dans le contexte de l'interaction de l'atome d'hydrogène avec un champ laser intense basse fréquence, la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans le cadre des impulsions laser ultra-brèves. Nous utilisons l'approximation du champ fort ainsi que la résolution numérique de l'ESDT pour effectuer cette étude. L'étude que nous venons d'effectuer du processus d'ionisation, première étape du mécanisme de la GHOE dans le modèle semi-classique nous a également permis de faire le bilan des points faibles et des points forts de l'approximation du champ... fort.

Troisième partie

Influence de la phase sur la
GHOE

Chapitre 5

GHOE et impulsions ultra-brèves

5.1 Défi des interactions femtosecondes

Dans l'introduction, nous avons mentionné l'intérêt des impulsions laser ultra-brèves pour générer des harmoniques dans le domaine de la fenêtre de l'eau. Les travaux récents sur les impulsions femtosecondes du groupe Viennois notamment [Brabec *et al*, 00] ont mis en évidence le rôle important que peuvent jouer les interactions de quelques cycles optiques dans le processus de génération d'harmoniques. L'augmentation de l'intensité de saturation est un des principaux intérêts, permettant l'observation de photons dont l'énergie est de l'ordre de 0.5 keV .

Un aspect de la génération d'harmoniques d'ordre élevé que nous n'avons pas explicitement mentionné est la possibilité de générer des impulsions sub-femtosecondes à l'aide d'un rayonnement harmonique. Différentes démarches théoriques ont été proposées. Dans l'introduction, nous avons essentiellement évoqué le comportement spectral de la GHOE, mais pour mieux comprendre son impact dans le domaine attoseconde, rappelons que ces pics nettement séparés par 2ω dans l'espace des fréquences correspondent à l'émission d'un train d'impulsions toutes les demi-périodes laser *si et seulement si* il existe une différence de phase constante entre deux harmoniques successives. Si tel est le cas, comme l'ont rappelé [Antoine *et al*, 96], sélectionner N harmoniques du plateau reviendrait à générer des trains d'impulsions distantes d'une demi-période mais surtout chacune des impulsions aurait une largeur à mi-hauteur de l'ordre de

$$\Delta t = \frac{T_l}{2N},$$

c'est-à-dire dans le cas du Ti : Saphir $\Delta t \approx 1.32/Nfs$! La sélection d'une dizaine d'harmoniques ferait basculer la notion d'ultra-court du domaine

femtoseconde au domaine attoseconde¹ !

Au cours de l'analyse, nous évoquons les scénarii théoriques proposés par [Antoine *et al*, 96], [Schafer *et al*, 97] et [Ivanov *et al*, 95] pour aboutir à de telles durées d'impulsions. Signalons de plus que si ces scénarii sont envisageables expérimentalement, le problème majeur qu'il faut surmonter est la "simple" mesure de telles durées d'impulsions. Mais ceci est désormais chose faite, les impulsions attosecondes viennent d'être observées indirectement expérimentalement [Paul *et al*, 01].

Dans cet attirant aspect de la GHOE, les impulsions de quelques cycles optiques ont évidemment leur rôle à jouer, c'est ce que l'étude théorique de [Christov *et al*, 97] ainsi que la nôtre ont montré. Nous nous concentrons donc sur des interactions n'excédant pas une durée totale de $10fs$, notre intérêt se porte sur les effets non-adiabatiques c'est-à-dire liés à la forme temporelle de l'impulsion et au paramètre totalement décorrélié de l'intensité qu'est la phase de la porteuse ϕ , paramètre qu'il est important de prendre en compte lorsque l'on considère des interactions de quelques cycles. Le champ électrique doit alors prendre la forme suivante :

$$E(t) = f(t) \times \cos(\omega t + \phi).$$

Notre contribution tend essentiellement à mettre en évidence l'influence de cette phase sur le spectre des harmoniques d'ordre élevé en nous basant à la fois sur des simulations numériques exactes obtenues par la résolution de l'ESDT et sur le modèle du champ fort.

5.1.1 Premières études théoriques sur les impulsions brèves

Afin de mettre en évidence le caractère non adiabatique des effets que nous avons observés, nous devons rappeler les récents résultats obtenus par différents groupes dans le cadre de la GHOE par des impulsions courtes (interactions de quelques dizaines de femtosecondes).

Des premiers résultats intéressants obtenus par [Watson *et al*, 95] ont montré qu'un décalage vers le bleu (blueshift) des harmoniques de la coupure se produit si l'on utilise une rampe linéaire d'intensité, le décalage observé étant proportionnel à la pente de la rampe. Ce décalage peut être compris par le modèle semi-classique comme une accélération supplémentaire acquise par l'électron pendant son oscillation dans le champ laser aboutissant à une énergie cinétique plus grande au moment du retour et donc à un décalage vers les plus hautes fréquences du pic harmonique.

¹1 as = $10^{-18}s$

Evoquant des arguments similaires, [Schafer *et al*, 97, Salières *et al*, 98] ont clairement mis en évidence l'effet de la variation de l'intensité au sommet de l'impulsion sur la phase des harmoniques émises. En effet, comme nous l'avons rappelé dans le chapitre 2, la phase des harmoniques de la coupure peut s'écrire $\Phi \approx U_p \tau \propto I \lambda^2$. Dans la mesure où les harmoniques les plus élevées sont émises au sommet de l'impulsion, leur phase subit une "distorsion" quadratique en temps qui correspond à une dérive de fréquence (chirp) linéaire, produisant avant le sommet, un effet de blueshift, et de redshift après. Si l'intensité utilisée est bien en dessous de l'intensité de saturation pour l'atome considéré, cet effet se traduit par un élargissement spectral. Pour les harmoniques de la coupure, ce raisonnement est aisé puisqu'il n'existe qu'un seul temps de retour. En revanche, [Salières *et al*, 98] ont expliqué l'aspect "brouillé" du plateau (où les pics harmoniques ne sont plus clairement définis contrairement au cas représenté sur la figure 2.6) par l'influence plus complexe de l'intensité sur la phase du dipôle, puisqu'elle est maintenant composée de deux termes $U_p \tau_1 + U_p \tau_2$ (cf. chapitre 2), la dérive de la fréquence n'est plus linéaire, les pics harmoniques disparaissent.

Ces résultats sont tous compréhensibles dans le cadre de la théorie adiabatique présentée dans le chapitre 2, mais il apparaît que l'approximation adiabatique connaît ses premiers échecs lorsque la durée de l'impulsion atteint le seuil des $10fs$ c'est-à-dire lorsque la notion de phase absolue du champ commence à prendre son sens...

5.2 Quelques outils théoriques supplémentaires

5.2.1 Définition d'une impulsion brève

Lorsque l'on travaille dans le domaine des interactions de quelques cycles optiques, il est important de redéfinir les quantités telles que l'intensité instantanée, l'énergie totale disponible et l'intensité pic atteintes au cours de l'interaction. Elles sont en effet sensibles à la phase absolue du champ ϕ . Théoriquement, nous définissons le potentiel vecteur associé au champ électrique par :

$$\mathbf{A}(t) = \mathbf{A}_0 f(t) \sin(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t + \phi) \quad (5.1)$$

$\mathbf{A}_0$ est l'amplitude du potentiel vecteur, $f(t)$ son enveloppe temporelle, ω la fréquence de la porteuse, $\mathbf{k}$ le vecteur d'onde ($|\mathbf{k}| = \omega/c$) associé et ϕ la *phase absolue* du champ. Le champ électrique est défini par la relation² :

$$\mathbf{E}(t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}(t), \quad (5.2)$$

²nous travaillons dans cette section dans le système d'unités M.K.S., cf. appendice A

Pour connaître la valeur instantanée de l'intensité, il nous faut tout d'abord déterminer le vecteur de Poynting

$$\mathbf{S}(t) = \frac{1}{\mu_0} \mathbf{E} \times \mathbf{B}, \quad (5.3)$$

vecteur dont l'amplitude correspond au flux d'énergie par unité de surface et unité de temps. L'intensité instantanée sera par la suite évaluée grâce à la valeur moyenne de l'amplitude du vecteur de Poynting sur une période :

$$I(t) = \left| \frac{1}{T} \int_{t-T/2}^{t+T/2} \mathbf{S}(t') dt' \right| \quad (5.4)$$

D'après les équations de Maxwell, le champ magnétique est donné par

$$\mathbf{B}(t) = \nabla \times \mathbf{A}(t) = \mathbf{k} \times \mathbf{A}_0 f(t) \cos(\phi - \omega t). \quad (5.5)$$

Ainsi le vecteur de Poynting prend la forme :

$$\mathbf{S}(t) = \frac{1}{\mu_0 \omega} E_0^2 \mathbf{k} \left\{ f^2(t) \cos^2(\phi - \omega t) - \frac{1}{2\omega} f(t) \frac{\partial}{\partial t} f(t) \sin(2(\phi - \omega t)) \right\}, \quad (5.6)$$

où c est la vitesse de la lumière. Dans l'approximation des grandes longueurs d'onde, $\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} \ll 1$. De cette manière, après quelques manipulations, nous obtenons aisément l'intensité instantanée sous la forme :

$$I(t) = \frac{\varepsilon_0 c E_0^2}{2} \frac{1}{T} \left\{ \int_{t-T/2}^{t+T/2} f^2(u) du - \frac{1}{2\omega} [f^2(u) \sin(2(\phi - \omega u))]_{t-T/2}^{t+T/2} \right\}. \quad (5.7)$$

Dans nos calculs théoriques, nous avons souvent utilisé une enveloppe temporelle de la forme :

$$f(t) = \cos^2\left(\frac{\omega}{N}t\right), \quad (5.8)$$

N est le nombre de cycles correspondant à la durée totale de l'interaction $\Delta t = NT$ (T la période laser). Ainsi, le maximum de l'enveloppe est atteint en $t = 0$ et $f(t)$ est imposée nulle en dehors de l'intervalle $[-NT/2; NT/2]$. Dans l'expression 5.7, le premier terme de la partie de droite est indépendant de ϕ contrairement au deuxième terme. Puisque la forme temporelle considérée est symétrique par rapport à $t = 0$, si l'on évalue maintenant la densité d'énergie totale :

$$W = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t') dt',$$

Le second terme de 5.7 disparaît de telle sorte que W est *indépendant de la phase absolue du laser*.

Afin de mieux percevoir l'effet de la phase sur l'intensité instantanée, nous avons représenté sur la figure 5.1, l'intensité instantanée définie par l'équation (5.7), pour les phases : $\phi = 0$, $\pi/3$ et $\phi = \pi/2$. La durée totale de l'interaction est égale à $2T$. Sur la même figure, nous avons représenté le terme de $I(t)$ indépendant de la phase. En effet, nous constatons sur ce graphe que la phase induit de légères modulations d'amplitude autour de ce terme indépendant, modulations qui disparaissent rapidement avec l'augmentation de la durée de l'interaction. Si bien qu'il est pratique d'utiliser ce terme indépendant pour définir la largeur à mi-hauteur (f.w.h.m) qui caractérise expérimentalement une impulsion. Dans le cas présent, la f.w.h.m vaut 1 cycle optique c'est-à-dire $\approx 2.5fs$.

Le maximum d'intensité, atteint en $t = 0$ pour $\phi = 0$ et $\pi/2$ est décalé pour $\phi = \pi/3$. Mais dans chaque cas, nous pouvons considérer que l'intensité pic atteinte est constante en fonction de la phase, en très bonne approximation. Nous avons utilisé comme valeur de référence de l'intensité³ :

$$I_0(W/cm^2) = \frac{\varepsilon_0(F/m) c(m/s) (E_0(V/cm))^2}{2}, \quad (5.9)$$

qui correspond à l'intensité pic adiabatique (indépendante du temps) obtenue lorsqu'aucune enveloppe temporelle n'est prise en compte.

Il nous faut, pour terminer, étudier l'évolution de l'intensité pic en fonction de la durée totale de l'impulsion relativement à I_0 . Ceci est effectué, toujours pour les deux mêmes phases sur la figure 5.2. Nous constatons que l'évolution est analogue pour les deux phases et que le paramètre qui modifie drastiquement la valeur de l'intensité pic atteinte est la durée de l'interaction. I_{max} décroît fortement pour les interactions inférieures à 10 cycles optiques ($f.w.h.m. \approx 4T \approx 10fs$).

Résumons les constats effectués en introduisant une forme temporelle et une phase ϕ au potentiel vecteur :

- La densité d'énergie considérée reste indépendante de la phase. La même conclusion peut être formulée en très bonne approximation sur l'intensité pic et la largeur à mi-hauteur qui caractérisent l'impulsion.
- L'intensité pic est en revanche très sensible à la durée totale de l'interaction. En introduisant une intensité I_0 par l'intermédiaire de l'amplitude :

$$A_0 = \frac{1}{\omega} \sqrt{\frac{2}{\varepsilon_0 c}} I_0$$

³cf. appendice A pour les valeurs numériques des différentes constantes

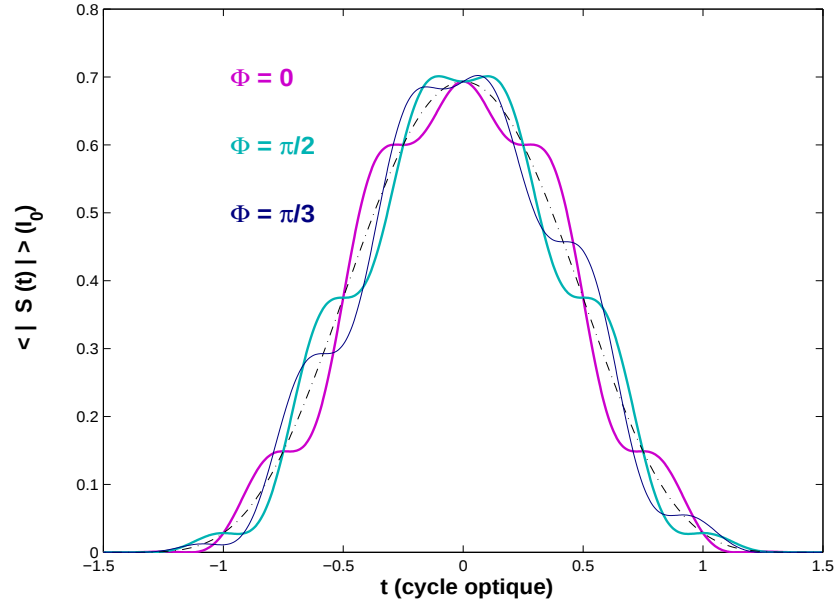


FIG. 5.1: Intensité instantanée donnée par l'équation (5.7) pour trois phases du champ. Le terme indépendant de ϕ dans cette équation est représenté en pointillés. $I_0 = \varepsilon_0 c E_0^2/2$ est définie dans le texte.

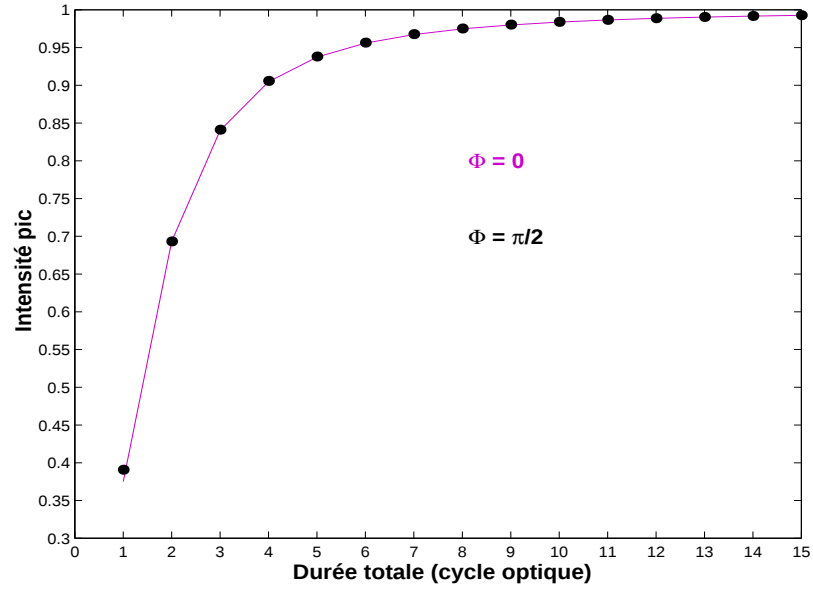


FIG. 5.2: Maximum de l'intensité en fonction de la durée de l'interaction considérée.

dans nos calculs théoriques, il faudra prendre garde de corriger cette intensité par un facteur dépendant de la durée considérée.

- Enfin, d’après la précédente étude, la phase n’influence pas les grandeurs mesurables de l’impulsion. Les effets dus à cette phase peuvent, par conséquent, être qualifiés de *non adiabatiques*.

5.2.2 Obtention des spectres de GHOE

Dans l’approximation dipolaire classique, un système de charges peut rayonner s’il possède une accélération non nulle. L’intensité du rayonnement est en effet proportionnelle au carré de l’accélération du système selon la relation :

$$I = \frac{2}{3c^3} \ddot{\mathbf{r}}^2.$$

Ce résultat est obtenu dans le cadre de la théorie des champs classique [Landau, 67(II)].

Pour aboutir à un résultat équivalent en mécanique quantique, il faut dans un premier temps revenir à l’interaction atome-champ quantifiée. Le spectre en fréquence est [Shore, 90] la transformée de Fourier de l’opérateur accélération du dipôle, tandis que le spectre de puissance (qui correspond au nombre de photons mesurés expérimentalement) est la transformée de Fourier de sa fonction d’auto-corrélation.

Dans le cadre de la GHOE, [Sundaram *et al*, 90] et [Eberly *et al*, 92] notamment, ont justifié l’utilisation de l’approximation semi-classique :

$$S(\omega) \approx \left| \int_0^t dt e^{i\omega t} \langle \Psi(t) | \ddot{\mathbf{r}} | \Psi(t) \rangle \right|^2 ;$$

le spectre de puissance peut être obtenu en résolvant l’ESDT dans l’approximation semi-classique et en évaluant la transformée de Fourier de la valeur moyenne de l’opérateur accélération du dipôle. Remarquons toutefois que, comme dans le modèle de Lewenstein, c’est souvent la valeur moyenne du dipôle qui est considérée dans l’évaluation du spectre pour la raison suivante : si nous écrivons la valeur moyenne du dipôle sous la forme :

$$\langle r(t) \rangle = \int d\omega e^{-i\omega t} \langle d(\omega) \rangle \quad (5.10)$$

en différenciant deux fois cette expression, nous obtenons :

$$\langle \ddot{r}(t) \rangle = - \int d\omega \omega^2 \langle d(\omega) \rangle e^{-i\omega t}. \quad (5.11)$$

Dans cette démarche, le spectre de puissance s'écrit $S(\omega) = \omega^4 |d(\omega)|^2$. Mais [Burnett *et al*, 92] ont montré que la démarche précédente possède une version plus rigoureuse : il faut plutôt considérer l'expression initiale du spectre de puissance :

$$S(\omega) = \left| \int_0^T dt e^{i\omega t} \frac{d^2}{dt^2} \langle d(t) \rangle \right|^2 \quad (5.12)$$

et intégrer deux fois par parties, ce qui donne :

$$S(\omega) = \left| e^{i\omega T} \langle d(T) \rangle + i\omega e^{i\omega T} \langle \dot{d}(T) \rangle - \omega^2 \langle d(\omega) \rangle \right|^2. \quad (5.13)$$

Nous constatons dès lors que l'approximation du spectre de puissance par celui du dipôle n'est correcte que si les deux premiers termes de droite de l'équation précédente peuvent être négligés. Dans le cas où l'ionisation est importante, la valeur moyenne du dipôle devient très grande à la fin de l'interaction ; ceci peut, dès lors, “noyer” le signal harmonique. L'approximation en terme de spectre du dipôle n'est donc valable que si l'ionisation est négligeable. Dans les autres cas, [Burnett *et al*, 92] ont proposé d'évaluer l'accélération du dipôle en utilisant le théorème d'Ehrenfest :

$$\langle \ddot{\mathbf{r}} \rangle = - \langle \nabla V \rangle + \mathbf{E}(t). \quad (5.14)$$

Cette méthode permet de supprimer les contributions de la partie ionisée de la fonction d'onde puisque l'opérateur $-\nabla V(r) = r^{-2}$. Tout ce qui s'ionise n'intervient donc pas dans la valeur moyenne de l'accélération.

5.2.3 Résolution de l'ESDT pour l'hydrogène

Dans notre travail, nous obtenons le spectre de puissance par le biais de deux méthodes différentes. Rappelons tout d'abord que la GHOE est un processus à un électron actif. L'étude de la réponse de l'atome d'hydrogène(1s) au champ intense basse fréquence est une bonne modélisation du processus. Le potentiel d'ionisation I_p intervenant dans la loi de la coupure $I_p + 3.17 U_p$ sera donc toujours dans notre cas : $I_p = 0.5 \text{ u.a.}$

La première méthode d'obtention des spectres de puissance est fondée sur la résolution numérique de l'ESDT en développant la fonction d'onde du système sur la base des harmoniques sphériques pour la partie angulaire et sur une base de fonctions Sturmienne complexes pour la partie radiale. Nous obtenons dès lors un système d'équations différentielles couplées résolu à l'aide d'une méthode de type Runge-Kutta d'ordre 7 avec adaptation du pas d'intégration analogue à celle que nous avons décrite au début de ce manuscrit mais utilisant un schéma d'intégration implicite [Huens, 96, Huens *et al*, 97]. Cette résolution permet d'obtenir la valeur moyenne de

l'accélération du dipôle en utilisant le théorème d'Ehrenfest et donc le spectre de puissance par évaluation de sa transformée de Fourier.

5.2.4 Modèle de Lewenstein généralisé aux impulsions brèves

D'autre part, le modèle de Lewenstein, introduit dans le chapitre 2, est également utilisé. Nous avons déjà souligné qu'il était possible dans le cadre de ce modèle d'introduire une enveloppe temporelle du champ électrique. La grandeur évaluée pour avoir accès au spectre de puissance est la valeur moyenne du dipôle atomique malgré la remarque effectuée plus haut. Toutefois, il est important de remarquer que des termes sont négligés dans l'évaluation de cette valeur moyenne, en l'occurrence les termes de transition dipolaire continuum-continuum. Seuls sont conservés les termes de transition du $1s$ vers le continuum : le système revient toujours dans l'état fondamental. La partie ionisée de la fonction d'onde n'est donc pas prise en compte dans l'évaluation du dipôle si bien qu'à la fin de l'interaction la valeur moyenne du dipôle est toujours nulle et par conséquent l'égalité $S(\omega) = \omega^4 | \langle d^L(\omega) \rangle |^2$ est justifiée dans le cadre du modèle de Lewenstein.

Signalons que nous tenons compte, dans nos calculs, du dépeuplement de l'état fondamental c'est-à-dire que nous considérons une évolution de l'amplitude $a(t)$ de l'état $|1s\rangle$ selon l'approximation quasi-statique :

$$\dot{a}(t) = -\gamma(t)a(t), \quad (5.15)$$

où $\gamma(t) = \Gamma(E(t))/2$. Dans le cas d'un champ statique, d'amplitude E , $\Gamma(E)$ correspond à la largeur Stark de l'état fondamental coïncidant avec le taux d'ionisation par effet tunnel ou au-dessus de la barrière. Etant donné que nous travaillons à basse fréquence $\omega \ll I_p$, il est légitime d'associer à l'amplitude instantanée du champ électrique un "taux" instantané $\Gamma(|E(t)|)$ qui conduit à une loi de décroissance exponentielle :

$$a(t) = e^{-\int_{t_0}^t dt' \gamma(|E(t')|)},$$

pour l'amplitude de l'état fondamental. Nous utilisons les taux statiques exacts pour l'hydrogène déterminés par [Scrinzi, 00b] pour évaluer $a(t)$. Nous avons vérifié qu'aux intensités utilisées, l'approximation quasi-statique coïncide parfaitement avec l'amplitude de probabilité de l'état $|1s\rangle$ à la fin de l'interaction. L'amplitude $a(t)$ est ainsi introduite dans l'expression du dipôle obtenu par Lewenstein dont nous rappelons la forme finalement utilisée dans nos calculs :

$$\mathbf{d}^L(t) = i a(t) \int_0^{t-t_0} d\tau a^*(t-\tau) \left(\frac{2\pi}{\varepsilon + i\tau} \right)^{3/2} \langle 1s | \mathbf{R} | \mathbf{p}_{\text{stat}} + \mathbf{A}(t) \rangle$$

$$\begin{aligned}
& \times \langle \mathbf{p}_{\text{stat}} + \mathbf{A}(t - \tau) \mid \mathbf{R} \mid 1s \rangle \cdot \mathbf{E}(t - \tau) \\
& \times \exp[-iS(\mathbf{p}_{\text{stat}}, t, \tau)] \\
& + \text{c.c.}
\end{aligned} \tag{5.16}$$

avec

$$\mathbf{p}_{\text{stat}}(t, \tau) = -\frac{1}{\tau} \int_{t-\tau}^t dt' \mathbf{A}(t'),$$

et

$$S(\mathbf{p}, t, \tau) = \int_{t-\tau}^t \frac{1}{2} (\mathbf{p} + \mathbf{A}(t''))^2 + I_p \tau.$$

Rappelons la forme du couplage dipolaire 1s-continuum dans l'approximation de Lewenstein c'est-à-dire en considérant le couplage avec des ondes planes :

$$\langle 1s \mid \mathbf{R} \mid p \rangle = i \left(\frac{2^5 I_p^{5/4}}{\sqrt{2\pi}} \right) \frac{\mathbf{p}}{(\mathbf{p}^2 + 2I_p)^3}. \tag{5.17}$$

5.2.5 Analyse temps-fréquence des harmoniques

Une fois l'accélération du dipôle ou le dipôle évalués par l'une de ces deux méthodes, nous disposons d'un signal temporel dont la transformée de Fourier est évaluée. Ceci nous donne accès au spectre de puissance indispensable pour comparer les prédictions théoriques aux mesures expérimentales. Cependant, du point de vue de l'analyse théorique du processus, le passage dans l'espace de Fourier fait perdre toute l'information temporelle; celle-ci est pourtant intéressante dans le cadre de la GHOE puisqu'ainsi que nous l'avons décrit dans le chapitre 2, la compréhension classique du processus introduit le concept de temps d'ionisation et de temps de recombinaison. Cette notion existe également dans le modèle développé par Lewenstein. Mais dans le cas numérique "exact", nous ne disposons, pour l'instant, d'aucun outil qui nous permette à partir de l'information contenue dans le signal temporel, de faire apparaître ces temps classiques. En d'autres termes, il faut pouvoir isoler dans l'accélération du dipôle, la contribution d'une ou plusieurs harmoniques tout en conservant une information temporelle.

Un tel outil existe dans le domaine du traitement du signal, il s'agit de l'analyse temps-fréquence [Flandrin, 93] qui a été introduite dans le domaine de la GHOE par [Antoine *et al*, 95]. Cette analyse consiste à convoluer l'accélération du dipôle avec une fonction analysante caractérisée par un paramètre d'échelle (la fréquence) et un paramètre de translation. La transformation effectuée porte le nom d'analyse de Gabor, la transformée de Gabor de l'accélération prend donc la forme :

$$a(t) \rightarrow \tilde{a}(\tau, \eta) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt a(t) T_{\eta, \tau}(t); \tag{5.18}$$

$T_{\eta,\tau}$ est la fonction analysante donnée par :

$$T_{\eta,\tau}(t) = e^{-it/\eta} g(t - \tau). \quad (5.19)$$

$g(t)$ est une fonction-filtre qui est donc translatée sur l'axe des temps par l'intermédiaire du paramètre τ , de manière à ne sélectionner qu'un intervalle de temps correspondant à la largeur du filtre et à analyser les événements "vivant" à l'échelle η^{-1} . La fenêtre g utilisée est une fonction gaussienne dans nos calculs. Nous avons en fait utilisé l'équivalent dans l'espace de Fourier pour construire la transformée de Gabor du signal. En considérant la transformée de Fourier de l'accélération du dipôle $a(\omega)$, la transformée de Gabor peut également s'écrire :

$$\tilde{a}(\omega_0, \tau) = \int d\omega \tilde{g}(\omega - \omega_0) a(\omega) e^{-i\omega\tau}, \quad (5.20)$$

où $\tilde{g}(\omega)$ est la transformée de Fourier (TF) de la fenêtre d'analyse $g(t)$. Dans le cas d'une fenêtre gaussienne, cette TF est également une gaussienne prenant la forme exacte :

$$\tilde{g}_{\sigma_0}(\omega - \omega_0) = e^{-\frac{1}{2}(\omega - \omega_0)^2 \sigma_0^2}, \quad (5.21)$$

où σ_0 caractérise la largeur à mi-hauteur (f.w.h.m) de la gaussienne :

$$f.w.h.m = \frac{2}{\sigma_0} \sqrt{2 \ln 2}.$$

L'interprétation de la transformée de Gabor dans le domaine de la GHOE est la suivante :

une fois la transformée de Fourier $a(\omega)$ obtenue, un filtrage autour d'une fréquence ω_0 , avec une largeur de filtre donnée par la f.w.h.m. choisie, est effectué, suivi d'une transformation de Fourier inverse qui permet de récupérer l'information temporelle. La transformée de Gabor $|a(\omega_0, \tau)|^2$ correspond par conséquent au *profil temporel d'émission d'un groupe d'harmoniques* centré autour de la fréquence ω_0 .

Cet outil très puissant nous offre, entre autre, la possibilité de tester temporellement le modèle semi-classique à partir des calculs exacts effectués par la résolution de l'ESDT !

L'ensemble des méthodes et outils d'analyses dont nous disposons ayant été exposés, nous présentons maintenant les résultats obtenus sur la GHOE lors d'interactions laser-atome ultra-brèves.

Chapitre 6

Interprétation des effets de phase

6.1 Des impulsions de moins de $6fs$

Notre intérêt se porte donc sur l'étude d'interactions extrêmement courtes (qui faisaient sourire les expérimentateurs, il y a 4 ans...). Cette étude est motivée par les expériences menées principalement par l'équipe de Vienne [Spielmann *et al*, 97] qui mirent en évidence la possibilité de générer des impulsions de l'ordre de $5fs$ avec des puissances élevées permettant d'effectuer des expériences de GHOE. L'atome considéré, dans nos calculs est donc l'hydrogène $I_p = 13.606 \text{ eV} = 0.5 \text{ u.a.}$ La longueur d'onde utilisée est (toujours) celle du laser Ti : Saphir $\lambda = 800 \text{ nm}$ soit une fréquence $\omega = 0.057 \text{ u.a.}$

En tenant compte de nos remarques concernant l'évaluation de l'intensité instantanée correspondant à une durée totale d'impulsion fixée et à une intensité I_0 imposée, nous reprenons dans le tableau 6.1, les différents grandeurs qui caractérisent les deux interactions que nous avons étudiées, soit $\Delta t = 2$ et $4T$. L'intensité I_0 introduite dans nos calculs était, dans les deux cas de $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, ce qui correspond à un potentiel pondéromoteur $U_{p0} = 1.099 \text{ u.a.} = 29.8 \text{ eV}$. La loi de la coupure donne alors :

$$\omega_{0max} = I_p + 3.17 U_{p0} = 71\omega \quad (6.1)$$

A l'aide de ces quelques points de repère, nous commençons donc notre étude par l'interaction la "plus longue" de $4.3fs$.

Δt	$4T$	$2T$
I_{max}	$4.5 \times 10^{14} W/cm^2$	$3.5 \times 10^{14} W/cm^2$
f.w.h.m	$4.3 fs$	$2.5 fs$
U_{pr}	$0.99 \text{ u.a.} = 26.9 eV$	$0.77 \text{ u.a.} = 20.9 eV$
ω_{rmax}	63ω	51ω

TAB. 6.1: Récapitulatif des grandeurs associées aux deux interactions étudiées dans cette section et au processus de GHOE, telle que la position de la coupure ω_{max} , par exemple.

6.2 Etude à $4.3 fs$: le blason subfemtoseconde des effets de phase

Nous inspectons l'effet de la phase en évaluant la transformée de Fourier de l'accélération du dipôle obtenue par la résolution numérique de l'ESDT pour les deux phases $\phi = 0$ et $\phi = \pi/2$. D'après l'expression 5.1 du potentiel vecteur, ces deux phases correspondent respectivement à un champ électrique maximum et nul au centre de l'interaction. Nous avons effectué également le calcul du dipôle dans le modèle de Lewenstein, pour ces deux mêmes phases. Dans ces deux démarches le spectre de puissance des harmoniques émises est reproduit sur les figures 6.1(a et b).

La première conclusion évidente est que, comme nous l'avons précédemment affirmé, l'inclusion d'une enveloppe temporelle du champ électrique dans le modèle de Lewenstein permet de reproduire de manière extrêmement précise - à un facteur d'échelle près - le spectre des harmoniques émises dans la région haute fréquence du spectre. Toutes les structures présentes dans le calcul exact apparaissent également dans le modèle de Lewenstein, si ce n'est en terme d'amplitude, tout du moins en terme de position. Pour entrer dans les détails, commençons par analyser la position de la coupure.

6.2.1 Position de la coupure

Il est impossible de comprendre la position de cette dernière en s'appuyant sur l'intensité I_0 qui impose de prédire une coupure dans le spectre à la 71^e harmonique. Dans le cas $\phi = \pi/2$, Nous obtenons une valeur de 63ω et de 65ω pour $\phi = 0$. En revanche, en utilisant l'intensité pic réelle I_{max} et le potentiel pondérateur associé d'après le tableau 6.1, la loi de la coupure prédit maintenant une coupure dans le spectre à la 63^e harmonique. On constate dès lors un décalage vers le bleu de la position de la coupure dans le cas de la phase nulle, et par conséquent une légère dépendance de la position de la coupure en fonction de la phase. Ce qu'il faut essentiellement retenir pour le moment, c'est la forte sensibilité de la position de la coupure par rapport à la durée de l'impulsion. Elle est simplement liée au fait que l'intensité instantanée pic atteinte diffère sensiblement de sa valeur adiabatique I_0 correspondante.

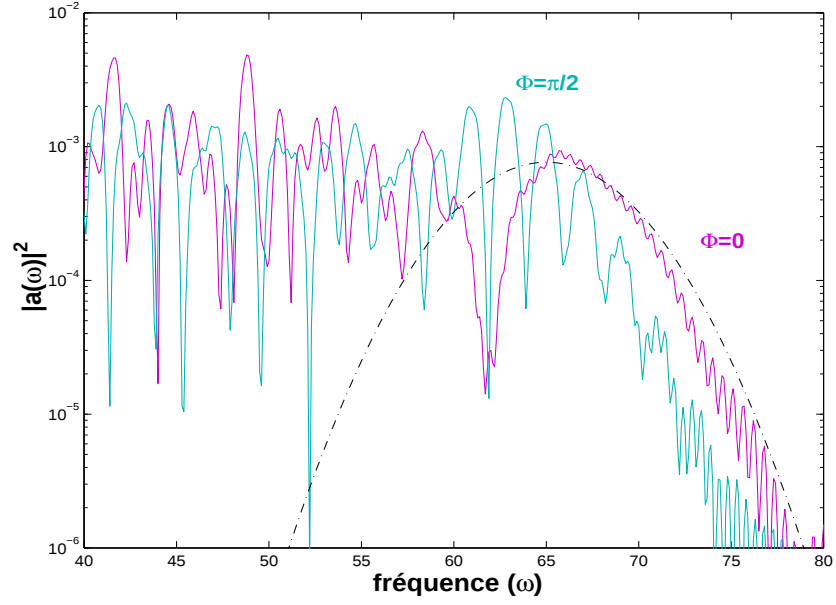
Nous avons souligné l'importance des impulsions ultra courtes pour atteindre la fenêtre de l'eau, ces impulsions permettent d'élever considérablement l'intensité de saturation, de telle sorte que le fondamental reste suffisamment peuplé lorsque l'intensité pic est atteinte donnant lieu à l'émission des harmoniques les plus élevées. Nous constatons donc que l'utilisation d'impulsions aussi brèves requiert de travailler toujours à une intensité supérieure à celle qui, dans le cas adiabatique, donnerait lieu à la même extension de plateau.

6.2.2 Premier véritable effet de la phase absolue du champ

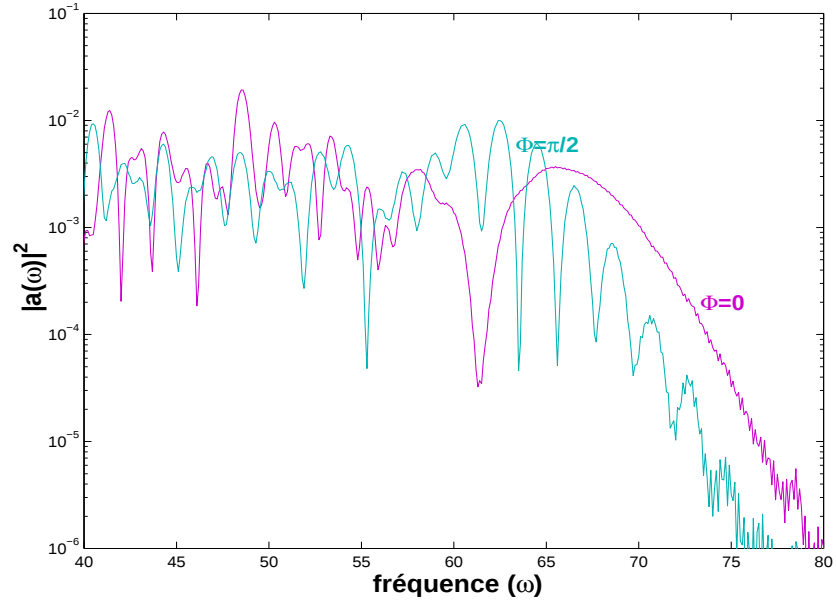
Mais venons-en au constat le plus frappant lorsque l'on compare les spectres obtenus pour ces deux phases :

Pour $\phi = 0$, on constate que les harmoniques ne sont plus résolues dans la région de la coupure : le spectre est devenu blanc, tandis que pour $\phi = \pi/2$ la périodicité en 2ω est toujours visible.

De manière à comprendre cet effet net de la phase du champ, nous effectuons une analyse de Gabor autour de la fréquence de la coupure $\omega_g = 65\omega$ en utilisant un filtre gaussien de $f.w.h.m. = 9\omega$. Ce calcul est réalisé pour l'accélération exacte et celle de Lewenstein. Le résultat est représenté dans les deux cas sur la figure 6.2.



(a) ESDT



(b) Modèle de Lewenstein

FIG. 6.1: Spectre des harmoniques émises pour une interaction de 4.3 fs , $I_r = 4.5 \times 10^{14}\text{ W/cm}^2$. Les phases $\phi = 0$ et $\phi = \pi/2$ sont respectivement représentées en violet et en bleu. La ligne en pointillés sur la figure 6.1(a) correspond au filtre gaussien utilisé pour l'analyse de Gabor effectuée pour les harmoniques de la coupure.

Les deux méthodes conduisent aux mêmes profils temporels malgré une différence d'amplitudes. Nous constatons donc que les temps d'émission sont parfaitement reproduits par l'approximation du champ fort utilisée dans le modèle de Lewenstein, le point d'ombre de cette méthode étant la moins bonne description du processus d'un point de vue quantitatif. Concernant notre étude des effets de phase, ce problème ne constitue pas un obstacle à nos conclusions. D'un point de vue quantitatif, nous nous en tenons pour l'instant au point fort du modèle qui permet d'obtenir un profil d'émission identique, en terme de phase, à celui obtenu par la résolution de l'ESDT.

L'analyse de Gabor des harmoniques de la coupure pour les deux phases, nous permet de constater que, dans le cas $\phi = \pi/2$, deux pics d'amplitudes équivalentes sont présents et séparés d'une demi-période, tandis que dans le cas $\phi = 0$, un seul pic domine nettement.

Cette différence notable entre les deux phases explique l'absence de résolution des harmoniques de la coupure dans le cas de la phase nulle si l'on se replace dans le modèle de "recollision" de la GHOE [Watson *et al*, 97]. En effet, dans ce modèle, les auteurs ont montré que la périodicité en ω est due à la répétition, toutes les périodes du même événement, la recollision d'un paquet émis une demi-période plus tôt donnant lieu à l'émission d'harmoniques impaires car le dipôle change de signe d'une demi-période à l'autre. Ils mirent donc en évidence que toute l'information de la GHOE est contenue dans l'accélération du dipôle sur un cycle $a_s(t)$: sa transformée de Fourier fournit l'allure globale du spectre - plateau et coupure en $I_p + 3.17 U_p$ - mais privée de la périodicité en 2ω . C'est la convolution de cette réponse par des impulsions de Dirac toutes décalées d'une demi-période qui permet de retrouver des pics harmoniques distant de 2ω . Le modèle de recollision suggère d'écrire l'accélération du dipôle sous la forme :

$$a(t) = \sum_{n=0}^N (-1)^n a_s(t) \delta\left(t - n\frac{T}{2}\right), \quad (6.2)$$

où N est le nombre de cycles total de l'interaction, et le facteur $(-1)^n$ traduit le fait que toutes les demi-périodes le paquet faisant une recollision avec le noyau est le miroir du précédent. Il s'agit d'une intéressante manière de mettre en évidence que $a(t)$ est une fonction impaire et que par conséquent seules les harmoniques impaires seront émises. Plus N est grand plus les harmoniques apparaîtront sous la forme de pics étroits (des impulsions de Dirac). Nous avons utilisé un argument analogue pour expliquer la formation de la structure ATI des spectres d'électrons éjectés dans le chapitre 4.

En utilisant cet argument, nous pouvons, dès lors, faire le lien entre l'allure des spectres et les profils temporels des harmoniques de la coupure. Dans

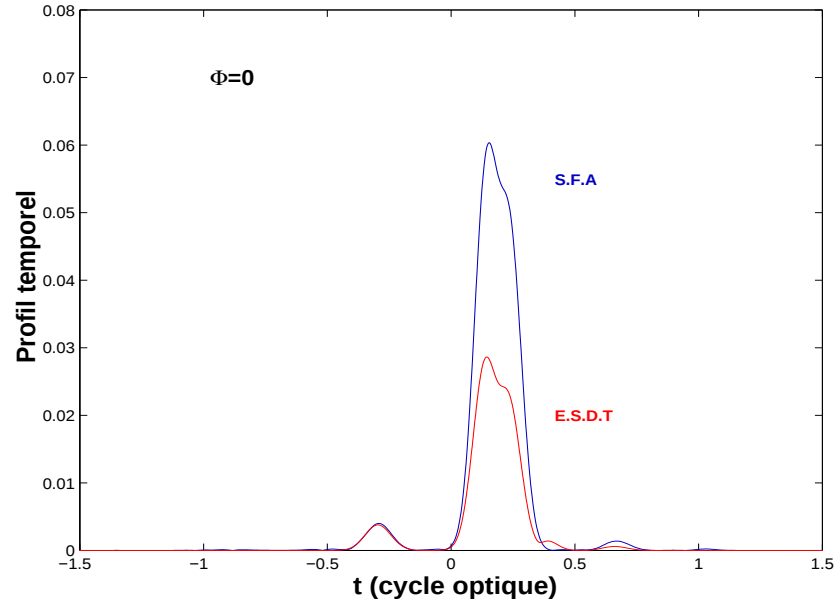
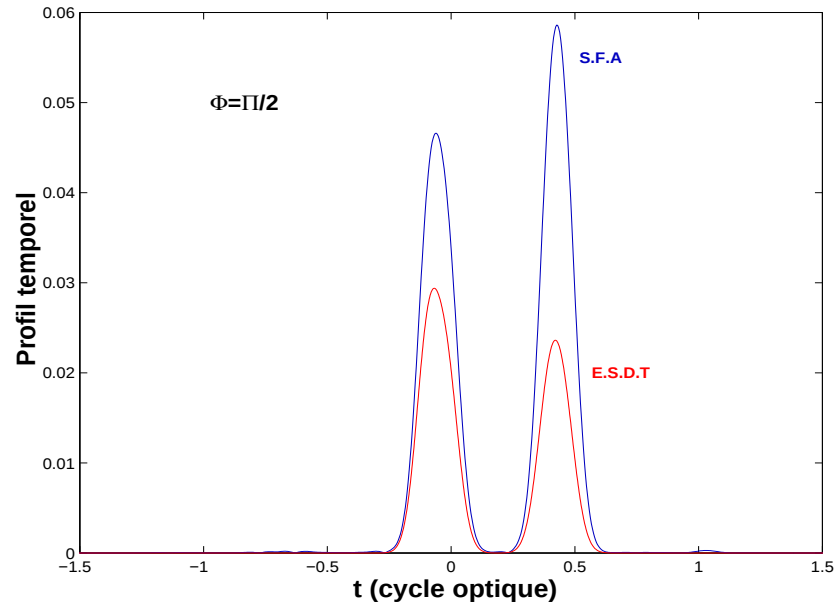
(a) $\Phi = 0$ (b) $\Phi = \pi/2$

FIG. 6.2: Analyse de Gabor de la 65^e harmonique pour les spectres obtenus sur la figure 6.1. La largeur du filtre gaussien utilisé vaut 9ω . Le filtre est représenté sur la figure 6.1(a) en pointillés. S.F.A. est l'abréviation usuelle pour désigner le modèle de Lewenstein.

le cas $\phi = \pi/2$, les harmoniques sont résolues, mais elles sont fort élargies dans la région de la coupure. Nous le comprenons maintenant, car cela correspond à la répétition minimale de l'évènement de recollision donnant lieu à des pics larges, en toute rigueur, leur largeur devraient être de l'ordre de 2ω , mais l'élargissement conduit à des interférences importantes avec les pics voisins donnant lieu à des minima très prononcés dans le spectre. En revanche, dans le cas $\phi = 0$, un seul pic est présent, nous sommes donc en présence de la réponse d'un seul cycle optique. La périodicité de la recollision n'existe plus et les harmoniques ne sont plus résolues dans la coupure.

Dans la mesure où le modèle de Lewenstein permet de reproduire toutes les structures présentes dans le spectre de GHOE l'interprétation du processus dans le cadre semi-classique est toujours envisageable, nous effectuons donc maintenant une analyse classique de la dynamique du processus pour comprendre l'effet de la phase sur le spectre.

6.2.3 Analyse dans le contexte semi-classique

Afin de comprendre le déplacement de la coupure en fonction de la phase ainsi que l'absence de résolution des harmoniques dans le cas d'une phase nulle du champ, nous utilisons le modèle semi-classique proposé par [Corkum, 93] et présenté dans le chapitre 2. Nous résolvons l'équation de Newton à une dimension :

$$\frac{d^2}{dt^2}z = -\mathbf{E}(t); \quad (6.3)$$

en tenant compte des conditions initiales :

$$\begin{cases} z(t_{ion}) = 0; \\ v_z(t_{ion}) = 0; \end{cases} \quad (6.4)$$

t_{ion} faisant référence à l'instant d'émission dans le continuum. En tenant compte de l'enveloppe temporelle du champ électrique, nous évaluons les trajectoires revenant à l'origine en les caractérisant alors par leur instant de retour t_r qui, dans le cas quantique correspondra à l'instant d'émission d'un groupe d'harmoniques, ainsi que par l'énergie cinétique associée $E_{cin}(t_r)$. Cette méthode nous permet de superposer à un graphe $E_{cin}(t_r) = f(t_r)$ le profil temporel d'un groupe d'harmoniques centré sur une fréquence ω_0 puisque celui-ci est constitué de pics dont la position sur l'axe des temps coïncide avec le temps d'émission des harmoniques. Nous pouvons dès lors vérifier l'adéquation du modèle semi-classique avec les résultats quantiques d'un point de vue temporel.

Sur les figures 6.3 et 6.4, de tels graphes sont représentés. Signalons que l'unité d'énergie cinétique choisie est le potentiel pondéromoteur $U_{p0} =$

1.1 *u.a.* c'est-à-dire celui associé à l'intensité de référence I_0 .

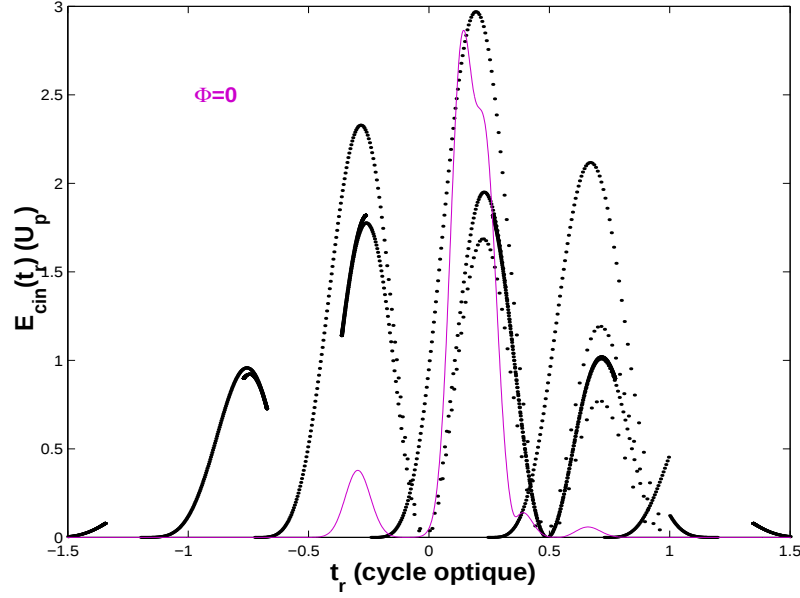


FIG. 6.3: Energie cinétique classique en fonction de l'instant de retour t_r en unité de $U_{p0} = 1.099 \text{ u.a.}$ Le profil temporel de la 65^e harmonique ($f.w.h.m. = 9\omega$) est superposé, $\phi = 0$.

L'accord entre le calcul classique et le calcul quantique est frappant. Dans le cas $\phi = \pi/2$, les deux pics d'émission du profil temporel coïncident quasiment parfaitement avec la position de l'énergie cinétique maximale atteinte. Cette énergie maximale vaut de plus $E_{cin} = 2.8 U_{p0}$, ce qui correspond à l'émission de la 63^e harmonique selon l'équation $I_p + E_{cin} = q_{max}\omega$. La position de la coupure pour cette phase est donc comprise par la dynamique classique de l'électron dans le champ laser. Dans le cas $\phi = 0$, le pic dominant est légèrement dédoublé, nous constatons que la position des deux maxima locaux coïncide également avec l'énergie cinétique correspondant à la 63^e harmonique. Or d'après le résultat classique l'énergie maximale pouvant être atteinte vaut $2.95 U_{p0} \leftrightarrow 65\omega$ (valeur en parfait accord avec la position de la coupure dans les spectres de la figure 6.1).

Cette petite différence peut être expliquée par la largeur du filtre gaussien que nous avons utilisée (9ω). En effet, la fenêtre en fréquence choisie (trait pointillé sur le spectre de la figure 6.1) nous permet de tenir compte de la contribution de l'interférence destructive nette intervenant entre la 61^e et la 63^e harmoniques. C'est un exemple du raisonnement que nous avons utilisé dans le chapitre 2. L'existence de temps de retour τ_1 et τ_2 très proches équivalents à deux pics d'émission d'amplitude comparable conduit à une

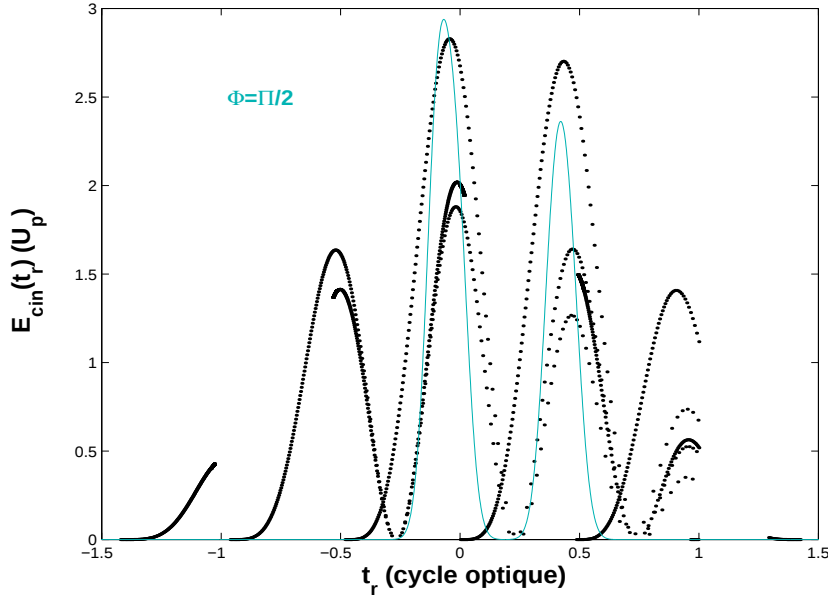


FIG. 6.4: Energie cinétique classique en fonction de l'instant de retour t_r en unité de $U_{p0} = 1.099 u.a.$ Le profil temporel de la 65^e harmonique ($f.w.h.m. = 9\omega$) est superposé, $\phi = \pi/2$.

réduction significative de l'amplitude de l'harmonique correspondante, joli exemple du principe de superposition cohérente de deux “chemins” quantiques! Notons que si l'on réduit la largeur de la fenêtre de 9 à 6ω , nous obtenons un seul pic d'émission dont la position coïncide avec l'énergie cinétique maximale et donc avec la 65^e harmonique.

6.2.4 Une seule impulsion dans le domaine attoseconde !

Il faut essentiellement retenir de l'étude de cette première interaction que, suivant la phase absolue du champ, en raison du nombre restreint de retours classiques de l'électron vers le noyau, on peut aboutir dans le meilleur des cas, à l'émission *d'une seule impulsion harmonique* pendant l'interaction. Or, nous devons mettre en évidence la largeur de l'impulsion émise. Si nous nous référons à la figure 6.2a, dans le cas $\phi = 0$, la *f.w.h.m.* de l'impulsion harmonique est d'environ $0.2T \approx 550as$! Le domaine subfemtoseconde est naturellement atteint. Nous entendons par là que la “simple” utilisation d'impulsions ultra-brèves résulte en l'émission de deux voire d'une seule impulsion de quelques centaines d'attosecondes. [Christov *et al*, 97] sont arrivés à la même conclusion que nous sans toutefois mettre en évidence le rôle de la phase absolue du champ dans la génération d'une impulsion attoseconde unique. Dans ce but, d'autres techniques utilisant des interactions plus longues ont été proposées par 3 groupes :

- La génération d’harmoniques est optimale dans le cas d’une polarisation linéaire, un degré d’ellipticité trop élevé réduit considérablement l’efficacité du processus. En particulier, les harmoniques de la coupure disparaissent très rapidement si ce degré augmente. C’est cette sensibilité que [Ivanov *et al*, 95] proposent d’utiliser pour aboutir à une seule impulsion attoseconde. En superposant deux champs perpendiculaires oscillant à des fréquences proches, l’ellipticité du champ résultant est rendue dépendante du temps (figure de Lissajoux), il est possible de faire en sorte que la polarisation ne soit linéaire que pendant un seul cycle. Ainsi, les électrons ne sont émis et ne se recombinent qu’une seule fois sur toute l’interaction.
- [Schafer *et al*, 97] proposent eux d’utiliser une méthode de recompression des harmoniques de la coupure pour des impulsions de l’ordre de 20 cycles optiques. Elles sont en effet essentiellement émises au sommet de l’impulsion ; leur phase $\approx U_p \tau_{max}$ subit alors une “distorsion” quadratique due à la variation temporelle, en bonne approximation, quadratique de l’intensité. Cet effet correspond à un “chirp”¹ linéaire de la fréquence. [Schafer *et al*, 97] proposent de supprimer cette phase quadratique par l’utilisation d’une paire de réseaux ce qui d’un point de vue temporel conduit à une compression des harmoniques jusqu’à 400 *as*.
- Last but not least, [Antoine *et al*, 96] basent leur démarche sur les effets de propagation macroscopique. Pour des harmoniques du plateau, la position relative du jet par rapport au foyer permet de sélectionner une des deux trajectoires du fait de leur dépendance différente au gradient d’intensité présent dans le faisceau laser. Cette sélection d’un des temps de retour à comme conséquence importante de bloquer la phase des harmoniques consécutives. De telle sorte que le filtrage d’un groupe d’harmoniques, par la suite, conduit à la compression de l’émission d’un train d’impulsions attosecondes (120 *as*) !

La démarche à laquelle nous faisons référence requiert “plus simplement” l’utilisation d’impulsions de quelques cycles optiques. Mais l’obtention d’une unique impulsion dans le domaine attoseconde requiert le contrôle expérimental de la phase. Il s’agit malheureusement d’un problème non résolu à l’heure actuelle, mais depuis l’époque à laquelle nos calculs ont été effectués, de considérables progrès ont été fait [Apolonski *et al*, 00], si elle n’est pas encore contrôlée, la phase absolue du laser est maintenant stabilisable. L’étude suivante est donc d’autant plus justifiée. En effet, en

¹dérive en français !

étudiant maintenant la réponse microscopique d'une interaction de seulement $\Delta t = 2T = 2.5fs$, nous souhaitons mettre en évidence les effets encore plus drastiques que la phase peut avoir sur le spectre des harmoniques et si possible dégager un comportement typique du spectre des harmoniques en fonction celle-ci.

6.3 Interaction de $2.5fs$: le revers de la médaille ?

6.3.1 Dépendance de la coupure vis-à-vis de la phase

Nous reprenons le même schéma d'analyse que précédemment en commençant par l'effet de la phase du champ sur la position de la coupure. L'effet est encore plus drastique que dans le cas précédent. Dans le cas $\phi = 0$ nous obtenons une coupure dans le spectre à la 57^e harmonique, tandis que pour $\phi = \pi/2$, nous n'observons plus au maximum que la 43^e (cf figure 6.5). En nous référant aux valeurs du tableau 6.1, nous pouvons conclure à un net effet non adiabatique sur la position de la coupure. La prédiction faite par la loi $I_p + 3.17U_{pr} = 51\omega$ n'est valable pour aucune des deux phases. Le cas $\phi = \pi/2$ correspondant à un redshift et $\phi = 0$ à un blueshift. Le modèle semi-classique ayant jusqu'ici permis de comprendre tous les effets non adiabatiques observés, nous reprenons des calculs classiques analogues à ceux effectués dans l'interaction de $4.3fs$. Le résultat est illustré sur les figures 6.6, 6.7 et 6.8 où apparaissent également les profils temporels de différentes harmoniques.

A nouveau, les calculs classiques nous permettent de justifier la position de la coupure dans chacun des cas. Pour $\phi = 0$, l'énergie cinétique maximale atteinte est de $2.5 U_{p0} \leftrightarrow 57\omega$ et de $2.1 U_{p0} \leftrightarrow 49\omega$ pour $\phi = \pi/2$. Dans ce cas donc la prédiction classique surestime la position de la coupure mais, dans la mesure où le premier pic d'énergie cinétique correspond à une ionisation au tout début de l'interaction, l'intensité de la 49^e harmonique est extrêmement faible comme le montre la figure 6.9b où nous représentons la valeur instantanée du champ électrique à l'instant d'ionisation en fonction de l'énergie cinétique à l'instant du retour. La valeur $2.1 U_{p0}$ correspond à une ionisation pour une amplitude de champ de $0.03 u.a.$ tandis que la deuxième plus grande valeur de l'énergie $1.8 U_{p0} \leftrightarrow 43\omega$ correspond à un champ électrique de $\approx 0.1 u.a.$ d'où la position réelle de la coupure ! Ce raisonnement est confirmé par l'analyse temps-fréquence de la 43^e harmonique sur la figure 6.8, le deuxième pic harmonique est beaucoup plus intense que le premier même si le rapport des intensités des deux pics ne coïncide pas avec le rapport des champs aux instants d'ionisation.

En conclusion à cette première analyse, il apparaît que la seule loi de la coupure qui ait encore un sens est finalement la suivante :

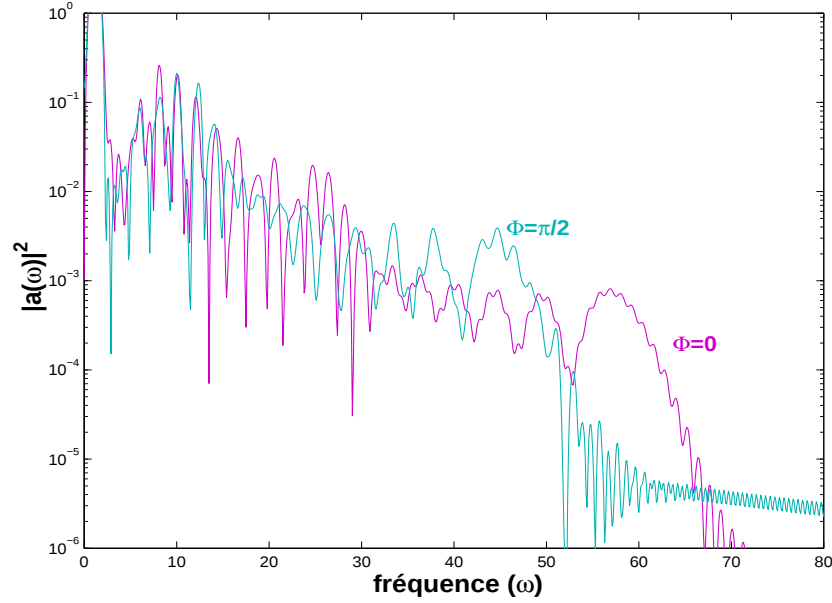


FIG. 6.5: Spectre des harmoniques émises lors d'une interaction de 2 cycles optiques ($f.w.h.m. = 2.5fs$). Résultat obtenu par la résolution de l'ESDT pour les phases $\phi = 0$ et $\phi = \pi/2$. $I_0 = 5 \times 10^{14} W/cm^2$.

$$q_{max}\omega = I_p + E_{cinmax}(t_r) \quad (6.5)$$

$E_{cinmax}(t_r)$ dépendant maintenant drastiquement de la phase.

Nous reviendrons un peu plus loin sur cette dépendance de la coupure en fonction de la phase, mais continuons d'abord notre analyse de l'allure des spectres.

6.3.2 Une “nouvelle pseudo-périodicité”

Le constat aussi frappant que le déplacement de la coupure sur la figure 6.5, est l'apparition de deux régimes distincts très nets dans le cas $\phi = 0$ et moins prononcés mais existant toutefois dans le cas $\phi = \pi/2$. Pour $\phi = 0$, un premier plateau est visible jusqu'à la 31^e harmonique constitué de pics dont l'espacement correspond bien à 2ω , au-delà de cette fréquence, un deuxième plateau apparaît plus d'un ordre de grandeur en dessous du premier, mais il possède surtout une nouvelle périodicité : l'espacement entre les différents “pics” visibles augmente avec la fréquence. En $\phi = \pi/2$, un comportement identique est visible mais sur un domaine spectral plus restreint.

De manière à comprendre, d'une part cette nouvelle périodicité, et d'autre part, l'existence des deux plateaux, nous nous en remettons, comme toujours au modèle classique, puisque ces nouvelles structures du spectre peuvent

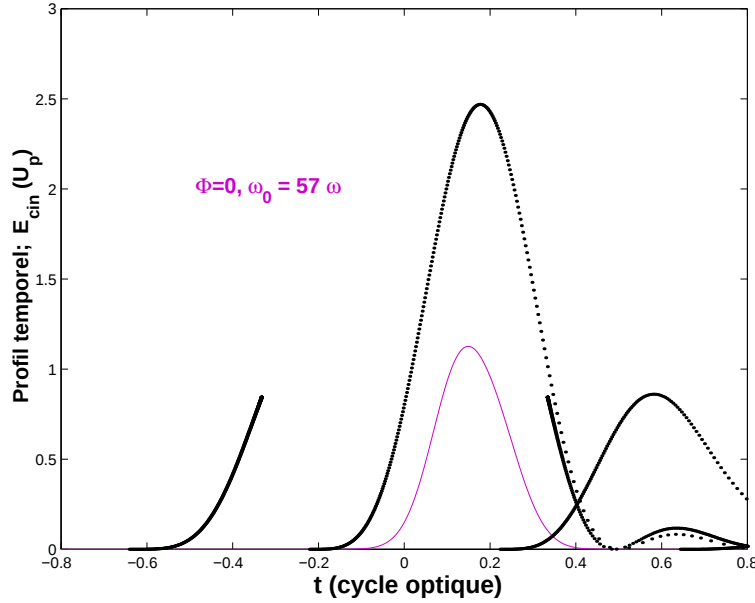


FIG. 6.6: $E_{cin}(t_r)$ classique superposée au profil temporel de la 57^e harmonique ($f.w.h.m. = 6\omega$) pour $\phi = 0$

être également obtenues dans le modèle de Lewenstein. Concentrons-nous sur la phase $\phi = 0$ en observant par exemple les figures 6.7a et 6.8a. Nous constatons la présence de deux pics d'énergie cinétique dont les maxima possèdent des valeurs sensiblement différentes. Le premier maximum est situé en $E_{cin1} = 2.5 U_{p0} \leftrightarrow 57\omega$ tandis que le deuxième correspond à $E_{cin2} = 0.9 U_p \leftrightarrow 27\omega$. Cette dernière fréquence correspond à la position de la première coupure. Il apparaît nettement, sur les profils classiques et les profils de Gabor de la 27^e harmonique, qu'elle correspond à la valeur limite au-dessus de laquelle la périodicité en $T/2$ n'existe plus. Le profil de Gabor de la 43^e harmonique présente deux pics dont l'espacement contrairement à la 27^e n'est plus égal à $T/2$ mais correspond en fait aux deux temps de retour τ_1 et τ_2 . On comprend, dès lors l'origine de la nouvelle "pseudo-périodicité" existant au-delà de la 31^e harmonique :

Il s'agit en fait de la résolution spectrale des deux trajectoires dominantes dans l'évaluation du dipôle.

Une preuve supplémentaire qu'elles sont, seules, essentielles à la construction du spectre des harmoniques. Ces spectres sont en effet obtenus par la résolution de l'ESDT. La concordance avec les résultats classiques est quasiment parfaite. La "pseudo-périodicité" est en fait régie par le principe d'interférence quantique. D'après la section 2.3.6, pour les harmoniques de fin de plateau, les deux temps de retour classiques dominant mais les trajectoires associées peuvent interférer destructivement, ce qui induit un minimum d'in-

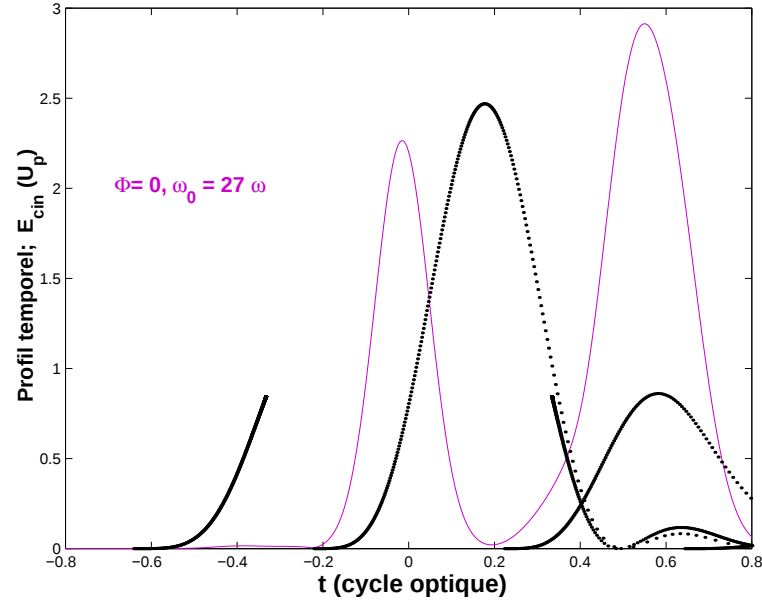
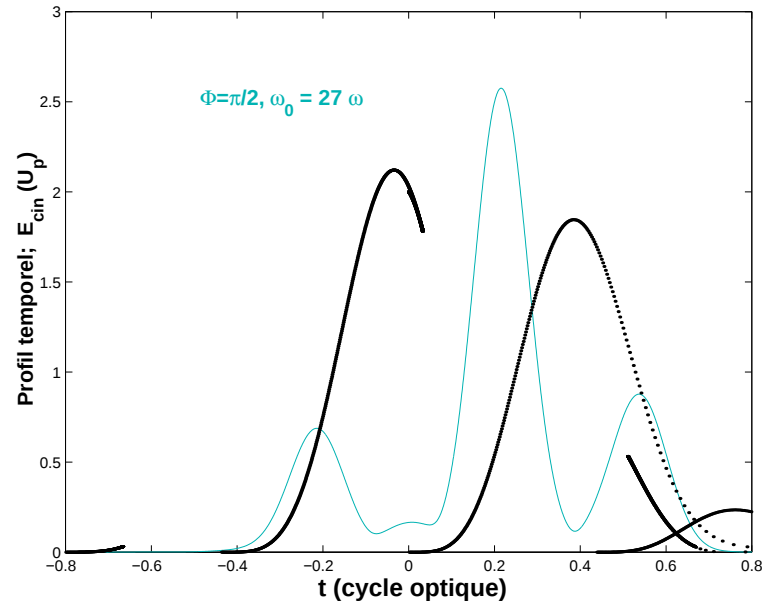
(a) $\phi = 0$ (b) $\phi = \pi/2$

FIG. 6.7: $E_{cin}(t_r)$ classique superposée au profil temporel de la 27^e harmonique ($f.w.h.m. = 6\omega$) pour les deux phases considérées.

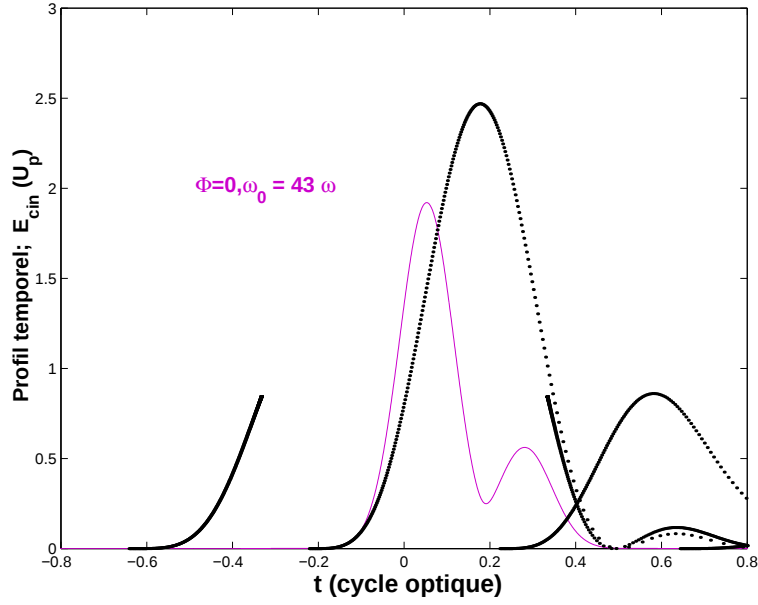
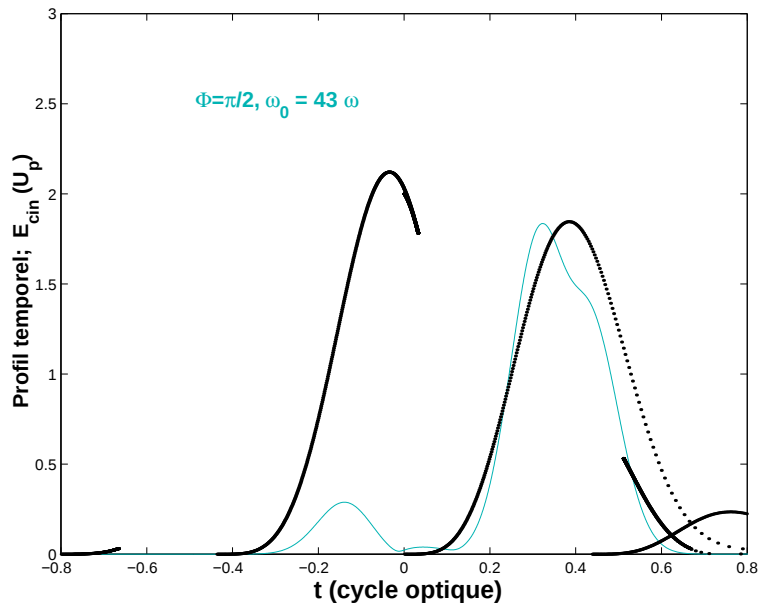
(a) $\phi = 0$ (b) $\phi = \pi/2$

FIG. 6.8: $E_{cin}(t_r)$ classique superposée au profil temporel de la 43^e harmonique ($f.w.h.m. = 6\omega$) pour les deux phases considérées.

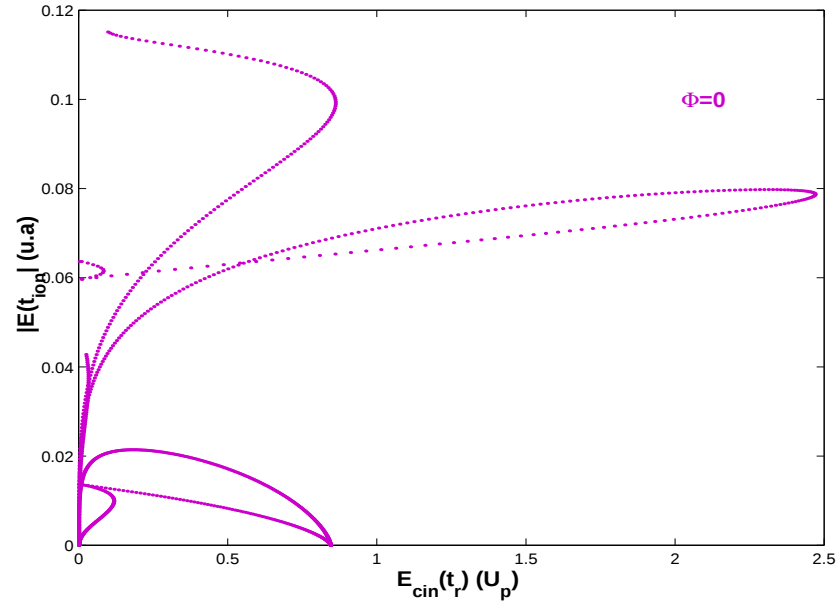
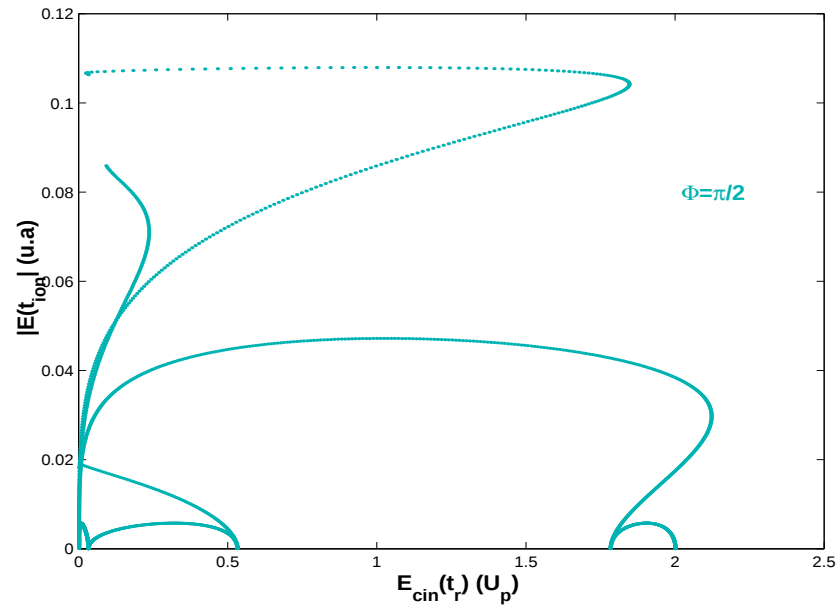
(a) $\Phi = 0$ (b) $\Phi = \pi/2$

FIG. 6.9: Amplitude instantanée du champ électrique en valeur absolue au moment de l'ionisation en fonction de l'énergie cinétique maximale atteinte par l'électron à l'instant du retour.

tensité pour l'harmonique correspondante. *Adiabatiquement*, la position des minima dans le spectre est donnée en très bonne approximation par :

$$U_p (\tau_2 - \tau_1) = 2 n \pi. \quad (6.6)$$

Nous pouvons nous appuyer sur cette relation pour comprendre la “pseudo-périodicité” sans être en mesure de l'appliquer pour vérifier quantitativement la position des minima car, pour des impulsions ultra-brèves, U_p n'est pas constant². Les figures représentant l'énergie cinétique en fonction des temps d'émission, comme par exemple la figure 6.6, sont indépendantes de U_p . L'allure du second plateau dans les spectres, c'est-à-dire son extension spectrale et la “pseudo-périodicité”, doit, elle, dépendre de U_p et par conséquent de l'intensité. Nous considérons 3 autres intensités pics, $I = 2, 3$ et $4 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$ et représentons les spectres de puissance obtenus par résolution de l'ESDT. Le résultat est illustré sur la figure 6.10. En se basant, sur l'intensité maximale, il est possible de vérifier, en bonne approximation, que la largeur du second plateau ainsi que le nombre de minima évoluent comme l'intensité pic. Les temps de retour τ_1 et τ_2 étant fixés par la dynamique classique (indépendamment de l'intensité), grâce à l'équation (6.6), on peut comprendre que lorsque l'intensité décroît, le nombre de minima doit décroître. En effet, pour n fixé, l'écart $\Delta\tau = \tau_2 - \tau_1$ doit augmenter plus vite pour assurer l'égalité (6.6). La fréquence de transition pour laquelle la structure harmonique est à nouveau visible est plus donc rapidement atteinte.

En conclusion, la “pseudo-périodicité” est imposée par le principe d'interférence quantique.

6.3.3 Interprétation de l'intensité relative des 2 plateaux

Pour terminer, nous pouvons également comprendre la différence d'intensité des deux “plateaux” existants dans le cas $\Phi = 0$, en nous référant à la valeur du champ électrique au moment de l'ionisation dans le cas classique. Nous reproduisons la valeur absolue de ce champ en fonction de l'énergie cinétique au moment du retour sur la figure 6.9. Nous constatons dans le cas $\phi = 0$ que toutes les énergies cinétiques comprises entre $0.9 U_{p0}$ et $2.5 U_{p0}$ (deuxième plateau) sont émises pour un champ électrique de 0.08 u.a. tandis que celles inférieures à 0.9 u.a. peuvent être émises pour des amplitudes instantanées de champ de l'ordre de 0.11 u.a. .

Cette différence à elle seule, ne permet pas de justifier l'écart entre les deux plateaux.

²la valeur que nous utilisons pour représenter nos graphiques étant liée à l'intensité maximale.

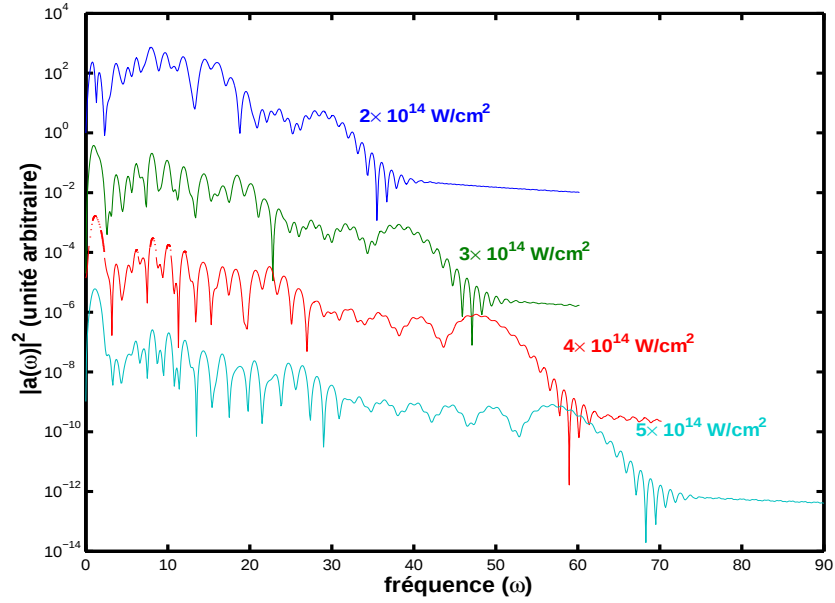


FIG. 6.10: Evolution du spectre des harmoniques pour une interaction de 2 cycles optiques (2.5 fs) en fonction de l'intensité pic du champ laser. Pour assurer la lisibilité de la figure, chaque spectre est décalé d'une quantité arbitraire.

En comparant notre analyse de la dynamique de l'ionisation du chapitre 4 avec les présents résultats, que nous sommes en mesure de mieux comprendre la différence d'intensité (1 ordre de grandeur) entre les deux plateaux.

Nous avons utilisé la même intensité pic $I_0 = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ dans nos deux analyses. Or, cette valeur ainsi que nous l'avons montré dans le chapitre 4 correspond à la valeur critique de l'intensité, pour laquelle le régime d'ionisation au-dessus de la barrière est amorcé. Nous avons mis en évidence que la présence du potentiel Coulombien favorise les contributions indirectes dans le mécanisme d'ionisation (celles qui participent au processus de GHOE). Mais surtout, nous avons montré que, lorsque la valeur critique de l'intensité est atteinte au cours de l'interaction, les paquets indirects adoptent un mouvement classique conformément au modèle du champ fort, tandis que lorsque l'intensité est inférieure à cette valeur, nous avons pu constater que la densité de probabilité éjectée hors de la zone d'interaction était significativement réduite.

Dans le cas présent, il est donc très intéressant d'observer que les harmoniques les plus intenses, sont celles qui sont émises lorsque l'amplitude du champ devient égale à la valeur critique. Les paquets d'onde correspondant à ces harmoniques seraient émis par un mécanisme d'ionisation au-dessus de la barrière et ce comme nous l'avons vu grâce au potentiel Coulombien qui favorise les contributions des paquets indirects.

Malheureusement, la figure 6.10 invalide ce raisonnement puisque nous pouvons constater que pour des intensités inférieures à l'intensité critique, cette différence importante dans l'intensité relative des deux plateaux persiste, elle est même plus grande aux plus faibles intensités ($2 \times 10^{14} W/cm^2$). Finalement, cette transition entre les deux plateaux est une question restée en suspens et les calculs que nous avons réalisés ne nous permettent pas d'y apporter une explication irréfutable.

Une seule conclusion peut être validée concernant la nature de la transition entre les deux plateaux. L'effet non-adiabatique de la phase absolue du champ sur la dynamique du paquet induit une asymétrie dans le profil de l'énergie cinétique accessible à l'électron d'une demi-période à l'autre résultant en l'apparition de 2 plateaux distincts. Il est toutefois intéressant de constater que l'accès au régime *critique* n'a pas réduit significativement la production d'harmoniques. Ce qui concorde assez bien avec notre analyse de la dynamique de l'ionisation puisque nous avons montré que la voie indirecte d'ionisation est favorisée par le potentiel Coulombien, et ce, même au-delà du régime critique.

6.3.4 Une méthode de diagnostic de la phase

Ces deux études nous ont donc permis de mettre en évidence l'influence importante de la phase du champ lorsque l'on considère des interactions aussi courtes. Comme nous l'avons déjà souligné, la phase n'est malheureusement pas contrôlée expérimentalement. Mais [Apolonski *et al*, 00] ont très récemment proposé une méthode qui permet de la stabiliser d'une impulsion à l'autre ; ce qui signifie que son influence ne risque pas d'être moyennée, à l'échelle microscopique du moins, par le taux de répétition du laser. Ce der-

nier permet ainsi d'obtenir un nombre de photons suffisamment élevé ³ qui peut justifier une méthode de diagnostic de phase fondée sur les intensités relatives d'harmoniques localisées dans différents domaines spectraux. Il est évidemment légitime de se demander pourquoi utiliser les harmoniques pour caractériser la phase lorsque l'ionisation est un processus beaucoup plus efficace aux intensités que nous considérons. Nous avons vérifié que, pour une même durée d'interaction, le pourcentage d'ionisation était indépendant de la phase considérée. Toutefois, nous avons montré que le spectre des électrons présentait une nette sensibilité à l'amplitude instantanée du champ. Notre étude des effets de la phase absolue du champ sur le spectre des harmoniques ayant précédé celle de la dynamique de l'ionisation, nous devons maintenant invoquer l'argument chronologique pour justifier la méthode de diagnostic que nous exposons par la suite.

Il est cependant intéressant, au travers de cette méthode, de rendre compte de la manière dont la phase va globalement influencer le spectre des harmoniques, pour ce faire, nous devons rappeler que la seule loi de la coupure valable pour ces interactions ultra-brèves est désormais :

$$q_{max}\omega = I_p + E_{cinmax}(t_r, \phi) \quad (6.7)$$

Nous avons, pour les deux exemples discutés ci-dessus, évalué classiquement l'énergie cinétique maximale atteinte pour une phase donnée. L'évolution en fonction de cette phase est représentée sur la figure 6.11a. L'énergie cinétique est donnée en fonction du potentiel pondéromoteur U_{pr} correspondant à la vraie valeur de l'intensité pic atteinte au cours de chaque interaction. L'échelle des énergies n'est donc pas la même pour les deux interactions mais nous pouvons ainsi nous rendre compte de leur différente sensibilité vis-à-vis de la phase en terme d'énergie cinétique maximale atteinte (c'est-à-dire en terme de décalage de la coupure).

Nous pouvons déduire de ces courbes que si, en fonction de la durée d'impulsion, la coupure n'est pas localisée au même endroit pour une même phase, son évolution en fonction de celle-ci est similaire dans les deux cas. Le minimum est atteint pour la même valeur de la phase qui n'est pas, comme on pourrait le croire, $\phi = \pi/2$ mais une valeur supérieure c'est-à-dire $\phi_{min} = 0.58\pi$.

Afin d'établir un lien avec le spectre de puissance obtenu, nous calculons, à l'aide du modèle de Lewenstein, l'intensité de quelques harmoniques, toutes

³ typiquement 10^{10} photons/coup

localisées dans des régions distinctes du spectre, en fonction de la phase (interaction de $2.5fs$) :

1. Dans la première partie du spectre, en dessous de la fréquence de transition observée dans le cas $\phi = 0$, nous utilisons l'intensité moyenne de deux harmoniques, la 25^e et la 27^e , de manière à éviter de trop fortes oscillations dues à d'éventuels décalages en fréquence des pics harmoniques.
2. Une harmonique (47^e) située au-delà de la fréquence de transition est sélectionnée.
3. Enfin, nous étudions également le comportement d'une harmonique systématiquement localisée dans la coupure (ou au-delà) : la 59^e . Cette harmonique se trouve au début de la coupure si l'énergie cinétique de l'électron vaut $3.7 U_{pr}$ ($2.5fs$).

Le résultat est présenté sur la figure 6.11b. L'allure obtenue s'avère être stable en fonction des harmoniques étudiées selon qu'elles se trouvent dans la coupure ou dans le plateau.

Nous pouvons comprendre les allures obtenues en nous référant à la figure 6.11a. l'intensité du dipôle pour la 59^e harmonique suit, comme l'on pouvait s'y attendre, l'évolution de la l'énergie cinétique maximale. Son intensité est négligeable dans l'intervalle $[0.4\pi : 0.6\pi]$ qui correspond à des énergies cinétiques atteintes inférieures à $3.7 U_{pr}$ ($2.5fs$).

Cette figure fait apparaître trois régimes bien distincts en fonction de la phase :

1. sur $[0 : 0.3\pi]$, les harmoniques les plus élevées sont visibles, mais le contraste d'intensité avec les harmoniques d'ordre inférieur à la fréquence de transition $\approx 27\omega$ est très marqué (de 1 à 2 ordres de grandeur!). La distribution de l'énergie est inhomogène dans le plateau. C'est dans cette zone de phase que l'énergie cinétique atteint sa valeur la plus élevée.
2. Sur $[0.3\pi : 0.7\pi]$, la coupure se décale fortement vers le rouge : l'énergie cinétique minimum vaut $3.1 U_{pr} \leftrightarrow 49\omega$, La distribution d'énergie peut être plus uniforme que dans le cas précédent. L'intensité de la 47^e harmonique croît donc fortement pour rejoindre la $25 - 27\omega$.
3. Entre 0.7π et π , nous assistons à la reformation des deux plateaux due au fait que l'énergie cinétique accessible tend à nouveau vers sa valeur maximale. Il y a donc une gamme de phases très restreinte pour laquelle les intensités des harmoniques émises sont comparables.

Ces observations microscopiques nous amènent à suggérer l'utilisation des harmoniques pour caractériser la phase. En mesurant

et en comparant l'intensité absolue d'harmoniques situées dans des régions spectrales différentes, il est donc possible, en se référant à de telles simulations, d'obtenir une détermination de la phase.

6.4 Considérations et calculs macroscopiques

6.4.1 Préliminaires macroscopiques

Savoir si oui ou non, ce diagnostic est finalement encore envisageable à l'échelle macroscopique est un tout autre problème. L'approximation de l'enveloppe lentement variable effectuée dans le code de propagation macroscopique 3D dont nous disposons [L'Huillier *et al*, 92] n'est plus valide. Nous nous sommes contentés pour l'interaction de $2.8fs$ d'utiliser un raisonnement qualitatif, basé sur le principe d'accord de phase :

Si un jet atomique de faible largeur est placé suffisamment loin du faisceau laser (≈ 3 fois la valeur du paramètre confocal du faisceau), la phase ne varie plus suivant l'axe de propagation de telle sorte que seul le gradient d'intensité transverse peut affecter l'allure des spectres. Nous avons donc moyenné la réponse atomique sur la distribution radiale en phase et en intensité du champ électrique, selon la formule suivante :

$$|E_q|^2 = \int_0^{r_{max}} dr r |d_q(I(r), \phi(r))|^2. \quad (6.8)$$

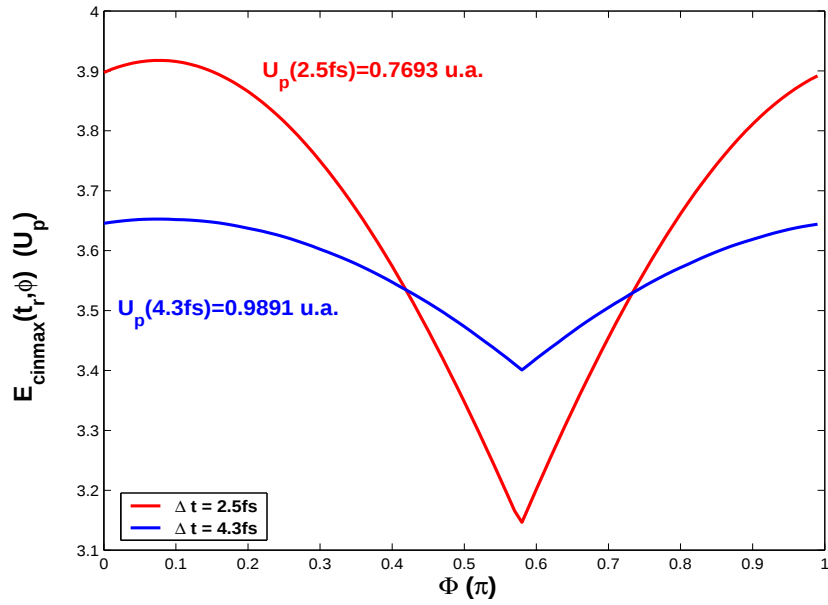
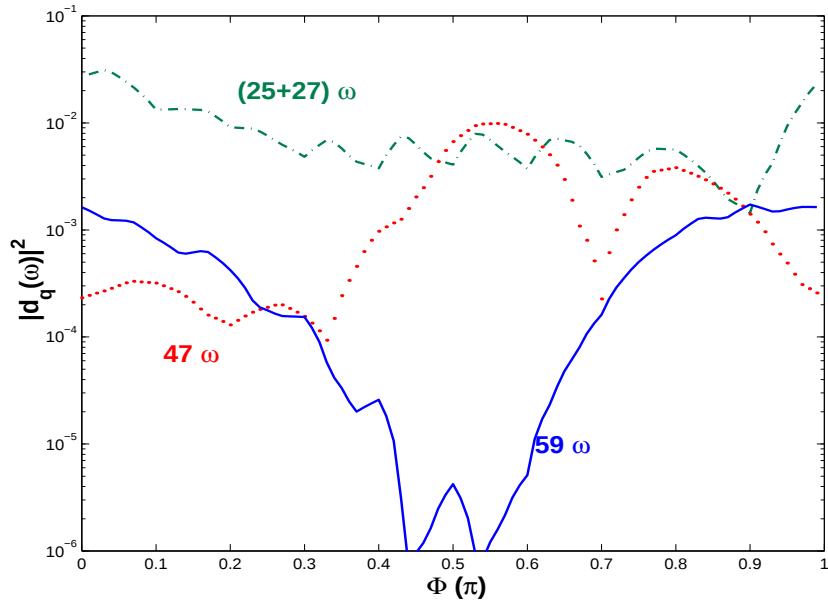
Ce moyennage n'a effectivement pas une incidence flagrante sur la position de la coupure, et l'apparition des deux plateaux dans le cas $\phi = 0$, comme le montre la figure 6.12. Bien évidemment, cette technique très rudimentaire ne nous permet pas d'être catégorique sur le devenir de notre diagnostic de phase une fois un calcul macroscopique correct effectué⁴.

6.4.2 Survie macroscopique de l'effet de phase

En revanche, si l'effet de phase est toujours visible pour des interactions plus longues autorisant un traitement macroscopique dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable, il peut être intéressant d'effectuer un tel calcul. Nous décrivons la méthode dans la quatrième et dernière partie de ce travail.

C'est ce que nous effectuons, pour une interaction de 10 cycles optiques, soit une impulsion de $f.w.h.m = 10fs$. Une propagation à 3 dimensions, incluant de manière complète les effets d'accord de phase, est réalisée suivant la démarche décrite dans le chapitre 7. Grâce au modèle de Lewenstein, la

⁴D'autant plus qu'à cette distance du foyer, l'approximation paraxiale effectuée dans la résolution numérique exacte n'est plus valable !

(a) Energie cinétique maximale (U_p)

(b) Intensité des harmoniques

FIG. 6.11: (a) Energie cinétique classique maximale atteinte au cours d'une interaction de $2.5fs$ et $4.3fs$ en fonction de la phase absolue du champ. Les potentiels pondéromoteurs correspondants sont indiqués sur la figure. (b) Evolution de l'intensité de trois harmoniques en fonction de la phase du champ. En trait pointillé vert : $(25 + 27)\omega$, en points rouges : 47ω , et en trait plein bleu : 59ω .

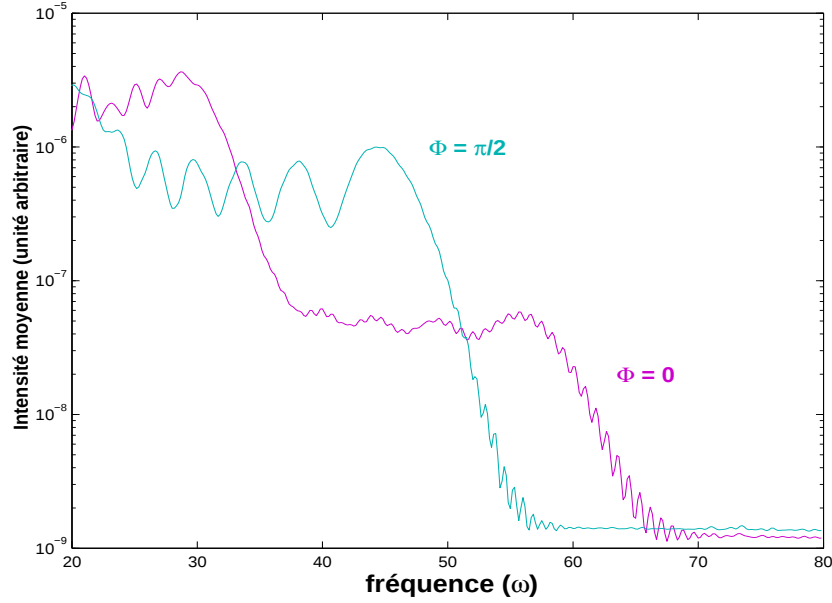


FIG. 6.12: Evaluation de $|E_q|^2$ selon l'équation (6.8) pour l'interaction de $2.5fs$ pour les deux phases étudiées, $\phi = 0$ et $\phi = \pi/2$.

polarisation atomique pour l'Argon ($I_p = 15.78eV$) est évaluée sur une grille dans les coordonnées cylindriques, un point de cette grille étant associé à une intensité et à une phase du faisceau gaussien. Nous interpolons donc la polarisation atomique sur cette grille et l'introduisons comme terme source des équations de Maxwell dans le code de propagation. Nous propageons toutes les composantes de Fourier puisque le dipôle est évalué dans le cadre non adiabatique. Dans la limite du champ lointain, le nombre de photons⁵ est évalué à *la sortie du milieu* pour chaque composante de Fourier propagée :

$$N_q = \frac{\varepsilon_0 \pi c}{\hbar q \omega} \int dr r dt |E_q(r, t)|^2, \quad (6.9)$$

où $E_q(r, t)$ est le profil de la composante de Fourier.

L'intensité du laser au niveau du jet est de $I = 3 \times 10^{14} W/cm^2$. Le calcul que nous avons effectué correspond à un jet positionné au foyer du faisceau gaussien. Nous propageons toutes les composantes de Fourier puisque le dipôle est évalué dans le cadre non adiabatique. Le résultat obtenu est représenté pour $\phi = 0$ et $\phi = \pi/2$ sur la figure 6.13. Le spectre quasi-blanc obtenu dans la région de la coupure pour une phase temporelle nulle qui contraste avec la résolution de pics harmoniques larges dans le cas $\phi = \pi/2$ est la première signature *macroscopique* d'un effet non-adiabatique dans le processus de génération d'harmoniques.

⁵dans le système d'unités M.K.S.

Un calcul classique de l'énergie cinétique acquise par les électrons au moment de la recombinaison pour les deux phases étudiées nous permet de comprendre qualitativement l'allure du spectre. Dans le cas $\phi = \pi/2$, l'énergie cinétique maximale est atteinte deux fois pendant l'interaction (symétriquement par rapport au centre de l'interaction) et une seule fois dans le cas $\phi = 0$, de manière identique à l'interaction de $4.3 fs$ que nous avons étudiée. La propagation macroscopique n'a donc pas modifié sensiblement l'allure des spectres. L'évaluation du dipôle à l'aide d'une méthode non-adiabatique, c'est-à-dire essentiellement incluant la phase absolue du champ devient indispensable dans le contexte des impulsions ultra-brèves.

En conclusion, les effets de phase absolue, d'après ces premières considérations macroscopiques - toutes deux sujettes à caution dans la mesure où elles sont fondées sur l'approximation des enveloppes spatiale et temporelle lentement variables - semblent survivre aux effets de propagation macroscopique. Des calculs récents dans un cadre non adiabatique pour les impulsions ultra-brèves ont été effectués [Tempea *et al*, 99, Priori *et al*, 00]. Le premier groupe s'est intéressé à des longueurs d'interactions L de l'ordre du μm ($L \ll b$, où b est le paramètre confocal) ; ce qui justifie de négliger la variation de la phase géométrique du faisceau et de se limiter à la résolution des équations de propagation à une dimension. L'étude d'une interaction de $5 fs$, leur a permis de mettre en évidence que le spectre des harmoniques, et particulièrement la fin du plateau et la coupure, restent effectivement sensibles à la phase absolue du champ après propagation à la fois en terme de résolution des harmoniques de la coupure et d'intensité relative des harmoniques, en bon accord avec nos résultats microscopiques.

En revanche, [Priori *et al*, 00], en considérant un milieu gazeux d'une longueur de l'ordre du mm , ont observé une plus faible influence de la phase absolue. En simulant le problème à 3 dimensions, *pour les harmoniques du plateau*, lors d'une interaction de $5 fs$, les spectres obtenus pour les deux phases $\Phi = 0$ et $\pi/2$ révèlent pour ces harmoniques une sensibilité en terme d'intensité des pics dont la séparation en 2ω est toujours visible. Leurs résultats macroscopiques montrent tout de même une fluctuation de la résolution des pics. Pour ces durées d'interaction, on ne s'attend effectivement pas, *pour les harmoniques du plateau*, à une grande influence de la phase, seule l'allure de la coupure est affectée par cette dernière. Les conditions expérimentales se révèlent donc être un facteur important pour permettre l'observation de l'influence de la phase sur le spectre des harmoniques.

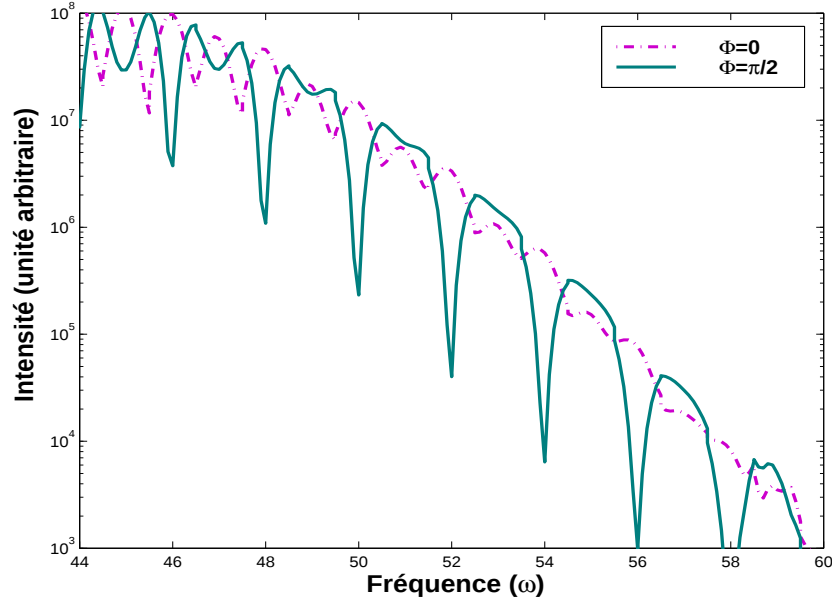


FIG. 6.13: Intensité des harmoniques émises après propagation dans un jet d'Argon de 8mm de longueur positionné au foyer d'un faisceau gaussien de paramètre confocal $b=5\text{mm}$.

6.5 Conclusions

Les études que nous avons effectuées concernant la génération d'harmoniques d'ordre élevé nous ont permis de nous familiariser avec le vaste domaine de l'interaction laser-matière qui, comme nous espérons l'avoir mis en évidence, ne peut pas se limiter à la seule étude de la réponse d'un atome isolé. Le processus de GHOE en est un des meilleurs exemples. Ce rayonnement *naturellement* cohérent et accordable jusqu'à plusieurs centaines de fois la (basse) fréquence incidente doit également se propager dans un milieu dispersif. Les théories quantiques et électromagnétiques, réunies dans la description du processus de GHOE, ont fait de ce sujet un thème de recherche théorique particulièrement vaste et... populaire ! Lors de la décennie qui vient de s'écouler, des progrès considérables ont été réalisés, aussi bien du point de vue théorique qu'expérimental, dans le but d'optimiser l'efficacité de conversion et de mettre au point des lasers U.V.X. disponibles à l'échelle du laboratoire. L'application des harmoniques dans le domaine de la spectroscopie atomique et moléculaire est déjà une réalité.

L'accès au domaine subfemtoseconde est désormais autorisé grâce à la GHOE induite par l'interaction d'un atome avec une impulsion laser de quelques femtosecondes. La production de rayons x d'une durée de quelques femtosecondes ou quelques centaines d'attosecondes est une possibilité unique

d'avoir accès à la dynamique des processus de relaxation des électrons des couches internes, mais aussi aux phénomènes de transitions de phase dans les solides ou à l'étude de la formation et séparation de composés chimiques. Et les possibilités ne s'arrêtent pas là !

L'étude que nous avons réalisée sur l'interaction laser-atome d'une durée de quelques femtosecondes a révélé une grande sensibilité du spectre des harmoniques émises vis-à-vis de la phase absolue du champ incident ; sensibilité qui, d'après les premières études réalisées à l'échelle macroscopique, semble survivre à la propagation et offrirait par conséquent un moyen de caractériser cette phase. Ces résultats ont pu être obtenus grâce aux informations que fournissent d'une part, la résolution directe de l'ESDT et d'autre part, la modélisation semi-classique en 3 étapes du processus dans le contexte du champ fort basse-fréquence : "ionisation", propagation et recombinaison radiative. Cette schématisation est validée quantiquement par l'adéquation du modèle de Lewenstein avec les résultats numériques exacts.

Cette adéquation est quantitative en ce qui concerne la phase d'émission des harmoniques d'ordre élevé. Du point de vue de l'intensité des harmoniques émises, le modèle pose toujours un problème du point de vue quantitatif. [Scrinzi *et al*, 00] ont montré que le rôle du potentiel Coulombien consistait essentiellement, pour les harmoniques de la fin du plateau, à amplifier le signal harmonique sans modifier la phase d'émission ni le comportement spectral des harmoniques, très bien reproduit par le modèle du champ fort. Ce qui signifie que c'est essentiellement la densité d'états injectés dans la continuum qui est modifiée sous l'influence du potentiel Coulombien. Notre méthode de résolution de l'ESDT dans l'espace des moments ne nous a pas permis de visualiser cet effet. Toutefois, nous avons constaté que le potentiel Coulombien favorise la production de paquets indirects qui peuvent partiellement contribuer au processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé. Cette observation est valable même lorsque le champ dépasse la valeur critique. Ce qui signifie que tant que le fondamental est suffisamment peuplé, la GHOE peut être favorisée par l'utilisation d'impulsions dont l'intensité excède cette valeur. D'où finalement, l'importance des impulsions ultra-brèves qui limitent significativement le dépeuplement du fondamental.

En conclusion, notre analyse de la dynamique de l'ionisation dans l'espace des moments nous a permis également de manière qualitative de lever une partie du voile concernant l'effet jusque-là négligé du potentiel Coulombien dans le processus de GHOE. Rappelons, cependant, que des corrections Coulombiennes au modèle du champ fort ont été effectuées par [Ivanov *et al*, 96]. Ces corrections avaient pour but de mieux décrire la production des harmoniques localisées proche du seuil d'ionisation (retour d'électron d'énergie cinétique faible). Elles consistaient en une correction Coulombienne

du terme de propagation. Ce qui est cohérent avec notre analyse de la dynamique de l'ionisation qui a clairement montré que la seule transition dipolaire $1s$ -continuum ne permet pas de correctement décrire le mécanisme d'ionisation, première étape du processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé.

L'étude de la GHOE ne s'arrête pas, comme nous l'avons signalé dans l'introduction à l'étude de la réponse de l'atome unique. Il est essentiel de considérer les effets induits par la propagation des harmoniques dans le milieu gazeux pour comprendre l'allure des spectres mesurés expérimentalement. Nous avons eu l'occasion, durant notre travail de thèse d'effectuer de tels calculs. Nous avons présenté celui dont le but était de montrer la persistance de l'effet de phase après propagation des harmoniques dans le milieu. Nous présentons dans la dernière partie de ce travail, un autre exemple de calcul macroscopique réalisé pour comprendre la présence de résonances dans le spectre des harmoniques émises dans l'Argon et mesurées expérimentalement au F.O.M.

Quatrième partie

Etude macroscopique de la
GHOE

Chapitre 7

Optimisation du processus de GHOE

7.1 Propagation des champs harmoniques dans le milieu gazeux

L'étude des effets de propagation des harmoniques dans le milieu gazeux n'ont fait l'objet que d'une étude marginale dans notre travail de thèse, toutefois nous nous devons de rappeler les étapes principales de la résolution des équations de propagation en précisant le contexte dans lequel les diverses approximations effectuées sont valables. Nous avons utilisé le code de propagation macroscopique développé par [L'Huillier *et al*, 92]. Soulignons que cette étude est effectuée dans le cadre adiabatique c'est-à-dire en considérant une enveloppe temporelle de champ lentement variable. Nous stipulerons les modifications à apporter à la démarche de manière à inclure certaines corrections non-adiabatiques.

7.1.1 Approximation des enveloppes lentement variables

Le problème de propagation macroscopique consiste à résoudre l'équation générale de propagation d'un champ électromagnétique dans un milieu diélectrique globalement neutre où se développe une polarisation électronique $\mathcal{P}(\mathbf{r}, t)$. Dans l'approximation paraxiale¹ et en polarisation linéaire, cette équation prend la forme scalaire suivante :

$$\Delta \mathcal{E}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathcal{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathcal{P}(\mathbf{r}, t) \quad (7.1)$$

¹le champ laser est supposé suffisamment peu focalisé : le champ électrique reste constamment perpendiculaire à la direction de propagation

Pour décrire le processus de GHOE et dans le cadre adiabatique, il est naturel de résoudre cette équation dans l'espace de Fourier en utilisant une décomposition harmonique du champ électrique et de la polarisation :

$$\mathcal{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \sum_q (\mathcal{E}_q(\mathbf{r}) e^{iq\omega t} + c.c.), \quad (7.2)$$

$$\mathcal{P}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \sum_q (\mathcal{P}_q(\mathbf{r}) e^{iq\omega t} + c.c.). \quad (7.3)$$

Il s'agit simplement de l'approximation de l'enveloppe temporelle lentement variable. Si l'on travaille avec des interactions brèves, *toutes les composantes de Fourier doivent être propagées (q n'est plus seulement entier et la somme devient une intégrale)*. Dans la décomposition de Fourier, l'équation de propagation devient alors :

$$\Delta \mathcal{E}_q(\mathbf{r}) + \frac{q^2 \omega^2}{c^2} \mathcal{E}_q(\mathbf{r}) = -\frac{q^2 \omega^2}{\varepsilon_0 c^2} \mathcal{P}_q(\mathbf{r}). \quad (7.4)$$

La polarisation peut se décomposer en une contribution non linéaire et une contribution linéaire en fonction du champ harmonique $\chi_q \mathcal{E}_q$, où χ_q est la susceptibilité du milieu liée à l'indice de réfraction par la relation :

$$n_q^2 = 1 + \chi_q = 1 + \mathcal{N}_a \alpha_a(q\omega) + \mathcal{N}_i \alpha_i(q\omega) + \mathcal{N}_e \alpha_e(q\omega).$$

$\alpha(q\omega)$ désigne les polarisabilités respectivement atomique, ionique et électronique et $\mathcal{N}$ les densités associées. Pour les espèces atomiques et ioniques, α est une grandeur a priori complexe, sa partie imaginaire traduisant l'absorption du rayonnement fondamental ou harmonique par le milieu. [L'Huillier *et al*, 92c] ont montré que ces 2 polarisabilités peuvent être raisonnablement négligées dans la mesure où le fondamental est hors résonance et les harmoniques considérées correspondent à des fréquences bien au-delà du seuil d'ionisation.

Les effets dispersifs induits par le milieu sont essentiellement dus aux électrons libres. En considérant des milieux dilués, la polarisabilité électronique, dans le modèle des électrons élastiquement liés, nous permet d'écrire l'indice de réfraction sous la forme :

$$n_q(\mathbf{r})^2 = 1 - \frac{\omega_p^2}{q^2 \omega^2}.$$

ω_p est la fréquence plasma :

$$\omega_p = \frac{e^2}{m\varepsilon_0} \mathcal{N}_e(\mathbf{r}).$$

D'après cette expression de l'indice de réfraction, nous pouvons expliquer le principal effet de l'apparition d'électrons. Cette dernière est inhomogène au

sein du faisceau. L'intensité étant plus élevée sur l'axe de propagation, la densité électronique y est plus élevée et donc l'indice de réfraction plus faible, si bien que le milieu partiellement ionisé agit comme une lentille divergente principalement sur le fondamental (indice de réfraction le plus faible). On dit alors qu'il y a défocalisation du fondamental.

La deuxième contribution à la polarisation $\mathcal{P}_q$ correspond à la réponse non linéaire des atomes que nous avons maintenant évoquée et qui constitue le terme source des harmoniques émises par le milieu :

$$\mathcal{P}_q^{NL}(\mathbf{r}) = \mathcal{N}_a(\mathbf{r}) d_q(\mathbf{r}),$$

où $\mathcal{N}$ est la densité atomique au sein du jet et d_q la q^e harmonique du dipôle atomique.

La mise en évidence de ces deux contributions nous permet d'écrire les équations de propagation séparément pour le fondamental et les harmoniques :

$$\begin{cases} \Delta \mathcal{E}_1(\mathbf{r}) + k_1^2(\mathbf{r}) E_1(\mathbf{r}) &= 0, & (a) \\ \Delta \mathcal{E}_q(\mathbf{r}) + k_q^2(\mathbf{r}) E_q(\mathbf{r}) &= -\frac{q^2 \omega^2}{\varepsilon_0 c^2} \mathcal{P}_q^{NL}(\mathbf{r}). & (b) \end{cases} \quad (7.5)$$

Nous avons introduit les vecteurs d'onde $k_q^2(\mathbf{r}) = n_q^2(\mathbf{r}) \left(\frac{q\omega}{c}\right)^2$.

Nous devons, pour parvenir à interpréter physiquement les effets induits sur la GHOE par le milieu, préciser les méthodes d'évaluation des vecteurs d'onde et de la polarisation. Le vecteur d'onde total doit tenir compte de la dispersion due aux électrons libres dépendante du temps² :

$$k_q(r, z, t) = k_q^0 + \Delta k_q(r, z, t),$$

$k_q^0 = \frac{q\omega}{c}$ est le vecteur d'onde associé à la propagation libre du champ harmonique ou fondamental et le terme dispersif est induit par la dynamique de l'ionisation :

$$\Delta k_q(r, z, t) = -\frac{e^2}{2mcq\omega\varepsilon_0} \mathcal{N}(z) \left(1 - e^{-\int_{-\infty}^t \Gamma(|E_1(r, z, t')|) dt'}\right).$$

L'exponentielle décroissante apparaissant dans le terme de droite traduit la disparition d'espèces neutres dans l'approximation quasi-statique que nous avons introduite plus haut à l'échelle microscopique. Ce terme est responsable de l'inhomogénéité de la densité d'électrons libres au sein du faisceau. $\mathcal{N}(z)$ est la densité atomique initiale que l'on décrit en général par un profil Lorentzien :

$$\mathcal{N}(z) = \frac{\mathcal{N}_0}{1 + 4z^2/L^2},$$

²le problème est résolu en coordonnées cylindriques suivant la géométrie de l'interaction

$2L$ définissant la longueur totale du jet.

Le système d'équations obtenu fait encore l'objet de différentes transformations, avant d'aboutir aux équations de propagation effectivement résolues. Nous nous en tiendrons là en ce qui concerne la dérivation de ces équations car nous souhaitons extraire l'information physique de ces équations de propagation sans alourdir encore le propos ! Il est toutefois essentiel de citer l'approximation de l'enveloppe spatiale lentement variable qui permet de se débarrasser du terme de phase $\mathbf{k}_q^0 \cdot \mathbf{r}$ correspondant à la contribution de l'onde plane dans le cas d'une propagation libre :

$$\mathcal{E}_q \rightarrow \mathcal{E}_q e^{i \int_{-\infty}^z k_q^0(z') dz'} \text{ et } \mathcal{P}_q \rightarrow \mathcal{P}_q e^{i \int_{-\infty}^z k_q^0(z') dz'}; \quad (7.6)$$

$\mathcal{E}_q$ et $\mathcal{P}_q$ réfèrent maintenant aux enveloppes des champs et polarisations. La détermination de la polarisation non linéaire en un point $\mathbf{r}$ dépend de la réponse atomique et donc du fondamental $\mathcal{E}_1(\mathbf{r})$ en ce point.

7.1.2 Vers les solutions des équations de propagation

Il faut tout d'abord résoudre l'équation de propagation pour le fondamental.

Nous nous plaçons maintenant dans le cas où les effets dispersifs dus aux électrons libres sont négligeables. En effet, dans les calculs macroscopiques que nous avons réalisés, ce terme n'est pas pris en compte.

En négligeant l'ionisation, l'équation du fondamental possède une solution analytique, c'est l'incontournable faisceau gaussien dont la forme réelle $|E_1(r, z)| \cos(\omega t + \Phi_G(r, z))$ se développe sous la forme :

$$|E_1(r, z)| = \frac{bE_0}{(b^2 + 4z^2)^{1/2}} \exp - \left(\frac{k_1 r^2 b}{b^2 + z^2} \right), \quad (7.7)$$

$$\Phi_G(r, z) = -\arctan \left(\frac{2z}{b} \right) + \frac{2k_1 r^2 z}{b^2 + 4z^2}. \quad (7.8)$$

$\Phi_G(r, z)$ est la phase géométrique du faisceau gaussien également appelée phase de Gouy. Sa principale caractéristique est qu'elle subit une variation de π lors du passage au foyer.

Connaissant la solution pour le fondamental, nous calculons alors la polarisation non linéaire dépendante du temps en tenant compte de la phase Φ_G simplement en évaluant le dipôle atomique à un instant : $t + \Phi_G(r, z)/\omega$:

$$\mathcal{P}_{NL}(r, z, t) = \mathcal{N}_a d(r, z, t + \Phi_G/\omega). \quad (7.9)$$

Ce qui nous permet d'écrire *dans le cadre adiabatique seulement*, la q^e harmonique de la polarisation comme :

$$\mathcal{P}_q^{NL}(r, z) = \mathcal{N}_a |d_q| e^{i(\Phi_q(r, z) + q\Phi_G(r, z))}. \quad (7.10)$$

$\Phi_q(r, z)$ est la phase intrinsèque du dipôle donnée, d'après le modèle de Lewenstein, par $-U_p \tau_s = -\eta_q I_L(r, z)$ [Salières *et al*, 95], $I_L(r, z)$ étant l'intensité au sein du faisceau laser gaussien. Nous rappelons plus loin la démarche proposée par [Balcou *et al*, 97] pour interpréter les conditions d'accord de phase.

7.1.3 Correction non adiabatique

C'est à cet endroit que nous devons essayer d'apporter une correction non adiabatique à la démarche numérique. Dans la démarche non-adiabatique, l'équation précédente n'est plus valable. En effet, nous introduisons pour le calcul du dipôle atomique, l'enveloppe temporelle du champ. Dans ce cas, l'équation (7.10) - où la phase de Gouy est extraite du terme de phase du dipôle - n'est plus valable.

La géométrie du faisceau gaussien est simulée sur une grille en coordonnées cylindriques (r, z) . En chaque point, l'intensité et la phase de Gouy sont utilisées pour définir le champ électrique, l'évolution temporelle du dipôle et sa TF sont évaluées en chaque point de la grille.

L'équation de propagation est intégrée en utilisant un schéma de type Crank-Nicholson. A la sortie du milieu, on peut évaluer le nombre de photons pour une harmonique donnée en intégrant sur le temps et sur la coordonnée radiale l'éclairement harmonique obtenu :

$$N_q = \frac{\varepsilon_0 \pi c}{\hbar q \omega} \int |E_q(r, z, t)|^2 r dr dt.$$

Nous terminons ces rappels sur la résolution des équations de propagation dans le milieu gazeux en rappelant le formalisme proposé par [Balcou *et al*, 97] pour comprendre et prédire les conditions d'accord de phase optimales suivant l'interaction considérée.

7.1.4 Conditions généralisées d'accord de phase

Pour que le champ harmonique puisse se construire sur la longueur d'interaction, il faut que le champ harmonique soit en phase avec la polarisation, en d'autres termes, les champs harmoniques générés en deux points distincts du faisceau doivent interférer constructivement :

$$\text{Arg} \left(\mathcal{P}_q(\mathbf{r}_1) e^{i\mathbf{k}_q \cdot (\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1)} \right) = \text{Arg} (\mathcal{P}_q(\mathbf{r}_2)). \quad (7.11)$$

Si $\mathbf{r}_1$ et $\mathbf{r}_2$ sont suffisamment proches, la condition optimale d'accord de phase est donnée par :

$$\mathbf{k}_q = \nabla \text{Arg}[\mathcal{P}_q]. \quad (7.12)$$

Le terme de droite étant nommé vecteur d'onde de polarisation. D'après les expressions 7.10 et 7.8, il est possible de réécrire cette condition d'accord de phase optimale comme suit

$$\mathbf{k}_q = q\mathbf{k}_1 + \mathbf{K}(r, z) + \mathbf{K}_G; \quad (7.13)$$

où l'on note :

$$\mathbf{K}(r, z) = \nabla \Phi_q(r, z) = -\eta_q \nabla I_L(r, z),$$

et

$$\mathbf{K}_G(r, z) = \nabla \Phi_G(r, z).$$

Nous constatons que la condition d'accord de phase coïncide avec une loi de conservation du moment. Il est possible alors de déterminer un facteur de désaccord de phase δk_q tel que :

$$\delta k_q = \frac{q\omega}{c} - |q\mathbf{k}_1 + \mathbf{K} + \mathbf{K}_G|. \quad (7.14)$$

Si ce désaccord est proche de 0, les conditions d'accord de phase sont quasi-optimales et l'on définit alors la longueur de cohérence (qui est une évaluation de la longueur sur laquelle le champ harmonique peut se construire) par :

$$L_{coh} = \frac{\pi}{\delta k_q}. \quad (7.15)$$

Il est, dans ce formalisme, possible d'établir une carte de l'accord de phase sur la surface (r, z) d'interaction en évaluant δk_q - ce qui simplifie singulièrement l'interprétation des simulations théoriques - et de déterminer les meilleures conditions d'accord de phase expérimentales. Nous avons schématisé cette condition d'accord de phase sur l'axe de propagation sur la figure 7.1. Trois cas sont à distinguer : avant le foyer, les contributions de la phase intrinsèque et de la phase de Gouy nuisent toutes deux à l'accord ; au foyer, l'accord s'améliore puisque seule la contribution de la phase de Gouy se retranche du vecteur d'onde total. Enfin, nous pouvons constater qu'il est possible d'obtenir une condition d'accord de phase quasi-optimale au-delà du foyer car les contributions de la phase intrinsèque et de la phase de Gouy sont de sens opposé. Evidemment, il s'agit d'une représentation très schématique, puisqu'elle dépend de l'harmonique considérée, la phase intrinsèque étant pondérée par les temps de retour classiques ; ce dont nous avons discutés dans le chapitre 2.

Dans la section qui suit, nous présentons les simulations numériques que nous avons effectuées dans le cadre de la théorie adiabatique. Elles ont

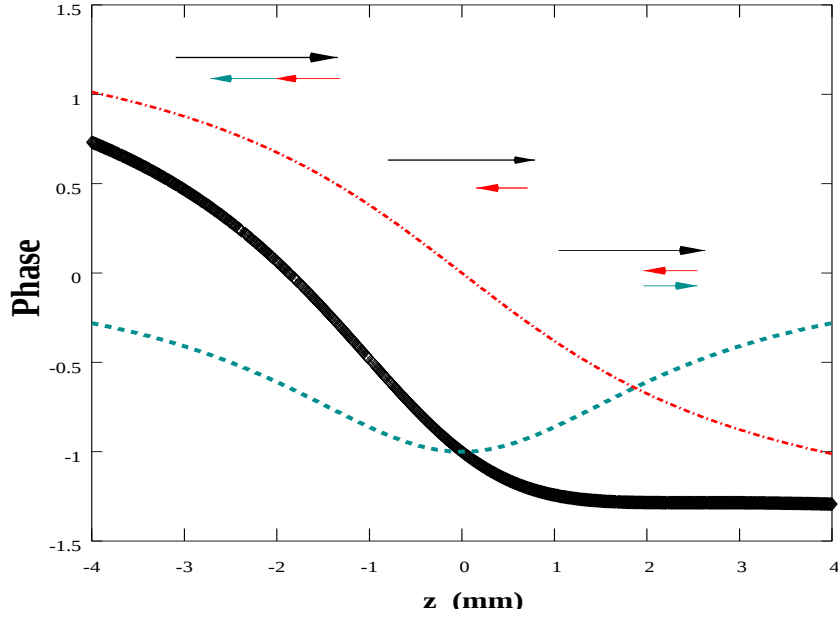


FIG. 7.1: Représentation schématique des conditions d'accord de phase sur l'axe de propagation. La phase intrinsèque $\propto -I_L(z)$ est représentée en pointillés bleus, Φ_G est en rouge. La phase globale est également représentée. Les conditions d'accord de phase en terme de vecteurs d'onde sont illustrées avant le foyer, au foyer et après. Les contributions des deux phases sont représentées dans le même code de couleur, la flèche noire correspondant au vecteur d'onde $q\mathbf{k}_1$. Le paramètre confocal $b = 5mm$.

été réalisées suite à une expérience effectuée par l'équipe du Pr. Muller du F.O.M. Nous avons utilisé le code de propagation développé par A. L'Huillier et ses collaborateurs, décrivant la propagation macroscopique des harmoniques pour essayer d'interpréter les observations expérimentales faites sur le processus de GHOF lorsqu'un faisceau dont le profil est spatialement modifié est utilisé pour générer les harmoniques au sein de l'Argon.

7.2 Génération d'harmoniques optimisée par processus résonnant

7.2.1 Objectif expérimental

Lorsque le dipôle atomique est évalué par résolution numérique de l'ESDT, son spectre de puissance présente des résonances en fonction de l'intensité attribuables à des processus multiphoniques couplant l'état fondamental et des états excités. Ces résonances induisent à l'échelle microscopique, une augmentation significative de l'intensité des harmoniques émises. Elles sont détectables à l'échelle macroscopique ; mais leur détection est extrêmement

sensible à la géométrie de l'interaction, comme la position relative du foyer par rapport au jet [Balcou *et al*, 93, L'Huillier *et al*, 92b]. La distribution en intensité existant au sein d'un faisceau laser gaussien rend difficile l'étude des effets de résonances en fonction de l'intensité. Le but de l'expérience menée au F.O.M. à Amsterdam était d'étudier le signal harmonique en fonction de l'intensité en s'assurant d'une distribution homogène sur la région d'interaction. Ainsi, des processus résonnants à l'échelle microscopique induisant une augmentation du signal harmonique peuvent être mis en évidence.

La démarche expérimentale décrite par [Toma *et al*, 99] et schématisée sur la figure 7.2, consiste à modifier le profil spatial d'un faisceau laser gaussien de Ti : Saphir ($\lambda = 787nm$) en plaçant dans la direction de propagation du faisceau une ouverture circulaire d'environ $2mm$ de diamètre, produisant à moins d'un mètre de l'ouverture, une distribution spatiale uniforme en intensité sur un diamètre de l'ordre de $70\mu m$. A cet endroit est placé un jet d'Argon, l'interaction de ce gaz avec le champ laser permet la génération d'harmoniques d'ordre élevé et le faisceau résultant est envoyé sur un jet de Xenon. Le spectre des photoélectrons produit par l'ionisation de ce dernier permet d'obtenir une information sur le signal harmonique primaire généré dans l'Argon. Le potentiel d'ionisation du Xenon est de $12.127eV$; 8 photons du laser Ti : Saphir au minimum sont nécessaires pour ioniser. Le signal harmonique au-delà de 9ω peut donc être indirectement mesuré.

Des mesures du signal harmonique de la 11^e à la 17^e harmoniques en fonction de l'intensité sont représentées sur la figure 7.3. Les résultats sont reproduits pour les deux profils considérés dans l'expérience, c'est-à-dire le profil gaussien spatialement modifié (par diffraction) et un profil gaussien de paramètre confocal $b_g \approx 1.3 cm$ permettant d'obtenir une largeur de faisceau identique à celle du profil modifié. Les mesures expérimentales correspondent aux deux graphes supérieurs et les simulations numériques que nous abordons un peu plus bas sont reprises sur la partie inférieure de la figure. Nous discutons, pour l'instant, des résultats expérimentaux. Sur la figure 7.3(a), le signal harmonique en fonction de l'intensité pour le profil homogène en intensité est représenté. Dans l'intervalle $4 - 8 \times 10^{13} W/cm^2$, la 13^e harmonique est absente du spectre puis le signal augmente brutalement à partir de $8.2 \times 10^{13} W/cm^2$ dépassant celui mesuré pour la 11^e harmonique. Dans le cas du profil gaussien (figure 7.3(b)), la résonance n'est plus visible dans la mesure où le signal de la 13^e harmonique ne dépasse plus celle de la 11^e . Signalons, de plus, la présence de la 15^e harmonique dans la zone d'intensité où la 13^e est absente.

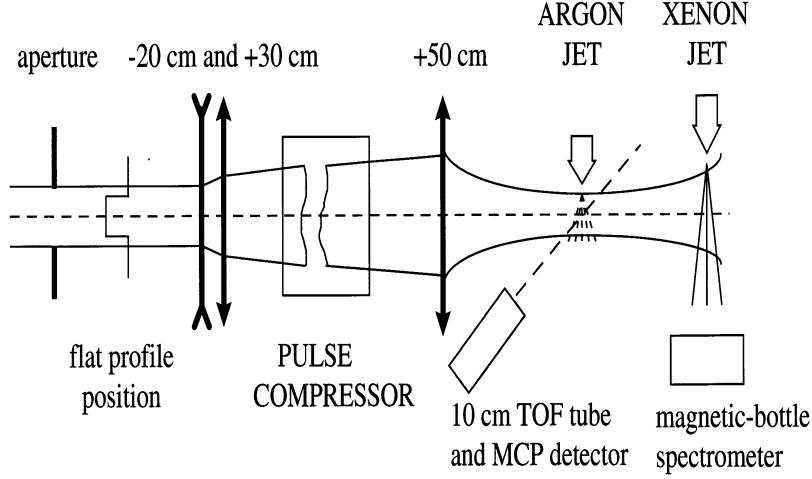


FIG. 7.2: Schématisation du dispositif expérimental pour produire un faisceau dont le profil en intensité est rendu “plat” sur une courte distance, le faisceau d’Argon est placé dans cette zone, extraite de [Toma *et al.*, 99].

7.2.2 Simulations théoriques de l’expérience

Dans le but d’interpréter ces résultats expérimentaux, nous avons réalisé une simulation numérique de la propagation des harmoniques générées dans l’Argon. Cette simulation est bien évidemment composée d’une partie microscopique consistant à évaluer le dipôle atomique (module et phase) puis à l’introduire dans les équations de propagation décrites dans la section 7.1. La partie microscopique des simulations a été réalisée par le Pr. H.G. Muller en résolvant numériquement l’ESDT par une méthode décrite dans [Muller, 99]. Les composantes harmoniques du dipôle sont ainsi évaluées sur une grille d’intensité entre 3.5×10^{13} et $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et introduites dans le code de propagation. C’est de cette partie des simulations numériques dont nous avons été chargé et que nous développons maintenant.

La durée des impulsions laser expérimentales de 140 fs légitimise l’utilisation de l’approximation des enveloppes temporelle et spatiale lentement variables effectuées dans la méthode que nous avons décrite dans la section 7.1. A partir des données microscopiques du dipôle atomique, la polarisation $\mathcal{P}_q$ est évaluée en module et en phase sur une grille d’intensité et l’intégration des équations de propagation pour les 3 harmoniques précitées est effectuée par un algorithme de Type Crank-Nicholson. Nous avons simulé les conditions expérimentales en utilisant une densité atomique variant suivant un

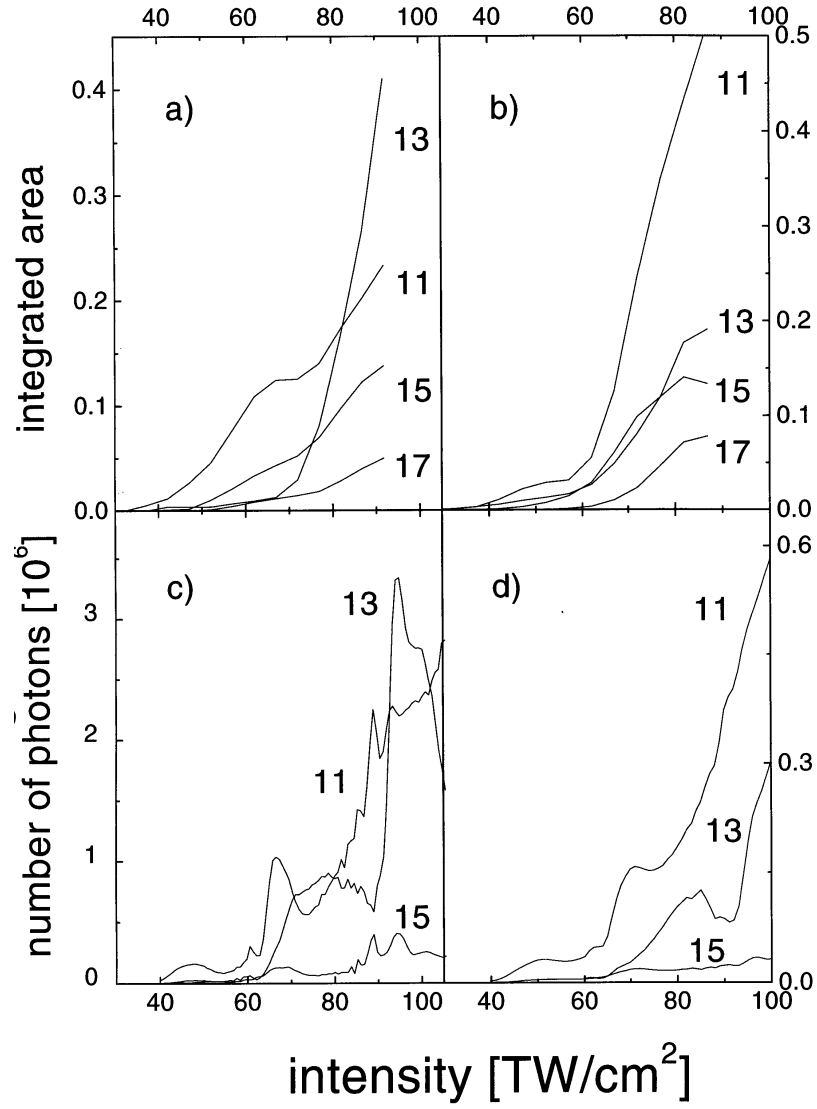


FIG. 7.3: (a) et (b) Signal harmonique obtenu expérimentalement en fonction de l'intensité respectivement pour un faisceau dont le profil spatial est rendu "plat" sur la région d'interaction et pour un faisceau gaussien. en (c) et (d) les résultats théoriques pour des profils spatiaux similaires sont représentés. Les résultats théoriques sont repris sur la figure 7.5

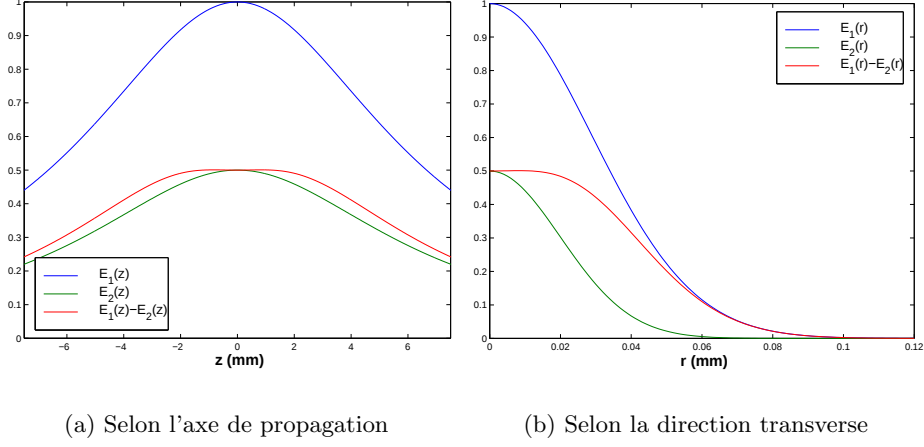


FIG. 7.4: Amplitude des champs considérés dans les simulations numériques, en bleu et vert les faisceaux gaussiens de paramètres confocaux respectifs $b_1 = 1.33\text{cm}$ et $b_2 = 0.636\text{cm}$. En rouge, le profil modifié selon l'expression $|E_1(r, z) - E_2(r, z)|$. Le profil $b_1 = 1.33\text{cm}$ est le cas également utilisé dans les propagations avec un seul faisceau.

profil lorentzien selon l'axe de polarisation de largeur à mi-hauteur 1.6mm correspondant au diamètre du jet et une pression de 13Torr .

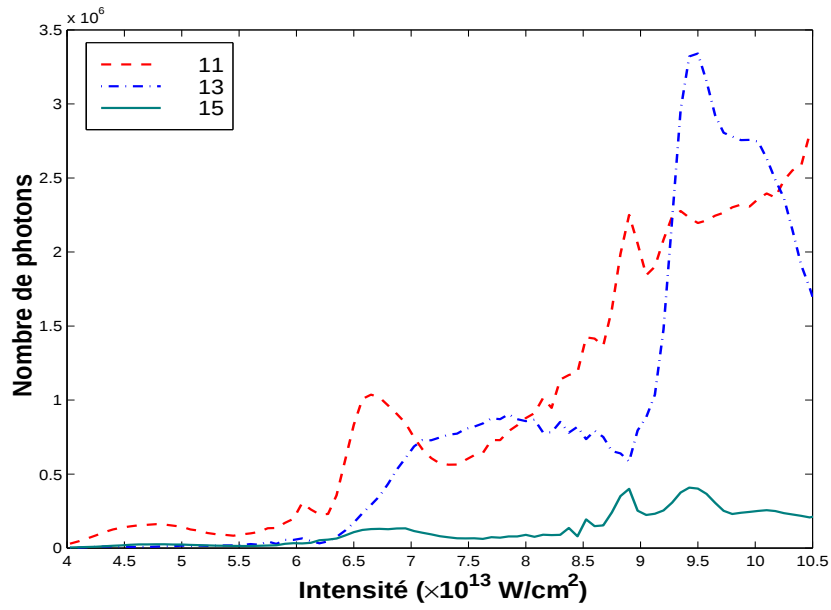
Le profil du fondamental, spatialement modifié, est simulé par la superposition de deux faisceaux gaussiens en opposition de phase. Le premier faisceau est caractérisé par son amplitude E_1 et un paramètre confocal $b_1 = 1.331\text{cm}$, le deuxième faisceau doit avoir une amplitude $E_2 = E_1/2$ et un paramètre confocal $b_2 = 0.636\text{cm}$ de manière à obtenir un profil en intensité évoluant “identiquement” - *sur la zone d'interaction* - à celui utilisé dans l'expérience. Les dépendances radiale et axiale des deux faisceaux ainsi que le profil du faisceau résultant de leur superposition sont illustrées sur la figure 7.4. Dans le cas du faisceau gaussien, nous avons utilisé un paramètre confocal $b_g = 1.33\text{cm}$. L'intervalle d'intensité considéré nous permet de négliger les effets de défocalisation et de décalage vers le bleu du fondamental et donc de supposer que ce dernier n'est pas perturbé par sa propagation dans le milieu. Nous avons évalué le nombre de photons à la sortie du milieu, et ce pour les harmoniques 11 à 15, dans la gamme d'intensité considérée dans l'expérience. Les résultats numériques obtenus sont représentés sur la figure 7.3(c-d). Ils sont repris sur la figure 7.5 et nous pouvons les comparer aux données microscopiques initiales, c'est-à-dire, le dipôle atomique en amplitude et en phase sur la figure 7.6.

7.2.3 Analyse des résultats théoriques et expérimentaux

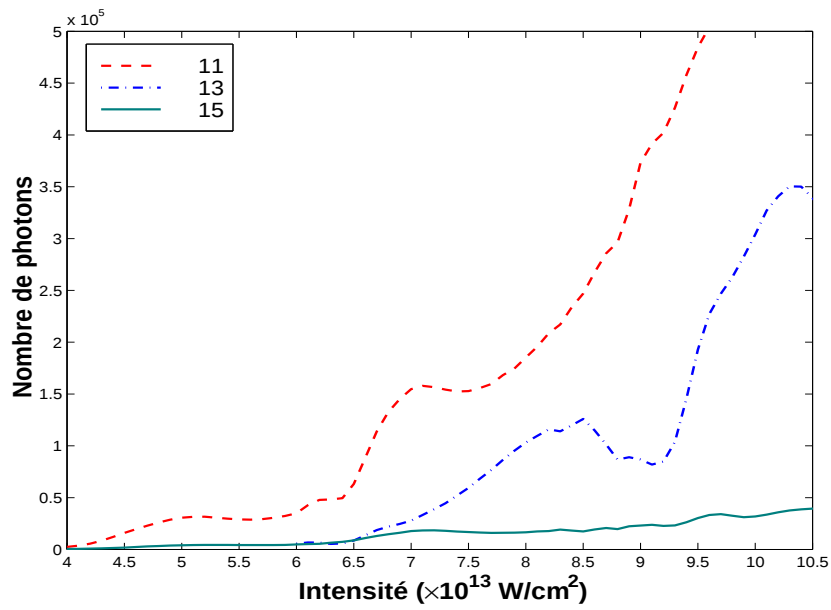
En observant l'amplitude du dipôle atomique (cf. fig. 7.6(a)), nous constatons la présence d'une résonance pour une intensité de $9.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ dans le signal de la 13^e harmonique. Elle a été attribuée à une transition à 13 photons vers l'état 5g de l'Argon [Muller, 99b]. Cette résonance survit à la propagation grâce à la distribution uniforme en intensité induite par la superposition des deux faisceaux gaussiens (figure 7.5(a)). Elle disparaît, en revanche, partiellement lorsque l'on évalue le nombre de photons émis dans le cas du profil gaussien (figure 7.5(b)). L'effet néfaste de la distribution en intensité sur la mise en évidence de résonance apparaît ici clairement. Afin de comprendre cette réduction nette de la génération de la 13^e harmonique dans le cas gaussien, nous représentons sur la figure 7.6(b), les phases intrinsèques des 3 harmoniques considérées. Nous constatons que si, effectivement, l'amplitude de la 13^e harmonique du dipôle présente une résonance vers $9.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, sa phase intrinsèque varie, elle, extrêmement rapidement dans cette région. Par conséquent, dès que l'on réintroduit une distribution en intensité, les conditions d'accord de phase se détériorent, d'autant plus que dans le cas gaussien nous devons tenir compte de la phase de Gouy représentée en bleu sur la figure 7.7.

Globalement donc, dans le cas du profil gaussien, on comprend pourquoi le champ de la 13^e harmonique se construit moins efficacement que dans le cas du profil homogène. Dans la simulation numérique effectuée pour le "profil plat", la superposition des deux phases géométriques conduit à une phase globale extrêmement plate - en rouge sur la figure 7.7 - sur toute la région d'interaction ! L'intensité possédant de plus une distribution uniforme, l'efficacité de conversion est très bonne pour la 13^e harmonique. L'évolution du nombre de photons en fonction de l'intensité coïncide avec celle de la polarisation de manière extrêmement précise. D'où, notamment, la persistance du large "piédestal" visible sur les simulations numériques après propagation dans le cas du profil homogène et qui est sensiblement réduit dans le cas gaussien.

Si l'on compare maintenant les simulations numériques aux résultats expérimentaux, nous constatons premièrement un décalage de la résonance de +10% environ dans la position de la résonance dans le cas théorique. Ce décalage peut être partiellement attribué à la précision de l'ordre de 10% sur la mesure de l'intensité au centre du jet. Cependant, les démarches théoriques et expérimentales révèlent toutes deux l'optimisation de la génération de la 13^e harmonique par l'utilisation d'un laser dont le profil spatial est rendu "plat" dans la région d'interaction avec le jet. Cette "optimisation" est rendue possible car ce profil homogène en intensité préserve une

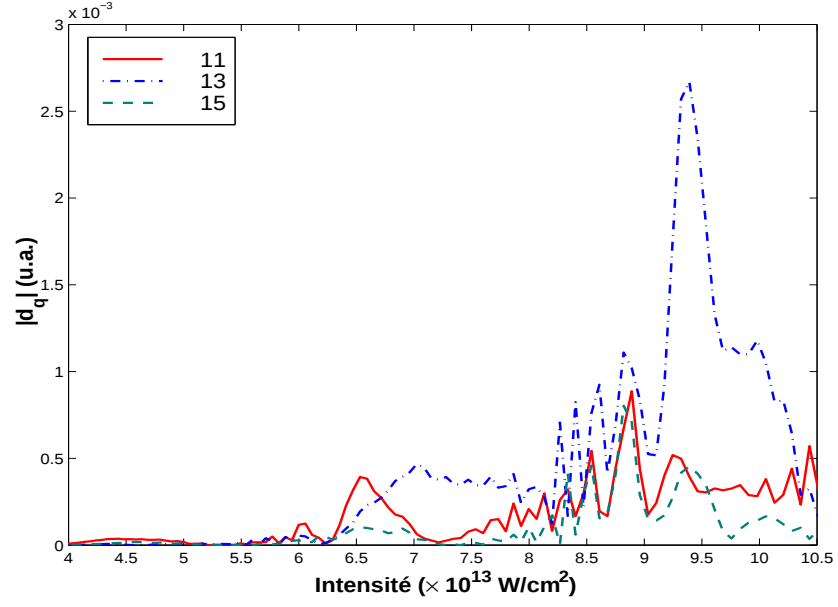


(a) Profil homogène en intensité

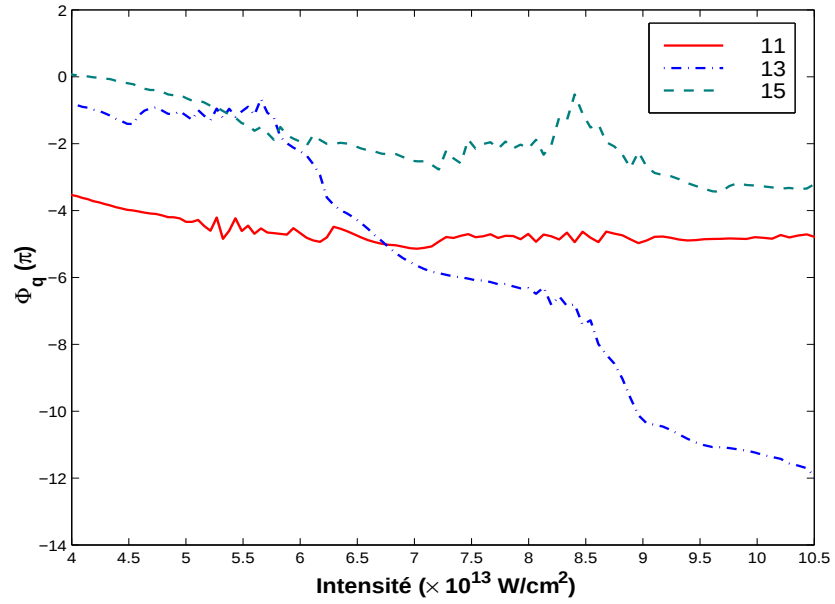


(b) Profil gaussien

FIG. 7.5: Nombre de photons en fonction de l'intensité obtenus numériquement pour les deux profils spatiaux du champ laser. Les paramètres de ces profils sont donnés dans le texte.



(a) Amplitude du dipôle atomique



(b) Phase du dipôle atomique

FIG. 7.6: Amplitude et Phase intrinsèque du dipôle atomique pour les 3 harmoniques considérées.

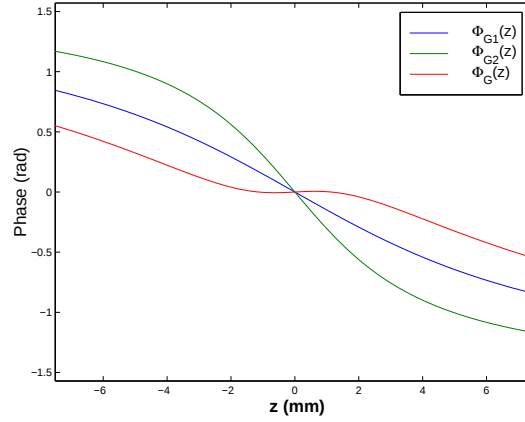


FIG. 7.7: Phase géométrique des différents faisceaux lasers utilisés dans les calculs de propagation. Φ_{G1} , Φ_{G2} correspondent respectivement aux paramètres confocaux $b_1 = 1.33\text{cm}$ et $b_2 = 0.636\text{cm}$, Φ_G est la phase géométrique résultant de la superposition des deux faisceaux précédents.

résonance présente à l'échelle microscopique.

Soulignons que l'adéquation de la phase géométrique obtenue par superposition de faisceaux gaussiens avec la phase expérimentale - non mesurée - n'est pas évidente. Cette phase numérique est extrêmement plate; ce qui peut être raisonnablement considéré comme un "artéfact" de la technique employée pour simuler le profil homogène en intensité. Cependant, elle nous permet d'interpréter une autre différence entre les résultats théoriques et expérimentaux : la persistance du piédestal (qui existe à l'échelle microscopique) dans les simulations et qui a tout à fait disparu dans l'expérience. Numériquement, le profil étant homogène à la fois en intensité et "artificiellement" en phase, *toutes les structures* présentes dans le dipôle atomique survivent à la propagation. Ceci met encore une fois en évidence l'importance de correctement décrire la phase géométrique pour pouvoir interpréter ou prédire des résultats expérimentaux.

Pour terminer, et dans le même ordre d'idée, remarquons que la *phase intrinsèque* de la 11^e harmonique obtenue par résolution de l'ESDT n'est que très faiblement influencée par l'intensité, ce qui ne nous permet toutefois pas de comprendre pourquoi l'efficacité de conversion expérimentale est meilleure dans le cas gaussien que dans le cas du profil homogène. Les simulations que nous avons effectuées ne coïncident pas de ce point de vue avec les résultats expérimentaux. Enfin, l'efficacité de conversion de la 15^e harmonique est sous-estimée dans les résultats numériques, mais nous devons signaler que le nombre de photons évalué correspond à un nombre de photons pour une période laser. Pour pouvoir tirer des conclusions plus ri-

goureuses sur les taux de conversion, il nous faudrait considérer le nombre de photons total en intégrant sur toute la durée de l'interaction.

En conclusion, ces analyses de la propagation macroscopique des harmoniques démontrent l'intérêt d'utiliser des profils spatiaux homogènes en intensité - qui confèrent à l'expérience de [Toma *et al*, 99] son caractère original - pour tirer profit de résonances présentes dans la réponse non linéaire de l'atome à l'excitation laser ; et ce, afin d'optimiser le processus de GHOE. S'ils ne permettent pas d'expliquer la totalité des résultats expérimentaux, les résultats numériques permettent toutefois de se rendre compte de l'importance des phases aussi bien intrinsèque que géométrique. La caractérisation de cette dernière reste problématique tant du point de vue théorique qu'expérimental, dans le cas où le profil considéré n'est pas purement gaussien. La phase théorique "idéalement plate" que nous avons utilisée est certainement alors l'origine des principales différences théoriques et expérimentales observées.

Conclusion

L'espace des moments

L'espace des moments est reconnu comme étant l'espace privilégié pour étudier les mécanismes de diffusion d'une particule incidente par un potentiel. Dans notre travail, nous avons mis en évidence qu'il peut être mis à profit pour étudier le mécanisme d'ionisation. Il offre, en effet, une visualisation quasi-instantanée du processus puisqu'*a priori*, l'ionisation a d'abord lieu en terme de moment avant de l'être en terme de position (délocalisation du paquet ionisé).

Ce constat nous a incité à proposer une méthode de résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps directement dans l'espace des moments. Les B-splines, utilisées comme base de développement de la fonction d'onde, s'avèrent être un outil intéressant pour contrôler la discrétisation (qualitative et quantitative) du continuum d'énergie.

Le premier intérêt de la représentation de la dynamique en terme de moments est que **le système reste localisé** dans cette représentation surtout si l'on utilise le moment canonique dans la forme vitesse de l'interaction. Cette observable est alors une constante du mouvement pour un état ionisé coïncidant à la fin de l'interaction avec la vitesse d'éjection des électrons. La visualisation que nous avons proposée de la dynamique permet donc, sans avoir à attendre que l'électron ne sorte de la zone d'interaction, de connaître sa direction d'éjection, ce qui facilite l'évaluation des contributions des paquets indirects ou directs définis dans une vision quasi-classique de l'ionisation.

En analysant simplement la densité de probabilité en fonction du temps, il est aisé de distinguer les deux régimes d'ionisation - multiphotonique et celui du champ fort. Dans le premier, des anneaux de diffusion sont nettement

présents, signifiant que les électrons gagnent de l'énergie par collision avec le potentiel, tandis que dans le régime du champ fort, les paquets qui s'ionisent possèdent une symétrie cylindrique marquée. Mais nous avons proposé une autre méthode permettant de distinguer ces deux régimes fondée sur l'idée que dans un régime multiphotonique, l'ionisation peut avoir lieu à n'importe quelle phase du champ et que surtout dans l'approximation du champ fort basse fréquence, le seul état lié contribuant à l'interaction de manière significative est l'état fondamental. Cette hypothèse nous a permis de suggérer que s'il existe une relation de phase entre la vitesse moyenne du système (suivant l'axe de polarisation) et le potentiel vecteur, le régime du champ fort est atteint. A la fréquence étudiée ($\omega = 0.057 \text{ u.a.}$), nous avons dès lors constaté que pour un paramètre de Keldysh $\gamma = 0.75$, nous pouvons raisonnablement considérer que ce régime est installé. Notre critère est donc moins restrictif que celui imposé par [Keldysh, 65] pour caractériser le régime du champ fort.

Dynamique au seuil de la saturation

Cet argument nous a permis d'étudier la validité de l'approximation du champ fort en ce qui concerne le mécanisme dominant de l'ionisation. Si l'on se réfère à la théorie de [Keldysh, 65] ou à celle d'[Ammosov *et al*, 86], le potentiel Coulombien n'intervient pas ou simplement perturbativement dans l'évolution du paquet une fois émis par transition dipolaire dans le continuum. Mais ainsi que nous l'avons rappelé dans le chapitre 2, la théorie A.D.K. surestime largement l'ionisation lorsque l'on s'intéresse à des intensités avoisinant l'intensité critique ou l'intensité de saturation.

Le domaine de validité de la théorie A.D.K. est clairement défini comme celui pour lequel $I \ll I_{sat}$. En nous intéressant à la limite $I \rightarrow I_{sat}$, il est logique de s'attendre à un échec de cette théorie pour décrire quantitativement le mécanisme d'ionisation. Cependant, on peut raisonnablement supposer que plus l'intensité croît moins le potentiel Coulombien joue un rôle dominant dans le processus. Nous pensons que notre analyse qualitative de la dynamique de l'ionisation démontre une tendance inverse. En nous intéressant à la densité de probabilité transverse du champ, nous avons mis en évidence un net rétrécissement de la densité de probabilité autour de l'axe de polarisation, ce que nous ne pouvons attribuer à une simple transition dipolaire 1s-continuum correspondant à un effet tunnel direct. Classiquement, le potentiel Coulombien est le seul à pouvoir induire une modification de la densité de probabilité dans cette direction. Cet effet ne peut pas être traité perturbativement puisqu'il s'agit de la contribution dominante à l'ionisation.

Dans l'approximation du champ fort, suite à la transition dipolaire,

l'électron évolue **librement** dans le champ laser (terme de phase contenant l'action quasi-classique dans le modèle du champ fort). Cette évolution ne coïncide pas, d'après nos résultats, avec le mouvement réel des paquets ionisés lorsque $I < I_{crit}$, le mouvement quasi-classique attendu n'a pas lieu à une échelle d'intensité permettant de rendre compte du pourcentage global d'ionisation. Les paquets ionisés restent essentiellement dans la zone d'interaction et sont soumis quasi-classiquement au gradient de potentiel effectif.

Pour comprendre la nature de la focalisation, également présent dans les simulations classiques, nous avons dû invoquer un autre schéma d'ionisation que le schéma "tunnel". La première étape doit plutôt être décrite comme une collision inélastique assistée par laser, que l'on peut se représenter "classiquement" comme des paquets se heurtant au mur de potentiel formé par le champ et se trouvant alors "projetés" vers le noyau, ce qui induit une focalisation sur l'axe de polarisation de la distribution transverse en "**p**". Ce mécanisme peut induire un retard à l'ionisation qui explique qualitativement pourquoi les paquets dits indirects ne sortent pas réellement de la zone d'interaction Coulombienne. Dans ce sens, le potentiel Coulombien favorise les contributions des électrons indirects lors de l'injection des électrons dans le continuum. Ce type de schéma nécessite donc de tenir compte de manière non perturbative de l'évolution des paquets ionisés au sein du potentiel Coulombien. Le terme de propagation contenant l'action quasi-classique doit certainement être modifié pour tenir compte d'un tel schéma d'ionisation. Rappelons d'ailleurs qu'il s'agit de la démarche utilisée par [Ivanov *et al*, 96] pour décrire la génération des harmoniques proches du seuil d'ionisation ($\hbar q \omega \approx I_p$); description dans laquelle le modèle de Lewenstein échoue (en dehors de résolution numérique exacte, aucun modèle ne permet de comprendre d'ailleurs la nature exacte des harmoniques proches du seuil d'ionisation).

Nous avons constaté que les paquets indirects adoptent en revanche un mouvement quasi-classique plus net **lorsque l'intensité critique du champ est atteinte**. Cette observation est très importante du point de vue du processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé qui est associé à un tel mouvement. Lorsque le régime d'ionisation au-dessus de la barrière est atteint, on s'attend à ce que les contributions directes dominent rapidement dans l'interaction, nos résultats semblent démontrer le contraire en tenant compte de l'influence du potentiel Coulombien. **La génération d'harmoniques d'ordre élevé peut bénéficier du régime d'ionisation au-dessus de la barrière correspondant à une injection de population élevée dans le continuum si la durée de l'impulsion n'est pas trop longue.**

Ce constat valide, en quelque sorte, le modèle de Lewenstein de la génération

d'harmoniques d'ordre élevé dans une gamme d'intensité $\gtrsim I_{sat}$. Il s'agit d'une validation qualitative mais nous devons signaler que dans le cas de l'hydrogène, il est difficile numériquement d'obtenir des spectres d'harmoniques précis qui permettraient de valider quantitativement le modèle au-delà de $I = 10^{15} \text{ W/cm}^2$. Les observations présentées dans ce travail sont favorables à l'extension du modèle de Lewenstein lorsque le régime critique est atteint ; extension effectuée par [Shin *et al*, 99] pour expliquer le blue-shift non adiabatique des harmoniques dans des expériences réalisées dans une gamme d'intensité de $10^{15} - 10^{16} \text{ W/cm}^2$.

Les harmoniques et la phase absolue du champ

Le mouvement quasi-classique de la fonction d'onde dont l'existence est mise en évidence dans l'espace de phases permet donc de valider le modèle du champ fort du point de vue de l'analyse de la génération d'harmoniques d'ordre élevé lorsque l'on s'intéresse aux harmoniques les plus élevées ($\hbar q \omega \gg I_p$). Nous avons utilisé l'approximation du champ fort pour comprendre les effets de la phase absolue du champ électrique lorsque la durée de l'impulsion approche le régime monocycle.

La sensibilité du spectre des harmoniques à l'échelle microscopique est incontestable et s'explique effectivement par la dynamique classique de l'électron dans le champ laser. L'énergie cinétique des électrons acquise sur une trajectoire fermée est une quantité extrêmement sensible à l'intensité instantanée du champ électrique qui, elle-même, dépend fortement de la phase du champ. Nous avons, en évaluant numériquement cette énergie cinétique, montré qu'il était possible à l'échelle microscopique d'effectuer un diagnostic de la phase en considérant les intensités relatives d'harmoniques situées dans des régions distinctes du spectre.

Lorsque la durée de l'interaction est restreinte au régime monocycle, l'ionisation n'étant pas dominante même lorsque l'on considère une intensité égale à l'intensité critique, les "harmoniques" sont générées efficacement mais l'allure du spectre est sensiblement modifiée. Nous pouvons comprendre qualitativement pourquoi deux plateaux distincts en terme d'intensité peuvent se former (observation effectuée pour l'interaction de 2.5 fs). Ils sont le fruit des effets non-adiabatiques dus à la forme temporelle de l'impulsion laser. L'intensité relative des 2 plateaux n'a malheureusement pu faire l'objet d'une explication claire. Qualitativement, le premier est plus intense car les harmoniques sont générées par la recombinaison d'un paquet émis à l'intensité pic du champ contrairement à "celles" du deuxième plateau.

Nos conclusions sur les effets de phase doivent maintenant survivre aux effets de propagation des champs harmoniques générés dans le milieu partiellement ionisé. Les premières considérations sont prometteuses mais ne sont pas suffisamment rigoureuses pour pouvoir affirmer qu'un diagnostic de phase à l'aide des harmoniques est expérimentalement envisageable. Les progrès très rapides de ces deux dernières années en matière de stabilisation de la phase absolue du champ [Apolonski *et al*, 00] devraient bientôt permettre de confronter ces prédictions théoriques à la réalité expérimentale...

Finalement, bien que notre analyse de la dynamique de l'ionisation dans l'espace des moments ne reste malheureusement que qualitative, nous pensons avoir montré que l'approximation du champ fort, qui oublie la présence du potentiel Coulombien, n'est pas totalement adéquate pour comprendre toute la dynamique du processus. Pour synthétiser notre propos, nous devons remarquer qu'elle a connu un grand succès pour caractériser des processus dont l'échelle d'intensité est faible par rapport aux processus dominants. Elle échoue d'une part dans la description des harmoniques d'ordre faible qui sont les plus intenses, et d'autre part, dans la description quantitative du premier "plateau" ATI qui donne la contribution dominante à l'ionisation. Cet échec doit être clairement imputé à une introduction perturbative de l'influence du potentiel Coulombien. L'opérateur d'évolution du système doit tenir compte de manière plus rigoureuse de la nature Coulombienne des états du continuum. Il s'agit malheureusement d'un problème théorique extrêmement complexe auquel un grand nombre de groupes impliqués dans le domaine des champs forts se sont heurtés. Notre analyse, même si elle ne nous a pas permis d'être plus chanceux dans la résolution de ce problème, propose tout de même une alternative au schéma d'ionisation tunnel ; alternative qui replace le potentiel Coulombien au centre du mécanisme d'ionisation dans ce régime basse fréquence.

Puisque l'avenir de l'interaction laser-atome se tourne déjà depuis quelques années vers l'étude des systèmes polyélectroniques, notre travail montre qu'une analyse dans l'espace des moments permet d'extraire énormément d'informations physiques sur la dynamique du processus. Nous retenons (entre autre) personnellement de cette étude que l'important, pour appréhender physiquement la dynamique d'une telle interaction est de trouver... le bon moment !

Annexe A

Système d'unités

Le système des unités atomiques est un système privilégié dans les études théoriques, il simplifie grandement la formulation des équations de base de la Physique atomique. Nous rappelons ici les facteurs de conversion entre ce système d'unités (u.a.) et le système d'unités international (M.K.S.), pour les différentes grandeurs physiques que nous utilisons fréquemment dans le texte.

Grandeurs définissant le système d'unités atomiques

Dimensions	Unité	Quantité physique	Valeur
Moment angulaire	$\hbar$	Constante de Planck divisée par 2π	$1.05459 \times 10^{-34} \text{ J.s}$
Masse	m	Masse de l'électron	$9.10953 \times 10^{-31} \text{ Kg}$
Charge	e	Valeur absolue de la charge de l'électron	$1.60219 \times 10^{-19} \text{ C}$
Longueur	a_0 $= \frac{4\pi\epsilon_0\hbar^2}{m e^2}$	Rayon de Bohr (hydrogène atomique)	$5.29177 \times 10^{-11} \text{ m}$

Autres dimensions en unités atomiques

La vitesse de la lumière $c = 2.99792 \times 10^8 \text{ m s}^{-1}$ est liée à la permittivité du vide

$$\epsilon_0 = 8.85419 \times 10^{-12} \text{ F m}^{-1},$$

et à la perméabilité du vide

$$\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ H m}^{-1},$$

par la relation

$$\varepsilon_0 \mu_0 c^2 = 1; \text{ en M.K.S..}$$

D'après l'expression du rayon de Bohr, $\varepsilon_0 = \frac{1}{4\pi} \text{ u.a..}$ La constante de structure fine

$$\alpha = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\hbar c} = \frac{1}{137.036} = \frac{1}{c}.$$

Nous pouvons maintenant définir les autres grandeurs intéressantes dans le système des unités atomiques telles que l'unité de temps, d'énergie, de champ électrique (amplitude et intensité).

Dimensions	Expression	Signification physique	Valeur
Vitesse	$v_0 = \alpha c$	Vitesse d'un électron sur la 1 ^e orbite de Bohr	$2.18769 \times 10^6 m s^{-1}$
Temps	$\frac{a_0}{v_0}$	Temps mis par l'électron pour parcourir un rayon de Bohr	$2.41889 \times 10^{-17} s$
Energie	$\frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0 a_0}$	Deux fois le potentiel d'ionisation de l'hydrogène atomique	$4.35981 \times 10^{-18} J$ $= 27.2116 eV$
Champ électrique (Amplitude)	$\frac{e}{4\pi\varepsilon_0 a_0^2}$	Champ ressenti par l'électron sur la 1 ^e orbite de Bohr	$5.14225 \times 10^{11} V m^{-1}$
(Intensité)			$3.5095 \times 10^{20} W m^{-2}$

Annexe B

Structure atomique

B.1 Analyse en ondes partielles de l'équation aux valeurs propres

Nous souhaitons effectuer l'analyse en ondes partielles de l'équation (3.4). Elle nécessite de considérer le développement en polynômes de Legendre du noyau $\tilde{V}(|\mathbf{p} - \mathbf{p}'|)$:

$$\tilde{V}(|\mathbf{p}' - \mathbf{p}|) = \sum_{l=0}^{+\infty} T_l(p, p') P_l(\cos(\theta)), \quad (\text{B.1})$$

$$\text{où } \cos(\theta) = \frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{p}'}{pp'} = x \text{ et}$$

$$T_l(p, p') = \frac{2l+1}{2} \int_{-1}^{+1} dx P_l(x) \tilde{V}(|\mathbf{p}' - \mathbf{p}|). \quad (\text{B.2})$$

Rappelons la décomposition en harmoniques sphériques d'un polynôme de Legendre :

$$P_l(\cos(\theta)) = \frac{4\pi}{2l+1} \sum_{-l}^{+l} Y_{lm}^*(\theta_{p'}, \phi_{p'}) Y_{lm}(\theta_p, \phi_p), \quad (\text{B.3})$$

pour, finalement, introduire les équations (3.8, B.1, B.3) dans l'équation (3.4) et obtenir :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2} - E \right) F_{El}(p) Y_{lm}(\theta_p, \phi_p) = \\ - \frac{4\pi}{2l+1} \sum_{l'=0}^{+\infty} \sum_{m'=-l'}^{+l'} \int_0^{+\infty} dp' p'^2 T_l(p, p') F_{El}(p') \\ \times Y_{l'm'}(\theta_p, \phi_p) \int d\hat{p} Y_{l'm'}^*(\theta_{p'}, \phi_{p'}) Y_{lm}(\theta_{p'}, \phi_{p'}). \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

L'orthogonalité des harmoniques sphériques permet d'obtenir la forme plus simple :

$$\left(\frac{\mathbf{p}^2}{2} - E\right) F_{El}(p) = - \int_0^{+\infty} dp' p'^2 \tilde{T}_l(p, p') F_{El}(p'), \quad (\text{B.5})$$

où :

$$\tilde{T}_l(p, p') = 2\pi \int_{-1}^{+1} dx \tilde{V} \left((p^2 + p'^2 + 2pp'x)^{1/2} \right) P_l(x). \quad (\text{B.6})$$

$\tilde{T}_l(p, p')$ est le noyau symétrique de la nouvelle équation intégrale à une dimension et nous pouvons d'ores et déjà donner son expression dans le cas du potentiel Coulombien. D'après l'équation (3.6),

$$\tilde{T}_l(p, p') = -\frac{Z}{2pp'\pi} \int_{-1}^{+1} \frac{P_l(x)}{\left(\frac{p^2+p'^2}{2pp'} - x\right)} dx, \quad (\text{B.7})$$

où l'on peut reconnaître l'expression des fonctions de Legendre du second genre :

$$Q_l(z) = \frac{1}{2} \int_{-1}^{+1} \frac{P_l(x)}{z - x}. \quad (\text{B.8})$$

Ceci nous amène à l'allure finale de l'équation intégrale que doit satisfaire $F_{EL}(p)$ de manière à représenter la partie radiale d'un état stationnaire du système hydrogénoïde associé à l'énergie E :

$$\left(\frac{\mathbf{p}^2}{2} - E\right) F_{El}(p) = \frac{Z}{\pi p} \int_0^{+\infty} dp' p' Q_l \left(\frac{p^2 + p'^2}{2pp'} \right) F_{El}(p') \quad (\text{B.9})$$

B.2 Etude du noyau de l'équation intégrale

B.2.1 Propriétés mathématiques des fonctions de Legendre du second genre

[Abramovitz, 70, Hochstadt, 73] fournissent une étude détaillée de ces fonctions. Nous nous contentons ici de rappeler les propriétés et relations qui interviennent dans notre développement numérique. Considérons tout d'abord l'équation différentielle de degré l et d'ordre μ satisfaite par de telles fonctions :

$$(1 - z^2) \frac{d^2 w}{dz^2} - 2z \frac{dw}{dz} + \left[l(l+1) - \frac{\mu^2}{1 - z^2} \right] w = 0. \quad (\text{B.10})$$

Cette équation différentielle présente deux points singuliers en $z = \pm 1$ et admet deux classes de solutions, l'une régulière aux points de branchements

- il s'agit alors des fonctions de Legendre associées du premier genre notées $P_l^\mu(z)$ - et l'autre singulière, ce sont les fonctions de Legendre associées du second genre notées $Q_l^\mu(z)$. Les solutions qui nous intéressent sont les solutions d'ordre $\mu = 0$, $Q_l^0(z) = Q_l(z)$. Il est utile de mentionner qu'une fonction $P_l^0(z) = P_l(z)$ est simplement un polynôme de Legendre prolongé analytiquement en $|z| > 1$. Les deux types de solutions satisfont la même relation de récurrence :

$$(l+1)w_{l+1}(z) = (2l+1)zw_l(z) - lw_{l-1}(z). \quad (\text{B.11})$$

Pour cerner l'origine de la singularité de la fonction $Q_l(z)$, il faut rappeler son expression en terme de fonction hypergéométrique $F_{21}(a, b, c; z)$:

$$Q_l(z) = \frac{\sqrt{\pi}}{(2z)^{l+1}} \frac{\Gamma(l+1)}{\Gamma(l+\frac{3}{2})} F_{21}\left(\frac{l}{2}+1, \frac{l+1}{2}, l+\frac{3}{2}; \frac{1}{z^2}\right); |z| > 1. \quad (\text{B.12})$$

La fonction hypergéométrique $F_{21}(a, b, c; z)$ est définie par une série de Gauss qui converge sur le cercle unité à l'exclusion des points $z = \pm 1$ dans le cas où $c - a - b = 0$. Cette dernière relation est vérifiée $\forall l$ dans le cas de la fonction $Q_l(z)$. La nature de la singularité peut être déterminée par la simple connaissance des deux premières fonctions hypergéométriques ($l = 0$ et $l = 1$), puisque la récurrence (B.11) nous indique qu'aucune singularité supplémentaire ne s'ajoute lors de l'incrément du degré l .

Or pour $l = 0$, nous avons :

$$F_{21}\left(1, \frac{1}{2}, \frac{3}{2}; \frac{1}{z^2}\right) = \frac{1}{2}z \ln\left(\frac{z+1}{z-1}\right) \quad (\text{B.13})$$

et pour $l = 1$:

$$F_{21}\left(1, \frac{3}{2}, \frac{5}{2}; \frac{1}{z^2}\right) = \frac{3}{2}z^3 \ln\left(\frac{z+1}{z-1}\right) - 3z^2 \quad (\text{B.14})$$

Nous savons dorénavant que les fonctions de Legendre $Q_l(z)$ définies sur l'intervalle $]1; +\infty[$ présentent une singularité logarithmique en $z=1$. Rappelons, enfin, une dernière expression qui sera également très utile pour déterminer numériquement les fonctions de Legendre du second genre :

$$Q_l(z) = \frac{1}{2}P_l(z) \ln\left(\frac{z+1}{z-1}\right) - W_{l-1}(z), \quad (\text{B.15})$$

où :

$$W_{l-1}(z) = \sum_{m=1}^l P_{m-1}(z)P_{l-m}(z). \quad (\text{B.16})$$

B.2.2 Implications physiques

Il est intéressant de se placer dans le cadre de la théorie de la diffusion par un potentiel pour interpréter physiquement les différentes propriétés mathématiques des fonctions $Q_l(x)$ énoncées à la section précédente.

En effet, puisque $Q_l(x)$ est le noyau de l'équation aux valeurs propres (3.11), ses propriétés sont nécessairement liées à celles des états propres du Hamiltonien et notamment des états du continuum. Or, ceux-ci ne sont également rien d'autre que les états stationnaires de la diffusion par un potentiel Coulombien! Nous montrons maintenant comment on peut interpréter Q_l dans le cadre de la diffusion par un potentiel.

Q_l comme analyse en ondes partielles de l'amplitude de diffusion

En théorie de la diffusion d'une particule par un potentiel, on résout l'équation de Schrödinger :

$$\left(-\frac{\nabla^2}{2} + V(r) - \frac{k_i^2}{2}\right) \Psi_{k_i}(\mathbf{r}) = 0; \quad (\text{B.17})$$

en tenant compte de la condition asymptotique :

$$\Psi_{k_i}^{(+)}(\mathbf{r}) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} (2\pi)^{-3/2} \left(e^{i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}} + f(\mathbf{q}) \frac{e^{ik_i r}}{r} \right). \quad (\text{B.18})$$

$\Psi_{k_i}^{(+)}(\mathbf{r})$ est, dans ces conditions, une onde dite “sortante”. $f(\mathbf{q})$ est l'amplitude de diffusion associée. Elle représente l'amplitude de probabilité pour que la particule possédant une impulsion initiale $\mathbf{k}_i$ soit diffusée avec l'impulsion $\mathbf{k}_f = \mathbf{k}_i + \mathbf{q}$. Dans la mesure où nous considérons, pour le moment, une simple diffusion par un potentiel, le processus est élastique : l'énergie totale de la particule diffusée est conservée¹ et donc $|\mathbf{k}_f| = |\mathbf{k}_i|$.

$\Psi_{k_i}^{(+)}(\mathbf{r})$ satisfait alors l'équation intégrale dite de Lippmann-Schwinger :

$$\Psi_{k_i}^{(+)}(\mathbf{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}} + \int d\mathbf{r}' G_0^{(+)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') U(\mathbf{r}') \Psi_{k_i}^{(+)}(\mathbf{r}'). \quad (\text{B.19})$$

$G_0^{(+)}$ est la fonction de Green associée à l'opérateur énergie cinétique telle que :

$$(\nabla_r^2 + k^2) G_0^{(+)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'),$$

soit :

$$G_0^{(+)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = -\frac{1}{4\pi} \frac{e^{ik_i |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}.$$

¹les états recherchés sont des états propres du système atomique!!

En utilisant la condition asymptotique (B.18), la définition de la fonction de Green ci-dessus et en étudiant le comportement asymptotique de l'équation (B.19), on obtient l'expression de l'amplitude de diffusion :

$$f(\mathbf{q}) = -4\pi^2 \left\langle \phi_{k_f} \mid V \mid \Psi_{k_i}^{(+)} \right\rangle,$$

où ϕ_{k_f} est une onde plane. Une démarche perturbative pour résoudre l'équation (B.19) consiste à supposer que

$$\Psi_{k_i}^{(+)}(\mathbf{r}) \approx \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{ik_i \cdot \mathbf{r}}.$$

Il s'agit de la première approximation de Born qui conduit à l'approximation suivante sur l'amplitude de diffusion :

$$f^B(\mathbf{q}) = -4\pi^2 \left\langle \phi_{k_f} \mid V \mid \phi_{k_i} \right\rangle = -4\pi^2 \tilde{V}(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i),$$

où $\tilde{V}(\mathbf{q})$ a été définie comme la transformée de Fourier du potentiel Coulombien associée au transfert d'impulsion $\mathbf{q}$.

Le noyau $Q_l(x)$ équivaut donc à la décomposition en ondes partielles de l'amplitude de diffusion par le potentiel V dans la première approximation de Born.

Nous pouvons, par conséquent l'analyser en terme de processus de diffusion, en remarquant que son argument,

$$x = \frac{k_i^2 + k_f^2}{2k_i k_f},$$

caractérise le degré d'inélasticité de la diffusion. Sur la figure B.1, la fonction $Q_l(x)$ est représentée pour différentes symétries ($l = 0 \rightarrow 12$).

Diffusion élastique

Sans champ laser, la diffusion élastique est dominante, bien que des processus inélastiques soient également possibles. Ce qui signifie que l'argument des Q_l vaut 1. Or, comme nous l'avons déjà souligné dans la section précédente, quelle que soit la symétrie considérée, une singularité logarithmique est présente dans l'expression des Q_l quand $x \rightarrow 1$. Théoriquement, dans le cas d'un potentiel Coulombien, la section efficace différentielle de diffusion (SED) diverge vers l'avant ($\mathbf{k}_i = \mathbf{k}_f$). Cette singularité logarithmique dans la fonction de Legendre en est la trace.

Diffusion inélastique assistée par laser

En présence d'un champ laser, les diffusions inélastiques avec conservation de l'énergie deviennent envisageables avec la possibilité d'absorber ou d'émettre des photons. La SED du processus de diffusion de $\mathbf{k}_i \rightarrow \mathbf{k}_f(n)$ avec transfert de n photons tel que :

$$\frac{k_f^2(n)}{2} = \frac{k_i^2}{2} + n\omega; \omega \text{ est la fréquence laser,}$$

s'écrit :

$$\frac{d\sigma^n}{d\Omega} = \frac{k_f(n)}{k_i} |f^n(\mathbf{q})|^2.$$

$f^n(\mathbf{q})$, l'amplitude de probabilité associée, est, en général, difficile à calculer et est non trivialement liée à l'amplitude de diffusion hors champ laser.

Ce lien doit pouvoir être établi si nous souhaitons pouvoir exploiter les fonctions de Legendre dans le domaine inélastique, c'est-à-dire pour $x \neq 1$. Dans ce but, deux cas "limites" intéressants peuvent être considérés :

- [Bunkin *et al*, 66] ont montré que dans le cas où l'interaction avec le potentiel est faible (faible charge ou particule incidente très énergétique), on peut retrouver la première approximation de Born :

$$\frac{d\sigma^n}{d\Omega} = \frac{k_f(n)}{k_i} J_n^2(\mathbf{q} \cdot \boldsymbol{\alpha}) |f^B(\mathbf{q})|^2,$$

où $\boldsymbol{\alpha}$ représente l'amplitude du déplacement de la particule dans le champ laser et $J_n(x)$ est une fonction de Bessel d'ordre entier.

- Plus généralement, [Kroll *et al*, 73], dans la limite des champs basse fréquence, ont mis en évidence que :

$$\frac{d\sigma^n}{d\Omega} = \frac{k_f(n)}{k_i} J_n^2(\mathbf{q} \cdot \boldsymbol{\alpha}) |f(\mathbf{q})|^2,$$

où f correspond ici à l'amplitude de probabilité de diffusion exacte en l'absence de champ laser. Et, c'est justement l'intérêt de ces deux formules que de factoriser la SED en l'absence du champ dans la SED de diffusion assistée par laser.

Il est possible, grâce à cette factorisation, d'utiliser les fonctions Q_l pour nous renseigner sur l'effet du potentiel Coulombien pendant l'interaction avec le champ². L'information contenue dans $Q_l(x)$ pour $x \neq 1$ est capitale pour la compréhension des processus inélastiques (comme l'ionisation !) ayant cours pendant l'interaction laser-atome.

D'après la figure B.1, la symétrie s semble être une voie de diffusion inélastique privilégiée, puisqu'elle autorise de tels processus avec un transfert d'énergie élevé ($x \gg 1$). On peut aisément le comprendre, de plus, par

²en tous cas, pour le comportement aux hautes énergies.

le caractère isotrope de l'interaction Coulombienne. Plus on considère des symétries élevées moins les processus inélastiques sont favorisés.

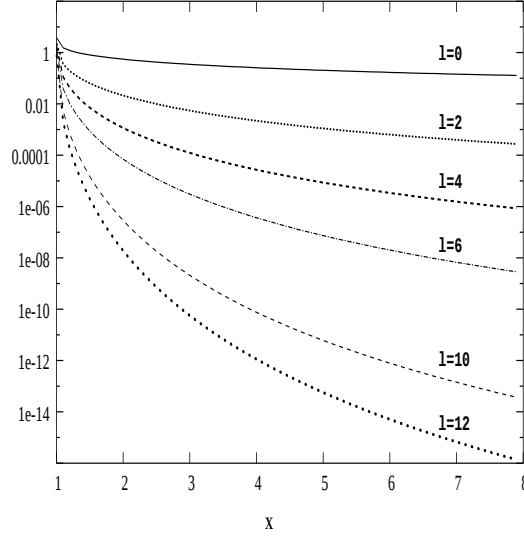


FIG. B.1: Fonction de Legendre du second genre $Q_l(x)$, pour différentes valeurs de l

B.3 Premiers états liés dans l'espace des impulsions

La fonction d'onde radiale associée à l'état fondamental de l'hydrogène s'exprime dans la représentation “**p**” par :

$$F_{10}(p) = \frac{2^{5/2}}{\sqrt{\pi}} \frac{1}{(p^2 + 1)^2} \quad (\text{B.20})$$

L'état de symétrie S suivant a comme expression :

$$F_{20}(p) = \frac{32}{\sqrt{\pi}} \frac{4p^2 - 1}{(4p^2 + 1)^3} \quad (\text{B.21})$$

Quant aux deux premiers états P, ils s'écrivent :

$$F_{21}(p) = \frac{128}{\sqrt{3\pi}} \frac{p}{(4p^2 + 1)^3} \quad (\text{B.22})$$

$$F_{31}(p) = \frac{864}{\sqrt{3\pi}} \frac{81p^4 - 30p^2 + 1}{(4p^2 + 1)^3} \quad (\text{B.23})$$

B.4 Le spectre continu et la théorie de la diffusion

Le spectre continu d'un système hydrogénoïde est un état stationnaire de diffusion par le potentiel Coulombien attractif, c'est presque une Lapalissade... Cela signifie, néanmoins, que nous pouvons traiter le problème de la détermination de ces états dans le cadre de la théorie de la diffusion.

B.4.1 Le spectre continu

L'équation de Lippmann-Schwinger formulée dans l'espace des " $\mathbf{r}$ " plus haut, peut être obtenue par la démarche suivante³ : le Hamiltonien atomique global consiste en la somme de deux opérateurs $H = H_0 + V$ où H_0 est l'opérateur énergie cinétique et V l'opérateur associé au potentiel Coulombien. La théorie générale est basée sur le fait que l'opérateur H_0 possède un spectre continu en énergie $E = k^2/2$ et une base d'états propres bien connus - les ondes planes notées $|\mathbf{k}\rangle \equiv \delta(\mathbf{p} - \mathbf{k})$ qui satisfont la relation de fermeture :

$$\int d\mathbf{p} |\mathbf{p}\rangle \langle \mathbf{p}| = \mathbf{I}, \quad (\text{B.24})$$

où $\mathbf{I}$ est l'opérateur identité. L'équation d'état satisfaite par un état propre de H , peut s'écrire

$$(E - H_0 - V) |\psi_k\rangle = 0. \quad (\text{B.25})$$

Si nous considérons un état propre particulier $|\phi_k^0\rangle$ de H_0 associé à l'énergie E : $(E - H_0) |\phi_k^0\rangle = 0$, il est alors possible d'écrire $|\psi_k\rangle = |\phi_k^0\rangle + |\chi_k\rangle$, où $|\chi_k\rangle$ satisfait :

$$(E - H_0) |\chi_k\rangle = V |\psi_k\rangle. \quad (\text{B.26})$$

$|\chi_k\rangle$ s'obtient en multipliant à gauche et à droite par l'opérateur inverse $(E - H_0)^{-1}$ mais avec la prescription $\pm i\epsilon$ qui permet de correctement traiter la singularité de cet opérateur. Nous obtenons alors deux déterminations possibles : $|\chi_k^\pm\rangle$ qui s'écrivent

$$|\chi_k^\pm\rangle = \frac{1}{E - H_0 \pm i\epsilon} V |\psi_k^\pm\rangle. \quad (\text{B.27})$$

En utilisant la relation de fermeture (B.24) et le fait que : $\chi_k^\pm(\mathbf{p}) = \langle \mathbf{p} | \chi_k^\pm \rangle$ on obtient l'équation intégrale que doivent satisfaire les états du continuum :

³cette démarche n'est en toute rigueur correcte que pour des potentiels à courte portée.

$$\psi_k^\pm(\mathbf{p}) = \delta(\mathbf{p} - \mathbf{k}) + \chi_k^\pm(\mathbf{p}) \quad (\text{B.28})$$

$$\chi_k^\pm(\mathbf{p}) = \frac{2}{(k + i\epsilon)^2 - p^2} \int d\mathbf{p}' \psi_k^\pm(\mathbf{p}') V(\mathbf{p} - \mathbf{p}'). \quad (\text{B.29})$$

B.4.2 Transformée de Fourier d'une onde Coulombienne

De manière à pouvoir caractériser le degré de précision que nous obtenons en évaluant numériquement les ondes Coulombiennes dans l'espace des moments, il nous faut connaître leur expression analytique. Nous avons donné dans la section 3.2.2, l'expression de l'onde Coulombienne tridimensionnelle déterminée par [Guth *et al*, 51, Antoine, 66]. Elle permet de mettre en évidence les singularités présentes dans la représentation “ $\mathbf{p}$ ” des états du continuum Coulombien mais n'est pas exploitable directement.

Notre décomposition initiale du problème sur la base des harmoniques sphériques nous impose de déterminer la Transformée de Fourier (TF), des fonctions Coulombiennes radiales $R_{kl}^{(+)}(r)$ que nous noterons $\Phi_{kl}^{(+)}(p)$. Rappelons que leur forme analytique a été déterminée par [Antoine, 66, Bander *et al*, 66], dans deux articles qui brandissent fièrement l'étendard de la théorie des groupes mais qui fournissent finalement une expression des $\Phi_{kl}^{(+)}(p)$ aussi peu “conviviale” que celle que nous nous apprêtons à proposer. Les connaissances limitées de l'auteur dans le domaine précédemment cité, lui ont fait préférer une démarche moins esthétique, certes, mais dont elle maîtrise au moins toutes les étapes. Bref, nous avons donc considéré la transformée de Fourier de la fonction radiale $R_{kl}^{(+)}(r)$ qui prend la forme :

$$\Phi_{kl}^{(+)}(p) = C \int_0^{+\infty} dr r^2 R_{kl}^{(+)}(r) j_l(pr) \quad (\text{B.30})$$

L'exposant (+) désigne les ondes *sortantes* auxquelles nous nous limitons pour le calcul de la TF sachant que la relation

$$R_{kl}^{(-)}(r) = (-1)^l \times \left[R_{kl}^{(+)}(r) \right]^\star \quad (\text{B.31})$$

nous permettra de déduire directement l'allure de la TF $\Phi_{kl}^{(-)}(p)$ des ondes *entrantes* $R_{kl}^{(-)}(r)$. Rappelons l'expression des ondes Coulombiennes radiales dans l'espace des configurations :

$$R_{kl}^{(+)}(r) = C_{kl} r^l e^{-ip \cdot r} M\left(l + 1 + \frac{iZ}{k}, 2l + 2; 2ikr\right) \quad (\text{B.32})$$

où la fonction $M(a, b; z)$ est la fonction de Kummer ou fonction hypergéométrique dégénérée. Le coefficient C_{kl} est défini de manière à norma-

liser les ondes Coulombiennes dans l'espace des moments et vaut :

$$C_{kl} = \frac{2^l}{(2l+1)!} \sqrt{\frac{2}{\pi}} k e^{\pi z/2k} \left| \Gamma \left(l+1 + \frac{iZ}{k} \right) \right|, \quad (\text{B.33})$$

ce que l'on peut mettre sous la forme :

$$C_{kl} = \frac{2^l}{(2l+1)!} k^l \frac{2\sqrt{k}}{\sqrt{1-e^{-2\pi z/k}}} \prod_{s=1}^l \sqrt{s^2 + \left(\frac{Z}{k} \right)^2}. \quad (\text{B.34})$$

Nous utilisons l'expression de la fonction de Bessel $j_l(pr)$ en terme de cette même fonction de Kummer :

$$j_l(pr) = (pr)^l e^{-ipr} M(l+1, 2l+2; 2ipr). \quad (\text{B.35})$$

Ces deux définitions nous permettent de mettre la TF à évaluer sous la forme :

$$\begin{aligned} \Phi_{kl}^{(+)}(p) &= C_{kl} p^l \lim_{\varepsilon \rightarrow 0^+} \int_0^{+\infty} dr r^{2l+2} e^{-(\varepsilon+i(k+p))r} \times \\ &\quad M \left(l+1 + \frac{iZ}{k}, 2l+2; 2ikr \right) \times \\ &\quad M(l+1, 2l+2; 2ipr) \end{aligned} \quad (\text{B.36})$$

Nous déterminons $\Phi_{kl}^{(+)}(p)$ à l'aide d'une intégrale de la forme

$$\begin{aligned} J &= \int_0^{+\infty} dz e^{-\lambda z} z^{\gamma-1} M(\alpha, \gamma; \kappa z) M(\alpha', \gamma; \kappa' z) \\ &= \Gamma(\gamma) \lambda^{\alpha+\alpha'-\gamma} (\lambda - \kappa)^{-\alpha} (\lambda - \kappa')^{-\alpha'} \times \\ &\quad F_{21} \left(\alpha, \alpha', \gamma; \frac{\kappa\kappa'}{(\lambda-\kappa)(\lambda-\kappa')} \right). \end{aligned} \quad (\text{B.37})$$

La démonstration correspondante peut être obtenue dans [Landau, 67(III)] (appendice d). L'intégrale recherchée est de la forme

$$H_l = -\frac{\partial}{\partial \lambda} J. \quad (\text{B.38})$$

où

$$\begin{cases} \lambda = \varepsilon + i(k+p) \\ \kappa = 2ik \\ \kappa' = 2ip \end{cases} \quad (\text{B.39})$$

Il ne "reste plus qu'à" effectuer la dérivée et réarranger les termes de manière à pouvoir extraire les singularités qui contribueront lors du passage à la limite. Il s'agit d'une étape aussi importante que fastidieuse, nous nous

contenterons de rappeler les quelques propriétés nécessaires au bon déroulement des opérations (cf. [Abramovitz, 70], chapitre 15) :

$$\frac{d}{dz} F_{21}(a, b, c; z) = \frac{ab}{c} F_{21}(a+1, b+1, c+1; z) \quad (\text{B.40})$$

$$c(1-z) F_{21}(a, b, c; z) = c F_{21}(a-1, b, c; z) - (c-b) z F_{21}(a, b, c+1; z) \quad (\text{B.41})$$

$$\begin{aligned} F_{21}(a, b, c-n; z) &= \frac{\Gamma(c-n)}{\Gamma(c)} z^{-c+n+1} \times \\ &\quad \frac{d^n}{dz^n} [z^{c-1} F_{21}(a, b, c; z)] \\ F_{21}(a, b, c; z) &= (1-z)^{-a} \frac{\Gamma(c) \Gamma(b-a)}{\Gamma(b) \Gamma(c-a)} \times \\ &\quad F_{21}\left(a, c-b, a-b+1; \frac{1}{1-z}\right) + \\ &\quad (1-z)^{-a} \frac{\Gamma(c) \Gamma(a-b)}{\Gamma(a) \Gamma(c-b)} \times \\ &\quad F_{21}\left(b, c-a, b-a+1; \frac{1}{1-z}\right) \end{aligned} \quad (\text{B.42})$$

Quelques pages plus tard, donc nous obtenons H_l sous la forme :

$$\begin{aligned} H_l &= -2 \frac{iZ}{k} \frac{(\Gamma(2l+2))^2}{\Gamma(l+1)} \left| \frac{\Gamma\left(\frac{iZ}{k}\right)}{\Gamma\left(l+1+\frac{iZ}{k}\right)} \right|^2 \times \\ &\quad \frac{1}{(\varepsilon^2 + (p+k)^2)^{l+1}} \times \frac{1}{\varepsilon^2 + (p-k)^2} \times F_l(p, k, \varepsilon) \end{aligned} \quad (\text{B.43})$$

avec :

$$\begin{aligned} F_l(p, k, \varepsilon) &= 2iZ \frac{\varepsilon - i(p-k)}{\varepsilon + i(p+k)} \times \text{Im} \left(a g_1^l \right) + \\ &\quad \varepsilon a \left[\frac{iZ}{k} \left(g_1^l - g_3^l \right) + l g_3^l \right] + \\ &\quad \varepsilon (l+1) \bar{a} \left(g_2^l - (1-u) g_4^l \right). \end{aligned} \quad (\text{B.44})$$

Nous avons introduit les notations suivantes :

$$a = \left| \frac{\varepsilon + i(p+k)}{\varepsilon + i(p-k)} \right|^{\frac{iZ}{k}} \quad (\text{B.45})$$

$$u = \frac{\varepsilon^2 + (p-k)^2}{\varepsilon^2 + (p+k)^2} \quad (\text{B.46})$$

$$g_1^l = \frac{d^l}{du^l} \left(u^{l+\frac{iZ}{k}} (1-u)^{-(l+1)} \right)$$

$$\begin{aligned}
g_2^l &= \frac{d^l}{du^l} \left(u^{l-\frac{iZ}{k}} (1-u)^{-(l+1)} \right) \\
g_3^l &= \frac{d^l}{du^l} \left(u^{l+1+\frac{iZ}{k}} (1-u)^{-(l+1)} \right) \\
g_4^l &= \frac{d^l}{du^l} \left(u^{l-\frac{iZ}{k}} (1-u)^{-(l+2)} \right)
\end{aligned} \tag{B.47}$$

A l'aide de la formule de Leibniz,

$$\frac{d^n}{dx^n}(gf) = \sum_{m=0}^n \binom{n}{m} \frac{d^m}{dx^m} g \frac{d^{n-m}}{dx^{n-m}} f,$$

Nous pouvons établir les relations suivantes :

$$g_3^l = u g_1^l + h_1^l \tag{B.48}$$

$$h_1^l = \binom{l}{1} \frac{d^{l-1}}{dx^{l-1}} \left(u^{l+\frac{iZ}{k}} (1-u)^{-(l+1)} \right) \tag{B.49}$$

$$g_2^l = (1-u) g_4^l - h_2^l \tag{B.50}$$

$$h_2^l = \binom{l}{1} \frac{d^{l-1}}{dx^{l-1}} \left(u^{l-\frac{iZ}{k}} (1-u)^{-(l+2)} \right) \tag{B.51}$$

Posons $\eta = \frac{iZ}{k}$ et :

$$u^{\pm i\eta} D_{\alpha\beta}^\nu = \frac{d^\alpha}{du^\alpha} \left(u^{\beta \pm i\eta} (1-u)^{-\nu} \right).$$

qui peut, en utilisant une nouvelle fois la formule de Leibniz, se mettre sous la forme finale :

$$\begin{aligned}
D_{\alpha\beta}^\nu &= \Gamma \left(\beta + 1 \pm \frac{iZ}{k} \right) \Gamma(\nu + 1) \left[\frac{\varepsilon^2 + (p-k)^2}{\varepsilon^2 + (p+k)^2} \right]^{\beta-\alpha} \times \\
&\quad \left[\frac{\varepsilon^2 + (p+k)^2}{4kp} \right]^\nu \times \sum_{j=0}^\alpha e_{\alpha\beta}^\nu(j) \left[\frac{\varepsilon^2 + (p-k)^2}{4kp} \right]^j
\end{aligned} \tag{B.52}$$

où :

$$e_{\alpha\beta}^\nu(j) = \binom{\alpha}{j} \times \frac{1}{\Gamma(\beta - \alpha \pm i\eta + j + 1) \Gamma(\nu + 1 - j)}$$

Nous utilisons le fait que

$$\bar{a} = a u^{\frac{iZ}{k}} \text{ et } a = \bar{a} u^{-\frac{iZ}{k}}$$

ainsi que les relations (B.44, B.51 et B.52) pour réécrire la fonction $F(p, k, \varepsilon)$ sous la forme :

$$F_l(p, k, \varepsilon) = 2iZ \frac{\varepsilon - i(p-k)}{\varepsilon + i(p+k)} \times D_{ll}^{l+1} \text{Im}(\bar{a}) +$$

$$\begin{aligned}
& \frac{iZ}{k} \varepsilon \bar{a} (1-u) D_{ll}^{l+1} - \\
& \varepsilon \bar{a} \left[l u D_{ll}^{l+1} + \left(l - \frac{iZ}{k} \right) \binom{l}{1} D_{l-1l}^{l+1} \right] - \\
& \varepsilon (l+1) a \binom{l}{1} D_{l-1l}^{l+2}
\end{aligned} \tag{B.53}$$

Résumons la situation :

$$\Phi_{kl}^{(+)}(p) = C_{kl} p^l \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} H_l \tag{B.54}$$

D'après les équations (B.43 et B.53), lors du passage à la limite, les termes en $(\varepsilon^2 + (p-k)^2)^{-1}$ seront responsables des singularités. Grâce à l'expression (B.52), nous pouvons facilement montrer que les termes en :

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon D_{\alpha\beta}^\nu &\rightarrow 0 \text{ si } \beta > \alpha \\ \varepsilon u D_{\alpha\alpha}^\nu &\rightarrow 0 \end{aligned} \right\} \Rightarrow \begin{aligned} &\text{les 2 dernières lignes de (B.53) vont} \\ &\text{disparaître au passage à la limite.} \end{aligned}$$

Et de même, dans le terme D_{ll}^{l+1} restant, la somme sur j va, à la limite, se réduire au premier terme $j = 0$ de telle sorte que :

$$\begin{aligned}
F_l(p, k, \varepsilon) = & \frac{iZ}{k} \frac{\Gamma(l+1 + \frac{iZ}{k})}{2\Gamma(1 + \frac{iZ}{k})} \times \left(\frac{\varepsilon^2 + (p+k)^2}{4kp} \right)^l \times \\
& \left\{ \frac{\varepsilon^2 - (p-k)(p+k)}{p} \text{Im}(\bar{a}) + 2\varepsilon \text{Re}(\bar{a}) \right\}
\end{aligned} \tag{B.55}$$

Nous pouvons finalement reconstituer $\Phi_{kl}^{(+)}(p)$ en utilisant les équations (B.33, B.43 et B.55) pour obtenir :

$$\begin{aligned}
\Phi_{kl}^{(+)}(p) = & \frac{\Gamma(2l+2)}{\Gamma(l+1)} \frac{\sqrt{kZ}}{(2k)^l \sqrt{1 - e^{-2\pi Z/k}}} \frac{e^{i\phi_l}}{(p+k)^2} \times \\
& \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \left\{ 2 \frac{\varepsilon}{\varepsilon^2 + (p-k)^2} \text{Re}(\bar{a}) - \right. \\
& \left. \frac{p+k}{p} \frac{p-k}{\varepsilon^2 + (p-k)^2} \text{Im}(\bar{a}) \right\}
\end{aligned} \tag{B.56}$$

avec :

$$\phi_l = \sum_{s=1}^l \arg\left(s + \frac{iZ}{k}\right) \tag{B.57}$$

et :

$$\begin{aligned}
\bar{a} &= \left(\frac{\varepsilon - i(p-k)}{\varepsilon - i(p+k)} \right)^{\frac{iZ}{k}} \\
&= e^{\frac{iZ}{2k} \ln \left(\frac{\varepsilon^2 + (p-k)^2}{\varepsilon^2 + (p+k)^2} \right)} Y^{(+)}(p, k)
\end{aligned} \tag{B.58}$$

La fonction $Y^{(+)}(p, k)$ est définie par morceaux, et dans le cas d'une *onde sortante* vaut :

$$Y^{(+)}(p, k) = \begin{cases} e^{-\pi \frac{Z}{k}} & \text{si } p < k \\ 1 & \text{si } p > k \end{cases}$$

Pour obtenir l'expression de $\Phi_{kl}^{(-)}(p)$ il suffit d'effectuer la substitution $k \rightarrow -k$ et $Z \rightarrow -Z$. Cette substitution laisse formellement $\Phi_{kl}^{(-)}(p)$ identique à $\Phi_{kl}^{(+)}(p)$ si ce n'est que le traitement du logarithme nous impose de définir la fonction $Y^{(-)}(p, k)$ telle que :

$$Y^{(-)}(p, k) = \begin{cases} e^{\pi \frac{Z}{k}} & \text{si } p < k \\ 1 & \text{si } p > k \end{cases}$$

Nous avons de cette manière mis en évidence les deux singularités qui interviennent dans le développement d'une onde partielle Coulombienne définie dans l'espace des moments. Pour terminer, nous rappellerons que :

- la distribution de Dirac s'écrit entre autres sous la forme :

$$\delta(x) = \frac{1}{\pi} \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \frac{\varepsilon}{\varepsilon^2 + x^2} \quad (\text{B.59})$$

- La partie principale de Cauchy est définie comme :

$$\frac{\mathcal{P}}{x} = \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \frac{x}{\varepsilon^2 + x^2} \quad (\text{B.60})$$

de manière à identifier les deux singularités présentes dans le développement (B.56).

B.4.3 Couplage radiatif 1s-continuum $\langle 1s | p_z | \Psi_{kl}^{(+)} \rangle$

Grâce au développement de la section précédente, le calcul de cet élément de matrice est quasiment immédiat.

$$\Psi_{\mathbf{k}}^{(+)}(\mathbf{r}) = \sum_{l,m} i^l R_{kl}^{(+)}(r) Y_{lm}(\theta_r, \phi_r) Y_{lm}^*(\theta_k, \phi_k).$$

Tout d'abord, rappelons que l'on peut évaluer très simplement les couplages en p_z à partir des couplages dipolaires en utilisant la relation :

$$p_z^{op} = \frac{d}{dt} z^{op} = [z^{op}, H_{atomique}]$$

Ce qui permet de montrer simplement que :

$$\langle 1s | p_z | \Psi_{\mathbf{k}}^{(+)} \rangle = (E_k - E_{1s}) \langle 1s | z | \Psi_{\mathbf{k}}^{(+)} \rangle \text{ avec } E_k = \frac{k^2}{2}.$$

En dissociant parties radiale et angulaire et en utilisant les règles de sélection sur les couplages dipolaires, les ondes s ne peuvent être couplées qu'aux ondes p et l'élément de matrice devient alors :

$$\langle 1s | z | \Psi_{\mathbf{k}}^{(+)} \rangle = \langle 1s | r | R_{k1}^{(+)} \rangle \underbrace{\sqrt{\frac{4\pi}{3}} \langle Y_{00} | Y_{10} | Y_{10} \rangle}_{\frac{1}{\sqrt{3}}} Y_{10}^*(\theta_k, \phi_k).$$

et il ne reste plus qu'à évaluer l'intégrale :

$$\langle 1s | r | R_{k1}^{(+)} \rangle = \int_0^{+\infty} dr r^3 \Phi_{1s}(r) R_{k1}^{(+)}(r)$$

Sachant que $\Phi_{1s}(r) = 2e^{-r}$ et en utilisant l'équation (B.32), nous devons en fait évaluer :

$$J = \int_0^{+\infty} dr r^4 e^{-(1+ik)r} M\left(2 + \frac{iZ}{k}, 4; 2ikr\right)$$

dont la solution (cf. [Landau, 67(III)]) s'écrit :

$$J = \Gamma(5) (1+ik)^{-5} F_{21}\left(5, 2 + \frac{iZ}{k}, 4; \frac{2ik}{1+ik}\right)$$

Sachant que :

$$\frac{d^n}{dz^n} (z^{a+n-1} F_{21}(a, b, c; z)) = \frac{\Gamma(a+n)}{\Gamma(a)} z^{a-1} F_{21}(a+n, b, c; z)$$

et :

$$F_{21}(a, b, b; z) = (1-z)^{-a}$$

nous pouvons obtenir :

$$F_{21}\left(5, 2 + \frac{iZ}{k}, 4; \frac{2ik}{1+ik}\right) = \frac{1}{2(1+ik)} \left(\frac{1-ik}{1+ik}\right)^{-3 - \frac{iZ}{k}}$$

qui nous permet de conclure sur l'expression du couplage (en considérant $Z = 1$) :

$$\langle 1s | p_z | \Psi_{\mathbf{k}}^{(+)} \rangle = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{\sqrt{k}}{\sqrt{1 - e^{-2\pi/k}}} \frac{e^{-\frac{2}{k} \text{Atan}(k)}}{(k^2 + 1)^{3/2}} \cos \theta_k, \quad (\text{B.61})$$

où $\cos \theta_k = k_z/k$. Remarquons pour terminer que le facteur $\sqrt{k}$ présent au numérateur dépend de l'espace - énergie ou impulsion - dans lequel les fonctions Coulombiennes sont normalisées. Le couplage n'a donc pas le même comportement à l'origine suivant la condition de normalisation choisie.

Annexe C

Approximation des solutions par des splines

C.1 Les fonctions B-splines

A un facteur de normalisation près, les fonctions B-splines utilisées dans notre méthode de résolution ont été introduites par [Curry et al, 47] et sont définies de la manière suivante¹ :

Définition 3 Soit $t := \{t_i\}$ une séquence croissante de noeuds (finie ou infinie), la i^e B-spline d'ordre k pour la séquence t notée $B_{i,t}^k$ est définie par la relation :

$$B_{i,t}^k(x) = (t_{i+k} - t_i) [t_i, \dots, t_{i+k}](\bullet - x)_+^{k-1} \quad \forall x \in \mathbb{R} \quad (\text{C.1})$$

Nous devons expliciter deux notations utilisées dans cette définition :

1. $[t_i, \dots, t_{i+k}]g$ est la k^e différence divisée de la fonction g . Elle intervient dans l'interpolation polynômiale de la fonction g suivant le procédé de Newton que nous rappelons en appendice C.1.1
2. $(\bullet - x)_+^{k-1} = \max((\bullet - x), 0)^{k-1}$ est la notation de "Placeholder", le $\bullet$ correspond à la variable muette sur laquelle s'applique la différence divisée, x étant fixée.

Par souci de clarté, nous simplifions la notation des B-splines :

$$B_{i,t}^k \longmapsto B_i.$$

Cette simplification est d'autant plus justifiée que pour un problème donné, la séquence t ainsi que l'ordre k définissent une séquence de B-splines particulière. Ils sont donc implicites à chaque utilisation de B_i .

¹il s'agit de la définition formelle des B-splines, une définition plus "pratique" est rappelée dans l'appendice C.3

Il est important de remarquer que la séquence $\{t_i\}$ est simplement croissante, ce qui signifie que les collocations $t_s = t_{s+1} = \dots = t_{s+l}$ ne sont pas exclues de la définition des B-splines.

C.1.1 Différences divisées d'une fonction g

Interpolation polynômiale : forme de Newton

Pour comprendre la méthode d'évaluation des différences divisées intervenant dans la définition des B-splines, il nous faut considérer une fonction g connue sur une séquence croissante $\{\tau_i\} : \forall i, g_i = g(\tau_i)$. Nous voulons interpoler cette fonction g par un polynôme d'ordre n $p_n(x)$ et déterminer plus précisément les coefficients qui interviennent dans la forme de Newton de $p_n(x)$:

$$p_n(x) = \sum_{i=1}^n a_i \prod_{m=1}^{i-1} (x - \tau_m) \quad (\text{C.2})$$

les coefficients a_i peuvent être déterminés successivement, en se basant sur l'hypothèse que $p_n(x)$ coïncide avec g aux points τ_i et en ajoutant un point de la séquence à chaque étape. Considérons $[\tau_1, \tau_2]$, on peut par ces 2 points faire passer un polynôme d'ordre 2, $p_2(x)$ tel que $p_2(\tau_1) = g_1$ et $p_2(\tau_2) = g_2$. Ajoutons maintenant le point τ_3 , pour former un polynôme d'ordre 3 $p_3(x)$ qui coïncide avec g en (τ_1, τ_2, τ_3) , il faut, bien entendu, que $p_3(\tau_1) = g_1$, $p_3(\tau_2) = g_2$. Par conséquent, $p_3(x)$ doit s'écrire :

$$p_3(x) = p_2(x) + q(x) \quad (\text{C.3})$$

$q(x)$ étant uniquement défini par :

$$q(x) = C(x - \tau_1)(x - \tau_2) \quad (\text{C.4})$$

C est appelée la 2^e **différence divisée de g aux points** (τ_1, τ_2, τ_3) , elle est notée : $[\tau_1, \tau_2, \tau_3]g$. On en déduit les coefficients a_i intervenant dans la décomposition de Newton de $p_n(x)$.

$$a_i = [\tau_1, \dots, \tau_i]g \quad (\text{C.5})$$

a_i est la $(i - 1)^e$ différence divisée de g sur le segment $[\tau_1, \tau_i]$. les deux premiers coefficients sont :

$$\begin{aligned} a_1 = [\tau_1] &= g_1 \\ a_2 = [\tau_1, \tau_2] &= \frac{g_1 - g_2}{\tau_1 - \tau_2} \end{aligned}$$

Il existe (de Boor p11) une relation de récurrence qui permet de déterminer la l^e différence divisée de g sur le segment $[\tau_i, \tau_{i+l}]$:

$$[\tau_i, \dots, \tau_{i+l}]g = \frac{[\tau_{i+1}, \dots, \tau_{i+l}]g - [\tau_i, \dots, \tau_{i+l-1}]g}{\tau_{i+l} - \tau_i} \quad (\text{C.6})$$

avec $\forall s \in [i, i + l]$:

$$\begin{aligned} [\tau_s] &= g_s \\ [\tau_s, \tau_{s+1}] &= \frac{g_s - g_{s+1}}{\tau_s - \tau_{s+1}} \end{aligned}$$

Pour initialiser la récurrence. Les autres propriétés des différences divisées sont exhaustivement rappelées dans [Boor, 78].

C.2 Propriétés

De la définition des B-splines découle un certain nombre de propriétés [Boor, 78].

1. Compacité du support

D'après la définition (3), et celle des différences divisées (*cf.* appendice C.1.1) :

$$\text{si } x \notin [t_i, t_{i+k}] \Rightarrow B_i(x) = 0 \quad (\text{C.7})$$

ce qui implique que sur $[t_j, t_{j+1}]$, seules k B-splines sont non-nulles :

$$\left. \begin{array}{l} B_j(x) \quad \text{dont le support commence en } t_j \\ \vdots \\ B_{j-k+1}(x) \quad \text{dont le support finit en } t_{j+1} \end{array} \right\} \neq 0 \text{ si } x \in [t_j, t_{j+1}]$$

2. Positivité

$B_i(x)$ est positive sur son support :

$$B_i(x) > 0; \text{ si } x \in]t_i, t_{i+k}[\quad (\text{C.8})$$

3. Partition de l'unité

$$\forall x \in]t_r, t_s[, \quad \sum_{i=r-k+1}^{s-1} B_i(x) = 1 \quad (\text{C.9})$$

la séquence $\{B_i\}$ étant positive, la propriété précédente implique qu'elle forme une partition de l'unité.

C.3 Evaluation numérique des B-splines

Utiliser l'algorithme des différences divisées intervenant dans la définition d'une B-spline et rappelé dans l'appendice C.1.1 est numériquement instable.

Cependant, ce même algorithme permet d'établir la relation de récurrence suivante :

$$B_{i,k}(x) = \frac{x - t_i}{t_{i+k-1} - t_i} B_{i,k-1}(x) + \frac{t_{i+k} - x}{t_{i+k} - t_{i+1}} B_{i+1,k-1}(x) \quad (\text{C.10})$$

Cet algorithme de calcul des B-splines est d'autant plus efficace numériquement, qu'il va nous permettre de calculer simultanément les k B-splines d'ordre k non nulles en un point x donné.

C.4 Théorème de Curry et Schoenberg

De manière à ce que les fonctions B-splines puissent former une base de $\mathbf{IP}_{k,\xi,\nu}$, la séquence de noeuds $\{t_i\}$ doit être construite à partir des séquences $\{\xi_i\}$ et $\{\nu_i\}$. L'algorithme de construction est donné par le théorème de [Curry et al, 66]. Ce dernier permet le développement d'une fonction spline $\Phi_{lm}(p, t)$ en terme de B-spline, on parle aussi de sa B-représentation :

$$\phi_{lm}(p, t) = \sum_{i=1}^n a_i^{lm}(t) B_i(p). \quad (\text{C.11})$$

Théorème 1 (Curry et Schoenberg, 1966) *Soit une séquence strictement croissante $\xi := \{\xi_i\}_1^{l+1}$ et une séquence d'entiers non négatifs $\nu := \{\nu_i\}_2^l$ avec $\nu_i \leq k \forall i$:*

$$\begin{aligned} \text{Si l'on pose } n = k + \sum_{i=2}^l (k - \nu_i) &= kl - \sum_{i=2}^l \nu_i \\ &= \dim \mathbf{IP}_{k,\xi,\nu} \end{aligned} \quad (\text{C.12})$$

et que l'on considère une séquence non décroissante $t := \{t_i\}_1^{n+k}$ telle que :

$$1. \ t_1 \leq t_2 \leq \dots \leq t_k \leq \xi_1 \text{ et } \xi_{l+1} \leq t_{n+1} \leq \dots \leq t_{n+k}$$

$$2. \ \forall i = 2, \dots, l; \ \xi_i \text{ apparaît } k - \nu_i^2 \text{ fois dans la séquence } t$$

alors la séquence $B_1, \dots, B_n$ de B-splines d'ordre k pour la séquence de noeuds t est une base de $\mathbf{IP}_{k,\xi,\nu}$ sur le segment $[t_k, t_{n+1}]$.

Une démonstration de ce théorème est effectuée par [Boor, 78]. Nous disposons dorénavant d'une base pour $\mathbf{IP}_{k,\xi,\nu}$ et d'une procédure pour la construire. Remarquons l'importance des $\{\nu_i\}$: ils établissent le lien entre la séquence de points d'arrêt $\{\xi_i\}$ paramétrant $\mathbf{IP}_{k,\xi,\nu}$ et la séquence de noeuds

² $k - \nu_i$ est appelé la multiplicité d'un noeud

$\{t_i\}$ définissant les $\{B_i\}_1^n$. Ces conditions de continuité $\{\nu_i\}$ sont, par conséquent, en grande partie responsables de la souplesse d'utilisation des B-splines puisque l'on peut imposer une condition de continuité quelconque $\nu_i \leq k$ en un point ξ_i simplement en y plaçant $k - \nu_i$ noeuds de t ! Remarquons également que ν_1 et ν_{l+1} ne sont pas imposées ; ce qui laisse un degré de liberté supplémentaire dans la construction de la base du point de vue des conditions aux limites.

Nous terminons cet exposé de la méthode par la construction pratique de la base des B-splines dans l'espace des moments.

C.5 Construction de la base des B-splines

D'après les propriétés énumérées dans l'appendice C.2, il nous reste à définir les paramètres nécessaires à la construction de cette base, mais cette fois-ci, en leur attribuant leur signification physique.

“Mise en boîte” des solutions

En toute rigueur, les solutions recherchées doivent être définies sur la demi-droite réelle : $[0, +\infty[$; ce qui est possible, d'après la définition 3. Numériquement, nous devons substituer à l'infini une valeur p_{max} *a priori* élevée. On parle alors de résoudre le problème dans une “boîte”. Puisque nous travaillons dans l'espace des impulsions et que p est reliée - pour une onde plane - à l'énergie par la relation $E = p^2/2$, en se restreignant à une valeur p_{max} , nous limitons le domaine d'énergie accessible à la particule. Cette restriction limite la précision sur les énergies des états propres du système atomique mais n'est pas problématique du point de vue de l'interaction laser-atome que nous analysons par la suite puisque nous travaillons avec des quantités d'énergies finies. Une fois p_{max} fixé, nous posons donc que :

La B-représentation de $\phi_{lm}(p, t)$ sera effectuée sur $[0, p_{max}]$

ξ et la discrétisation du continuum d'énergie

Sur le segment choisi, nous pouvons définir la séquence de points d'arrêt $\xi := \{\xi_i; \forall i = 1, \dots, l+1, \xi_i \in [0 : p_{max}]\}$. Cette étape révèle un des intérêts principaux du tandem que forment l'espace des impulsions et la base des B-splines. En effet, quel que soit l'espace - impulsion ou configuration - choisi pour décrire le système atomique, le développement des solutions sur une base de fonctions de carré sommable entraîne une discrétisation du continuum d'énergie accessible à l'électron.

Rappelons la méthode analogue en “**r**” qui consiste à développer la fonction d'onde sur une base de B-splines [Cormier *et al*, 96] dans une boîte de

dimension R_{max} , la densité d'états du continuum $\rho(E)$ est effectivement connue et s'écrit :

$$\rho(E) = \frac{R_{max}}{\pi\sqrt{2E}}. \quad (C.13)$$

Il est donc possible, en ajustant la taille de la boîte et le nombre de B-splines, de connaître *a priori* la discrétisation du continuum obtenu dans l'espace des configurations. Cependant, nous estimons que l'espace des impulsions est une représentation privilégiée pour *contrôler* cette discrétisation puisqu'un point de cet espace correspond à une énergie fixée pour une particule libre. En utilisant des B-splines, nous avons le libre choix de la séquence des points d'arrêt ξ ! L'allure *qualitative* de la densité d'états peut donc être *modifiée* "à loisir" en regard de l'expression (C.13) imposée dans une méthode "spectrale" utilisant des B-splines dans l'espace des configurations.

Choisir une séquence ξ revient à fixer une discrétisation du continuum "libre". Cette affirmation est vérifiée dans l'appendice D.4. Nous y montrons, de plus, que l'introduction du potentiel Coulombien ne modifie pas fondamentalement cette discrétisation.

Les conditions de continuité ν

Pour un ordre de B-splines fixé k , nous savons qu'entre deux points d'arrêt : $\xi_i < p < \xi_{i+1}$, les fonctions que nous allons représenter satisferont la condition maximale de continuité : $\phi_{lm} \in \mathbb{C}^{k-1}$. Il reste à imposer les conditions de continuité aux points d'arrêt $\{\xi_i; i = 2, \dots, l\}$.

Il est souhaitable d'assurer un maximum de continuité en ces points également :

$$\forall i = 2, \dots, l; \nu_i = k - 1 \text{ soit } \phi_{lm} \in \mathbb{C}^{k-2}.$$

En ce qui concerne ν_1 et ν_{l+1} , le théorème de Curry-Schoenberg nous laisse une entière liberté quant à leur choix. Une possibilité serait de considérer que, la solution n'étant approximée que sur le segment $[0, p_{max}]$, son comportement en dehors est inconnu et donc aucune continuité n'est requise : $\nu_1 = \nu_{l+1} = 0$. Mais cette solution n'est pas acceptable physiquement, nous devons, au moins imposer la continuité des fonctions aux bords de la boîte.

Pour la séquence ξ choisie, des conditions de continuité ν possibles ayant une signification physique correspondent au choix :

$$\nu_i = \begin{cases} k-1 & \text{si } 2 \leq i \leq l, \\ 1 & \text{si } i = 1, l+1. \end{cases} \quad (C.14)$$

Construction de la séquence de nœuds t

Nous arrivons maintenant à l'ultime étape de la construction de la base des B-splines : la définition de la séquence de nœuds t compte tenu des séquences ξ et ν désormais fixées. Il est courant de résumer la construction de la séquence t sous la forme du tableau C.1. La dimension de l'es-

ξ		$\xi_1 = 0$	ξ_2	$\cdots$	ξ_i	$\cdots$	ξ_l	$\xi_{l+1} = p_{max}$	
ν		1	$k-1$	$\cdots$	$k-1$	$\cdots$	$k-1$	1	
t	t_1	t_2 $\vdots$ t_k	t_{k+1}	$\cdots$	t_{i+k-1}	$\cdots$	t_n	t_{n+1} $\vdots$ t_{n+k-1}	t_{n+k}

TAB. C.1: Conversion des points d'arrêt en nœuds

pace $\mathbf{IP}_{k,\xi,\nu}$ ainsi engendré vaut d'après le théorème de Curry-Schoenberg : $n = k + l - 1$. Remarquons que, de manière à assurer la continuité des fonctions en 0, nous devons nécessairement imposer $t_1 < 0$, mais cette contrainte ne pose aucun problème car le segment sur lequel la base est définie demeure $[t_k, t_{n+1}]$.

Pratiquement, une fois la séquence de nœuds t fixée, les B-splines sont évaluées numériquement grâce à la définition donnée en appendice C.3.

Annexe D

L'équation de Schrödinger dépendante du temps

D.1 Formulation matricielle

Nous considérons l'équation de Schrödinger en restreignant notre étude aux champs laser polarisés linéairement suivant z :

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Phi_V(\mathbf{p}, t) = \left(\frac{\mathbf{p}_{op}^2}{2} + A(t) \cdot \mathbf{p}_z + V \right) \Phi_V(\mathbf{p}, t), \quad (\text{D.1})$$

Les solutions recherchées sont de la forme :

$$\Phi_V(\mathbf{p}, t) = \sum_{i=1}^n \sum_{l=0}^{l_{max}} \sum_{m=-l}^l a_i^{lm}(t) f_i(p) Y_{lm}(\theta_p, \phi_p). \quad (\text{D.2})$$

Pour arriver à la formulation matricielle, nous utiliserons la notation de Dirac :

$$|i\rangle \leftrightarrow f_i(p) \text{ et } |lm\rangle \leftrightarrow Y_{lm}(\theta_p, \phi_p)$$

associée aux deux produits scalaires :

$$\begin{aligned} \langle i | j \rangle &= \int_0^{+\infty} dp \, p^2 f_i(p) f_j(p) \\ \langle lm | l'm' \rangle &= \int_0^{2\pi} d\phi_p \int_0^\pi d\theta_p Y_{lm}^*(\theta_p, \phi_p) Y_{l'm'}(\theta_p, \phi_p) \end{aligned}$$

A l'aide d'une telle formulation nous pouvons réécrire (D.1) :

$$i \sum_{i,l,m} \frac{d}{dt} a_i^{lm}(t) |i\rangle |lm\rangle = \sum_{i,l,m} \left(\frac{\mathbf{p}_{op}^2}{2} + A(t) \cdot \mathbf{p}_z + V \right) a_i^{lm}(t) |i\rangle |lm\rangle \quad (\text{D.3})$$

En projetant sur un état $\langle l'm' | \langle j |$, nous obtenons la formulation matricielle souhaitée :

$$i\mathbf{S} \frac{d}{dt} \Phi_{\mathbf{V}}(t) = (\mathbf{H}_{cin} + \mathbf{V} + A(t) \cdot \mathbf{P}_{\mathbf{z}}) \Phi_{\mathbf{V}}(t). \quad (\text{D.4})$$

Nous avons tout d'abord :

$$\langle jl'm' | \mathbf{H}_{cin} | ilm \rangle = \left\langle j \left| \frac{\mathbf{p}^2}{2} \right| i \right\rangle \times \delta_{ll'} \delta_{mm'} \quad (\text{D.5})$$

$$\langle jl'm' | \mathbf{V} | ilm \rangle = \langle j | V_l | i \rangle \times \delta_{ll'} \delta_{mm'} \quad (\text{D.6})$$

$$\langle jl'm' | \mathbf{S} | ilm \rangle = \langle j | i \rangle \times \delta_{ll'} \delta_{mm'} \quad (\text{D.7})$$

Les trois matrices associées seront toutes bloc diagonales en l et m . la dimension d'un bloc ne vaut plus que $n \times n$. Les $(l_{max} + 1)$ blocs de $\mathbf{H}_{cin}$ et $\mathbf{S}$ sont tous identiques puisqu'indépendants de l et de m contrairement à la la matrice Coulombienne qui dépend explicitement de l . Dorénavant, $\mathbf{H}_{cin}$ et $\mathbf{S}$ désigneront un bloc de dimension $n \times n$ et non plus les matrices entières.

Du point de vue du couplage laser-atome, étant donné que :

$$p_z = \sqrt{\frac{4\pi}{3}} p Y_{10}(\theta_p, \phi_p),$$

nous devons calculer des éléments de matrice de la forme :

$$\langle jl'm' | \mathbf{P}_{\mathbf{z}} | ilm \rangle = \sqrt{\frac{4\pi}{3}} \langle j | P | i \rangle \langle l'm' | Y_{10} | lm \rangle.$$

Les règles de sélection s'appliquant sur les éléments $\langle l'm' | Y_{10} | lm \rangle$ conduisent à :

$$\langle l'm' | Y_{10} | lm \rangle \neq 0 \text{ ssi } \begin{cases} l' = l \pm 1 \\ m' = m \end{cases}.$$

Par conséquent, seuls les blocs de la première subdiagonale (inférieure et supérieure) sont non nuls. De plus,

$$\langle l'm' | Y_{10} | lm \rangle = \langle lm | Y_{10} | l'm' \rangle^*,$$

c'est-à-dire que les blocs symétriques par rapport à la diagonale, sont transposés conjugués l'un de l'autre. $\mathbf{P}_{\mathbf{z}}$ est une matrice hermitienne. Enfin, rappelons que :

$$\langle l-1 m | Y_{10} | lm \rangle = \sqrt{\frac{3}{4\pi}} \times \left(\frac{(l-m)(l+m)}{(2l-1)(2l+1)} \right)^{1/2}$$

Pour obtenir par exemple :

$$\langle jl-1 m | \mathbf{P}_{\mathbf{z}} | ilm \rangle = \langle j | P | i \rangle \left(\frac{(l-m)(l+m)}{(2l-1)(2l+1)} \right)^{1/2}. \quad (\text{D.8})$$

Le nombre quantique m n'est pas modifié lors de l'interaction. Ce qui signifie que si l'état initial est défini par un seul m , nous pouvons singulièrement réduire la dimension de notre problème matriciel. Seuls :

- le bloc $\mathbf{IP}_z(l, l+1)$ (bloc supérieur),
- le bloc $\mathbf{V}_1$
- et les blocs $\mathbf{IH}_{cin}$ et $\mathbf{S}$

interviennent explicitement à chaque étape de la propagation du vecteur partiel Φ_1 . La dimension du vecteur Φ_V à propager devient $n \times (l_{max} + 1)$ au lieu de $n \times (l_{max} + 1)^2$!!

D.2 Evaluation des éléments de matrice

Notre but est ici de mettre en évidence les écueils numériques qu'il est bon d'éviter lorsque les éléments de matrice du Hamiltonien atomique (explicités en appendice D.1) sont évalués à l'aide de B-splines.

D.2.1 B-splines et fonction de Legendre du second genre

Commençons par les éléments de matrice dont l'évaluation numérique ne pose pas de problème particulier. Il s'agit de ceux associés à l'opérateur énergie cinétique, au recouvrement et à l'opérateur impulsion donnés par (D.9, D.10, D.11). Quelle que soit la base radiale choisie, ces matrices sont symétriques. Mais en introduisant la base des B-splines, ces matrices deviennent "creuses" et "bandes". Ces deux caractéristiques sont dues à la compacité du support des B-splines. Une B-spline B_i ne se recouvre qu'avec ses $2k - 2$ voisines et elle-même (!). Chaque matrice sera donc composée uniquement de $2k - 1$ (sub)diagonales non nulles. La symétrie nous permet de restreindre l'évaluation numérique aux éléments situés sur les k (sub)diagonales supérieures :

$$\left\langle i \left| \frac{\mathbf{p}^2}{2} \right| j \right\rangle = \int_0^{+\infty} dp p^2 B_i(p) \frac{p^2}{2} B_j(p), \quad \forall i < j < i + k \quad (\text{D.9})$$

$$\langle i | P_{op} | j \rangle = \int_0^{+\infty} dp p^2 B_i(p) p B_j(p), \quad \forall i < j < i + k \quad (\text{D.10})$$

$$\langle i | j \rangle = \int_0^{+\infty} dp p^2 B_j(p) B_i(p), \quad \forall i < j < i + k \quad (\text{D.11})$$

La compacité du support nous permet, d'autre part, de limiter les bornes d'intégration au segment $[t_j, t_{i+k}]$. Pour effectuer ces intégrales numériquement nous utilisons une quadrature de Gauss-Legendre définie par la formule de Gauss sur un intervalle arbitraire [Abramovitz, 70] :

$$\int_a^b f(y) dy = \frac{b-a}{2} \sum_{i=1}^{n_g} w_i f(y_i) + R_{n_g}$$

où $y_i = \frac{b-a}{2}x_i + \frac{b+a}{2}$; x_i est le i^e zéro du polynôme de Legendre $P_{n_g}(x)$ et

$$w_i = \frac{2}{1-x_i^2} [P'_{n_g}(x_i)]^2$$

Cette quadrature est intéressante du point de vue de la précision, puisque le reste R_{n_g} est proportionnel à $f^{(2n_g)}$. Or, dans les intégrands des expressions (D.9 et D.11), chaque B-spline est un polynôme de degré $k-1$ sur un segment $[t_m, t_{m+1}]$, $j \leq m \leq i+k-1$. Sur ce dernier, donc, les deux intégrands sont des polynômes de degré $2k \pm 2$. Pour que l'intégrale soit effectuée avec la précision de la machine, il suffit d'utiliser un nombre de points $n_g \geq k+2$.

Il faut toutefois utiliser la précaution suivante : sur chaque segment $[t_m, t_{m+1}]$, les B-splines sont associées à un développement polynômial différent. Il est donc important d'effectuer le découpage suivant :

$$\begin{aligned} \left\langle i \left| \frac{\mathbf{p}^2}{2} \right| j \right\rangle &= \sum_{m=0}^{i+k-j-1} \sum_{l=1}^{n_g} w_l B_i(p_l) B_j(p_l) \times \frac{p_l^4}{2}; \quad t_m < p_l < t_{m+1} \\ \text{et} \\ s_{ij} = \langle i | j \rangle &= \sum_{m=0}^{i+k-j-1} \sum_{l=1}^{n_g} w_l B_i(p_l) B_j(p_l) \times p_l^2. \end{aligned}$$

Sans celui-ci, la convergence des quadratures ne sera pas assurée avec la précision de la machine.

Le potentiel et les obstacles numériques à franchir

Le calcul de ces éléments de matrice est la pierre d'achoppement de notre méthode, celle qui aurait fait dire au petit Gibus dans "*La guerre des boutons*" :

Ah bah alors, si j'aurais su, j'aurais pas venu !

Pardonnez, s'il vous plaît, à l'auteur, cette digression cinématographique, qui traduit néanmoins le désarroi dans lequel elle a été plongée quelques mois durant, aux prises avec de mesquins problèmes de précision numérique. L'origine de ces maux n'était autre que cette fameuse fonction de Legendre du second genre que nous avons introduite dans l'appendice B.2. Pour être plus précis, en plus de cette fonction, soulignons que l'inconvénient premier de notre méthode est l'intégrale double que nous devons évaluer pour chaque élément de matrice du potentiel et que nous réécrivons :

$$\langle i | \mathbf{V}_1 | j \rangle = -\frac{Z}{\pi} \int_{t_i}^{t_{i+k}} dp p B_i(p) \int_{t_j}^{t_{j+k}} dp' p' Q_l \left(\frac{p^2 + p'^2}{2pp'} \right) B_j(p') \quad (\text{D.12})$$

La matrice $\mathbf{V}_1$ est pleine, c'est le premier point d'ombre, mais rendons à César ce qui est à César, ceci n'est pas le fait des fonctions de Legendre, mais

celui du choix de l'espace des impulsions. Peu de bases, dans cet espace, permettraient de rendre cette matrice creuse. La seule possibilité serait d'utiliser la base formée des transformées de Fourier des fonctions Sturmienne utilisées par [Huens, 96] dans l'espace des configurations sur laquelle la matrice associée au potentiel Coulombien devient diagonale. Deux autres difficultés surgissent lors de l'évaluation des éléments de matrice :

1. L'évaluation numérique de la fonction de Legendre du second genre est difficile en terme de précision. En effet :

$$Q_l(x) \searrow \begin{cases} l \text{ est fixé et } x \nearrow \\ x \text{ est fixé et } l \nearrow \end{cases}$$

Ce qui implique que la relation de récurrence (B.11) n'est pas adéquate pour l'évaluation de $Q_l(x)$ car instable numériquement. Nous avons donc utilisé la relation (B.15), qui induit l'évaluation numérique des fonctions de Legendre du premier ordre $P_l(x)$. La méthode choisie pour calculer celles-ci fait intervenir leur expression en terme de fonction hypergéométrique. Cette démarche est intéressante car il existe une méthode numérique très puissante basée sur les approximants de Padé pour évaluer de telles fonctions [Luke, 77].

2. Dans le calcul de l'élément de matrice (D.12), la singularité logarithmique en $p = p'$ apparaissant dans l'expression de Q_l est le second obstacle à franchir (ou à contourner c'est selon...). Elle rend l'usage d'une quadrature de Gauss-Legendre inadéquat. Cependant, ce problème se pose uniquement :

- si les supports de B_i et B_j se recouvrent, ce qui ne concerne que les $2k - 1$ (sub)diagonales ($j \leq i + k$ dans le triangle supérieur).

Si $j > i + k$, l'évaluation précise des Q_l et l'utilisation d'une quadrature de Gauss-Legendre suffiront à notre bonheur. Nous nous contenterons de détailler ici la technique utilisée pour s'affranchir de cette singularité.

L'intégrale double doit être découpée segment par segment :

$$\langle i | \mathbf{V}_1 | j \rangle = -\frac{Z}{\pi} \sum_{m=0}^{k-1} \sum_{s=0}^{k-1} \int_{t_i+m}^{t_{i+m+1}} dp p B_i(p) \times I_{j+s}(p) \quad (\text{D.13})$$

où :

$$I_{j+s}(p) = \int_{t_{j+s}}^{t_{j+s+1}} dp' p' Q_l \left(\frac{p^2 + p'^2}{2pp'} \right) B_j(p') \quad (\text{D.14})$$

Nous devons traiter explicitement la singularité uniquement dans le cas $i + m = j + s$. Nous nous ramenons à l'évaluation de deux intégrales

dont l'une présente explicitement la singularité logarithmique :

$$I_{j+s}^S(p) = \int_a^b dp' f(p') \log |p - p'|; \text{ où } a \leq p \leq b.$$

Une quadrature de Gauss-Legendre dans ce cas n'est plus du tout adaptée. Cependant, la théorie des quadratures gaussiennes peut toujours s'appliquer en considérant la forme standard de l'intégrale :

$$\tilde{I} = \int_0^1 du \tilde{f}(u) \log(u). \quad (\text{D.15})$$

Pour calculer *précisément* $\tilde{I}$, nous devons définir une nouvelle quadrature associée cette fois-ci au poids $w(x) = -\log(x)$. Cette démarche consiste en fait à définir un ensemble de polynômes orthonormaux $\pi_n(x)$ qui satisfont la relation :

$$\int_0^1 w(x) \pi_n(x) \pi_m(x) dx = N_n \delta_{nm} \quad (\text{D.16})$$

La procédure exacte [Davis *et al*, 84] nous permet d'aboutir à une quadrature logarithmique, c'est-à-dire un ensemble de n bipoints (x_i, v_i) appelés abscisses et poids tels que :

$$-\int_0^1 du \tilde{f}(u) \log(u) = \sum_{i=1}^n v_i \tilde{f}(x_i) + R_n. \quad (\text{D.17})$$

L'erreur R_n est, dès lors, proportionnelle à $\tilde{f}^{(2n)}$.

Cette technique d'intégration n'est pas miraculeuse, le comportement rationnel des différents intégrands nous empêche d'obtenir une erreur comparable à celle de la précision machine pour les éléments des $2k-1$ (sub)diagonales. Plus exactement, lorsque i et j prennent des valeurs extrêmes¹, l'évaluation reste périlleuse : une quadrature d'une cinquantaine de points est nécessaire pour obtenir une convergence des éléments à sept chiffres significatifs. Dans les autres cas, la convergence à 12 chiffres est assurée de manière moins coûteuse.

L'espace des impulsions est donc peu recommandable si l'on souhaite réaliser une étude spectroscopique précise du système atomique. Notre point de vue est différent. Notre démarche analytique se veut, certes, quantitative mais ne requiert pas la précision machine.

¹on sonde alors l'effet du potentiel autour de $p = 0$ ou pour des grandes valeurs de l'impulsion

D.3 De la base des splines à la base atomique

La diagonalisation du Hamiltonien impose tout d'abord de travailler dans une base orthogonale que nous normalisons.

1. Structure de la matrice de recouvrement et normalisation

Pour effectuer l'orthogonalisation, il faut nous assurer que toutes les valeurs propres de la matrice de recouvrement $\mathbf{S}$ sont strictement positives. Or la positivité de chaque B-spline sur son support assure la positivité de la matrice de recouvrement c'est-à-dire : $s_{ij} > 0, \forall i, j$. En revanche, $s_{ii} \neq 1$ *a priori*. Pour assurer, l'unitarité des transformations que nous allons opérer ultérieurement, il est important d'effectuer la normalisation² suivante :

$$\forall i, \forall j, s_{ij} \rightarrow \frac{s_{ij}}{\sqrt{s_{ii}s_{jj}}}.$$

$\mathbf{S}$ est désormais une matrice unitaire définie positive et par conséquent inversible.

2. Orthogonalisation

Elle consiste à transformer le problème aux valeurs propres généralisé

$$\mathbf{H}_1^{\mathbf{B}} \Phi_1^{\mathbf{B}} = \mathbf{E}_1 \mathbf{S} \Phi_1^{\mathbf{B}} \quad (\text{D.18})$$

en un problème de recherche des valeurs propres standard :

$$\mathbf{H}_1^{\perp} \Phi_1^{\perp} = \mathbf{E}_1 \Phi_1^{\perp} \quad (\text{D.19})$$

pour lequel de nombreux programmes sont disponibles dans les bibliothèques d'algèbre linéaire. La lettre $\mathbf{B}$ désigne la base des B-splines et le symbole $\perp$, la base orthogonale. La procédure pour effectuer une telle transformation est la suivante : la matrice de recouvrement $\mathbf{S}$ étant définie positive, il est possible de déterminer $\mathbf{S}^{\pm 1/2}$ telle que :

$$\mathbf{S} = \mathbf{S}^{1/2} \mathbf{S}^{1/2} \quad (\text{D.20})$$

et

$$\mathbf{S}^{-1/2} \mathbf{S}^{1/2} = \mathbf{I} \text{ la matrice identité} \quad (\text{D.21})$$

Insérons les deux relations précédentes dans l'équation (D.18), il vient :

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_1^{\mathbf{B}} \mathbf{S}^{-1/2} \mathbf{S}^{1/2} \Phi_1^{\mathbf{B}} &= \mathbf{E}_1 \mathbf{S}^{1/2} \mathbf{S}^{1/2} \Phi_1^{\mathbf{B}} \\ \underbrace{\mathbf{S}^{-1/2} \mathbf{H}_1^{\mathbf{B}} \mathbf{S}^{-1/2}}_{\mathbf{H}_1^{\perp}} \underbrace{\mathbf{S}^{1/2} \Phi_1^{\mathbf{B}}}_{\Phi_1^{\perp}} &= \underbrace{\mathbf{E}_1 \mathbf{S}^{-1/2} \mathbf{S}^{1/2}}_{\mathbf{E}_1} \underbrace{\mathbf{S}^{1/2} \Phi_1^{\mathbf{B}}}_{\Phi_1^{\perp}} \end{aligned} \quad (\text{D.22})$$

²Elle doit être effectuée pour les éléments de matrice du Hamiltonien.

3. Construction de la matrice de transformation

La matrice de transformation de la base des B-splines à la base orthogonale est donc $\mathbf{S}^{-1/2}$. Pour la construire, la matrice de recouvrement $\mathbf{S}$ doit être diagonalisée. Nous considérons $\mathbf{U}$ la matrice des vecteurs propres de $\mathbf{S}$ rangés en colonnes et la matrice diagonale $\mathbf{s}$ de ses valeurs propres s_i :

$$\mathbf{S} \mathbf{U} = \mathbf{U} \mathbf{s}. \quad (\text{D.23})$$

Il est possible de montrer que :

$$\mathbf{S}^{\pm 1/2} = \mathbf{U} \mathbf{s}^{\pm 1/2} \mathbf{U}^{-1} \quad (\text{D.24})$$

où $\mathbf{s}^{\pm 1/2}$ est diagonale et les éléments sont égaux à : $s_i^{\pm 1/2}$.

4. Passage dans la base atomique

En diagonalisant³ $\mathbf{H}_1^\perp$ nous obtenons la matrice diagonale $\mathbf{D}_l$ des énergies propres ainsi que la matrice $\mathbf{T}_1$ des vecteurs propres associés :

$$\mathbf{H}_1^\perp \mathbf{T}_1 = \mathbf{T}_1 \mathbf{D}_l.$$

Si $\Phi_l^\perp$ est connue, on obtient sa représentation sur la base atomique par la transformation :

$$\Phi_1^A = \mathbf{T}_1^t \Phi_1^\perp. \quad (\text{D.25})$$

Finalement, les différentes transformations assurant le passage de la base des B-splines à la base atomique se résument sous la forme d'une matrice $\mathbf{M}_{B \rightarrow A}$ telle que :

$$\begin{aligned} \Phi_1^A &= \mathbf{M}_1^{B \rightarrow A} \Phi_1^B : \\ \mathbf{M}_1^{B \rightarrow A} &= \mathbf{T}_1^t \mathbf{S}^{1/2} \end{aligned} \quad (\text{D.26})$$

En résumé, si nous nous plaçons dans la base atomique et dans la représentation d'interaction, le système d'équations différentielles que nous devons résoudre s'écrit désormais :

$$i \frac{d}{dt} \Phi_1(t) = A(t) \left\{ [\mathbf{P}(1, 1+1)]_{int} \Phi_{1+1}(t) + [\mathbf{P}^\dagger(1-1, 1)]_{int} \Phi_{1-1}(t) \right\}. \quad (\text{D.27})$$

avec :

$$[\mathbf{P}(1, l')]_{int} = \mathbf{T}_1^t \mathbf{S}^{-1/2} [\mathbf{P}(1, l')]_B \mathbf{S}^{-1/2} \mathbf{T}_{l'}. \quad (\text{D.28})$$

³la diagonalisation est effectuée par moment angulaire l

D.4 Construction et contrôle du continuum

Dans notre démarche, et grâce au tandem “B-spline-Espace des moments”, il nous est possible d’imposer une discrétisation quelconque du continuum “libre” (c’est-à-dire sans potentiel Coulombien) par l’intermédiaire de la séquence de points d’arrêt ξ . Cette assertion, déjà avancée dans la section C.1, peut désormais être prouvée très simplement et néanmoins rigoureusement.

D.4.1 De ξ au continuum “libre”

Considérons une séquence quelconque de points d’arrêt ξ , par exemple décroissant exponentiellement lorsque le moment canonique augmente (suivant l’algorithme rappelé dans l’appendice D.5). Nous construisons ensuite, la séquence de nœuds t associée à ξ (en tenant compte des conditions de continuité désirées), la base complète de n B-splines ($n = l + k - 1$) et finalement les matrices associées aux différents opérateurs du Hamiltonien total.

Nous diagonalisons la matrice $\mathbf{IP}^2/2$ de l’opérateur énergie cinétique et comparons la répartition des énergies propres obtenues avec celle des énergies associées à ξ : $E_i = \xi_i^2/2$.

Nous avons représenté sur la figure D.1, l’évolution des densités, du continuum créé et de la séquence ξ , définies dans chaque cas par :

$$\rho(E_i) = \frac{1}{E_{i+1} - E_i}.$$

Nous constatons que la densité du continuum libre créée et celle de la séquence ξ choisie coïncident parfaitement.

Cette démarche nous permet de prouver rigoureusement qu’en imposant la séquence ξ , et par conséquent *l’allure* de la densité ρ , nous *contrôlons* en fait *exactement* la discrétisation du continuum “libre”.

Quant au continuum Coulombien...

La démarche pour y avoir accès est la même que pour le continuum libre. Nous devons diagonaliser les Hamiltoniens partiels $\mathbf{IH}_l = \mathbf{IP}^2/2 + \mathbf{V}_l$. Les continua partiels créés, sont tous différents *a priori*. Sur la figure D.1, nous nous sommes limités à la représentation de la densité d’états du continuum $l = 0$ puisqu’il est celui qui diffère le plus du continuum libre. En effet, cette symétrie engendre le plus grand nombre d’états liés au détriment de la densité d’états du continuum.

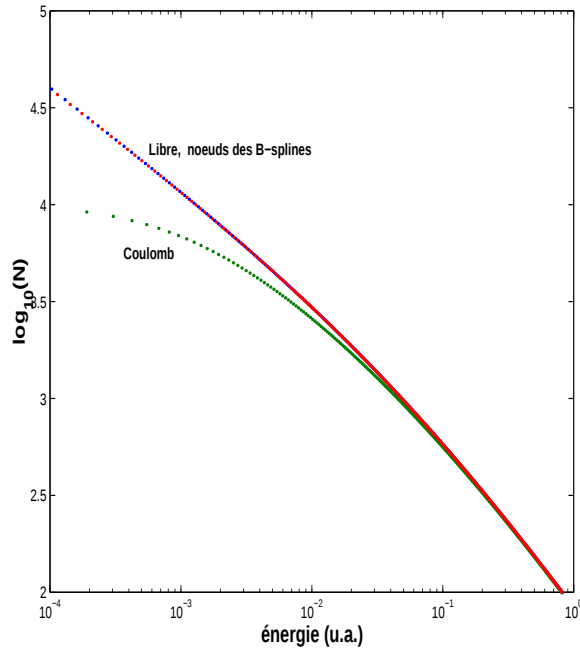


FIG. D.1: Comparaison des densités associées aux continua "libre" (en bleu) et coulombien (en vert) à partir de celle définie par la séquence de noeuds des B-splines (en rouge).

Le principal constat qui, à notre avis, peut être généralisé à l'ensemble des méthodes⁴ impliquant une discrétisation du continuum, est que la densité n'est pas drastiquement modifiée par l'introduction du potentiel.

Certes, aux faibles énergies, la densité d'états Coulombiens est huit fois plus faible que celle des ondes planes à l'origine mais l'écart entre les deux se réduit rapidement de telle sorte qu'elles deviennent quasi-identiques au-delà de $E = 0.01 \text{ u.a.}$.

Cette dernière remarque nous permet de confirmer la validité de la base de B-splines en tant qu'outil pour contrôler la discrétisation du continuum Coulombien.

D.4.2 Quelle figure imposée pour la densité ?

Avec la possibilité de contrôler la densité d'états surgit évidemment le problème d'y attribuer une signification physique.

La notion même de densité n'existe que dans la mesure où nous restreignons systématiquement toute étude à une région finie de l'espace.

⁴indépendamment de la représentation considérée

Dans l’une ou l’autre des représentations, “**r**” ou “**p**”, l’atome est confiné dans une boîte de volume V .

- En “**r**”, le confinement spatial conduit à une densité⁵ d’états $\rho(E)$ de la forme :

$$\rho(E) = 4\pi V (2m)^{3/2} \sqrt{E}/h^3 ; \text{ en unité M.K.S.}$$

Cette densité possède une réalité physique et son utilisation est justifiée dans la mesure où les processus étudiés préservent le confinement. Les méthodes de type spectrale induisent, suivant les fonctions de base choisies, des densités d’allure différentes. A chaque base (B-splines [Cormier, 94], Sturmienne [Huens, 96]) correspond une allure caractéristique de densité d’états.

- En “**p**”, confiner l’atome dans une région finie de l’espace n’impose aucune densité d’énergie. On se contente finalement de limiter l’énergie accessible à l’électron. Ceci est physiquement envisageable au même titre que le confinement spatial, *particulièrement* dans le domaine des champs forts, basse fréquence, qui nous intéresse. En effet, il s’agit d’un régime dominé essentiellement par les différents processus d’ionisation : tunnel, au-dessus du seuil ou de la barrière. A la fin de l’interaction, si l’ionisation est totale, l’extension spatiale du paquet d’onde électronique est trop grande pour envisager raisonnablement un confinement spatial du système. La seule quantité qui reste finie - c’est-à-dire suffisamment petite - est l’énergie communiquée “à l’électron” pendant l’interaction.

La densité que nous fixons dans l’espace des impulsions ne doit donc pas nécessairement coïncider avec $\rho(E)$ citée un peu plus haut. Dans la mesure où notre étude est axée sur la dynamique de l’ionisation, ce type de densité n’est pas obligatoire. Libre (!) à nous donc de fixer $\rho(E)$ avec comme seul critère réellement physique, *une grande densité d’états dans la partie du continuum auquel l’électron a véritablement accès*.

Nous proposons ci-dessous deux types de densités que nous avons utilisées dans nos simulations. Nous définissons ensuite le critère de “grande densité d’états” requis pour assurer la fiabilité de la méthode.

⁵qui caractérise les méthodes de grille pour résoudre l’ESDT comme celle utilisée par [Kulander, 87b].

D.5 Contrôle de la densité d'états du continuum

D.5.1 Densité exponentiellement décroissante

La séquence de nœuds ξ paramétrant la base des B-splines peut être évaluée à l'aide d'un paramètre de décroissance exponentiel β . On la construit selon le schéma suivant :

$$\xi = \{ \xi_i; i = 1, l+1; p_{min} \leq \xi_i \leq p_{max} \}$$

$$\text{Soit } \Delta p = p_{max} - p_{min}$$

$$\text{et } f(\beta, n, i) = \frac{e^{\beta \frac{i-1}{n}} - 1}{e^{\beta \frac{n-1}{n}} - 1}$$

$$\forall i; \xi_i = p_{min} + \Delta p \times f(\beta, l+1, i). \quad (\text{D.29})$$

Le paramètre β permet d'ajuster la répartition des noeuds sur le segment $[p_{min}, p_{max}]$: le cas $\beta \rightarrow 0$ correspond à une densité et donc un pas constant ; quand β augmente, les points se concentrent de plus en plus autour de p_{min} .

D.5.2 Densités définies par morceaux

Lorsque la densité est définie par morceaux de manière à traiter distinctement différentes parties du continuum, il faut s'assurer de la continuité de la fonction densité. Dans le cas d'une densité exponentielle caractérisée par deux paramètres β_1 et β_2 , on pourra utiliser le schéma suivant :

$$\begin{aligned} &\text{Soit } \Delta p_1 = p_{max_1} - p_{min} \text{ contenant } n_1 \text{ nœuds,} \\ &\text{soit } \Delta p_2 = p_{max_1} - p_{min} \text{ contenant } n_2 \text{ nœuds,} \\ &\text{avec } l+1 = n_1 + n_2, \end{aligned}$$

$$1 < i < n_1; \xi_i = p_{min} + \Delta p_1 \times f(\beta_1, n_1, i). \quad (\text{D.30})$$

$$\text{Soit } dp_2 = \xi_{n_1} - \xi_{n_1-1},$$

$$\text{et } g(\beta, n, i) = \frac{e^{\beta \frac{i-1}{n}} - 1}{e^{\frac{\beta}{n}} - 1},$$

$$n_1 < i < n_2; \xi_i = p_{max_1} + dp_2 \times g(\beta_2, n_2, i). \quad (\text{D.31})$$

La densité peut alors être modifiée drastiquement entre les deux intervalles tout en restant continue.

D.5.3 Un continuum de grande densité

Le continuum construit sera défini comme *suffisamment* dense *par rapport* à l'interaction laser-atome. Les lasers impulsionnels que nous considérons sont caractérisés par leur fréquence mais également par leur largeur de bande qui correspond en bonne approximation⁶ à :

$$\Delta\omega = \frac{2\pi}{\Delta t}; \text{ où } \Delta t \text{ est la durée totale de l'impulsion.}$$

Lorsque le laser couple deux états dont l'un est un état du continuum E_i , l'espacement ΔE entre E_i et les états voisins doit être tel que :

$$\frac{\Delta E}{\Delta\omega} \ll 1$$

Si cette condition n'est pas remplie dans la partie du continuum auquel l'électron a accès, le terme de continuum n'est plus adéquat. Les énergies positives du spectre atomique forment, elles aussi, un ensemble d'états discrets pouvant conduire à une dynamique tout à fait erronée.

Ce critère permet également de comprendre pourquoi, cette méthode de résolution de l'ESDT est inapplicable aux impulsions longues. Dans ce domaine, $\Delta\omega \rightarrow 0$, les densités requises deviennent alors trop élevées voire inaccessibles numériquement. Pour résoudre l'ESDT, la théorie de Floquet, utilisant la périodicité du champ électrique laser substitue alors à l'équation de Schrödinger un système infini d'équations couplées indépendantes du temps [Chu, 85].

D.5.4 Représentation des états du continuum

Une distribution de Dirac $\delta(p - p_0)$

Nous ne résistons pas à la tentation ... A quoi peut bien ressembler la distribution de Dirac qui est, en toute rigueur, état propre de l'opérateur énergie cinétique ? La méthode que nous utilisons nous impose de les représenter par des fonctions de carré sommable "qui tendent" vers des δ *au sens des distributions*.

Nous avons représenté sur la figure D.2(a), l'amplitude en fonction de p , d'un état propre de l'énergie cinétique. La base de B-splines utilisée a été construite à l'aide d'une séquence de noeuds dont le pas en énergie est illustré sur D.2(b). Nous constatons que la base des B-splines nous permet de représenter un "Dirac" par une fonction qui ressemble "étrangement" à un sinus cardinal $\text{sin}_c(p) = \frac{\text{sin}(p)}{p}$. Cette fonction est une représentation

⁶malgré la forme de l'enveloppe temporelle

possible d'une distribution de Dirac (cf. [Basdevant, 86], par exemple). En effet, dans le cas à une dimension, nous avons :

$$\delta(p) = \lim_{Y \rightarrow \infty} \frac{1}{2\pi} \int_{-Y}^Y e^{ipy} dy = \lim_{Y \rightarrow \infty} \frac{\sin(pY)}{\pi p}.$$

Elle est de plus tout à fait cohérente avec la Physique du problème. Dans l'espace des configurations, les états propres de l'opérateur énergie cinétique sont les ondes planes $e^{i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}}$ et, à la limite où $Y \rightarrow \infty$, nous reconnaissons, dans la définition précédente, leur transformée de Fourier. La représentation de $\delta(p)$ ⁷ obtenue est donc, en fait, la seule physiquement acceptable. La largeur à mi-hauteur du pic central de la fonction nous donne directement la taille de la boîte, dans l'espace des " $\mathbf{r}$ ", dans laquelle l'onde plane est supposée non nulle.

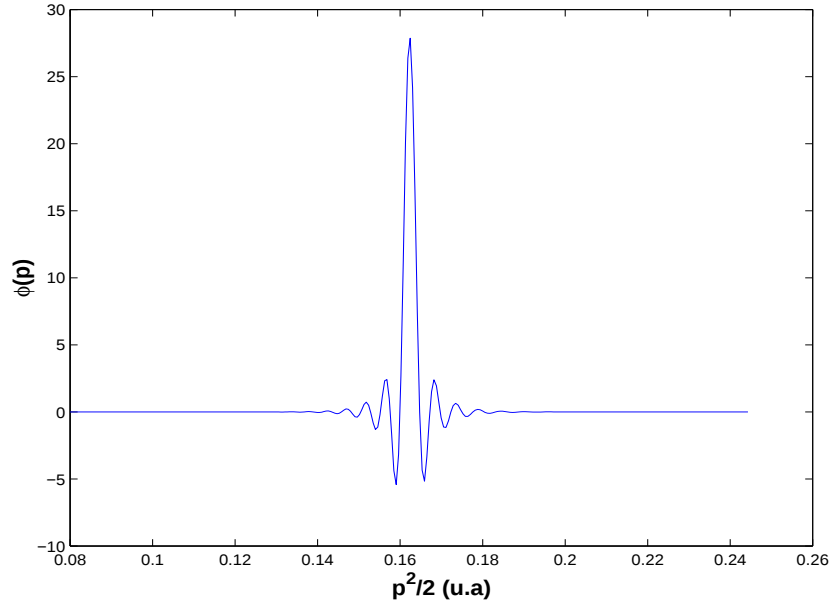
Les ondes Coulombiennes

Les états du continuum Coulombien peuvent être représentés de la même manière. On peut ainsi étudier l'évolution d'un état d'énergie positive lorsque l'interaction Coulombienne est prise en compte. Nous avons superposé, sur la figure D.3(a), la représentation sur la même base de B-splines d'un état Coulombien ($l = 0$) et celle d'un Dirac correspondant à la même énergie. En regard du pic de Dirac, l'interaction Coulombienne induit une nette asymétrie dans le profil de l'état Coulombien accompagnée d'un élargissement vers les hautes impulsions.

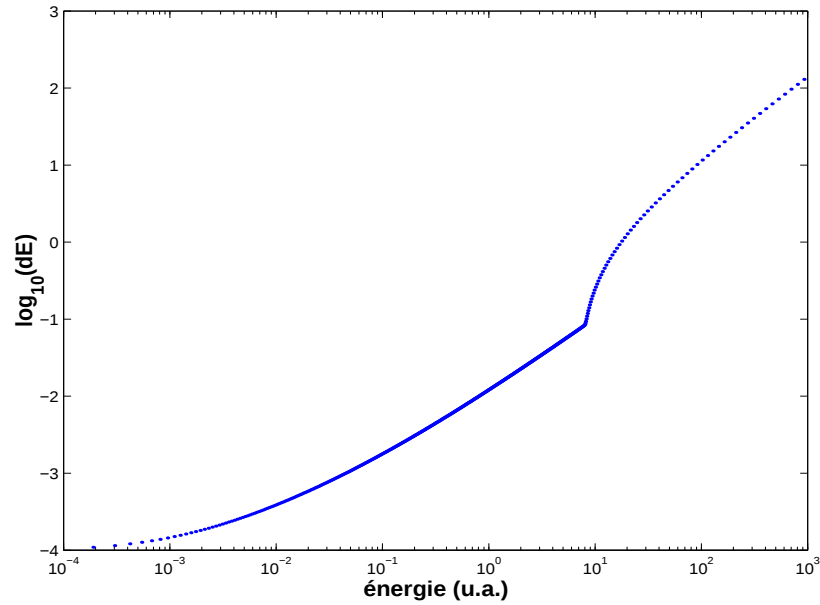
La lente décroissance du noyau $Q_0(p, p')$ lorsque p s'écarte de p' confère aux états Coulombiens une largeur en p , de manière à permettre des transitions à caractère inélastique *en présence du champ laser*. En revanche, l'asymétrie ne peut s'expliquer de manière qualitative. Il faut, pour s'assurer qu'il ne s'agit pas d'un artéfact de la méthode, considérer l'expression exacte de la transformée de Fourier (TF) d'un état Coulombien. Une bonne équation vaut mieux que de longs discours... Nous avons présenté, dans la section 3.2, l'analyse en ondes partielles des états du continuum Coulombien dans l'espace des impulsions. Nous reprenons, pour le continuum s , leur TF évaluée en appendice B.4.2 et déjà évoquée dans la section 3.2. Pour un état $\Phi_0^k(p)$ d'énergie $E = k^2/2$, nous avons obtenu :

$$\begin{aligned} \Phi_0^k(p) &= \frac{C_k}{(p+k)^2} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} [Y(p, k) \times (\Phi_1(p, \epsilon) + \Phi_2(p, \epsilon))] \\ \text{avec :} \\ \Phi_1(p, \epsilon) &= \frac{2\epsilon}{\epsilon^2 + (p-k)^2} \times \cos \left[\frac{1}{2k} \log \left(\frac{\epsilon^2 + (p-k)^2}{\epsilon^2 + (p+k)^2} \right) \right] \\ \text{et :} \end{aligned} \quad (\text{D.32})$$

⁷en tant qu'état propre de l'opérateur énergie cinétique



(a) Pic de Dirac



(b) Pas en énergie

FIG. D.2: Représentation d'un pic de Dirac, état propre de l'opérateur énergie cinétique à l'aide de la base de B-splines définie en (b). Il est associé à l'énergie propre $E=0.162$ u.a.. La base utilisée est construite à partir de la séquence ξ dont nous reproduisons ici le pas en énergie dE . La densité de points est définie par morceaux selon l'appendice D.5.2 et l'équation (D.31) avec : $l+1 = 600$, $p_{max_1} = 4$ u.a., $n_1 = 520$ et $n_2 = 80$. Les paramètres de décroissances exponentielles sont $\beta_1 = 2.5$ et $\beta_2 = 6$.

$$\Phi_2(p, \epsilon) = -\frac{p+k}{p} \frac{p-k}{\epsilon^2 + (p-k)^2} \sin \left[\frac{1}{2k} \ln \left(\frac{\epsilon^2 + (p-k)^2}{\epsilon^2 + (p+k)^2} \right) \right]$$

$Y(p, k)$ est une fonction définie par morceaux, telle que :

$$Y(p, k) = \begin{cases} 1 & \text{si } p > k \\ \exp(-\frac{\pi}{k}) & \text{si } p < k \end{cases}.$$

Ce résultat est obtenu en considérant *les ondes Coulombiennes sortantes*. Ainsi que nous l'avons souligné dans la section 3.2, en première approximation Φ_1 correspond à une distribution de Dirac et Φ_2 à une partie principale.

Nous avons représenté $\Phi_0^k(p)$ sur la figure D.3(b) pour $E=0.162$ u.a. et en utilisant $\epsilon = 4.10^{-3}$ puisque logiquement la prescription utilisée doit être du même ordre de grandeur que le pas en impulsion Δp dans cette gamme d'énergie. Δp est évalué en se reportant au pas en énergie ΔE représenté sur la figure D.2(b). La comparaison des figures D.3(a) et D.3(b) permet de conclure que la représentation de $\Phi_0^k(p)$ par les B-splines est satisfaisante, puisqu'essentiellement, les deux singularités sont correctement reproduites.

Les oscillations observables sur la figure D.3(a) et inexistantes dans le profil analytique, peuvent être attribuées à la restriction de la transformée de Fourier à un intervalle fini $[0, r_{max}]$ avec $r_{max} \approx 1/\epsilon$. L'évolution du profil Coulombien en fonction du pas en impulsion (illustrée sur la figure D.4) révèle une nette dégradation de la représentation de la partie delta présente dans l'équation (D.33) lorsque Δp (et donc ϵ) augmente.

Le continuum Coulombien qu'il nous est possible de contrôler dans l'espace des impulsions en utilisant une base de B-splines est donc correctement reproduit lorsque le pas en impulsion est suffisamment petit. Ceci requiert évidemment l'usage d'un grand nombre de B-splines sur l'intervalle $[0 : p_{max}]$.

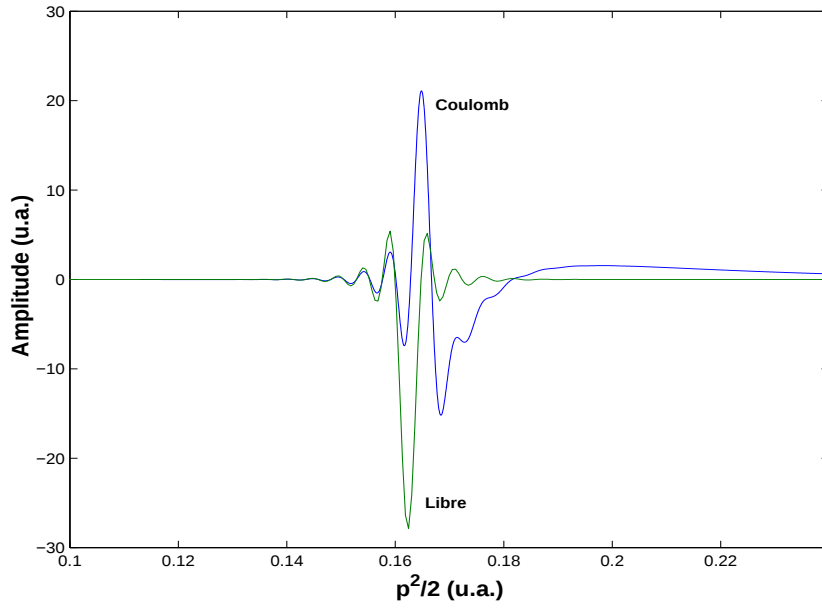
D.6 Description de la méthode de propagation dans le temps

D.6.1 Méthode itérative de type Runge-Kutta

Considérons le problème aux valeurs initiales pour le système d'équations différentielles ordinaires :

$$\mathbf{y}'(t) = \mathbf{f}(t, \mathbf{y}(t)). \quad (\text{D.33})$$

$\mathbf{y}$ est un vecteur composé de n fonctions $y_i(t)$ évaluées au temps t . $\mathbf{y}$ étant connu au temps initial t_0 , nous souhaitons le propager jusqu'à un temps arbitraire $t + \Delta t$, compte tenu de son évolution instantanée donnée par $\mathbf{f}(t, \mathbf{y}(t))$.



(a) Onde plane(vert), Onde coulombienne (bleu)

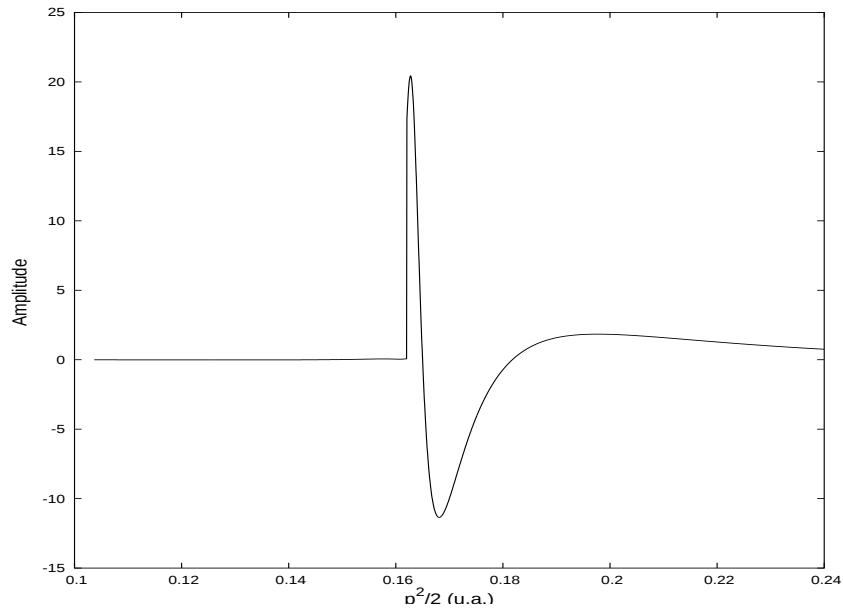
(b) Onde coulombienne analytique, $\epsilon = 4 \times 10^{-3}$.

FIG. D.3: Superposition des représentations d'un pic de Dirac et d'un état Coulombien (continuum $l=0$). Tous les deux sont associés à l'énergie $E=0.162$ u.a.. La forme analytique $\Phi_0^k(p)$, donnée par l'équation(D.33) est représentée pour la même énergie et en utilisant $\epsilon = 4 \times 10^{-3}$.

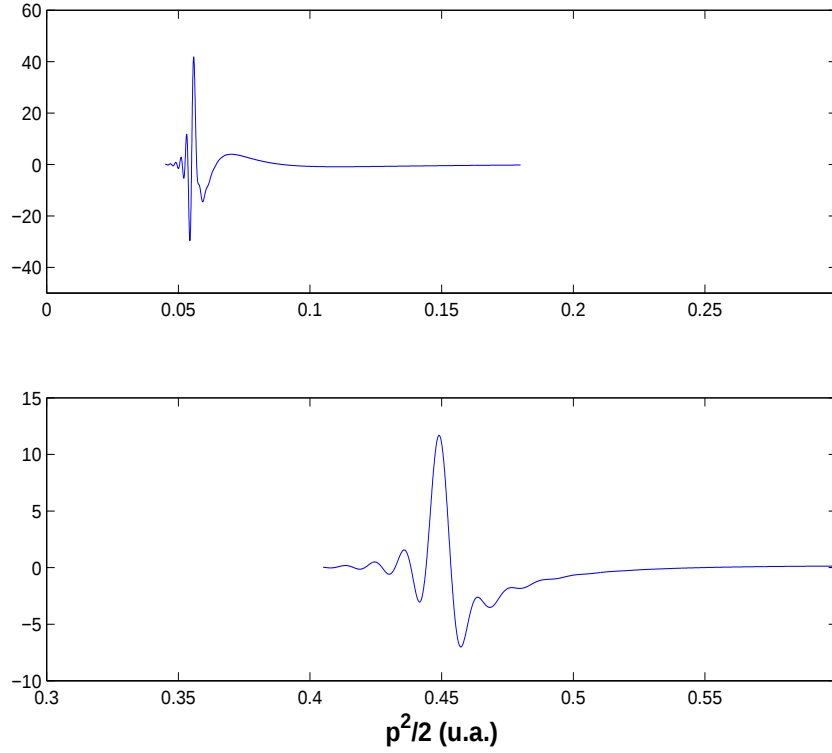


FIG. D.4: Evolution du profil des états du continuum coulombien en fonction du pas en énergie. $dE \approx 10^{-3}$ autour de $E = 0.05 u.a.$ et $dE \approx 3.10^{-2}$ autour de $E=0.45 u.a.$. Les états sont représentés sur la base décrite par la figure D.3

La formulation matricielle de l'ESDT, que nous avons proposée dans la section 3.5, en nous plaçant dans la base atomique et en représentation d'interaction équivaut à un tel système. $\mathbf{y}$ correspond alors au vecteur de coefficients $\Phi_{\mathbf{V}}(t)$ et la fonction vectorielle $\mathbf{f}(\mathbf{y})$ correspond au produit matrice-vecteur :

$$\mathbf{f}(\mathbf{y}) = -i A(t) \cdot \mathbb{P}_{\mathbf{z}} \Phi_{\mathbf{V}}(t).$$

Pour simplifier le raisonnement, nous noterons

$$y_l = y(t_l) \text{ et } t_{l+1} = t_l + h,$$

h étant le pas d'intégration. Nous utilisons un schéma de résolution de type Runge-Kutta, pour un coefficient particulier du vecteur $\mathbf{y}$:

$$\begin{cases} y_{l+1} = y_l + h \mathbf{b}^T \mathbf{r}_{l+1} \\ \mathbf{r}_{l+1} = \mathbf{f}(y_l \mathbf{e} + h \mathbf{A} \mathbf{r}_{l+1}) \end{cases}$$

Si nous choisissons une méthode Runge-Kutta (R.K.) d'ordre p (erreur en $O(h^{p+1})$) à s étapes, $\mathbf{A}$ et $\mathbf{b}$ sont respectivement une matrice $s \times s$ et un vecteur de longueur s . Ils contiennent les coefficients qui définissent la

méthode choisie. $\mathbf{e}$ est un vecteur de longueur s et dont les composantes sont égales à l'unité. Dans un tel schéma, la fonction $\mathbf{f}$ est évaluée en s étapes intermédiaires $\mathbf{t}_{l+1} = t_l \mathbf{e} + h \mathbf{c}$; $\mathbf{c}$ est imposé par la méthode R.K. choisie. On présente généralement ces coefficients caractéristiques sous la forme d'une matrice de Butcher :

$$\begin{array}{c|cccc} c_1 & a_{11} & a_{12} & \cdots & a_{1s} \\ c_2 & a_{21} & a_{22} & & \\ \vdots & \vdots & & \ddots & \vdots \\ c_s & a_{s1} & \cdots & & a_{ss} \\ \hline & b_1 & b_2 & \cdots & b_s \end{array} = \begin{array}{c|c} \mathbf{c} & \mathbf{A} \\ \hline & \mathbf{b}^T \end{array}$$

Lorsque la matrice $\mathbf{A}$ choisie est pleine, le schéma de résolution est implicite car la détermination de $\mathbf{r}_{l+1}$ impose de résoudre le système :

$$\mathbf{r}_{l+1} = \mathbf{f}(y_l \mathbf{e} + h \mathbf{A} \mathbf{r}_{l+1})$$

et ce pour chaque coefficient de $\mathbf{y}$. Une démarche implicite est obligatoire lorsque le problème à résoudre devient raide. En travaillant dans la base atomique, nous avons éliminé ce problème et pouvons donc employer un schéma explicite, pour lequel la matrice $\mathbf{A}$ est strictement triangulaire inférieure.

Pour résoudre l'équation précédente, on utilise un processus itératif en m étapes :

$$\mathbf{r}^{(j)} = \mathbf{f}(y_l \mathbf{e} + h \mathbf{A} \mathbf{r}^{(j-1)}); j = 1, \dots, m$$

A la m^e étape, nous approximons $\mathbf{r}_{l+1}$ par $\mathbf{r}^{(m)}$ et donc :

$$y_{l+1} = y_l + h \mathbf{b}^T \mathbf{r}^{(m)}$$

Cette itération est appelée le "corrector", nous disposons de m approximations de la solution y_{n+1} ,

$$y^{(j)} = y_n + h \mathbf{b}^T \mathbf{r}^{(j)},$$

qui nous permettent d'évaluer, à chaque étape, l'erreur commise sur l'estimation de la solution :

$$\epsilon^{(j)} = \|y^{(j)} - y^{(j-1)}\|.$$

Si $\epsilon^{(j)} \leq tol$ la précision requise, l'itération est stoppée. Pour amorcer l'itération, le "predictor" $\mathbf{r}^{(0)}$ doit être imposé. Une possibilité est :

$$\mathbf{r}^{(0)} = \mathbf{f}(y_n).$$

Si l'on fixe $m=p-1$, on obtient une méthode itérative de type Runge Kutta explicite dite "optimale" et requérant effectivement p étapes. La méthode peut être raffinée en optimisant h à chaque pas d'intégration, compte tenu de l'erreur commise au pas précédent et de la tolérance requise :

$$h \rightsquigarrow h \times \sqrt[p]{\frac{tol}{\epsilon}}$$

D.7 Convergence des résultats

Afin de nous assurer de la fiabilité de nos résultats, nous comparons nos résultats avec ceux obtenus dans le cas de la résolution de l'ESDT dans l'espace des configurations, la fonction d'onde radiale étant alors développée sur une base de fonctions d'onde Sturmienne [Huens *et al*, 97]. Le nombre de Sturmiennes par moment angulaire vaut $n = 1000$, et le nombre total de moments angulaires utilisées dans la propagation est $l_{max} = 25$. Pour le même nombre de moments angulaires, la base de B-splines utilisée contient $n = 1100$ B-splines par moment angulaire. Nous avons comparé les populations des états atomiques au cours de l'interaction. Même si ces populations ne peuvent être interprétées physiquement, nous pouvons tout de même les utiliser pour caractériser le degré de fiabilité de nos résultats. Le résultat de cette comparaison est indiqué sur les figures D.5 et D.6. Dans la propagation réalisée, l'impulsion est ici définie par le potentiel vecteur :

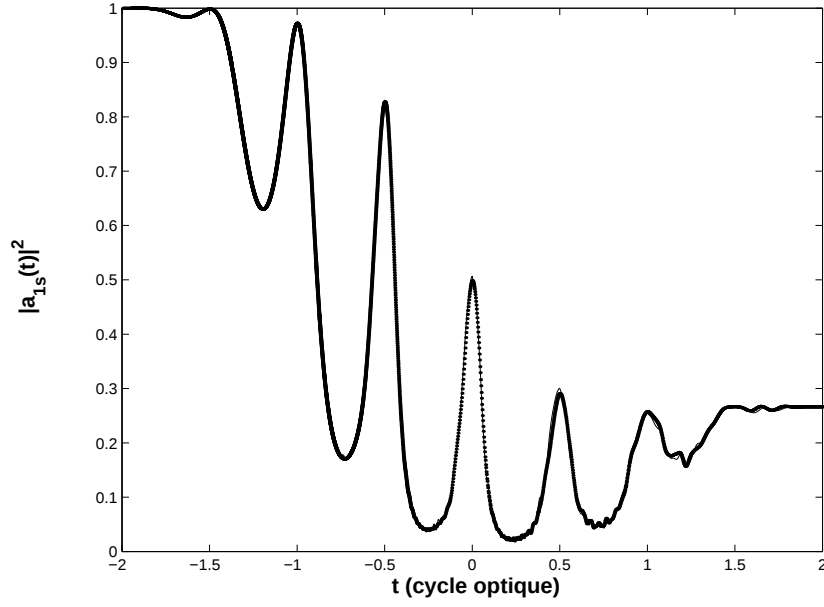
$$\mathbf{A}(t) = A_0 \cos^2\left(\frac{\pi}{4T}t\right) \sin(\omega t)\mathbf{z}, \quad (\text{D.34})$$

où T est la période laser et $\omega = 0.057 \text{ u.a.}$ la pulsation correspondante. Dans le cas de la population du fondamental, les deux courbes coïncident parfaitement, à la fin de l'interaction, nous obtenons un accord à trois chiffres significatifs sur les populations restantes dans le $1s$. Dans le cas des états $2s$ et $2p$, la comparaison est plus critique puisque par exemple, la population dans l'état $2s$ n'excède jamais 6%. Nous observons quelques différences de l'ordre de 1% en valeur absolue sur les pics situés en $t = 0, 0.5$ et $1T$, mais nous pouvons tout de même conclure que, étant donné l'intensité élevée que nous utilisons pour réaliser cette comparaison ($I = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$), l'accord entre ces deux méthodes tout à fait différentes du point de vue de la description initiale du système est tout à fait satisfaisant.

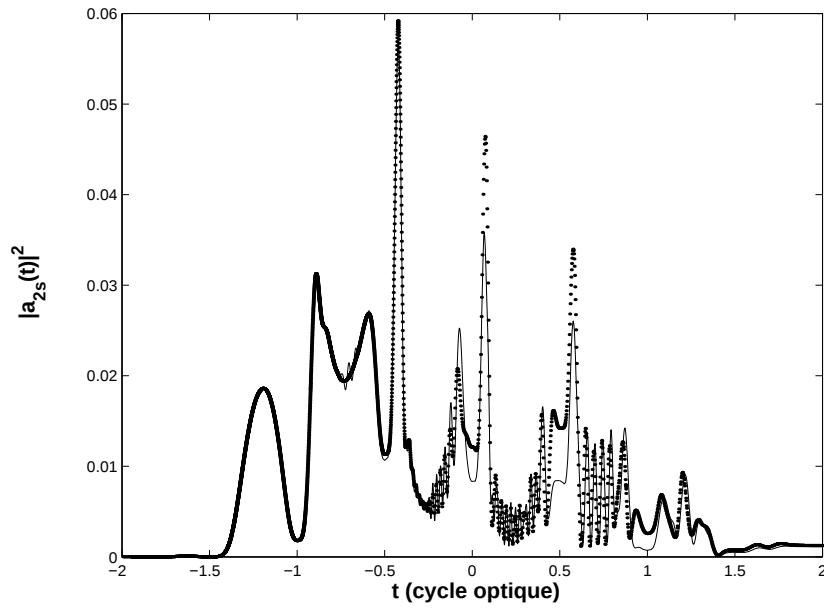
Nous testons, d'autre part, la convergence de nos résultats en fonction du nombre de moments angulaires. La quantité testée est cette fois-ci le spectre des électrons éjectés à la fin de l'interaction, tel que nous l'avons défini dans la section 3.5.4. Nous avons représenté sur la figure D.7, les spectres obtenus pour deux bases de B-splines différentes contenant un nombre de moment angulaires différents. Les densités associées aux deux bases sont représentées sur la figure D.8. Dans cette propagation, de manière à ce que l'intensité laser soit constante au centre de l'impulsion, nous avons défini l'enveloppe temporelle du champ électrique :

$$\mathbf{E}(t) = E_0 \left(1 - \cos^8\left(\frac{\pi}{8T}t\right)\right) \cos(\omega t)\mathbf{z}. \quad (\text{D.35})$$

Cette forme de champ étant intégrée pour obtenir le potentiel vecteur. A nouveau, nous constatons que, si les pics ne se superposent pas parfaitement (en intensité), la convergence des résultats est assurée du point de vue de la



(a) état 1s



(b) état 2s

FIG. D.5: Comparaison des populations en fonction du temps obtenues en utilisant un développement de Ψ sur des Sturmienne dans l'espace des configurations (en bleu) ou les B-splines dans l'espace des moments (en vert). Paramètres lasers utilisés : $\Delta t = 4T$, $I_0 = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $f(t) = \cos^2(\pi t/(4T))$.

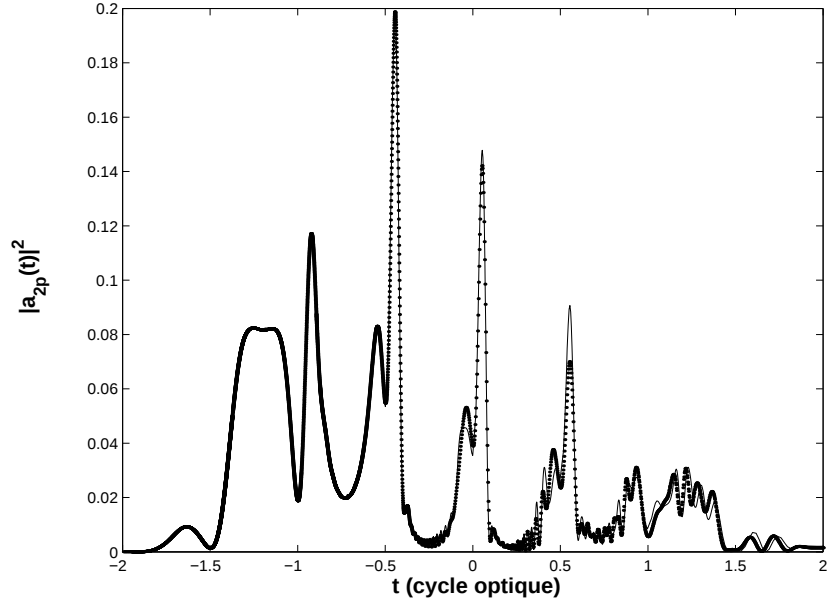


FIG. D.6: Comparaison de la population de l'état 2p en fonction du temps obtenue en utilisant un développement de Ψ sur des Sturmiennes dans l'espace des configurations (points) ou les B-splines dans l'espace des moments (trait plein). Paramètres lasers utilisés : $\Delta t = 4T$, $I_0 = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $f(t) = \cos^2(\pi t/(4T))$.

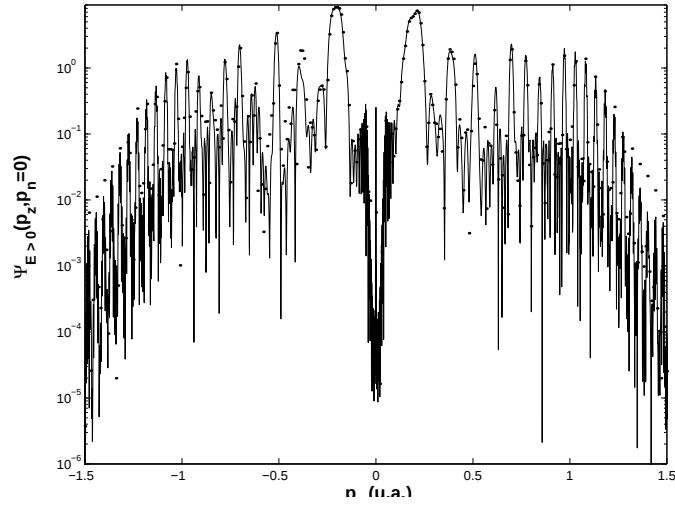


FIG. D.7: Comparaison des spectres d'électrons éjectés à la fin d'une interaction de 8 cycles optiques, à une intensité de $I = 1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ en fonction du nombre de moments angulaires l_{max} inclus dans le développement de la fonction d'onde $\Psi(\mathbf{p})$ et en fonction du nombre n de B-splines incluses. $n = 1100$ et $l_{max} = 25$ (points) $n = 900$ et $l_{max} = 15$ (trait plein).

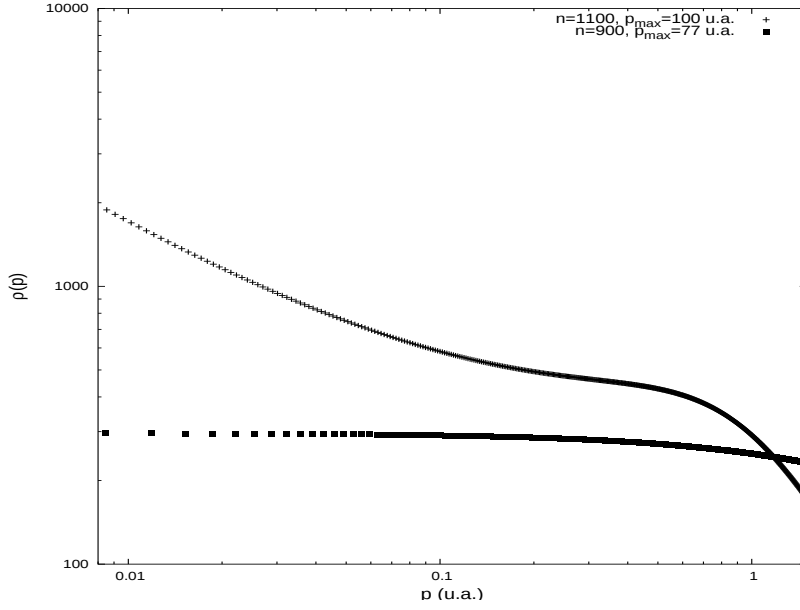


FIG. D.8: Densité d'états $\rho(p)$ en fonction de p pour les deux bases considérées pour le test de convergence sur la figure D.7. $\rho(p)$ est évaluée à partir de la séquence de points d'arrêt ξ de chaque base. Le nombre de B-splines n ainsi que la dimension de la boîte "radiale" p_{max} utilisés pour définir les bases sont rappelés en légende.

position des pics d'électrons, ce qui est essentiel dans notre discussion. De plus, l'accord obtenu sur les amplitudes des pics dominants est tout à fait satisfaisant et nous permet de tirer des conclusions sur les caractéristiques essentielles de l'ionisation également en termes quantitatifs.

Dans nos analyses, soulignons que la base de B-splines $n = 1100$ et $l_{max} = 25$ est utilisée (les résultats sont comparés à ceux obtenus dans le cas $n = 900$ et $l_{max} = 15$). Le calcul de structure étant très coûteux numériquement, nous n'avons pu aller au-delà de 25 moments angulaires. Mais les comparaisons avec des nombres de moments angulaires plus faibles que nous avons effectuées nous permettent d'interpréter les spectres obtenus avec un bon degré de fiabilité.

Bibliographie

- [Abramovitz, 70] **Abramovitz M. et Stegun I.A.**
Handbook of Mathematical Functions
9^e édition, Dover Publications (1970) 218, 227, 243
- [Agostini *et al*, 79] **Agostini P., Fabre F., Mainfray G.,
Petite G. et Rahman N.**
Phys. Rev. Lett. **42**, 1127 (1979) 14
- [Agostini *et al*, 93] **Agostini P., Mével E., Breger P.
Migus A. et DiMauro L.F.**
Super Intense Laser Physics
édité par B. Piraux, A. L'Huillier et K. Rzaewski
Plenum Press, New York, 155 (1993) 15
- [Alhberg *et al*, 67] **Alhberg J.H., Nilson E.N. et Walsh J.L.**
The theory of splines and their applications
Academic Press (1967) 72
- [Ammosov *et al*, 86] **Ammosov M.V., Delone N.B., et Kraïnov V.P.**
Sov. Phys. JETP **64**, 1191 (1986) 46, 57, 58, 60, 210
- [Antoine, 66] **Antoine J.-P.**
Ann. Soc. Sc. Bruxelles **80 II**, 169 (1966) 67, 68, 225, 225
- [Antoine *et al*, 95] **Antoine Ph., Piraux B. et Maquet A.**
Phys. Rev A **51**, R1750 (1995) 160
- [Antoine *et al*, 96] **Antoine Ph., L'Huillier A. et Lewenstein M.**
Phys. Rev. Lett. **77**, 1234 (1996) 151, 152, 172
- [Antoine *et al*, 96b] **Antoine Ph., Gaarde M.B., Salières S.,
Carré B., L'Huillier A. et Lewenstein M.**
Multiphoton processes ICOMP VII
Inst. Phys. Conf. Ser. **154**, 142 (1996) 50
- [Antoine *et al*, 97] **Antoine Ph., Piraux B.,
Milosevic D.B. et Gajda M.**
L. Phys. **7**, 594, 1997 52
- [Apolonski *et al*, 00] **Apolonski A., Poppe A., Tempea G.,
Spielmann Ch., Udem Th., Holzwarth R.,**

- Hänsch T.W. et Krausz F.
Phys. Rev. Lett. **85**, 740 (2000) 172, 181, 213
- [Augst *et al*, 91] Augst S., Strickland D.,
Meyerhofer D.D. et Chin S.L.
J. opt. Soc. Am. B **8**, 858 (1991) 58
- [Balcou *et al*, 93] Balcou Ph. et L'Huillier A.
Phys. Rev. A **47**, 1447 (1993) 200
- [Balcou *et al*, 97] Balcou Ph., Salières P.,
L'Huillier A. et Lewenstein M.
Phys. Rev. A **55**, 3204 (1997) 197, 197
- [Balcou *et al*, 00] Balcou Ph., Haroutunian R., Sebban S.,
Grillon G., Kazamias S., Chériaux G., Mullot G.,
Dorrer Ch., Le Blanc C. et Hulin D.
Multiphoton Processes, Proceedings of ICOMP VIII
Edité par L.F. DiMauro, R.R. Freeman et K.C. Kulander,
A.I.P. Conf. Proc. **525**, 319 (2000) 14
- [Bandarage *et al*, 92] Bandarage G., Maquet A., Ménis T.,
Taïeb R. et Cooper J.
Phys. Rev. A **46**, 380 (1992) 12, 119
- [Bander *et al*, 66] Bander M. et Itzykson C.
Rev. Mod. Phys. **38**, 346 (1966) 68, 225
- [Bartels *et al*, 00] Bartels R., Backus S., Zeek E.,
Misoguti L., Vdovin G., Christov I.P.,
Murnane M.M. et Kapteyn H.C.
Nature **406**, 164 (2000) 106
- [Basdevant, 86] Basdevant J.L.
Mécanique quantique
Ellipses (1986) 254
- [Bauer, 97] Bauer D.
Phys. Rev. A **55**, 2180 (1997) 86, 146
- [Bauer *et al*, 99] Bauer D. et Mulser P.
Phys. Rev. A **59**, 569 (1999) 59
- [Beaud *et al*, 93] Beaud P., Richardson M.,
Miesak E.J. et Chai B.H.T.
Opt. Lett. **18**, 1550 (1993) 9
- [Becker *et al*, 94] Becker W., Long S. et McIver J.K.
Phys. Rev. A **50**, 1540 (1994);
Becker W., Lohr A. et Kleber M.
Quant. Semiclass. Opt. **7**, 423 (1995) 16, 29
- [Becker *et al*, 94b] Becker W., Lohr A. et Kleber M.
J. Phys. B **27**, L325 (1994);
J. Phys. B **28**, 1931 (1995) (corrigendum)

- [Becker *et al*, 97] **Becker W., Lohr A., Kleber M. et Lewenstein M.**
Phys. Rev. A **56**, 645 (1997)
- [Bellini *et al*, 98] **Bellini M., Lyngå C., Tozzi A., Gaarde M.B., Hänsch T.W., L'Huillier A. et Wahlström C.G.**
Phys. Rev. Lett. **81**, 297 (1998) [13](#), [51](#)
- [Bethe, 57] **Bethe H.A. et Salpeter E.E.**
Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms
Springer-Verlag (1957) [63](#), [66](#), [67](#)
- [Bohan *et al*, 98] **Bohan (de) A., Antoine Ph., Milosevic D.B. et Piraux B.**
Phys. Rev. Lett. **81**, 1837 (1998)
- [Bohan *et al*, 00] **Bohan (de) A., Piraux B., Ponce L. et Maquet A.**
Super Intense laser atom Physics
édité par B. Piraux et K. Rzażewski
Kluwer Academic **12**, 323 (2000)
- [Boor, 78] **Boor (de) C.**
A practical guide to splines
Springer-Verlag (1978) [235](#), [235](#), [236](#)
- [Brabec *et al*, 00] **Brabec Th. et Krausz F.**
Rev. Mod. Phys. **72**, 545 (2000) [9](#), [80](#), [151](#)
- [Bransden *et al*, 83] **Bransden B.H. et Joachain C.J.**
Physics of Atoms and Molecules
Longman (1983) [63](#), [64](#)
- [Bucksbaum *et al*, 87] **Bucksbaum P.H., Freeman R.R., Bashkansky M. et McIlrath T.J.**
Atoms in intense radiation fields
Edité par M. Gavrilu, Academic Press, New York, 43 (1992)
[15](#), [89](#)
- [Bunkin *et al*, 66] **Bunkin F.V. et Fedorov M.V.**
Sov. Phys. JETP **22**, 844 (1966) [222](#)
- [Burnett *et al*, 92] **Burnett K., Reed V.C., Cooper J. et Knight P.L.**
Phys. Rev. A **45**, 3347 (1992) [158](#), [158](#)
- [Chang *et al*, 97] **Chang Z., Rundquist A., Wang H., Murnane M. et Kapteyn H.**
Phys. Rev. Lett. **79**, 2967 (1997) [10](#), [12](#)
- [Chen *et al*, 72] **Chen J.C.Y. et Chen A.C.**
Adv. At. Mol. Phys. **8**, 71 (1972) [67](#)
- [Cheng *et al*, 98] **Cheng Z., Tempea G., Brabec Th., Ferencz K., Spielmann Ch. et Krausz F.**

- Ultrafast phenomena XI*
 édité par T. Elsässer, Springer-Verlag (1998) 9
- [Christov *et al*, 97] Christov I.P., Murnane M.M. et Kapteyn H.C.
 Phys. Rev. Lett. **78**, 1251 (1997) 152, 171
- [Chu, 85] Chu S.I.
 Adv. At. Mol. Phys. **21**, 197 (1985) 253
- [Cohen-Tannoudji, 87] Cohen-Tannoudji C., Dupont-Roc J. et Grynberg G.
Photons et atomes, introduction à l'électrodynamique quantique
 InterEditions et Editions du C.N.R.S., 1987 24
- [Constant *et al*, 99] Constant E., Mével E., Garzella D., Berger P., Dorrer Ch., Le Blanc C., Salin F. et Agostini P.
 Phys. Rev. Lett. **82**, 1668 (1999) 14
- [Corkum, 93] Corkum P.B.
 Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993) 11, 16, 32, 34, 36, 169
- [Cormier, 94] Cormier E.
Thèse de Doctorat
 Université de Bordeaux I, (1994) 251
- [Cormier *et al*, 96] Cormier E. et Lambropoulos P.
 J. Phys. B **29**, 1667 (1996) 70, 70, 237
- [Cormier *et al*, 97] Cormier E. et Lambropoulos P.
 J. Phys. B **30**, 77 (1997) 16
- [Curry *et al*, 47] Curry H.B. et Schoenberg I.J.
 Bull. Amer. Math. Soc. **53**, 1114 (1947) 233
- [Curry *et al*, 66] Curry H.B. et Schoenberg I.J.
 J. d'Analyse. Math. **17**, 71 (1966) 236
- [Czirják *et al*, 00] Czirják A., Kopold R., Becker W., Kleber M. et Schleich W.P.
 Opt. Comm. **179**, 29 (2000) 118
- [Davis *et al*, 84] Davis Ph. et Rabinowitz Ph.
Methods of numerical integration
 Série : Computer Science and applied Mathematics.
 2^e édition, Academic Press (1984) 246
- [De Vries, 90] De Vries P.L.
 J. Opt. Soc. Am. B **7**, 517 (1990) 12
- [Dietrich *et al*, 00] Dietrich P., Krausz F. et Corkum P.B.
 Opt. Lett. **25**, 16 (2000) 104
- [Ditmire *et al*, 93] Ditmire T. et Perry M.D.
 Opt. Lett. **18**, 426 (1993) 9

- [Ditmire *et al*, 96] **Ditmire T., Grumbell E.T., Smith R.A., Tisch J.W.G. Meyerhofer D.D. et Hutchinson M.H.R.**
Phys. Rev. Lett. **77**, 4756 (1996) 13
- [Dollard, 64] **Dollard J.D.**
J. Math. Phys. **5**, 729 (1964) 67, 67
- [Eberly *et al*, 89] **Eberly J.H., Su Q. et Javanainen J.**
Phys. Rev. Lett. **62**, 881 (1989) 11
- [Eberly *et al*, 92] **Eberly J.H. et Fedorov M.V.**
Phys. Rev. A **45**, 4706 (1992) 157
- [Einstein, 05] **Einstein A.**
Ann. Phys. **4**, 132 (1905) 14
- [Faisal, 73] **Faisal F.H.M.**
J. Phys. B **6**, L89 (1973) 29
- [Ferry *et al*, 88] **Ferry M., L'Huillier A., Li X.F., Lompré L.A., Mainfray G. et Manus C.**
J. Phys. B **21** L31 (1988) 10, 29
- [Feynman et Hibbs, 65] **Feynman R.P. et Hibbs**
Quantum Mechanics and Path Integrals
McGraw-Hill, New York (1965) 45
- [Flandrin, 93] **Flandrin P.**
Temps-Fréquence
Série : traitement du signal, Hermès (1993) 160
- [Fock, 35] **Fock V.**
Z. Physik **98**, 135 (1935) 65
- [Freeman *et al*, 92] **Freeman R.R., Bucksbaum P.H., Cooke W.E. Gibson G., McIlrath T.J. et Van Woerkem L.D.**
Atoms in intense radiation fields
Edité par M. Gavrilă, Academic Press, New York, 43 (1992) 15
- [Gaarde *et al*, 99] **Gaarde M.B., Salin F., Constant E., Balcou Ph., Schafer K.J., Kulander K.C. et L'Huillier A.**
Phys. Rev. A **59**, 1367 (1999) 51
- [Gajda *et al*, 92] **Gajda M., Grochmalicki J., Lewenstein M. et Rzążewski K.**
Phys. Rev. A **46**, 1638 (1992) 119
- [Gisselbrecht *et al*, 99] **Gisselbrecht M., Descamps D., Lyngå C., L'Huillier A. et Wahlström C.G.**
Phys. Rev. Lett. **82**, 4607 (1999) 14
- [Glauber, 63] **Glauber R.J.**
Phys. Rev **131**, 2766 (1963)

- [Göppert-Mayert, 31] **Göppert-Mayert M.**
Ann. Phys. **9**, 273 (1931) 14, 25
- [Guth *et al*, 51] **Guth E. et Mullin C.J.**
Phys. Rev **83**, 667 (1951) 67, 225
- [Hairer *et al*, 91] **Hairer E. et Wanner G.**
*Solving ordinary differential equations II :
Stiff and differential-algebraic problems*
Springer-Verlag, Berlin (1991) 75
- [Hochstadt, 73] **Hochstadt H.**
Les fonctions de la physique mathématique
Masson et Cie (1973) 218
- [Huens, 96] **Huens E.**
Thèse de Doctorat
Université Catholique de Louvain,
laboratoire de Physique atomique et moléculaire (1996) 71,
75, 158, 245, 251
- [Huens *et al*, 97] **Huens E., Piraux B.,
Bugacov A. et Gajda M.**
Phys. Rev. A **55**, 2132 (1997) 87, 158, 260
- [Ivanov *et al*, 95] **Ivanov M.Yu., Corkum P.B.
Zuo T. et Bandrauk A.**
Phys. Rev. Lett. **74**, 2933 (1995) 152, 172
- [Ivanov *et al*, 96] **Ivanov M.Yu., Brabec Th. et Burnett N.**
Phys. Rev. A **54**, 742 (1996) 189, 211
- [Kan *et al*, 95] **Kan C., Capjack C.E.,
Rankin R. et Burnett N.H.**
Phys. Rev. A **52**, R4336 (1995)
- [Keldysh, 65] **Keldysh L.V.**
Sov. Phys. JETP **20**, 1307 (1965) 15, 16, 29, 210, 210
- [Kim *et al*, 01] **Kim J.H., Lee D.G.,
Shin H.J. et Nam C.H.**
Phys. Rev. A **63**, 063403 (2001) 118
- [Kopold *et al*, 00] **Kopold R., Becker R. et Kleber M.**
Opt Comm. **179**, 39 (2000) 57
- [Krause *et al*, 92] **Krause J.L, Schafer K.J. et Kulander K.C.**
Phys. Rev. Lett. **68**, 3535 (1992) 11
- [Krausz *et al*, 98] **Krausz F., Brabec Th.,
Schnürer M. et Spielmann Ch.**
Opt. and phot. news, 46 (Juillet 1998)
- [Kulander, 87a] **Kulander K.C.**
Phys. Rev A **35**, R445 (1987)

- [Kulander, 87b] **Kulander K.C.**
Phys. Rev A **36**, 2726 (1987) 12, 251
- [Kulander, 88] **Kulander K.C.**
Phys. Rev A **38**, 778 (1988) 15
- [Kulander *et al*, 93] **Kulander K.C., Schafer K.J. et Krause J.L.**
Super Intense Laser Physics
édité par B. Piraux, A. L'Huillier et K. Rzażewski
Plenum Press, New York, 95 (1993) 11
- [Kroll *et al*, 73] **Kroll N.M. et Watson K.M.**
Phys. Rev A **8**, 804 (1973) 116, 222
- [LaGattuta, 90] **LaGattuta K.J.**
Phys. Rev. A **36**, 3827 (1990) 12
- [Landau, 67(II)] **Landau L. et Lifchitz E.**
Physique théorique II, Théorie du champ
2^e édition, Mir (1967) 157
- [Landau, 67(III)] **Landau L. et Lifchitz E.**
Physique théorique III, Mécanique Quantique
2^e édition, Mir (1967) 83, 83, 226, 231
- [Larsson *et al*, 95] **Larsson J., Mével E., Zerne R.,
L'Huillier A., Wahlström C.G. et Svanberg S.**
J. Phys. B **28**, L53 (1995) 14
- [Le Déroff *et al*, 99] **Le Déroff L., Salières P., Carré B.,
Joyeux D. et Phalippou D.**
Phys. Rev A **61** (1999) 13, 13
- [Lewenstein *et al*, 94] **Lewenstein M., Balcou Ph., Ivanov M. Yu.,
L'Huillier A. et Corkum P.B.**
Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994) 16, 29, 40, 41, 42, 48
- [Lewenstein *et al*, 95] **Lewenstein M., Kulander K.C.,
Schafer K.J. et Bucksbaum P.H.**
Phys. Rev. A **51**, 1495 (1995) 40, 54, 56
- [L'Huillier *et al*, 91] **L'Huillier A., Schafer K.J. et Kulander K.C.**
Phys. Rev. Lett. **66**, 2200 (1991)
- [L'Huillier *et al*, 92b] **L'Huillier A., Balcou Ph. et Lompré L.A.**
Phys. Rev. Lett. **68**, 166 (1992) 200
- [L'Huillier *et al*, 92c] **L'Huillier A., Lompré L.A.,
Mainfray G. et Manus C.**
Atoms in intense radiation fields
Edité par M. Gavrilă, Academic Press, New York, 1992 194
- [L'Huillier *et al*, 92] **L'Huillier A., Balcou Ph., Candel S.,
Schafer K.J. et Kulander K.C.**
Phys. Rev. A **46**, 2778 (1992) 13, 184, 193

- [L'Huillier *et al*, 93a] **L'Huillier A. et Balcou Ph.**
Phys. Rev. Lett. **70**, 774 (1993)
- [L'Huillier *et al*, 93b] **L'Huillier A., Lewenstein M., Salières P.,
Balcou Ph., Ivanov M. Yu., Larsson J. et Wahlström C.G.**
Phys. Rev. A **48** R3433 (1993) 13
- [Lippmann *et al*, 50] **Lippmann B.A. et Schwinger J.**
Phys. Rev. **79**, 469 (1950) 66
- [Loudon, 73] **Loudon R.**
The Quantum Theory of Light
Oxford University Press
- [Luke, 77] **Luke Y.L.**
Algorithms for the computation of mathematical functions
Academic Press (1977) 245
- [McPherson *et al*, 87] **McPherson A., Gibson G., Jara H.,
Johan U., Luk T.S., McIntyre I.,
Boyer K. et Rhodes C.K.**
J. Opt. Soc. Am. B **4**, 595 (1987) 10, 29
- [Mollow, 75] **Mollow B.R.**
Phys. Rev. A **12**, 1919 (1975)
- [Muller, 99] **Muller H.G.**
L. Phys. **9** (1999) 201
- [Muller, 99b] **Muller H.G.**
Phys. Rev A **60**, 1341 (1999) 204
- [Muller *et al*, 92] **Muller H.G., Agostini P. et Petite G.**
Atoms in intense radiation fields
Edité par M. Gavrilă, Academic Press, New York, 1 (1992)
15
- [Paul *et al*, 01] **Paul P.M., Toma E.S., Breger P.,
Mullot G., Augé F., Balcou Ph.,
Muller H.G. et Agostini P.**
Science **292**, 1689 (2001) 152
- [Paulus *et al*, 94] **Paulus G.G., Nicklich W., Huale Xu,
Lambropoulos P. et Walther H.**
Phys. Rev. Lett **72**, 2851 (1994) 15, 29
- [Peatross *et al*, 95] **Peatross J. et Meyerhofer D.D.**
Phys. Rev. A **51**, R906 (1995)
- [Perelomov *et al*, 67] **Perelomov A.M. et Popov V.S**
Sov. Phys. JETP **25**, 336 (1967) 57, 58
- [Potvliege *et al*, 89] **Potvliege R. et Shakeshaft R.**
Phys. Rev. A **40**, 3061 (1989) 11

- [Pont *et al*, 92] Pont M., Potvliege R.,
Shakeshaft R. et Zhong-jian T.
Phys. Rev. A **45**, 8235 (1992) 58, 58, 58, 60
- [Press, 92] Press W.H., Teukolsky S.A., Vetterling W.T. et
Flannery B.P.
Numerical Recipes in Fortran
2^e édition, Cambridge University Press (1992)
- [Preston *et al*, 96] Preston S.G., Sanpera A., Zepf M.,
Blyth W.J., Smith C.G., Wark J.S.,
Key M.H., Burnett K., Nakai M.,
Neefy D. et Offenberger A.A.
Phys. Rev. A **53** R31 (1996)
- [Priori *et al*, 00] Priori E., Cerullo G., Nisoli M.,
Stagira S., De Silvestri S., Villoresi P.,
Poletto L., Cecherrini P., Altucci C.,
Bruzzese R. et de Lisio C.
Phys. Rev. A **61**, 063801 (2000) 187, 187
- [Reiss, 80] Reiss H.R.
Phys. Rev. A **22**, 1786 (1980) 29
- [Rundquist *et al*, 98] Rundquist A., Durfee III C., Chang Z.,
Herne C., Backus S.,
Murnane M. et Kapteyn H.
Science **280**, 1412 (1998)
- [Sack *et al*, 71] Sack R.A. et Donovan A.F.
Numerische Mathematik **18**, 465 (1971)
- [Salières *et al*, 95] Salières P., L'Huillier A. et Lewenstein M.
Phys. Rev. Lett. **74**, 3776 (1995) 197
- [Salières *et al*, 98] Salières P., Antoine Ph.,
Bohan(de) A. et Lewenstein M.
Phys. Rev. Lett. **81**, 5544 (1998) 153, 153
- [Salières *et al*, 99] Salières P., L'Huillier A.,
Antoine Ph. et Lewenstein M.
Adv. At. Mol. opt. **41**, 83 (1999) 50, 51
- [Salières *et al*, 99b] Salières P., Le Déroff L., Auguste T.,
Monot P., d'Oliveira P., Campo D.,
Hergott J.F., Merdji H. et Carré B.
Phys. Rev. Lett. **83**, 5483 (1999) 14
- [Salières *et al*, 00] Salières P., Hergott J.F., Le Déroff L.,
Merdji H., Carré B., Auguste T., Monot P.,
d'Oliveira P., Joyeux D. et Phalippou D.
Multiphoton processes, ICOMP VIII

- Edité par L.F. DiMauro, R.R. Freeman et K.C. Kulander,
 A.I.P. Conf. Proc. **525**, 385 (2000) [13](#)
- [Schafer *et al*, 97] **Schafer K.J. et Kulander K.C.**
 Phys. Rev. Lett. **78**, 638 (1997) [152](#), [153](#), [172](#), [172](#)
- [Schnürer *et al*, 98] **Schnürer M., Spielmann Ch., Wobrauschek P.,
 Streli C., Burnett N.H., Kan C.,
 Ferenzc K., Koppitsch R., Cheng Z.,
 Brabec Th. et Krausz F.**
 Phys. Rev. Lett. **80**, 3236 (1998)
- [Schoenberg, 46] **Schoenberg I.J.**
 Quart. Appl. Math. **4**, 45 (1946) [72](#)
- [Scrinzi *et al*, 99] **Scrinzi A., Geissler M. et Brabec Th.**
 Phys. Rev. Lett. **83**, 706 (1999) [143](#)
- [Scrinzi *et al*, 00] **Scrinzi A., Brabec Th. et Walser M.**
Super Intense laser atom Physics
 édité par B. Piraux et K. Rzażewski
 Kluwer Academic **12**, 313 (2000) [48](#), [147](#), [189](#)
- [Scrinzi, 00b] **Scrinzi A.**
 Phys. Rev. A **61**, 041402 (2000) [83](#), [84](#), [159](#)
- [Shakeshaft *et al*, 90] **Shakeshaft R., Potvliege R.,
 Dörr M. et Cooke W.E.**
 Phys. Rev A **42**, 1656 (1991) [59](#), [81](#), [82](#), [83](#), [83](#), [84](#)
- [Shin *et al*, 99] **Shin H.J., Lee D.G., Cha Y.H.
 Hong K.H. et Nam C.H.**
 Phys. Rev. Lett. **83**, 2544 (1999) [212](#)
- [Shore, 90] **Shore B.W.**
The theory of coherent atomic excitation
 Wiley, New York, 1990 [157](#)
- [Spielmann *et al*, 97] **Spielmann Ch., Burnett N.H., Sartania S.
 Koppitsch R., Schnürer M., Kan C.,
 Lenzner M., Wobrauschek P. et Krausz F.**
 Science **278**, 661 (1997) [10](#), [12](#), [163](#)
- [Strickland *et al*, 85] **Strickland D. et Mourou G.**
 Opt. Comm. **56**, 219 (1985) [9](#)
- [Sundaram *et al*, 90] **Sundaram B. et Milonni P.W.**
 Phys. Rev. A **41**, 6571 (1990) [157](#)
- [Tempea *et al*, 99] **Tempea G., Geissler M. et Brabec Th.**
 J. Opt. Soc. Am. B **16**, 669 (1999) [187](#)
- [Tisch *et al*, 94] **Tisch J.W.G., Smith A.R., Muffet J.E.,
 Ciarocca M., Marangos J.P., et Hutchinson M.H.R.**
 Phys. Rev. A **49**, R28 (1994)

- [Toma *et al*, 99] **Toma E., Antoine Ph.,
Bohan (de) A. et Muller H.G.**
J. Phys. B **32**, 5843 (1999) 18, 200, 201, 208
- [Volkov, 35] **Volkov D.M.**
Z. Phys. **94**, 250 (1935) 27
- [Van der Houwen *et al*, 90] **Van der Houwen P.J. et Sommeijer B.P.**
J. Comp. Appl. Math. **29**, 111 (1990) 77
- [Voronov *et al*, 65] **Voronov G.S. et Delone N.B**
J.E.T.P. Lett. **1**, 66 (1965)
- [Walker *et al*, 96] **Walker B., Sheehy B.,
Kulander K.C. et DiMauro L.F.**
Phys. Rev. Lett. **77**, 5031 (1996) 14 15, 29
- [Watson *et al*, 95] **Watson J.B., Sanpera A. et Burnett K.**
Phys. Rev. A **51**, 1458 (1995) 152
- [Watson *et al*, 95b] **Watson J.B., Keitel C.H.,
Knight P.L. et Burnett K.**
Phys. Rev. A **52**, 4023 (1995) 118
- [Watson *et al*, 97] **Watson J.B., Sanpera A.,
Burnett K. et Knight P.L.**
Phys. Rev. A **55**, 1224 (1997) 167
- [Wheeler, 74] **Wheeler J.C.**
Rocky Mountain Journal of Mathematics **4**, 287 (1974)
- [Wigner, 32] **Wigner E.**
Phys. Rev **40**, 729, 1932 118
- [Zerne *et al*, 97] **Zerne R., Altucci C., Bellini M.,
Gaarde M.B., Hänsh T.W., L'Huillier A.,
Lyngå C. et Wahlström C.G.**
Phys. Rev. Lett. **79**, 1006 (1997) 13
- [Zhou *et al*, 95] **Zhou J.P., Huang C.P.,
Murnane M.M. et Kapteyn H.C.**
Opt. Lett. **20**, 64 (1995) 9

Abstract

Tremendous improvements of ultrashort infrared laser pulse technologies now permit to expose matter to femtosecond and highly intense (above 10^{14} W/cm²) laser fields. In this theoretical study, we investigate the interaction dynamics between such strong and low frequency laser pulses and atomic hydrogen (modelling a single active electron system). We focus on the two main processes competing during the interaction namely ionisation and high order harmonic generation. We discuss the sensitivity of the harmonic spectrum to the absolute laser phase. As a matter of fact, for such short durations (only a few optical cycles), the absolute carrier phase becomes a key non-adiabatic laser parameter. Furthermore, we analyse the ionisation dynamics in the so-called “tunnelling” or “above-barrier” regime with an emphasis on the role of the Coulomb potential in this process.

Theoretically, two methods are used and compared. On one hand, we numerically solve the Time Dependent Schrödinger Equation (TDSE) both in configuration and momentum space by means of a spectral method based on the expansion of the radial wavefunction of atomic hydrogen on complex Sturmian functions and B-splines respectively. On the other hand, the essential atomic state method leads to an approximate analytical solution within the Strong Field Approximation (SFA). It sheds some light on the effective roles of the electric field and the Coulomb potential. In this method, the electric field is responsible for the dynamics of the interaction. In addition, some features of the harmonic and ejected electron spectra are qualitatively predicted, namely, in both cases, the high energy parts which, nevertheless, represent minor contributions to each process. This method, however, is not sufficient to gain quantitative insights both on the global ionisation rate and the amplitude of the harmonic signal.

Our main goal is to demonstrate that the quantitative disagreement between SFA and TDSE results (but also between SFA and experimental measurements) is essentially due to the complete neglect of the Coulomb potential in the ionisation mechanism which, in this model, is attributed to tunnelling.

Our analysis of the SFA points out the importance of the canonical momentum in the interaction dynamics. Describing atomic processes in terms of momenta happens to be a remarkable probe of the interplay between the Coulomb potential and the laser field in the ejection mechanism. Our results from the TDSE, directly solved in momentum space, show that the dominant ionisation scheme is not the one described by the SFA. Instead, our study emphasizes the actual role of the Coulomb potential in the release of the electron and suggest another mechanism different from tunnelling. This statement is also true even when we approach the saturation intensity for which the atom gets ionised within a laser period.