

Université Catholique de Louvain
Faculté des Sciences
Département de Physique

BIBLIOTHÈQUE
UNIVERSITAIRE
FACULTÉ DES SCIENCES
SARLÉ - 1348 Louvain-la-Neuve

**Interaction de l'hydrogène atomique avec une
impulsion laser courte et intense : développement
d'une méthode numérique d'analyse et application à
l'étude de la stabilisation**

Dissertation présentée par
Etienne Huens
en vue de l'obtention du grade de
Docteur en Sciences
(Groupe des Sciences Physiques)

Louvain-la-Neuve
Septembre 1996

BS 6655737

Au terme de ce travail, je tiens à remercier tout particulièrement Bernard Piraux qui a encadré ce travail de thèse et rendu possible sa réalisation,

Freddy Brouillard qui m'a accueilli dans l'Unité de Physique Atomique et Moléculaire,

Jean Meinguet et Alphonse Magnus, pour les nombreux conseils concernant les aspects numériques de ce travail,

Jean-Pierre Antoine et Jean-Pierre Gazeau, pour les indications données lors de nos premières rencontres avec les fonctions sturmiennes,

Alfred Maquet, Martin Dörr, Kazik Rzazewski, Robin Shakeshaft, Joseph Eberly, Micha Fedorov, Peter Knight et Keith Burnett pour les discussions intéressantes lors de leurs passages à Louvain-la-Neuve,

Xavier Urbain, pour la pertinence de ses questions et remarques,

André Fayt, pour la confiance qu'il m'a témoignée lors des remplacements,

Stéphane Hovine, pour l'auto-relancement dans la queue short de 10 minutes, pour l'histoire de Zaza la reine des abeilles et pour tout le reste,

Fabienne Delbrouck, Jean-Luc Martou, Myriam Nemry, Alain Ninane, Francis Somers et Danielle Van Grunderbeeke pour l'aide informatique,

Les membres de l'unité, en particulier Philippe Antoine, Stéphane Ghiste, Thomas Grosge pour leur soutien moral et Hubert Stoop pour les programmes flash et xeye.out,

Pascal Lambrechts, pour ses conseils,

Monique et Maman, pour la correction orthographique,

Ma famille qui m'a supporté au sens propre et au sens figuré pendant ces très (trop?) nombreuses années.

Et finalement, Danielle pour tellement de choses qu'il faudrait doubler le volume de cette thèse pour toutes les mentionner.

Il n'y aurait pas seulement, de la part des maîtres de la science, une démesure mais une illusion à mépriser la multitude des simples pour lesquels l'image privilégiée de la réalité physique ne saurait être le ballet fou des particules de l'atome dans un cyclotron, et encore moins la nature de la vie se réduire à ce qui se constate dans le champ d'un microscope électronique : au niveau de la conscience d'être, le plus important demeure, pour chacun de nous, son histoire de personne au cœur des choses ordinaires, et ni les schémas de la science, ni les artifices de la technique ne dessinent entre le moi et le monde des rapports essentiels.

Pierre-Henri Simon dans " Questions Aux Savants ", éditions du Seuil, 1969.



Table des matières

Introduction	5
Le concept de stabilisation	8
Description du travail	10
 I Développement d'un outil d'analyse	 15
 1 Formulation du problème	 17
1 Description quantique du champ laser	18
2 Hamiltonien total du système	20
3 Limite semi-classique	21
4 Approximation dipolaire	23
5 Forme de l'Hamiltonien d'interaction	24
 2 Les fonctions sturmiennes	 29
1 Définition	30
1.1 Le problème de Sturm-Liouville	30
1.2 Les fonctions sturmiennes	31
1.3 Calcul des éléments de matrice	32
1.4 Comportement des sturmiennes	33
2 Equation de Schrödinger	34

2.1	Formulation matricielle	34
2.2	Changements de base	35
3	Optimisation des paramètres de la base	37
3	Résolution numérique de l'équation	49
1	Origine du caractère stiff du problème	49
2	Choix d'une méthode	52
2.1	Dans la base atomique	53
2.2	Dans la base sturmienne	54
3	Méthodes de résolution	55
3.1	Développement perturbatif	55
3.2	Runge-Kutta	57
4	Traitement de l'équation de Schrödinger à grande distance	65
1	Dilatation complexe	65
2	Fonctions sturmiennes complexes	67
3	Calcul des éléments de matrice	68
5	Calcul des observables	69
1	Densité de probabilité radiale	69
2	Spectre en énergie	71
3	Probabilité d'ionisation	71
4	Génération des harmoniques	71
II	Stabilisation de l'hydrogène atomique en champ laser intense	75
6	En route vers la stabilisation	77

1	L'ionisation multiphotonique (MPI)	78
2	Ionisation au-dessus du seuil (ATI)	83
7	Stabilisation adiabatique	93
1	Théorie de Gavrila et Kaminski	93
1.1	La transformation de Kramers	94
1.2	Théorie de Floquet dans le référentiel de Kramers	94
1.3	Stabilisation dans la limite des hautes fréquences	96
2	La stabilisation adiabatique	97
2.1	Dichotomie de la fonction d'onde	97
2.2	Diminution du taux d'ionisation	98
3	Observabilité	102
8	La stabilisation dynamique	105
1	Effets de cohérence en mécanique quantique	105
1.1	Interférence quantique entre états stationnaires	106
1.2	Capture de population lors de l'ionisation par une impulsion laser courte	107
1.3	Effets de cohérence et d'interférence dans un atome de Rydberg interagissant avec un champ laser intense	108
2	Effets de cohérence dans l'ionisation de H	112
2.1	Influence de l'énergie des photons	112
2.2	Influence de la durée de l'impulsion	114
3	Stabilisation à haute intensité	117
	Conclusions	123
A	Calculs sturmiens	125
1	Fonctions sturmiennes et polynômes de Laguerre	125

2	Relation de récurrence	126
3	Algorithme de calcul des hypergéométriques	126
4	Calcul des éléments de matrice	126
B Equation de Schrödinger		133
1	Effet des opérateurs	133
2	Formulation matricielle	134
C Méthode des gradients biconjugués		139
1	Méthode des sous-espaces de Krylov	141
2	Processus de Lanczos classique et BiCG	142
3	BiCGSTAB	144
4	Préconditionnement	145
D Electron libre et absorption de photons		149

Introduction

Au début de ce siècle, la découverte de l'effet photoélectrique — l'émission d'électrons par des atomes lorsqu'ils interagissent avec un champ électromagnétique — a permis une meilleure connaissance de la structure des atomes et a été à l'origine du concept de photon. Einstein, dans son célèbre article de 1905, a proposé une explication très simple de ce phénomène [Ein05]. Elle est fondée sur l'idée que l'échange d'énergie entre la lumière et la matière se fait par des quantités discrètes appelées photons. La relation d'Einstein pour l'effet photoélectrique relie l'énergie cinétique des électrons émis et l'énergie des photons incidents avec le potentiel d'ionisation qui est la quantité d'énergie à fournir pour “arracher” l'électron à l'atome. Cette relation donnait une interprétation à des résultats expérimentaux qui montraient l'existence d'un seuil pour les fréquences de la lumière incidente indépendant de l'intensité en-deçà duquel on ne pouvait ioniser l'atome.

Il a fallu attendre le développement de sources laser intenses dans le début des années soixante pour pouvoir observer des phénomènes qui étaient trop faibles pour être détectés avec des sources conventionnelles [Gop31]. Parmi eux, les processus d'absorption multiphotonique. Les expériences d'alors ont montré qu'il était possible d'ioniser des atomes avec des champs de n'importe quelle fréquence par absorption simultanée de plusieurs photons, à condition que l'intensité lumineuse soit suffisamment grande [Hal65] [Vor65]. Ce processus est appelé ionisation multiphotonique (MPI).

La nouvelle loi de conservation de l'énergie de ce processus multiphotonique dit que l'énergie de l'électron est une fraction de l'énergie du photon, comme dans l'effet photoélectrique linéaire. En effet, on s'attend à ce que l'atome absorbe juste le nombre nécessaire de photons pour s'ioniser et par conséquent, que l'énergie cinétique des électrons émis soit inférieure à l'énergie des photons. Pourtant, les premières mesures du spectre en énergie des électrons émis ont montré un phénomène tout à fait inattendu: des électrons d'énergie supérieure à cette limite. Dans ce processus appelé ionisation au-dessus du seuil, l'atome absorbe plus de photons que le minimum nécessaire (ATI) [Ago79]. La figure 0.1 présente les intensités auxquelles ces effets apparaissent.

Pendant de nombreuses années, l'outil théorique utilisé pour comprendre ce processus était la théorie des perturbations dépendantes du temps, en général, à l'ordre le plus bas (LOPT) [Gon80][Fab82]. De manière imagée, on peut dire que le champ induit des transitions entre des états atomiques non-perturbés; l'atome absorbe des photons et passe

REGIMES D'INTENSITES

laser Nd : $\hbar\omega = 1.21$ eV

laser KrF : $\hbar\omega = 4.98$ eV

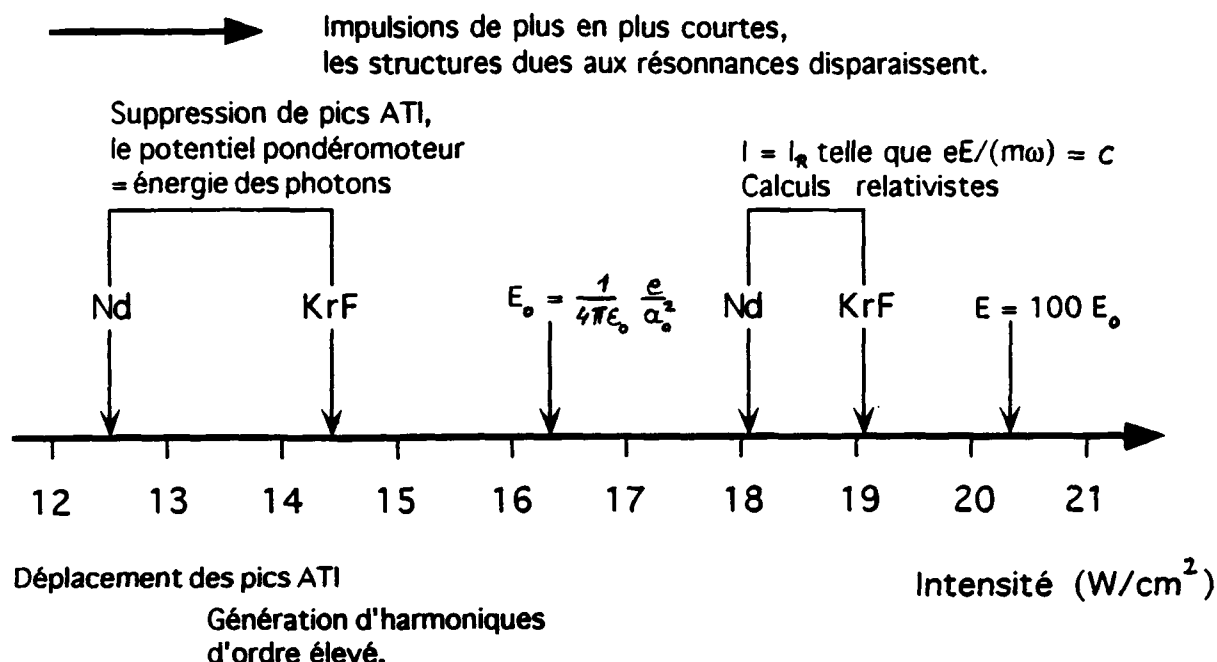


Figure 0.1 Processus intervenant lors de l'interaction d'une impulsion laser avec un atome d'hydrogène pour différents régimes d'intensités.

par des états virtuels jusqu'à ce que l'énergie totale absorbée soit plus grande que le potentiel d'ionisation. La LOPT permet d'obtenir des résultats tant que l'énergie des états virtuels intermédiaires par lesquels passe le système est loin de l'énergie de tout état réel (c'est-à-dire loin de toute résonnance) et tant que les intensités en jeu ne sont pas trop élevées. La plupart des effets découverts dans le cadre de l'ionisation multiphotonique ne peuvent être traités à l'aide de la LOPT; on les a qualifiés de "non-perturbatifs". Citons l'augmentation du potentiel d'ionisation dans les champs forts et les résonnances induites par effet Stark.

Depuis que l'on a réalisé que la théorie des perturbations n'était pas suffisante pour décrire l'ionisation multiphotonique aux intensités élevées, diverses méthodes non-perturbatives ont été développées. Notons qu'il est difficile de mettre en œuvre de telles méthodes car on ne connaît pas de solutions analytiques pour l'équation de Schrödinger d'un atome dans un champ électrique dépendant du temps. Passons brièvement en revue les différents types de méthode.

- La méthode des états essentiels consiste à introduire "à la main" les différents états jouant un rôle significatif dans le processus [Cra80]. La fonction d'onde du système est décrite comme une combinaison d'états discrets et d'états du conti-

nuum. Les divers états sont couplés par des éléments de matrice qu'il est nécessaire de connaître. Cette méthode a fourni des résultats intéressants en montrant par exemple l'importance des transitions continuum-continuum et a prédit la saturation des pics de basse énergie dans le spectre des photo-électrons émis [Bia84][Dul87]. Mais elle est limitée par le fait que certains processus nécessitent un très grand nombre d'états pour être décrits correctement, que les transitions libre-libre sont difficiles à décrire et qu'il faut connaître les éléments de matrice. Nous avons utilisé cette méthode dans notre mémoire pour étudier la suppression de l'ionisation et le piégeage de population dans les états de Rydberg [Pir91].

- La théorie de Floquet consiste à remplacer l'équation de Schrödinger pour un atome interagissant avec un champ périodique par un système d'équations couplées infini indépendant du temps. En utilisant cette méthode, on a pu étudier le rôle des résonnances induites dans le taux d'ionisation et le spectre des photo-électrons émis [Chu77][Chu85] [Burk91]. Potvliege et Shakeshaft [Pot88] purent aussi comparer leurs prédictions pour les positions des pics dus aux résonnances dans le spectre des électrons avec des résultats expérimentaux obtenus à l'Université de Bielefeld pour l'hydrogène [Rot90]. Cette méthode a aussi été utilisée par A. Buchleitner pour étudier l'ionisation des états de Rydberg de l'atome d'hydrogène par une impulsion micro-onde [Buc93]. La principale limite de cette approche est qu'elle ne tient pas compte de la dépendance temporelle du champ incident: les calculs ne contiennent qu'un champ électrique monochromatique et les effets dûs au déclenchement de l'impulsion ne sont pas considérés. On travaille dans le cadre de l'approximation adiabatique: on suppose que l'enveloppe de l'impulsion varie peu sur une période optique. Il faut noter aussi que pour des raisons de volume de calculs, cette théorie ne permet que difficilement le traitement des électrons d'énergie élevée ainsi que les hautes intensités.
- La méthode la plus directe est sans doute l'intégration directe de l'équation de Schrödinger à une dimension correspondante. Pour réduire la quantité totale de calculs, on a commencé par considérer le problème à une dimension [Col88][Jav88] [Ree90] [Ree91]. Cette approche a produit de nombreux résultats qui ont contribué à une meilleure compréhension des phénomènes multiphotoniques, mais il faut signaler que ces calculs représentent une simplification extrême des conditions expérimentales: le faisceau n'a aucune extension spatiale, le champ magnétique est d'office négligé, il n'y a que deux séries d'états et le potentiel Coulombien doit être remplacé par un potentiel plus simple. Contrairement à ce qu'il se passe dans le cas à trois dimensions, le potentiel Coulombien ne peut pas être utilisé à cause de la discontinuité à l'origine. Ce potentiel (appelé souvent le potentiel de *Rochester*) est: $V(x) = -1/\sqrt{1+x^2}$. Il possède deux séries d'états de Rydberg qui, comme pour le potentiel Coulombien, convergent lentement. Il a été utilisé de nombreuses fois pour obtenir des résultats concernant l'ATI et la génération des harmoniques [Jav88] [Ree90][Su90] [Su91] [Bur91]. Le seul avantage de cette approche est la rapidité des calculs nécessaires à la résolution de l'équation de Schrödinger. D'un point de vue physique, cette méthode permet seulement d'obtenir une idée qualitative de ce qu'il se passe exactement.

- La résolution de l'équation de Schrödinger à trois dimensions est évidemment beaucoup plus réaliste, mais elle représente aussi un volume de calculs beaucoup plus important. Un premier type de méthode consiste à propager dans le temps la fonction d'onde totale définie sur une grille (méthodes des différences finies) [Kul91b]. Habituellement, la propagation est réalisée à l'aide d'une méthode implicite du second ordre, ce qui permet au propagateur d'être exprimé sous forme de matrice tri-diagonale [Kul87]. Dans ce cas, les calculs sont grandement simplifiés et leur volume est proportionnel au nombre total de points dans la grille (donné dans le cas d'une polarisation linéaire par le produit du nombre de moments angulaires et du nombre de points radiaux dans la grille). La distribution finale de la population dans les états liés et dans le continuum est obtenue facilement à partir de la connaissance de la fonction d'onde à la fin de l'impulsion. Cette méthode est très efficace et a fourni de nombreux résultats tel que le taux d'ionisation, le spectre en énergie des électrons lors de l'ATI, le spectre des harmoniques . . . , dans le cas de l'interaction d'un champ polarisé linéairement avec un système à un électron initialement dans son état fondamental ou dans un état faiblement excité [Per89][Kul90]. Ces résultats sont qualitativement comparables avec certaines résultats expérimentaux [Li89][Fer89] Mais si l'état initial est un état de nombre quantique principal élevé ou si le champ est polarisé circulairement ou elliptiquement, on s'attend à ce que la taille de la grille, ainsi que le nombre de points à considérer augmentent fortement pour rendre finalement le problème complexe.
- Les méthodes spectrales permettent aussi de résoudre le problème à trois dimensions [Col89]. Dans ce type de méthode, on développe la partie radiale de la fonction d'onde du système sur une base de fonctions de carré sommable: des gaussiennes, fonctions splines [Deb78][Tan90] ou sturmiennes. Les coefficients dépendant du temps apparaissant dans ce développement sont propagés dans le temps. Si les fonctions et l'algorithme de propagation sont correctement choisis, le volume total d'opérations peut être fortement réduit et dépendre linéairement du nombre total de fonctions considérées dans la base[Hue93a][Hue93b] [Hue93c][Hue96].
- Citons finalement, les approches classiques qui consistent à résoudre numériquement la seconde équation de Newton à une ou trois dimensions pour un électron dans un potentiel coulombien soumis à un champ électrique oscillant. Cette méthode ne permet de mettre en évidence que des phénomènes dont l'origine est classique tels que la stabilisation adiabatique [Pon91a][Gaj92] [Vén93].

Le concept de stabilisation

Ces différentes méthodes de résolution de l'équation de Schrödinger permettent d'analyser et de comprendre certains résultats expérimentaux, mais aussi de prédire certains phénomènes qui ne sont pas encore observés expérimentalement; c'est le cas de la stabilisation. Dans ce travail, nous parlons de stabilisation d'un atome en champ fort quand, pour une fréquence et une durée d'impulsion fixées, le taux total d'ionisation décroît quand

l'intensité du laser croît. Il ne faut pas confondre la stabilisation avec l'inhibition de l'ionisation qui est une réduction du taux d'ionisation par rapport à ce que prédit la théorie des perturbations lorsque l'intensité croît.

L'origine de ce concept remonte au travail de Gavril et Kaminski [Gav84]. Ils ont utilisé le référentiel de Kramers-Henneberger dans lequel un électron libre oscillant dans le champ électromagnétique est au repos. Dans ce référentiel, le noyau oscille avec une amplitude α_0 et le potentiel coulombien apparaît avec une structure "à deux puits" localisés aux extrémités du mouvement classique. Gavril et Kaminski ont remarqué que la probabilité d'ioniser l'atome diminuait lorsque la fréquence du champ augmentait. Dans la limite des hautes fréquences, la fonction d'onde du système doit simplement satisfaire une équation aux valeurs propres dans laquelle apparaît le potentiel moyen ressenti par l'électron. Le système se trouve alors dans un état stationnaire. Cette stabilisation "à haute fréquence" n'est pas la stabilisation définie dans ce travail. En se basant sur cette approche, Pont et Gavril ont mis en évidence la stabilisation que l'on a appelée "adiabatique" car elle résulte de l'évolution adiabatique d'un état propre non-perturbé bien défini vers un état habillé dont la largeur tend vers zéro [Pon90][Su90][Dor90][Kul91a]. Ils ont aussi calculé les fonctions d'onde et les niveaux d'énergie de l'atome d'hydrogène dans la limite des hautes fréquences. Nous verrons dans la suite que ces deux derniers points sont importants pour la compréhension du mécanisme de stabilisation.

Avec les mêmes conditions pour la fréquence du laser, c'est-à-dire pour des énergies de photon plus grandes que le potentiel d'ionisation, le branchement soudain de l'impulsion laser peut être à l'origine de la stabilisation de l'atome. Parker et Stroud ont montré en utilisant des modèles numériques que si la largeur en fréquence de l'impulsion recouvre plusieurs états initialement non-peuplés, le système peut être placé dans une superposition cohérente d'états qui empêche l'ionisation [Par90]. Ce transfert de population se fait par couplage Raman via le continuum.

Ce mécanisme a aussi été étudié par Fedorov et Movsesyan [Fed89a] avec comme état initial un état de Rydberg de nombre quantique principal élevé. Ils montrent que ce processus provoque la stabilisation de l'atome quand la largeur en énergie des états de Rydberg devient plus grande que l'écart entre deux états voisins. Nous verrons dans la suite de ce travail qu'à notre avis, ces résultats doivent être pris avec beaucoup de prudence.

Les résultats de Parker et Stroud ne présentent pas encore le concept de stabilisation dans le sens où nous le définissons, mais plutôt l'inhibition de l'ionisation: on observe une saturation de la probabilité d'ionisation plutôt qu'une diminution. Pour étudier ce phénomène avec un modèle plus réaliste, nous avons développé la méthode spectrale décrite dans ce travail pour résoudre l'équation de Schrödinger à trois dimensions. Cela nous a permis d'obtenir des résultats pour l'inhibition mais aussi de mettre en évidence et de comprendre le mécanisme de la stabilisation que nous observons. Comme ce mécanisme est fondé sur un transfert de population, par opposition à la stabilisation adiabatique, nous l'appelons stabilisation dynamique.

En ce qui concerne l'inhibition, nous montrons que pour des champs électriques plus petits ou égaux au champ atomique, l'atome est placé dans une superposition cohérente de l'état

initial et d'un ensemble d'états de Rydberg qui est stable. Les causes de ce transfert de population de l'état initial vers un ensemble d'états de Rydberg sont la largeur finie de l'impulsion, les transitions Raman via le continuum ou des états discrets qui redistribuent la population dans plusieurs états et les transitions résonnantes qui se présentent lors du déplacement des états. Le paquet d'onde de Rydberg qui résulte de cette excitation est généralement créé loin du noyau. Pour la stabilisation qui se produit à des intensités plus élevées, une partie de la population est transférée par couplage Raman dégénéré vers des états de moment angulaire plus élevés. En d'autres mots, plusieurs nouveaux paquets d'onde de Rydberg sont créés. Etant caractérisé par un moment angulaire élevé, le recouvrement de ces paquets d'onde avec le noyau est très petit et l'interaction avec le champ sera très faible. Pour qu'il y ait ionisation, il faut que l'électron soit proche du noyau car un électron libre ne peut absorber de photons (cfr appendice D). En effet, comme les photons ne peuvent transférer de moment à l'électron, la seule possibilité pour l'électron est d'entrer en "collision" avec le noyau.

Description du travail

Nous décrivons ici le contenu des différents chapitres et nous nous efforçons, en parallèle, de faire apparaître notre contribution personnelle à ce travail.

Ce travail est constitué de deux parties: tout d'abord le développement d'une méthode pour résoudre l'équation de Schrödinger à trois dimensions dépendante du temps et ensuite, l'utilisation de cette méthode pour obtenir des résultats physiques concernant la stabilisation. Même si ces deux volets sont étroitement liés, nous avons préféré, pour plus de clarté, les séparer. Les détails techniques qui ne manqueront pas d'intéresser les personnes qui poursuivront ce travail ont été placés en annexe.

Nous commençons donc par une première partie, consacrée uniquement à la présentation de la méthode [Hue96].

Dans le chapitre 1, nous présentons et justifions l'utilisation de l'équation de Schrödinger que nous résolvons. Les propriétés des impulsions lumineuses intenses générées par les lasers nous permettent de travailler avec un formalisme semi-classique: le champ est traité classiquement et les particules quantiquement. Parmi les différents choix pour la forme de l'Hamiltonien d'interaction, nous expliquons pourquoi la forme vitesse est la plus appropriée à notre problème. Le contenu de ce chapitre n'a rien de nouveau, mais il nous semble utile d'insister sur le rôle que la nature physique du problème étudié joue au niveau du choix de l'équation à résoudre. Ce chapitre permet aussi de comprendre les limites physiques de la validité de l'équation choisie.

Le chapitre 2 est consacré aux fonctions sturmiennes. La résolution de l'équation présentée dans le premier chapitre se fait par méthode spectrale. Ce type de méthode consiste à développer la fonction d'onde totale du système sur une base de fonctions de carré sommable pour les coordonnées radiales: les sturmiennes, et sur les harmoniques sphériques pour les coordonnées angulaires. Après la définition des fonctions sturmiennes, nous montrons

la forme matricielle que prend l'équation de Schrödinger à résoudre. Vient ensuite une discussion originale à propos de l'optimisation de la base. La fonction d'onde est en effet développée sur un nombre fini de sturmiennes qui dépendent d'un paramètre arbitraire, appelé κ . Il s'agit donc d'optimiser la taille de la base et κ en fonction du phénomène physique étudié. Nous montrons l'influence qu'ont ces paramètres sur les fonctions hydrogénoïdes reproduites par la base. Nous présentons deux méthodes pour passer de la base sturmienne à la base atomique; la seconde, très originale, est particulièrement économique au niveau du volume de calculs.

Le chapitre 3 décrit la méthode de propagation dans le temps de la fonction d'onde du système exprimée dans la base sturmienne. La contribution de notre travail à ce niveau est dans la recherche d'une méthode la plus efficace possible. Pour cela, il est important de comprendre les "points faibles" et les "points forts" du système d'équations différentielles que nous devons résoudre. Notre système est *stiff* (raide), c'est-à-dire que les variations temporelles de certains coefficients de la fonction d'onde sont beaucoup plus importantes que pour d'autres, ce qui requiert soit de travailler avec des pas pour la propagation extrêmement petits, soit d'utiliser une méthode implicite. La procédure que nous avons utilisée a été développée par van der Houwen et Sommeijer: il s'agit d'une méthode de type prédicteur-correcteur et elle est fondée sur un schéma implicite Runge-Kutta. Elle nécessite la résolution de systèmes linéaires, creux dans notre cas, qui peuvent se faire à l'aide d'une méthode itérative: BiCGSTAB.

La principale difficulté rencontrée dans notre recherche fut l'ignorance de l'existence de ces méthodes numériques. Au début par exemple, nous avons travaillé dans la base atomique, avec des matrices pleines: cela nous forçait à utiliser des méthodes explicites. Quand nous avons vu qu'il était possible de rester dans la base sturmienne et appris l'existence des méthodes de résolution itératives de systèmes linéaires, des méthodes tout d'abord diagonalement implicites, ensuite implicites, ont été utilisées. Il faut souligner à ce niveau l'aide des Professeurs Meinguet et Magnus. Rien ne nous permet de dire que les algorithmes utilisés actuellement ne seront pas encore améliorés ou remplacés par d'autres ...

Le chapitre 4 présente le principal problème de ce type d'approche: les fonctions sturmiennes ont une extension spatiale finie. Cela signifie que la fonction d'onde du système, développée sur un nombre fini de fonctions, ne peut être décrite que dans une région limitée de l'espace. Si le flux de densité de probabilité atteint les limites de cette région, nous avons une réflexion vers l'intérieur et donc, des effets "parasites". Pour éviter ce genre d'inconvénient, la dilatation complexe de l'Hamiltonien, abondamment utilisée dans plusieurs domaines, est utilisée. Notre connaissance assez limitée des aspects mathématiques de cette technique rendent la description de cette méthode très succincte.

Le chapitre 5 est consacré au calcul des observables. Signalons simplement l'originalité du calcul du spectre en énergie des photoélectrons émis qui se base sur une interprétation des normes des amplitudes des fonctions hydrogénoïdes reproduites par la base sturmienne. Il faut aussi faire le lien entre cette approche et ce que nous appelons l'optimisation des paramètres de la base. L'obtention de l'accélération du dipôle qui permet de calculer la génération des harmoniques est donné à titre informatif: l'étude de cette dernière ne fait

pas l'objet de cette thèse. Pour plus de renseignements, nous renvoyons le lecteur au travail de Philippe Antoine [Ant95a][Ant96].

En lien avec ces cinq chapitres, quatre appendices décrivent en détail les calculs impliquant les fonctions sturmiennes, la manière dont la forme matricielle de l'équation de Schrödinger est obtenue, la méthode des gradients biconjugués et finalement la raison pour laquelle un électron libre ne peut absorber de photon. Cette méthode permet de résoudre un système linéaire d'équations de manière itérative. Elle ne fait intervenir que des multiplications de matrices avec des vecteurs. Les matrices de notre problème étant creuses, ce type de résolution se révèle très efficace. Cette méthode étant tout à fait nouvelle pour nous, nous la présentons en détail.

La seconde partie de ce travail présente les résultats obtenus concernant la stabilisation de l'hydrogène atomique.

Elle commence par l'introduction dans le chapitre 6 du cadre physique dans lequel ce travail s'inscrit. On y décrit les processus d'ionisation multiphotonique (MPI) et d'ionisation au-dessus de seuil (ATI).

Le chapitre 7 est consacré à la stabilisation adiabatique. Nous y présentons succinctement le travail de Gavrilin et Kaminski qui est à l'origine de la stabilisation à haute fréquence. Il nous semble important, pour bien comprendre ce type de stabilisation, de présenter brièvement l'approche utilisée: elle se base sur la théorie de Floquet dans le référentiel de Kramers. Viennent ensuite les résultats de Pont sur la stabilisation. Pour terminer ce chapitre, nous présentons des résultats théoriques obtenus avec notre méthode concernant ce type de stabilisation et discutons les problèmes expérimentaux qu'elle rencontre lors de son observation.

Le chapitre 8 présente les résultats originaux obtenus pour l'inhibition et la stabilisation dynamique de l'hydrogène atomique lors de son interaction avec une impulsion laser intense. Ces résultats ont fait l'objet de plusieurs publications [Pir91][Hue93a][Hue93b][Hue93c]. Comme nous l'avons dit, la méthode de résolution développée devait nous fournir des résultats concernant l'inhibition de l'ionisation. C'est en travaillant sur ce sujet que nous avons rencontré la stabilisation. Ce chapitre est divisé en trois parties.

Dans une première partie, nous commençons par décrire trois articles qui ont joué un rôle important dans l'analyse des effets de cohérence lors de l'interaction d'un système quantique avec un champ électromagnétique: tout d'abord un article de Cardamina et al. montrant l'effet des interférences quantiques dans la fluorescence du système, ensuite un article de Parker et al. présentant la capture de population dans une superposition cohérente d'états lors de l'ionisation et pour finir, un article de Fedorov et al. traitant des effets de cohérence dans l'interaction d'un atome de Rydberg avec un champ laser intense. Ces résultats sont obtenus pour des systèmes simples et ne donnent qu'une idée qualitative des mécanismes intervenant lorsque l'on considère des atomes réels.

La deuxième partie présente nos résultats concernant l'inhibition. Nous commençons par étudier l'influence de la durée de l'impulsion et de l'énergie des photons sur le taux d'ionisation. L'originalité de ces résultats réside dans le fait que nous nous intéressons à un atome d'hydrogène sans faire aucune approximation. Pour terminer, la troisième et dernière partie est la plus intéressante, elle est consacrée à la stabilisation. Ces résultats

furent les premiers concernant la stabilisation dynamique d'un atome d'hydrogène à trois dimensions. Actuellement, d'autres groupes ont obtenu des résultats semblables [Iva93].

Partie I

Développement d'un outil d'analyse

Chapitre 1

Formulation du problème

Dans ce chapitre, nous introduisons et motivons le formalisme adopté pour décrire le champ laser, l'atome d'hydrogène et leur interaction. Il se divise en cinq parties.

Dans la première partie de ce chapitre nous rappelons quelques éléments importants de la description quantifiée du champ électromagnétique.

Les intensités laser avec lesquelles nous travaillons sont suffisamment petites pour considérer les vitesses des particules faibles par rapport à c . Ceci nous permet de traiter de manière non-relativiste les protons et les électrons. Dans cette limite, on peut faire l'économie d'une description de la matière par une théorie des champs et se contenter d'une description reposant sur les variables position et impulsion. Nous présentons, dans la deuxième partie, l'Hamiltonien du système atome + champ quantifié.

Ensuite, dans une troisième partie, nous montrons que, pour les cas qui nous intéressent, une description classique du champ est suffisante. Le point essentiel fondant la correspondance entre l'approche présentée dans le premier point de ce chapitre (champ électromagnétique quantifié) et le traitement classique du rayonnement réside dans les propriétés de cohérence et la grande densité de photons caractérisant un champ laser. Dans l'Hamiltonien, le champ est traité classiquement et les particules quantiquement. Nous arrivons de cette manière à l'Hamiltonien semi-classique.

Enfin, dans une quatrième partie, nous simplifions l'Hamiltonien obtenu en faisant l'approximation dipolaire. Nous choisissons la jauge de Coulomb pour le champ électromagnétique.

Pour terminer, nous présentons les avantages et les inconvénients des représentations (ou formes) longueur, vitesse et accélération de l'Hamiltonien d'interaction.

Dans ce chapitre, nous utilisons le système d'unités *MKSA*. Toutefois, pour plus de simplicité, nous adoptons dans la suite de l'exposé le système d'unités atomiques.

1 Description quantique du champ laser

Dans l'image de Schrödinger, le champ électromagnétique libre quantifié peut être décrit par le potentiel vecteur $\hat{\mathbf{A}}_S(\mathbf{r})$ donné par [Bjo65]:

$$\hat{\mathbf{A}}_S(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{k}, \lambda} \left(\frac{2\pi\hbar c^2}{\omega_k V} \right)^{1/2} \left[\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda} \hat{\mathbf{e}}_{\mathbf{k}\lambda} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + \hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger \hat{\mathbf{e}}_{\mathbf{k}\lambda}^* e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \right], \quad (1.1)$$

où la somme sur $(\mathbf{k}, \lambda)$ porte sur un ensemble complet de modes du champ électromagnétique. $\mathbf{k}$ est le vecteur d'onde du mode, λ est l'indice des deux polarisations possibles du champ transverse, ω_k est la pulsation du mode considéré, $\hat{\mathbf{e}}_{\mathbf{k}\lambda}$ est le vecteur de polarisation de ce mode, V représente le volume de quantification et $\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger$ ($\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}$) est un opérateur de création (d'annihilation) de photon dans le mode $(\mathbf{k}, \lambda)$ ¹. Ces opérateurs satisfont la relation de commutation:

$$[\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}, \hat{a}_{\mathbf{k}'\lambda'}^\dagger] = \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \delta_{\lambda\lambda'}, \quad (1.2)$$

et les vecteurs $\mathbf{k}$ et $\hat{\mathbf{e}}_{\mathbf{k}\lambda}$ obéissent à la relation de transversalité suivante:

$$\mathbf{k} \cdot \hat{\mathbf{e}}_{\mathbf{k}\lambda} = 0. \quad (1.3)$$

L'Hamiltonien associé à ce champ s'écrit:

$$\hat{H}_{rad} = \sum_{\mathbf{k}, \lambda} \hbar \omega_k \left(\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}\lambda} + \frac{1}{2} \right). \quad (1.4)$$

En introduisant l'opérateur $\hat{n}_{\mathbf{k}\lambda}$, dont les valeurs propres sont les nombres d'occupation dans les diverses modes, $\hat{H}_{rad}$ devient:

$$\hat{H}_{rad} = \sum_{\mathbf{k}, \lambda} \hbar \omega_k \left(\hat{n}_{\mathbf{k}\lambda} + \frac{1}{2} \right) \quad (1.5)$$

avec

$$\hat{n}_{\mathbf{k}\lambda} |n_{\mathbf{k}\lambda}\rangle = n_{\mathbf{k}\lambda} |n_{\mathbf{k}\lambda}\rangle \quad (1.6)$$

où l'opérateur $\hat{n}_{\mathbf{k}\lambda}$, exprimé en termes des opérateurs de création et d'annihilation $\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger$ et $\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}$ est donné par:

$$\hat{n}_{\mathbf{k}\lambda} = \hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}. \quad (1.7)$$

Dans la suite de l'exposé nous utilisons aussi l'opérateur potentiel vecteur dans la représentation d'interaction: $\hat{\mathbf{A}}_I(\mathbf{r}, t)$. Il s'exprime en fonction de $\hat{\mathbf{A}}_S(t)$ de la manière suivante:

$$\hat{\mathbf{A}}_I(\mathbf{r}, t) = e^{i\hat{H}_{rad}t/\hbar} \hat{\mathbf{A}}_S(\mathbf{r}) e^{-i\hat{H}_{rad}t/\hbar}. \quad (1.8)$$

¹Pour plus de simplicité, nous choisissons ici de quantifier le champ dans une boîte de volume V fini ; l'avantage de cette procédure est d'obtenir une somme discrète sur les différents modes plutôt qu'une intégrale. Si nous faisons tendre V vers l'infini, le potentiel vecteur $\hat{\mathbf{A}}_S(\mathbf{r})$ devient: $\int d^3k \sum_{\lambda} K \left[\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda} \hat{\mathbf{e}}_{\mathbf{k}\lambda} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + \hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger \hat{\mathbf{e}}_{\mathbf{k}\lambda}^* e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \right]$ où K est la constante de normalisation adéquate.

En utilisant le lemme de Baker-Hausdorff

$$e^{i\hat{B}\mu} \hat{A} e^{-i\hat{B}\mu} = \hat{A} + i\mu[\hat{B}, \hat{A}] + \frac{i^2\mu^2}{2!}[\hat{B}, [\hat{B}, \hat{A}]] + \dots, \quad (1.9)$$

et le fait que

$$[\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}, \hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}] = -\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}, \quad (1.10)$$

$\hat{A}_I$ s'écrit comme suit:

$$\hat{A}_I(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{k}, \lambda} \left(\frac{2\pi\hbar c^2}{\omega_k V} \right)^{1/2} \left[\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda} \hat{\epsilon}_{\mathbf{k}\lambda} e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \omega_k t)} + \hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger \hat{\epsilon}_{\mathbf{k}\lambda}^* e^{-i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \omega_k t)} \right]. \quad (1.11)$$

Le rayonnement émis par un laser opérant dans un mode unique n'est pas décrit par un état propre de l'opérateur nombre d'occupations, $|n_{\mathbf{k}\lambda}\rangle$, mais par une combinaison linéaire de ceux-ci: les états cohérents [Gla63]. Nous les noterons $|\alpha_{\mathbf{k}\lambda}\rangle$. Ces états quantiques fournissent la meilleure approximation des états classiques du champ. Ils apparaissent de manière naturelle dans le cadre de la théorie quantique du laser lorsqu'on considère la limite de la solution stationnaire des équations du champ pour un laser opérant loin au-dessus de son seuil [Sar74][Hak84]. Nous pouvons les définir de plusieurs façons équivalentes. Nous dirons qu'il s'agit d'états propres normalisés de l'opérateur d'annihilation:

$$\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda} |\alpha_{\mathbf{k}\lambda}\rangle = \alpha_{\mathbf{k}\lambda} |\alpha_{\mathbf{k}\lambda}\rangle \quad (1.12)$$

avec

$$\langle \alpha_{\mathbf{k}\lambda} | \alpha_{\mathbf{k}\lambda} \rangle = 1. \quad (1.13)$$

Le développement de l'état cohérent $|\alpha_{\mathbf{k}\lambda}\rangle$ en terme des états propres de l'opérateur nombre d'occupations est donné par:

$$|\alpha_{\mathbf{k}\lambda}\rangle = \exp\left(-\frac{1}{2}|\alpha_{\mathbf{k}\lambda}|^2\right) \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha_{\mathbf{k}\lambda}^n}{\sqrt{n!}} |n_{\mathbf{k}\lambda}\rangle \quad (1.14)$$

avec

$$\alpha_{\mathbf{k}\lambda} = \langle n_{\mathbf{k}\lambda} \rangle^{1/2} e^{i\phi_{\mathbf{k}\lambda}} \quad (1.15)$$

où $|n_{\mathbf{k}\lambda}\rangle$ est un état propre de l'opérateur nombre d'occupations et où $\langle n_{\mathbf{k}\lambda} \rangle$ est le nombre moyen de photons dans le mode considéré.

Si on calcule la valeur moyenne du potentiel vecteur dans le mode $(\mathbf{k}, \lambda)$, on obtient l'expression suivante:

$$\langle \alpha_{\mathbf{k}\lambda} | \hat{\mathbf{A}} | \alpha_{\mathbf{k}\lambda} \rangle = \left(\frac{2\pi\hbar c^2}{\omega_k V} \right)^{1/2} |\alpha_{\mathbf{k}\lambda}| \left[\hat{\epsilon}_{\mathbf{k}\lambda} e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \omega_k t - \phi_{\mathbf{k}\lambda})} + c.c. \right] \quad (1.16)$$

dont la forme est identique à celle d'un potentiel électromagnétique classique. En utilisant la relation de commutation des opérateurs $\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}$ et $\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger$, on obtient de même que

$$\langle \alpha_{\mathbf{k}\lambda} | \hat{\mathbf{A}}^2 | \alpha_{\mathbf{k}\lambda} \rangle = \left(\frac{2\pi\hbar c^2}{\omega_k V} \right) \{ |\alpha_{\mathbf{k}\lambda}|^2 \left[\hat{\epsilon}_{\mathbf{k}\lambda} e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \omega_k t - \phi_{\mathbf{k}\lambda})} + c.c. \right] + 1 \}. \quad (1.17)$$

Ces deux derniers résultats permettent de calculer l'écart type du potentiel vecteur $\hat{\mathbf{A}}_I$ dans le mode $(\mathbf{k}, \lambda)$ [Lou73]:

$$\Delta \hat{\mathbf{A}}_{\mathbf{k}\lambda} = \left[\langle \alpha_{\mathbf{k}\lambda} | \hat{\mathbf{A}}^2 | \alpha_{\mathbf{k}\lambda} \rangle - |\langle \alpha_{\mathbf{k}\lambda} | \hat{\mathbf{A}} | \alpha_{\mathbf{k}\lambda} \rangle|^2 \right]^{1/2} = \left(\frac{2\pi\hbar c^2}{\omega_k V} \right)^{1/2}. \quad (1.18)$$

L'expression (1.18) montre que l'amplitude des fluctuations quantiques autour de la valeur moyenne (1.16) est indépendante du nombre de photons contenus dans le mode, tandis que l'équation (1.16) montre que la valeur moyenne $\langle \alpha_{\mathbf{k}\lambda} | \hat{\mathbf{A}} | \alpha_{\mathbf{k}\lambda} \rangle$ est proportionnelle à la racine carrée du nombre d'occupations du mode considéré. Lorsque le nombre de photons dans le volume V est très important, nous nous attendons à ce que les fluctuations quantiques du champ puissent être négligées. Nous utilisons ce résultat pour démontrer, dans la suite de l'exposé, l'équivalence entre la description quantique et classique du champ électromagnétique.

2 Hamiltonien total du système

L'Hamiltonien du système est constitué de l'Hamiltonien du champ libre $\hat{H}_{rad}$ et de l'Hamiltonien de l'atome interagissant avec l'onde électromagnétique $\hat{H}_{at+int}$. Ce dernier s'obtient par la substitution minimale. En supposant le noyau immobile à l'origine, nous savons, dans l'image de Schrödinger, que

$$\hat{H}_{at+int} = \frac{1}{2m} (\hat{\mathbf{p}} + e\hat{\mathbf{A}}_S(\mathbf{r}))^2 - e\phi(\mathbf{r}). \quad (1.19)$$

$\hat{\mathbf{A}}_S(\mathbf{r})$ et $\phi(\mathbf{r})$ sont respectivement les opérateurs potentiel vecteur et potentiel scalaire associés au problème. Dans la jauge de Coulomb, on calcule facilement que le potentiel scalaire est le potentiel électrostatique associé à la distribution de charge:

$$\phi(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e}{r}. \quad (1.20)$$

Après cette remarque, nous arrivons finalement à l'expression suivante pour $\hat{H}_S(t)$:

$$\hat{H}_S(t) = \hat{H}_{rad} + \hat{H}_{at+int} \quad (1.21)$$

$$= \sum_{\mathbf{k}, \lambda} \hbar\omega_k \left(\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}\lambda} + \frac{1}{2} \right) + \frac{1}{2m} (\hat{\mathbf{p}} + e\hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}))^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r}. \quad (1.22)$$

Le vecteur d'état $|\Psi_S(t)\rangle$ du système satisfait l'équation

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi_S(t)\rangle = \hat{H}_S |\Psi_S(t)\rangle. \quad (1.23)$$

3 Limite semi-classique

Nous suivons le développement proposé par Mollow qui nous permet d'utiliser une description classique pour le champ [Mol75][Mit82]. Plaçons-nous d'abord dans la représentation d'interaction. Généralement le passage de la représentation de Schrödinger à celle d'interaction se fait par une transformation unitaire: $e^{-i\hat{H}_0 t/\hbar}$ où $\hat{H}_0$ est l'Hamiltonien non-perturbé. Dans notre cas, nous prenons simplement comme Hamiltonien non-perturbé $\hat{H}_{rad}$. Les vecteurs d'état sont reliés à ceux de la représentation de Schrödinger par:

$$|\Psi_S(t)\rangle = e^{-i\hat{H}_{rad}t/\hbar} |\Psi_I(t)\rangle. \quad (1.24)$$

$|\Psi_I(t)\rangle$ satisfait l'équation

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi_I(t)\rangle = \hat{H}_I(t) |\Psi_I(t)\rangle \quad (1.25)$$

où

$$\hat{H}_I(t) = \frac{1}{2m} [\hat{\mathbf{p}} + e\hat{\mathbf{A}}_I(\mathbf{r}, t)]^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r} \quad (1.26)$$

et où $\hat{\mathbf{A}}_I(\mathbf{r}, t)$ est donné par la relation (1.11).

Nous supposons qu'au temps $t = -\infty$, le champ est découplé de l'atome et que l'état initial du champ électromagnétique est représenté par un état cohérent $|\alpha_{\mathbf{k}\lambda, i}\rangle$. La condition initiale pour le vecteur d'état est donc:

$$\lim_{t \rightarrow -\infty} |\Psi_I(t)\rangle = |\alpha_{\mathbf{k}\lambda, i}\rangle |i\rangle, \quad (1.27)$$

avec $|i\rangle$, l'état initial dans lequel se trouve l'atome.

Introduisons l'opérateur de déplacement unitaire suivant:

$$\hat{T}(\alpha_{\mathbf{k}\lambda}) = \exp(\alpha_{\mathbf{k}\lambda}^* a_{\mathbf{k}\lambda} - \alpha_{\mathbf{k}\lambda} a_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger). \quad (1.28)$$

Cet opérateur permet de relier l'état cohérent $|\alpha_{\mathbf{k}\lambda}\rangle$ au vide $|0\rangle$:

$$|0\rangle = \hat{T}(\alpha_{\mathbf{k}\lambda}) |\alpha_{\mathbf{k}\lambda}\rangle \quad (1.29)$$

$$|\alpha_{\mathbf{k}\lambda}\rangle = \hat{T}^\dagger(\alpha_{\mathbf{k}\lambda}) |0\rangle. \quad (1.30)$$

De plus, la transformation unitaire $\hat{T}(\alpha_{\mathbf{k}\lambda})$ conduit à des résultats simples pour les transformées de $a_{\mathbf{k}\lambda}$ et $a_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger$:

$$\hat{T}(\alpha_{\mathbf{k}\lambda}) a_{\mathbf{k}\lambda} \hat{T}^\dagger(\alpha_{\mathbf{k}\lambda}) = a_{\mathbf{k}\lambda} + \alpha_{\mathbf{k}\lambda} \quad (1.31)$$

$$\hat{T}(\alpha_{\mathbf{k}\lambda}) a_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger \hat{T}^\dagger(\alpha_{\mathbf{k}\lambda}) = a_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger + \alpha_{\mathbf{k}\lambda}^*. \quad (1.32)$$

En utilisant cet opérateur, nous pouvons définir un nouveau vecteur d'état $|\Psi(t)\rangle$, relié à $|\Psi_I(t)\rangle$ par la relation:

$$|\Psi(t)\rangle = \hat{T}(\alpha_{\mathbf{k}\lambda, i}) |\Psi_I(t)\rangle. \quad (1.33)$$

$|\Psi\rangle$ satisfait maintenant l'équation suivante:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = \hat{H}(t) |\Psi(t)\rangle \quad (1.34)$$

où

$$\hat{H}(t) = \hat{T}(\alpha_{\mathbf{k}\lambda,i}) \hat{H}_I(t) \hat{T}^\dagger(\alpha_{\mathbf{k}\lambda,i}) \quad (1.35)$$

$$= \frac{1}{2m} [\hat{\mathbf{p}} + e\hat{\mathbf{A}}'(\mathbf{r}, t)]^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r}. \quad (1.36)$$

En utilisant (1.27) la condition initiale pour $|\Psi(t)\rangle$ est:

$$\lim_{t \rightarrow \infty} |\Psi(t)\rangle = |0\rangle|i\rangle. \quad (1.37)$$

Avec cette transformation, le potentiel vecteur obtenu s'exprime comme suit:

$$\hat{\mathbf{A}}'(\mathbf{r}, t) = \hat{T}(\alpha_{\mathbf{k}\lambda,i}) \hat{\mathbf{A}}_I(\mathbf{r}, t) \hat{T}^\dagger(\alpha_{\mathbf{k}\lambda,i}) \quad (1.38)$$

$$\hat{\mathbf{A}}'(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{k}, \lambda} \left(\frac{2\pi\hbar c^2}{\omega_k V} \right)^{1/2} [(\hat{a}_{\mathbf{k}\lambda} + \alpha_{\mathbf{k}\lambda}) \hat{\epsilon}_{\mathbf{k}\lambda} e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \omega_k t)} + c.c.]. \quad (1.39)$$

Nous pouvons scinder cette expression en deux parties;

$$\hat{\mathbf{A}}'(\mathbf{r}, t) = \hat{\mathbf{A}}_I(\mathbf{r}, t) + \hat{\mathbf{A}}_c(\mathbf{r}, t) \quad (1.40)$$

où

$$\hat{\mathbf{A}}_c(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{k}, \lambda} \left(\frac{2\pi\hbar c^2}{\omega_k V} \right)^{1/2} \langle n_{\mathbf{k}\lambda} \rangle^{1/2} [\hat{\epsilon}_{\mathbf{k}\lambda} e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \omega_k t - \phi_k)} + c.c.] \quad (1.41)$$

est le potentiel vecteur classique.

L'Hamiltonien défini par l'équation (1.36) ne diffère de l'Hamiltonien de départ que par l'addition au potentiel vecteur $\hat{\mathbf{A}}_I(\mathbf{r}, t)$ d'un terme $\hat{\mathbf{A}}_c(\mathbf{r}, t)$ qui n'est rien d'autre que la valeur classique de $\hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}, t)$. Le problème consistant à résoudre l'équation d'évolution de l'état $|\Psi_I(t)\rangle$ décrivant le système quantifié atome-champ dans le cas où l'état initial du champ est supposé cohérent et découplé du système atomique, a donc été ramené à la résolution d'une équation de Schrödinger où l'état initial ne contient aucun photon. Ceci s'est fait en additionnant un champ électromagnétique classique à l'opérateur quantique correspondant. Cet opérateur quantique produit des fluctuations qui sont indépendantes du nombre moyen de photons (équation (1.18)) autour de la valeur classique qui est proportionnelle à $\langle n_{\mathbf{k}\lambda} \rangle^{1/2}$ (équation (1.16)). Dans les cas traités dans ce travail, nous avons $\langle n_{\mathbf{k}\lambda} \rangle \gg 1$. En effet, pour une intensité I de 10^{14} W/cm^2 , un volume V de l'ordre de 1 mm^3 et des photons ayant une énergie $\hbar\omega$ de 1.17 eV (laser Nd-YAG), le nombre N de photons dans le volume est donné par:

$$N = \frac{I V}{c \hbar \omega} \approx 10^{19} \text{ photons}. \quad (1.42)$$

Par conséquent, ces fluctuations peuvent être négligées et l'utilisation d'une description classique du champ électromagnétique est donc pleinement justifiée.

L'Hamiltonien obtenu est:

$$\hat{H}(t) = \frac{1}{2m} [\hat{\mathbf{p}} + e\tilde{\mathbf{A}}(\mathbf{r}, t)]^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r}, \quad (1.43)$$

où $\vec{A}(\mathbf{r}, t)$ est le potentiel vecteur classique. Les relations suivantes le relient aux champs électriques et magnétiques classiques.

$$\vec{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t}\vec{A}(\mathbf{r}, t) \quad (1.44)$$

$$\vec{B}(\mathbf{r}, t) = \nabla \times \vec{A}(\mathbf{r}, t). \quad (1.45)$$

Notons finalement que dans cette expression, nous n'avons pas tenu compte du couplage du moment magnétique de spin $\hat{S}$ de l'électron avec le champ magnétique. En effet, l'Hamiltonien tenant compte de ce couplage est donné par:

$$\hat{H}_{spin} = \frac{e}{m}\hat{S} \cdot \vec{B}(\mathbf{r}, t). \quad (1.46)$$

Puisque $\vec{B} = \nabla \times \vec{A}$, $\vec{B}$ est de l'ordre de grandeur de $k.A$. Si nous calculons le rapport H_{spin}/H'_{at+int} où H'_{at+int} est la partie linéaire en $\vec{A}$ de H_{at+int} , nous obtenons

$$\frac{\hat{H}_{spin}}{\hat{H}'_{at+int}} \approx \frac{e\hbar B/m}{qAp/m} \approx \frac{\hbar k A}{pA} = \frac{\hbar k}{p}, \quad (1.47)$$

c'est-à-dire le rapport entre l'impulsion $\hbar k$ du photon et celle de l'électron, p . Pour des photons d'énergie de l'ordre de celle de l'énergie de liaison de l'électron, ce rapport est très petit devant 1 [Coh88].

4 Approximation dipolaire

Si nous supposons que l'électron reste localisé au voisinage de l'origine, l'extension spatiale de l'atome est petite par rapport aux variations spatiales du potentiel vecteur $\vec{A}$ [Bra83]. L'approximation dipolaire consiste à négliger ces variations à l'échelle des dimensions atomiques, c'est-à-dire à supposer que $\vec{A}$ ne dépend que du temps:

$$e b \vec{f} A(\mathbf{r}, t) = \vec{A}(0, t) = \vec{A}(t). \quad (1.48)$$

Dans les cas qui nous intéressent, pour des photons ayant une énergie $\hbar\omega$ d'environ $2eV$, la longueur d'onde correspondante, λ , est de l'ordre de $10^{-6}m$, elle est donc beaucoup plus grande que l'extension spatiale de l'atome (de l'ordre de $10^{-10}m$): cette approximation se justifie donc clairement. L'équation de Schrödinger (1.43) devient alors:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = \left[\frac{1}{2m} (\hat{\mathbf{p}} + e\vec{A}(t))^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r} \right] |\Psi(t)\rangle. \quad (1.49)$$

Si nous développons cette expression en utilisant le fait que $\nabla \cdot \vec{A} = 0$ (jauge de Coulomb), nous obtenons:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = \hat{H}(\mathbf{r}, t) |\Psi(t)\rangle, \quad (1.50)$$

où

$$\hat{H}(\mathbf{r}, t) = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + \frac{e}{m} \vec{A}(t) \cdot \hat{\mathbf{p}} + \frac{e^2}{2m} \vec{A}^2(t) - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r}. \quad (1.51)$$

Signalons que dans le cadre de l'approximation dipolaire, $\nabla \cdot \vec{A} = 0$ est toujours vérifié.

5 Forme de l'Hamiltonien d'interaction

En toute généralité, la fonction d'onde $|\Psi(t)\rangle$ peut être modifiée par une transformation unitaire U :

$$|\Psi_{NEW}(t)\rangle = U^\dagger |\Psi_{OLD}(t)\rangle, \quad (1.52)$$

où

$$U = e^{-(i/\hbar)f}. \quad (1.53)$$

L'Hamiltonien devient:

$$H_{NEW} = U^\dagger H_{OLD} U \quad (1.54)$$

et $|\Psi_{NEW}(t)\rangle$ satisfait alors une équation de Schrödinger de la forme

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} [U |\Psi_{NEW}(t)\rangle] = U H_{NEW} |\Psi_{NEW}(t)\rangle, \quad (1.55)$$

qui, par une simple manipulation devient:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi_{NEW}(t)\rangle = \left(H_{NEW} - i\hbar U^\dagger \frac{\partial}{\partial t} U \right) |\Psi_{NEW}(t)\rangle. \quad (1.56)$$

Nous allons maintenant examiner trois choix possibles de transformations unitaires qui vont nous mener à trois formes ou représentations différentes pour l'Hamiltonien. Ces formes sont la forme vitesse, indiquée par V , la forme longueur, indiquée par L et la forme accélération, indiquée par A . Nous séparerons l'Hamiltonien en un Hamiltonien atomique, indicé par 0, et en un Hamiltonien d'interaction, indicé par I . Deux d'entre elles, les formes longueur et vitesse, sont parfois appelées, par abus de langage, *jauges* car elles lèvent l'indétermination apparaissant dans le choix du potentiel scalaire et du potentiel vecteur.

Le premier choix pour f que nous faisons élimine le terme en $\vec{A}^2$ de l'équation (1.51):

$$f = \frac{e^2}{2m} \int_{-\infty}^t \vec{A}^2(\tau) d\tau. \quad (1.57)$$

L'Hamiltonien correspondant est exprimé dans la forme vitesse et s'écrit:

$$\hat{H}_V(\mathbf{r}, t) = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + \frac{e}{m} \vec{A}(t) \cdot \hat{\mathbf{p}} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r}. \quad (1.58)$$

Le couplage de l'atome avec le champ électromagnétique est linéaire en $\vec{A}(t)$.

Pour passer dans la forme longueur, il faut prendre pour f l'expression:

$$f = e\mathbf{r} \cdot \mathbf{A}(t). \quad (1.59)$$

Cette transformation est appelée transformation de Göppert-Mayer. L'Hamiltonien (1.51) se transforme en:

$$\hat{H}_L(\mathbf{r}, t) = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + e\vec{E}(t) \cdot \mathbf{r} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r}. \quad (1.60)$$

Dans ce cas nous avons fait apparaître le terme d'interaction dipolaire électrique.

Le dernier exemple de transformation est dû à Kramers [Kra56][Hen68]. Il est appelé forme accélération. Il consiste à prendre pour f :

$$f = \frac{e}{m} \int_{-\infty}^t \vec{A}(\tau) \cdot \hat{\mathbf{p}} d\tau + \frac{e^2}{2m} \int_{-\infty}^t \vec{A}^2(\tau) d\tau, \quad (1.61)$$

et l'Hamiltonien (1.51) devient dans ces conditions:

$$\hat{H}_A(\mathbf{r}, t) = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{|\vec{r} + \vec{\alpha}(t)|} \quad (1.62)$$

où

$$\vec{\alpha}(t) = \frac{e}{m} \int_{-\infty}^t \vec{A}(\tau) d\tau. \quad (1.63)$$

Ici, l'Hamiltonien décrit un atome dont l'interaction avec le champ électromagnétique provient du déplacement instantané du noyau $\vec{\alpha}(t)$. L'opérateur unitaire U défini par les relations (1.53) et (1.61) est l'opérateur de translation. Notons que $\vec{\alpha}(t)$ représente la position d'un électron classique libre soumis au champ électromagnétique. Cette transformation change le référentiel du laboratoire en un référentiel accéléré, ce qui explique le nom de la forme.

Les trois Hamiltoniens, $\hat{H}_L(\mathbf{r}, t)$, $\hat{H}_V(\mathbf{r}, t)$ et $\hat{H}_A(\mathbf{r}, t)$, sont équivalents et donnent des résultats physiques identiques quand l'équation de Schrödinger correspondante est résolue exactement. Ce qui n'est pas le cas lorsque des approximations autres que l'approximation dipolaire sont faites. Il est important de signaler que les résultats physiques obtenus sont identiques avant ou après l'interaction et non pendant [Sch84] ! Dans une expérience physique, l'atome, avant d'interagir avec le laser, est préparé dans un état atomique. L'interaction commence au temps $t = -T$ et se termine en $t = T$. C'est après que l'état atomique est observé à nouveau. Notons $\hat{\mathcal{H}}_{0J}$, l'Hamiltonien en l'absence du champ laser ($\vec{E} = 0$) (ceci se passe pour $|t| > T$), et $\hat{\mathcal{H}}_{IJ}$ la partie restante de l'Hamiltonien. J indiquant la forme: L , V ou A . Nous obtenons donc:

$$\hat{\mathcal{H}}_J = \hat{\mathcal{H}}_{0J} + \hat{\mathcal{H}}_{IJ}. \quad (1.64)$$

Il faut remarquer qu'un champ électrique nul, $\vec{E} = 0$, n'implique pas $A = 0$ ou $\vec{\alpha} = 0$, mais seulement que $\vec{A}$ est constant et $\vec{\alpha}$, au plus linéaire dans le temps. $\hat{\mathcal{H}}_{0J}$ peut avoir une dépendance en ces paramètres. Les états propres, que nous appelons u_{nJ} , des différents Hamiltoniens $\hat{H}_{0J}$ sont reliés aux états propres de l'atome d'hydrogène, u_n , par les relations suivantes:

$$u_{nJ} = e^{\frac{i}{\hbar} f_J^0} u_n \quad (1.65)$$

où $f_J^0 = f_J|_{|t|>T}$ et avec f_J défini par les relations (1.57), (1.59) et (1.61). Les solutions exactes ψ_J sont reliées à la solution ψ de l'équation (1.51) de la même manière. L'amplitude de transition vers l'état u_n est, dans la représentation J , donnée par:

$$a_{nJ}(t) = \langle u_{nJ} | \psi_J(t) \rangle \quad (1.66)$$

ou encore,

$$a_{nJ}(t) = \langle u_n | e^{\frac{i}{\hbar} f_J^0} e^{\frac{i}{\hbar} f_J} \psi \rangle. \quad (1.67)$$

Pour $|t| > T$, les exponentielles s'annulent et $a_{nJ}(t)$ est indépendant de la représentation. Tandis que pour $|t| < T$, cette annulation ne se produit pas. Les amplitudes pendant l'interaction sont donc dépendantes de la forme choisie.

Cette longue remarque étant faite, passons à la description des différentes représentations que nous avons introduites. La plupart des méthodes de résolution de l'équation de Schrödinger sont fondées sur une séparation de l'Hamiltonien en un Hamiltonien atomique non perturbé $\hat{H}_0$ et en Hamiltonien d'interaction $\hat{H}_I$. Si

$$\hat{H}_0 = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r}, \quad (1.68)$$

on a:

$$\hat{H}_{IV} = \frac{e}{m} \vec{\mathbf{A}}(t) \cdot \hat{\mathbf{p}}, \quad (1.69)$$

$$\hat{H}_{IL} = e \vec{\mathbf{E}}(t) \cdot \mathbf{r}, \quad (1.70)$$

et

$$\hat{H}_{IA} = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left[\frac{1}{|\vec{\mathbf{r}} - \vec{\alpha}(t)|} - \frac{1}{r} \right]. \quad (1.71)$$

Ces trois expressions mettent le poids de l'interaction dans des régions différentes de l'espace [Giu87][Lam87].

$\hat{H}_{IL}$ est important pour des $\vec{\mathbf{r}}$ grands et devient très petit près du noyau. Pour des raisons numériques évidentes, nous cherchons à travailler avec des interactions les plus faibles possibles à grande distance. Cette formulation n'est donc pas adaptée à notre problème car nous souhaitons étudier des phénomènes de stabilisation dans lesquels, nous le verrons dans la suite, les états de Rydberg jouent un rôle important. En outre, pour des intensités élevées, l'amplitude des oscillations de l'électron devient importante. Dans ces conditions, le nombre de moments angulaires dont il faut tenir compte est élevé [Cor96].

$\hat{H}_{IA}$ tend asymptotiquement vers 0 pour des r grands. En effet, on peut montrer que

$$\hat{H}_{IA} \simeq \vec{\alpha}(t) \cdot \vec{\mathbf{r}}/r^3 + \dots \quad (1.72)$$

Cette représentation convient donc bien à l'étude des électrons dans les orbitales de Rydberg ou dans le continuum. Mais, le calcul des éléments de matrice est dans ce cas trop compliqué: il ne peut être fait analytiquement. La résolution du problème devient alors purement numérique. Ce choix de forme est souvent adopté pour des modèles à une dimension, mais lorsqu'on considère l'équation de Schrödinger à trois dimensions, les calculs deviennent trop laborieux.

$\hat{H}_{IV}$ représente un cas intermédiaire. Le terme en $\vec{\mathbf{A}}^2$, responsable de l'oscillation de l'électron libre dans le champ, a été éliminé. En comparant les formes longueur et vitesse, on note que dans la première, le moment canonique $\mathbf{p}$ est donné par: $m \frac{d}{dt} \mathbf{r}$, tandis que la seconde, le moment canonique correspond à la même quantité dont on soustrait la quantité

$-q\vec{\mathbf{A}}(t)$. Cette quantité est en réalité le moment d'un électron libre oscillant dans un champ électromagnétique. Dans la forme vitesse, $\mathbf{p}$ est donc réduit à une variable variant "lentement" puisque le moment dû au champ est retiré. C'est pourquoi le nombre de moments angulaires nécessaires à la description du système est plus bas [Cor96]. De plus, avec ce choix de forme, les éléments de matrices peuvent être calculés analytiquement. Pour ces raisons, nous adoptons cette forme d'interaction dans ce travail.

Nous concluons ce paragraphe avec l'équation (en unités atomiques) qu'il nous reste (!) à résoudre:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = \left[\frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2} + \vec{\mathbf{A}}(t) \cdot \hat{\mathbf{p}} - \frac{1}{r} \right] \quad (1.73)$$

ou encore,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = \left[-\frac{1}{2} \nabla^2 - i\vec{\mathbf{A}}(t) \cdot \nabla - \frac{1}{r} \right]. \quad (1.74)$$

Chapitre 2

Les fonctions sturmiennes

Les fonctions propres de l'équation de Schrödinger pour l'atome d'hydrogène forment une base complète; toutefois, le développement sur cette base de la fonction d'onde décrivant l'atome d'hydrogène exposé à un champ extérieur conduit à des équations dont la manipulation est difficile. Ceci provient du fait que le spectre de l'Hamiltonien atomique possède une partie purement continue. L'utilisation d'une base de fonctions sturmiennes permet d'éviter ce problème. Le terme "sturmien" n'a pas d'autre signification historique que celle de rappeler que ces fonctions sont solutions d'un problème de type Sturm-Liouville [Eps26]. Formant une base purement discrète, ces fonctions sont solutions d'une équation aux valeurs propres semblable à celle de Schrödinger pour l'hydrogène. La valeur propre est dans ce cas la constante de couplage associée à l'interaction coulombienne, l'énergie totale ($E = -\kappa^2/2$) étant fixée. Cette base de fonctions sturmiennes est particulièrement bien adaptée au problème de l'hydrogène en champ extérieur dans la mesure où les matrices associées à l'Hamiltonien atomique et à l'Hamiltonien d'interaction sont très creuses; ce qui nous permet d'aborder des problèmes où le nombre d'états mis en jeu est très important. L'utilisation des fonctions sturmiennes dans ce travail est un cas particulier de la "technique sturmiennne" développée par J.-P. Gazeau [Gaz80]. Ce deuxième chapitre est consacré à l'étude des fonctions sturmiennes et de leurs propriétés. Il est divisé en quatre parties.

Dans la première partie, nous présentons le problème de Sturm-Liouville dont les fonctions sturmiennes sont solutions. Nous discutons ensuite le comportement de ces dernières en fonction des paramètres qui les caractérisent et calculons les éléments de matrice associés aux Hamiltoniens atomique et d'interaction.

La formulation matricielle de l'équation de Schrödinger fait l'objet de la deuxième partie.

Le choix du paramètre κ qui définit une base particulière de fonctions sturmiennes est arbitraire. Lorsque ces dernières sont en nombre fini, le choix du paramètre κ devient crucial. Nous montrons, dans la troisième partie de ce chapitre, comment il est possible d'optimiser ce choix en fonction du processus physique étudié. Nous présentons quelques résultats assez surprenants obtenus de manière empirique: les formules obtenues

permettent par exemple de déterminer le nombre d'états hydrogénéoïdes liés représentés exactement par une base sturmienne tronquée de paramètre κ fixé.

Enfin, jusqu'à présent, nous avons considéré un κ réel. Il est utile, dans certaines situations, de le prendre complexe. Ce cas très particulier fera l'objet du chapitre 4.

1 Définition

1.1 Le problème de Sturm-Liouville

En mathématique, un nombre impressionnant de fonctions orthogonales (telles que les polynômes de Legendre, les fonctions de Bessel, ...) proviennent des solutions d'une équation différentielle du second ordre de la forme suivante:

$$[r(x) y']' + [q(x) + \lambda p(x)]y = 0 \quad (2.1)$$

sur un intervalle $a \leq x \leq b$, satisfaisant les conditions frontières

$$k_1 y(a) + k_2 y'(a) = 0 \quad (2.2)$$

et

$$l_1 y(b) + l_2 y'(b) = 0, \quad (2.3)$$

avec $(k_1, k_2) \neq (0, 0)$ et $(l_1, l_2) \neq (0, 0)$. λ est un paramètre et k_1, k_2, l_1 et l_2 sont des constantes réelles données.

L'équation (2.1) est appelée équation de Sturm-Liouville; si nous y ajoutons les conditions aux frontières (2.2) et (2.3), nous obtenons un problème de Sturm-Liouville [Cou53]. On peut démontrer les deux théorèmes suivants:

Théorème 1 (orthogonalité des fonctions propres).

Si les fonctions p , q , r et r' dans l'équation de Sturm-Liouville sont réelles et continues dans l'intervalle $a \leq x \leq b$ et si $y_m(x)$ et $y_n(x)$ sont des fonctions propres du problème de Sturm-Liouville auxquelles correspondent les valeurs propres distinctes λ_m et λ_n , alors y_m et y_n sont orthogonales sur cet intervalle avec la fonction de poids p .

Autrement dit,

$$\int_a^b y_m(x) p(x) y_n(x) dx = 0. \quad (2.4)$$

Théorème 2 (Valeurs propres réelles).

Si le problème de Sturm-Liouville satisfait aux conditions du théorème 1 et si p est positif (ou négatif) dans tout l'intervalle $a \leq x \leq b$, alors toutes les valeurs propres du problème sont réelles.

1.2 Les fonctions sturmiennes

Il existe plusieurs définitions des fonctions sturmiennes; elles diffèrent soit par le comportement à l'origine (en r^l ou r^{l+1}), soit par la normalisation choisie. Nous utilisons dans ce qui suit la même définition que Pont et Shakeshaft [Pon91b].

Les fonctions sturmiennes $S_{n,l}^\kappa(r)$ sont les solutions du problème de Sturm-Liouville:

$$\left[-\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} + \frac{l(l+1)}{2r^2} - \frac{Z}{r} + \frac{\kappa^2}{2} \right] S_{n,l}^\kappa(r) = 0, \quad (2.5)$$

avec les conditions limites $S_{n,l}^\kappa(0) = 0$ et $S_{n,l}^\kappa(\infty) = 0$. κ est pour l'instant un paramètre réel positif et arbitraire, tandis que n et l sont des entiers positifs tels que $n > l$ et Z est une valeur propre qui doit être égale à κn . Ces fonctions de carré sommable forment une base complète de l'espace de Hilbert $L^2([0, \infty[; dr)$.

L'équation (2.5) peut se réécrire sous la forme

$$\left[-\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} - \frac{1}{r} \frac{d}{dr} + \frac{l(l+1)}{2r^2} - \frac{\kappa n}{r} + \frac{\kappa^2}{2} \right] \frac{S_{n,l}^\kappa(r)}{r} = 0. \quad (2.6)$$

Comparons-la avec l'équation aux valeurs propres définissant les fonctions hydrogénoïdes radiales:

$$\left[-\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} - \frac{1}{r} \frac{d}{dr} + \frac{l(l+1)}{2r^2} - \frac{1}{r} \right] R_{E,l}(r) = E R_{E,l}(r). \quad (2.7)$$

Dans cette dernière, le couplage (terme en $1/r$) est fixé et l'énergie E est valeur propre. Nous remarquons aussi que l'opérateur intervenant dans cette équation est auto-adjoint et non-borné; le spectre est constitué de valeurs propres négatives discrètes et de valeurs propres positives qui forment un continuum. Par contre, dans l'équation (2.6) définissant les sturmiennes, le terme qui par analogie avec (2.7) joue le rôle de l'énergie $\kappa^2/2$ est fixé et le paramètre de couplage Z devient valeur propre. Dans ce cas, l'opérateur est à résolvant compact et le spectre associé est purement discret.

Le développement de la fonction d'onde du système atome + champ, $\Psi(\mathbf{r}, t)$, conduit par conséquent à une expression du type:

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \sum_{n,l,m} a_{n,l,m}(t) \frac{S_{n,l}^\kappa(r)}{r} Y_{l,m}(\hat{\mathbf{r}}), \quad (2.8)$$

où les $Y_{l,m}$ sont les harmoniques sphériques, n et l étant des paramètres entiers positifs avec $n > l$. Dans cette expression, nous faisons intervenir une somme discrète sur les différents éléments de la base. Nous introduisons un facteur $1/r$ pour que $\Psi(\mathbf{r}, t)$ ait un comportement à l'origine en r^l .

Si nous développons la même fonction $\Psi(\mathbf{r}, t)$ sur les états propres de l'atome d'hydrogène, nous obtenons:

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \sum_{n,l,m} \tilde{a}_{n,l,m}(t) R_{n,l}(r) Y_{l,m}(\hat{\mathbf{r}}) + \int_0^\infty \tilde{a}_{E,l}(t) R_{E,l}(r) dE. \quad (2.9)$$

Cette expression contient, au grand désespoir des physiciens, une intégrale sur les fonctions du continuum qui est très difficile, voire impossible, à manipuler lorsque l'on souhaite résoudre numériquement l'équation de Schrödinger. L'utilisation des sturmiennes nous permet donc d'éviter ce problème en "discrétisant" le continuum.

A présent passons en revue quelques propriétés des fonctions sturmiennes. Elles satisfont la relation d'orthogonalité

$$\langle S_{n,l}^\kappa | \frac{1}{r} | S_{n',l}^\kappa \rangle \equiv \int_0^\infty S_{n,l}^\kappa(r) \frac{1}{r} S_{n',l}^\kappa(r) dr = 0 \quad \text{si } n \neq n' \quad (2.10)$$

où $1/r$ est la fonction de poids. Nous choisissons de les normaliser de la manière suivante (choix de Shakeshaft):

$$\langle S_{n,l}^\kappa | S_{n',l}^\kappa \rangle = 1. \quad (2.11)$$

En résolvant l'équation (2.5) et en tenant compte des conditions (2.10) et (2.11), nous obtenons que

$$S_{n,l}^\kappa(r) = N_{n,l}^\kappa r^{l+1} e^{-\kappa r} {}_1F_1(-n+l+1; 2l+2; 2\kappa r), \quad (2.12)$$

où le facteur de normalisation $N_{n,l}^\kappa$ s'écrit:

$$N_{n,l}^\kappa = \sqrt{\frac{\kappa}{n}} (2\kappa)^{l+1} \frac{1}{(2l+1)!} \left[\frac{(n+l)!}{(n-l-1)!} \right]^{1/2}, \quad (2.13)$$

et où ${}_1F_1$ est une fonction hypergéométrique confluyente.

1.3 Calcul des éléments de matrice

L'intérêt du choix d'une base de fonctions sturmiennes réside également dans la forme extrêmement simple des matrices associées aux opérateurs $\hat{p}^2$, $\hat{p}$ et $1/r$ [Yam75][Rot70]. Le détail des calculs se trouve dans l'annexe A. Nous signalons ici que:

- la matrice de recouvrement – éléments du type $\langle S_{n,l}^\kappa | S_{n',l}^\kappa \rangle$ – est tridiagonale, réelle et symétrique:

$$\langle S_{n,l}^\kappa | S_{n-1,l}^\kappa \rangle = -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n+l)(n-l-1)}{n(n-1)}}, \quad (2.14)$$

$$\langle S_{n,l}^\kappa | S_{n,l}^\kappa \rangle = 1, \quad (2.15)$$

$$\langle S_{n,l}^\kappa | S_{n+1,l}^\kappa \rangle = -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n+l+1)(n-l)}{n(n+1)}} \quad (2.16)$$

et vaut zéro dans les autres cas;

- la matrice coulombienne – éléments du type $\langle S_{n,l}^\kappa | \frac{1}{r} | S_{n',l}^\kappa \rangle$ – est diagonale:

$$\langle S_{n',l}^\kappa | \frac{1}{r} | S_{n,l}^\kappa \rangle = \frac{\kappa}{n} \delta_{n'n}. \quad (2.17)$$

1.4 Comportement des sturmiennes

Avant d'analyser le comportement qualitatif des fonctions sturmiennes pour divers paramètres κ et indices n , signalons qu'un algorithme stable pour le calcul de ces fonctions, lorsque r devient grand, se trouve dans l'appendice A.

- Passons maintenant au comportement de la fonction sturmienne lorsque n varie ($n > l$). Nous fixons $l = 2$ et $\kappa = 0.5$. On constate (fig. 2.1) que le nombre d'oscillations et l'amplitude augmentent lorsque n augmente. Le nombre de zéros est donné par $n - l$. On remarque aussi que l'étendue de la fonction croît avec n et que la fonction oscille plus rapidement pour les n grands que pour des n petits. Ainsi, si nous voulons reproduire une fonction étendue ou qui oscille rapidement, nous devons utiliser des fonctions sturmiennes d'indices n élevés.

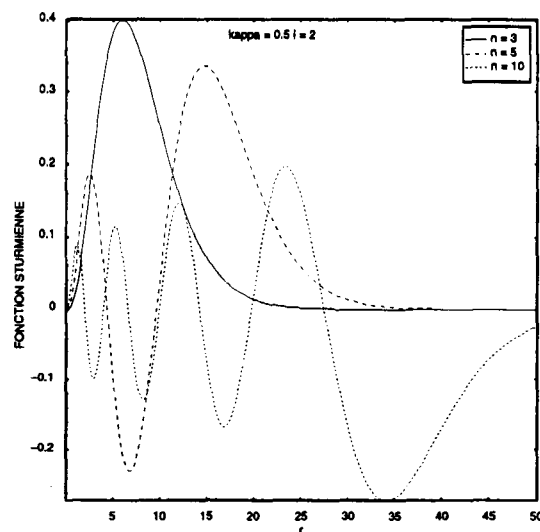


Figure 2.1 Amplitude des fonctions sturmiennes lorsque l'indice n varie avec κ et l fixés.

- Faisons varier le paramètre κ . Nous posons $n = 5$ et $l = 2$. Dans la définition des sturmiennes, nous remarquons que r est multiplié par κ ; nous en déduisons que κ est un facteur de dilatation. Comme on l'observe dans la (fig. 2.2), quand κ augmente, le graphe est comprimé, par contre, quand κ diminue, on étire le graphe. Pour reproduire une fonction spatialement étendue, il faut des sturmiennes de paramètre κ petit, par contre, pour des fonctions oscillant rapidement, il faut un κ grand.
- La période des oscillations, pour les paramètres κ et n augmente avec r .

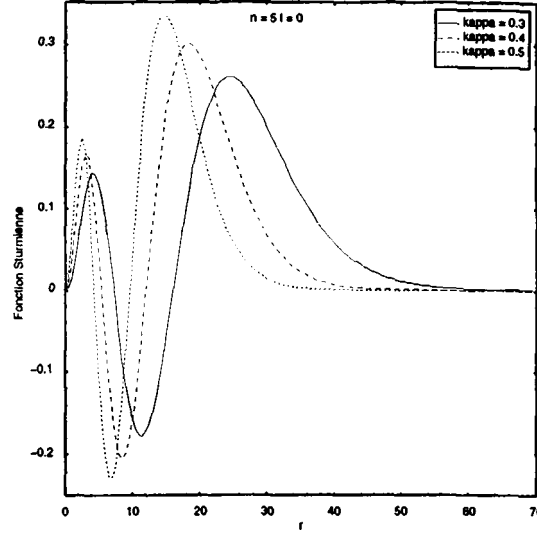


Figure 2.2 Amplitude des fonctions sturmiennes lorsque l'indice κ varie avec n et l fixés.

2 Equation de Schrödinger

2.1 Formulation matricielle

L'équation à résoudre pour les amplitudes dans la base sturmiennne s'obtient en substituant dans l'équation de Schrödinger:

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = \left[-\frac{1}{2} \nabla^2 - \frac{1}{r} + \vec{A}(t) \cdot \hat{\mathbf{p}} \right] \Psi(\mathbf{r}, t), \quad (2.18)$$

le développement de la fonction d'onde $\Psi(\mathbf{r}, t)$ sur une base de fonctions sturmiennes:

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \sum_{n', l', m'} a_{n', l', m'}(t) \frac{S_{n', l'}^\kappa(r)}{r} Y_{l', m'}(\hat{\mathbf{r}}). \quad (2.19)$$

Nous multiplions ensuite chacun des membres de l'équation par $\frac{S_{n, l}^\kappa(r)}{r} Y_{l, m}^*(\hat{\mathbf{r}})$ et nous intégrons sur tout l'espace ($\int_0^\infty r^2 dr \int d\Omega$). Dans le cas d'une polarisation linéaire, l'interaction ne couple que des états de même nombre quantique m ; pour simplifier les notations, nous ne notons plus cet indice. Nous développons $\Psi(\mathbf{r}, t)$ sur une base comportant les moments angulaires $l = m, m+1, \dots, L$ et N fonctions par moment: $n = l+1, l+2, \dots, l+N$. Pour plus de simplicité, nous faisons le changement de variables $n = n - l$; de cette manière, n varie de 1 à N . On arrive finalement à un système d'équations différentielles ordinaires pour les $a_{n, l}(t)$ que l'on présente sous forme matricielle:

$$i \mathbf{S} \frac{\partial}{\partial t} \Psi = [\mathbf{H}_0 + g(t) \mathbf{V}] \Psi. \quad (2.20)$$

où

- $\mathbf{S}$, la matrice de recouvrement est tridiagonale, réelle et symétrique.
- $\mathbf{H}_0$, la matrice de l'Hamiltonien non-perturbé est aussi tridiagonale, réelle et symétrique.
- $g(t)$ est une fonction scalaire dépendante du temps qui contient tous les paramètres de l'impulsion.
- $\mathbf{V}$, la matrice d'interaction est bloc-tridiagonale: les blocs de la rangée centrale sont nuls et les blocs sub-diagonaux comportent seulement 2 diagonales non-nulles. La matrice $\mathbf{V}$ est hermitienne et tous les coefficients sont purement imaginaires.
- Ψ est le vecteur d'état, il contient les $a_{n,l}(t)$.

Les dimensions de ces matrices sont $(N.L) \times (N.L)$ et celles des blocs sont $N \times N$. On trouve dans l'annexe B le détail des calculs.

2.2 Changements de base

Il est possible de passer de la base sturmienne (indiquée par s) à la base atomique (indiquée par a) d'une façon très élégante. Tout d'abord, nous diagonalisons la matrice $\mathbf{S}$. Il existe une matrice $\tilde{\mathbf{T}}$ telle que:

$$\tilde{\mathbf{T}}^t \mathbf{S} \tilde{\mathbf{T}} = \mathbf{s}, \quad (2.21)$$

où $\mathbf{s}$ est une matrice diagonale. Si nous définissons:

$$\mathbf{T} = \tilde{\mathbf{T}} \mathbf{s}^{-\frac{1}{2}}, \quad (2.22)$$

cette matrice $\mathbf{T}$ possède la propriété suivante:

$$\mathbf{T}^t \mathbf{S} \mathbf{T} = 1. \quad (2.23)$$

Si l'on tient compte de ces transformations, l'équation (2.20) devient:

$$i \frac{\partial}{\partial t} \tilde{\Psi} = [\tilde{\mathbf{H}}_0 + g(t) \tilde{\mathbf{V}}] \tilde{\Psi}, \quad (2.24)$$

où:

$$\tilde{\Psi} = \mathbf{T}^{-1} \Psi_s = \mathbf{s}^{\frac{1}{2}} \tilde{\mathbf{T}}^t \Psi_s \quad (2.25)$$

$$\tilde{\mathbf{H}}_0 = \mathbf{T}^t \mathbf{H}_{0s} \mathbf{T} \quad (2.26)$$

$$\tilde{\mathbf{V}} = \mathbf{T}^t \mathbf{V}_s \mathbf{T}. \quad (2.27)$$

Ensuite, nous diagonalisons la matrice $\tilde{\mathbf{H}}_0$ à l'aide de la matrice $\mathbf{U}$: $\mathbf{U}^t \tilde{\mathbf{H}}_0 \mathbf{U} = \mathbf{H}_{0a}$ avec $\mathbf{H}_{0a}$ diagonale. Nous sommes alors dans une base de vecteurs propres de l'Hamiltonien atomique non-perturbé, c'est-à-dire dans la base atomique. On écrit finalement que:

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi_a = [\mathbf{H}_{0a} + g(t) \mathbf{V}_a] \Psi_a, \quad (2.28)$$

où:

$$\Psi_a = U^t \tilde{\Psi} = (U^t s^{\frac{1}{2}} \tilde{T}^t) \Psi_s, \quad (2.29)$$

$$H_{0a} = (U^t s^{-\frac{1}{2}} \tilde{T}^t) H_{0s} (\tilde{T} s^{-\frac{1}{2}} U), \quad (2.30)$$

$$V_a = (U^t s^{-\frac{1}{2}} \tilde{T}^t) V_a (\tilde{T} s^{-\frac{1}{2}} U). \quad (2.31)$$

Notons que la matrice H_{0a} est diagonale et que V_a est bloc-tridiagonale avec des blocs diagonaux vides et des blocs subdiagonaux pleins. Nous connaissons maintenant les matrices qui nous permettent de passer d'une base à l'autre. En définissant $M_{a \rightarrow s}$ et $M_{s \rightarrow a}$ comme suit:

$$\Psi_a = M_{s \rightarrow a} \Psi_s, \quad (2.32)$$

$$\Psi_s = M_{a \rightarrow s} \Psi_a; \quad (2.33)$$

nous avons:

$$M_{s \rightarrow a} = U^t s^{\frac{1}{2}} \tilde{T}^t \quad (2.34)$$

et

$$M_{a \rightarrow s} = T s^{-\frac{1}{2}} U. \quad (2.35)$$

Notons que:

$$\begin{aligned} M_{s \rightarrow a} &= U^t s^{-\frac{1}{2}} \tilde{T}^t \tilde{T} s \tilde{T}^t \\ &= (\tilde{T} s^{-\frac{1}{2}} U)^t \cdot S \\ &= (M_{a \rightarrow s})^t \cdot S. \end{aligned} \quad (2.36)$$

Si nous souhaitons simplement connaître la matrice de transformation pour passer de la base sturmienne à la base atomique, il existe une autre méthode moins coûteuse au niveau du temps de calcul.

Considérons dans la base sturmienne le problème aux valeurs propres généralisé suivant:

$$e S x_{st} = H_{0s} x_{st}. \quad (2.37)$$

e est la valeur propre recherchée et les x_{st} sont les vecteurs propres correspondants. Par rapport au même problème dans la base atomique (équation 2.28 sans l'Hamiltonien d'interaction), les vecteurs propres sont identiques mais représentés dans la base sturmienne plutôt que dans la base atomique. Les valeurs propres sont rigoureusement les mêmes. H_{0s} s'exprime comme suit (appendice B):

$$H_{0s} = \kappa^2 - \kappa N^{-1} - \frac{\kappa^2}{2} S \quad (2.38)$$

où $N = \text{diag}(n+l)$, $n = 1, \dots, N$. En posant $e = \kappa^2(1/\lambda - 1/2)$ et en manipulant un peu l'équation (2.37), on arrive à :

$$(1 - (\kappa N)^{-1})^{-1} S x_{st} = \lambda x_{st}. \quad (2.39)$$

Comme $\mathbf{S}$ est symétrique, on peut écrire $\mathbf{S} = \mathbf{L}\mathbf{L}^t$ (décomposition de Cholesky). En utilisant cette décomposition et en multipliant l'équation (2.39) par $\mathbf{L}^t$, le problème aux valeurs propres généralisé se transforme en un problème aux valeurs propres usuel; en effet, nous avons alors:

$$(\mathbf{L}^t(1 - (\kappa\mathbf{N})^{-1})^{-1}\mathbf{L}) y_{st} = \lambda y_{st}, \quad (2.40)$$

avec $y_{st} = \mathbf{L}^t x_{st}$. Dans ce cas, la matrice dont nous cherchons les vecteurs et valeurs propres est symétrique et tridiagonale. Il est donc trivial de résoudre ce problème. Si nous condérons les vecteurs propres associés à une valeur propre donnée dans la base sturmienne (x_{st}) et dans la base atomique (x_{at}), ils sont reliés entre eux par la relation : $x_{st} = \mathbf{M}_{a \rightarrow s} x_{at}$. Si nous passons à l'ensemble des vecteurs propres (ordonnés dans la base atomique par énergie croissante), cette relation devient: $\mathbf{X}_{st} = \mathbf{M}_{a \rightarrow s} \mathbf{X}_{at}$ où $\mathbf{X}_{st}$ est une matrice constituée à partir des x_{st} mis en colonne. Comme dans la base atomique, les vecteurs propres sont les vecteurs unités, la matrice $\mathbf{X}_{at}$ est la matrice unité. Nous avons alors que: $\mathbf{M}_{a \rightarrow s} = \mathbf{X}_{st}$. Comme $\mathbf{X}_{st} = (\mathbf{L}^t)^{-1} \mathbf{Y}_{st}$, on arrive après quelques manipulations et en utilisant (2.36) au résultat final suivant:

$$\mathbf{M}_{s \rightarrow a} = \begin{pmatrix} \cdots & y_{st,1} & \cdots \\ & \vdots & \\ \cdots & y_{st,n} & \cdots \end{pmatrix} \cdot \mathbf{L}^t. \quad (2.41)$$

$\mathbf{L}$ est tel que $\mathbf{S} = \mathbf{L} \cdot \mathbf{L}^t$ (décomposition de Cholesky). Les $y_{st,i}$ sont les vecteurs propres normalisés de la matrice $\mathbf{L}^t(\mathbf{I} - (\kappa\mathbf{N})^{-1})\mathbf{L}$ avec $\mathbf{N} = \text{diag}(n + l)$, $n = 1, \dots, N$. Nous les ordonnons de façon à ce que les

$$e_i = \kappa^2 \left(\frac{1}{\lambda_i} - \frac{1}{2} \right) \quad (2.42)$$

où les λ_i sont les valeurs propres correspondantes, soient croissants.

3 Optimisation des paramètres de la base

La base sturmienne dans laquelle nous développons la fonction d'onde du système est caractérisée par trois paramètres; le nombre de moments angulaires: $L + 1$ ($l = m, m + 1, \dots, L$); le nombre de fonctions sturmiennes par moment angulaire: N et le paramètre κ qui est réel et positif.

Des contraintes techniques (temps de calcul et stockage de matrices) nous empêchent de travailler avec des bases comportant un nombre arbitrairement grand d'éléments: il faut donc optimiser le choix des paramètres afin d'obtenir une meilleure base possible.

Le critère sur lequel nous évaluons la "qualité" d'une base sturmienne est sa capacité à reproduire correctement les états atomiques jouant un rôle physique dans le processus étudié.

Le paragraphe précédent nous montre comment il est possible de passer de la base sturmienne à la base atomique. La base atomique est une base de vecteurs propres de

l'Hamiltonien non-perturbé. Les valeurs propres (ou énergies propres) associées sont les éléments de la matrice $\mathbf{H}_{0a}$. Nous reproduisons donc les états atomiques qui correspondent aux énergies obtenues. Celles-ci se présentent de la façon suivante: une série d'énergies négatives, comprises entre $-\frac{1}{2}$ et 0 qui correspondent aux énergies propres des états liés de l'atome d'hydrogène, et une série d'énergies positives associées aux états non-liés (discrétisation du continuum) (fig. 2.3)

-0.5000000	-0.5000000000000000
-0.1250000	-0.1250000000000000
-5.5555556E-02	-5.5555555555555546E-02
-3.1250000E-02	-3.1250000000000000E-02
-2.0000000E-02	-2.0000000000000000E-02
-1.3888889E-02	-1.3888888888888888E-02
-1.0204081E-02	-1.0204081632653061E-02
-7.8125000E-03	-7.8125000000000000E-03
-6.1728396E-03	-6.1728395061728394E-03
-4.9999999E-03	-5.0000000000000000E-03
-4.1322312E-03	-4.1322314049586779E-03
-3.4722064E-03	-3.4722222222222221E-03
-2.9564940E-03	-2.9585798816568047E-03
-2.5091777E-03	-2.5510204081632653E-03
-1.9996644E-03	-2.2222222222222224E-03
-1.3543821E-03	-1.9531250000000000E-03
-5.5888278E-04	-1.7301038062283738E-03
3.9968698E-04	
1.5416594E-03	
2.8954062E-03	
4.4985996E-03	
6.4005549E-03	
8.6658346E-03	
1.1379579E-02	
1.4655368E-02	
1.8647004E-02	
2.3566509E-02	
2.9712403E-02	
3.7515432E-02	
4.7615308E-02	
6.0994886E-02	
7.9226777E-02	
0.1049542	
0.1428992	
0.2021775	
0.3022744	
0.4911132	
0.9136053	
2.186107	
9.701021	

Figure 2.3 Colonne de gauche: énergies propres obtenues lors de la diagonalisation de l'Hamiltonien atomique. Colonne de droite: énergies propres exactes de l'Hamiltonien atomique de l'atome d'hydrogène.

Les premières énergies négatives coïncident exactement; pour les états de n élevé, l'écart augmente. $N = 40$, $\kappa = 0.2$ et $l = 0$.

La première question posée est la répartition, pour un moment angulaire l fixé, des N énergies propres en énergies positives et négatives. L'algorithme de Dean [Dea72] y répond; il permet de calculer la distribution de valeurs propres d'une matrice réelle et symétrique. Pour l'utiliser, il est nécessaire de transformer notre problème. Les énergies e_n avec $n = 1, 2, \dots, N$ dont on souhaite connaître la répartition sont les zéros de l'équation:

$$\det |\mathbf{H}_{0s} - e\mathbf{S}| = 0, \quad (2.43)$$

où $\mathbf{H}_{0s}$, l'Hamiltonien non-perturbé dans la base sturmienne est:

$$\kappa^2 \mathbf{I} - \frac{\kappa}{N} + \frac{\kappa^2}{2} \mathbf{S} \quad (2.44)$$

avec $\mathbf{I}$ le matrice unité et $\mathbf{N} = \text{diag}(n + l), n = 1, \dots, N$. En posant

$$e = \kappa^2 \left(\frac{1}{\lambda} - \frac{1}{2} \right), \quad (2.45)$$

le problème est maintenant:

$$\det |\mathbf{M} - \lambda| = 0 \quad (2.46)$$

où

$$\mathbf{M} = \left(1 - \frac{1}{\kappa \mathbf{N}} \right)^{-\frac{1}{2}} \mathbf{S} \left(1 - \frac{1}{\kappa \mathbf{N}} \right)^{-\frac{1}{2}}. \quad (2.47)$$

La matrice $\mathbf{M}$ est réelle, symétrique et tridiagonale.

L'algorithme de Dean est le suivant: définissons

$$\mathbf{M}_1(x) = \mathbf{M} - x\mathbf{I} \quad (2.48)$$

$$\mathbf{M}_i(x) = \mathbf{Z}_{i-1} - \mathbf{Y}_{i-1}^t \mathbf{X}_{i-1}^{-1} \mathbf{Y}_{i-1} \quad (i > 1) \quad (2.49)$$

avec

$$\mathbf{M}_i(x) = \begin{bmatrix} \mathbf{X}_i & \mathbf{Y}_i \\ \mathbf{Y}_i^t & \mathbf{Z}_i \end{bmatrix} \quad (2.50)$$

où $\mathbf{X}_i$ est un scalaire, $\mathbf{Z}_i$ est une matrice carrée d'ordre $(n - i)$ et $\mathbf{Y}_i$ est un vecteur à $(n - i)$ composantes.

L'algorithme nous dit que le nombre de valeurs propres négatives de la matrice $\mathbf{M}_i(x)$ (que l'on note $\eta[\mathbf{M}_i(x)]$) est donné par:

$$\eta[\mathbf{M}_i(x)] = \eta[\mathbf{X}_i] + \eta[\mathbf{Z}_i - \mathbf{Y}_i^t \mathbf{X}_i^{-1} \mathbf{Y}_i]. \quad (2.51)$$

Par conséquent, le nombre de valeurs propres de la matrice $\mathbf{M}$ qui sont plus petites que x , $\eta[\mathbf{M} - x\mathbf{I}]$, est:

$$\eta[\mathbf{M} - x\mathbf{I}] \equiv \eta[\mathbf{M}_1(x)] = \sum_{i=1}^N \eta[\mathbf{X}_i]. \quad (2.52)$$

Il se calcule à partir des N scalaires $\mathbf{X}_i$ qui sont les éléments $(1, 1)$ des matrices $\mathbf{M}_i(x)$.

Dans le cas d'une matrice tridiagonale, le calcul de $\mathbf{M}_i(x)$ est trivial car les $\mathbf{Y}_i$ sont des vecteurs de la forme:

$$(y_1 \ 0 \dots 0). \quad (2.53)$$

Dans notre problème, les énergies positives correspondent à:

$$0 < \lambda \leq 2, \quad (2.54)$$

pour en connaître le nombre, il suffit de calculer:

$$\eta[\mathbf{M} - 2\mathbf{I}] - \eta[\mathbf{M} - 0\mathbf{I}]. \quad (2.55)$$

Nous présentons dans la figure 2.4, pour $\kappa = 0.5$ le nombre d'énergies propres négatives en fonction de N . L'étude empirique de cette courbe pour des valeurs de κ différentes nous a permis d'obtenir le résultat suivant:

$$\text{le nombre d'énergies propres négatives} = \min \left(N; 1.22 \sqrt{\frac{N}{\kappa}} \right). \quad (2.56)$$

L'accord entre cette formule phénoménologique et les résultats numériques est excellent. Il doit être possible d'obtenir ce résultat de manière rigoureuse. En fait, on peut montrer que l'étude des valeurs propres de la matrice (2.43) revient à localiser les zéros de polynômes de Pollazeck. Ce problème n'est pas trivial et est non résolu jusqu'ici [Deh91].

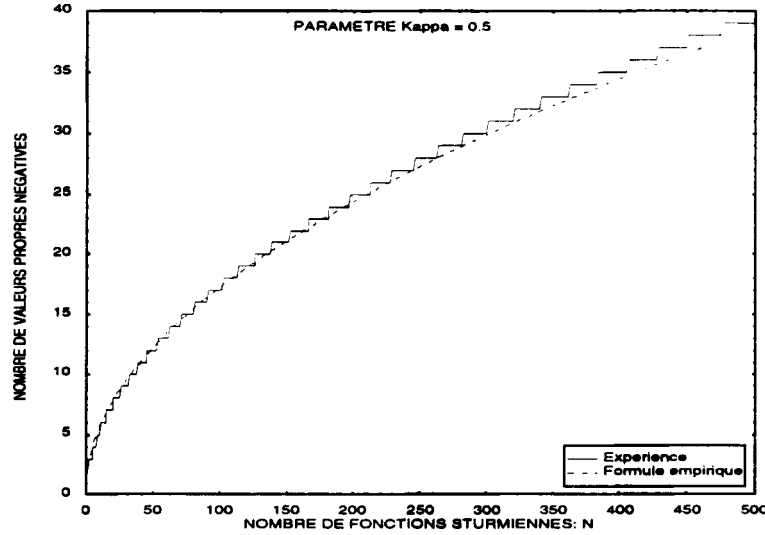


Figure 2.4 Nombre de valeurs propres négatives (états liés) dans la base atomique en fonction du nombre de fonctions sturmiennes utilisées. $l = 0$. La courbe en trait plein représente le nombre exact et celle en trait discontinu, le nombre obtenu en modélisant cette courbe.

Pour les états liés, on remarque aussi que les premières énergies propres sont quasi égales à celles de l'atome d'hydrogène ($E_{n,l} = -\frac{1}{2(n+l)^2}$, avec $n = 1, 2, \dots$), que pour les suivantes l'écart croît progressivement et que les dernières ne correspondent plus à rien. Diverses expériences couvrant une gamme très large de paramètres ($N=50, 100, 150, 200, \dots, 450, 500$, $\kappa = 0.01, 0.02, \dots, 0.08, 0.09, 0.10, 0.20, \dots, 0.80, 0.90, 1.00$ et $l = 0$, soit 190 cas différents) nous permettent d'obtenir le résultat empirique suivant: parmi les énergies négatives obtenues pour un n et κ fixés, environ 75 à 80% d'entre elles sont exactes à 1%. Ce résultat est présenté sous forme d'histogramme sur la figure 2.5. Si nous souhaitons étudier un phénomène physique dans lequel interviennent 40 états liés, il faut, dans la base atomique, au moins 50 états d'énergie négative.

L'utilisation de l'algorithme de Dean peut nous indiquer aussi le nombre d'états du continuum compris dans l'intervalle $[e_{min}, e_{max}]$. Il suffit de calculer:

$$\eta[M - \lambda_{max}I] - \eta[M - \lambda_{min}I] \quad (2.57)$$

où

$$\lambda_{min} = \frac{2\kappa^2}{2e_{max} + \kappa^2} \quad (2.58)$$

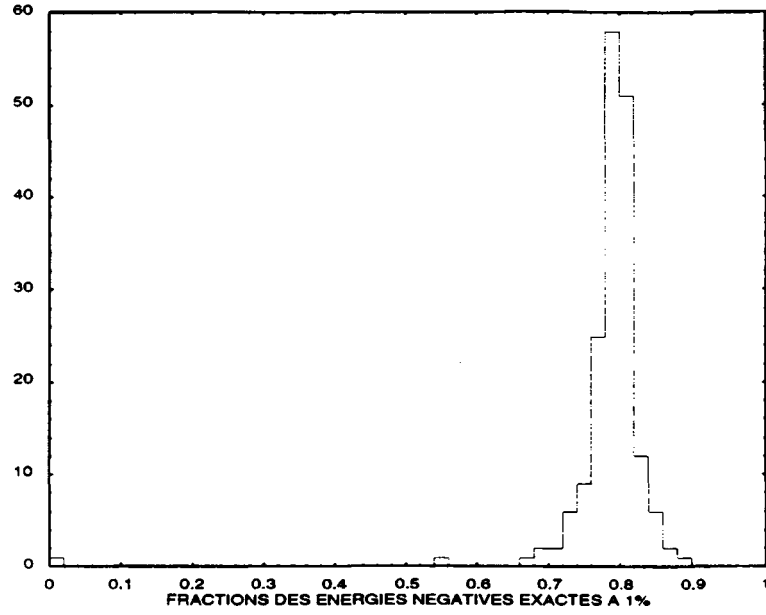


Figure 2.5 *Histogramme représentant le rapport du nombre d'énergies propres négatives exactes à 1% près sur le nombre total d'énergies propres négatives. Il couvre la gamme des paramètres utilisés dans ce travail: $N=50, 100, 150, 200, \dots, 450, 500$, $\kappa = 0.01, 0.02, \dots, 0.08, 0.09, 0.10, 0.20, \dots, 0.80, 0.90, 1.00$ (190 simulations), $l = 0$.*

$$\lambda_{max} = \frac{2\kappa^2}{2e_{min} + \kappa^2}. \quad (2.59)$$

Ceci est très intéressant lorsque nous calculons le spectre en énergie des électrons émis: nous souhaitons, du moins pour les premiers pics, une bonne discrétisation du continuum pour que la résolution du spectre soit correcte. Nous présentons sur la figure 2.6 la densité d'états du continuum d'une base comprenant 500 fonctions sturmiennes de $\kappa = 0.5$.

Cette méthode ne nous donne a priori aucune indication sur la discrétisation lorsque les paramètres N et κ varient. Nous pouvons toutefois faire les remarques qualitatives suivantes:

- Quand κ diminue, on reproduit plus d'états liés (déduction immédiate de la formule empirique (2.52)).
- κ est un facteur d'échelle. Quand il augmente, on "contracte" l'axe des r et les fonctions oscillent plus rapidement. On peut donc reproduire des fonctions propres d'énergies plus élevées (fig 2.7). Mais, la région de l'espace décrite par la base est aussi plus réduite.

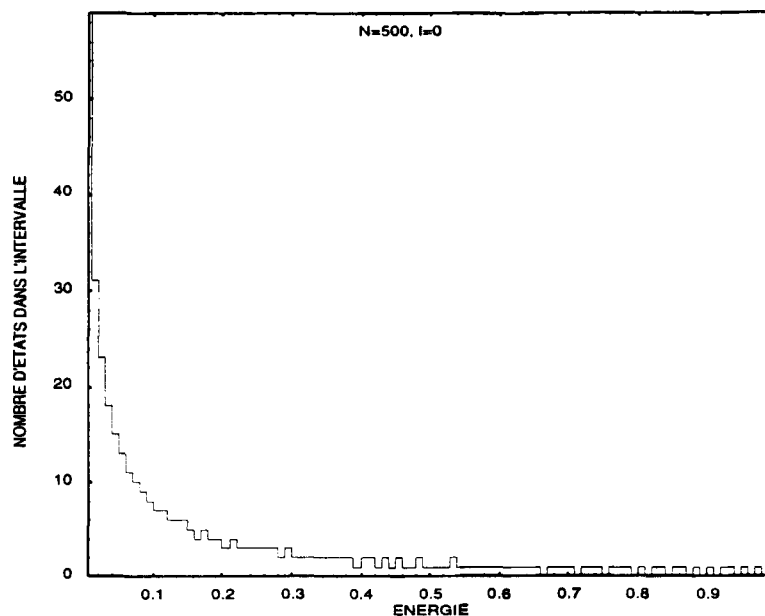


Figure 2.6 Nombre d'états propres ayant une énergie dans un intervalle donné. Les intervalles vont de 0 à 1 par pas de 0.01. $N = 500$ et $\kappa = 0.5$.

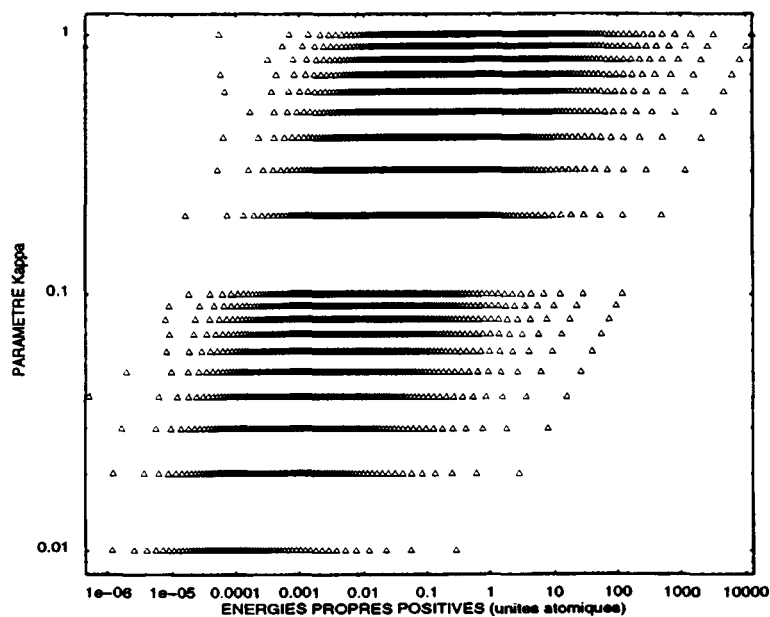


Figure 2.7 Energies propres positives des états reproduits par une base de 250 fonctions sturmiennes lorsque κ varie. $l = 0$. Un κ grand permet de reproduire des états d'énergies élevées.

- Si l'on considère un intervalle d'énergie donné, lorsque κ augmente, le nombre d'états se trouvant dans cet intervalle augmente, passe par un maximum et puis diminue (fig 2.8). En effet, on remarque sur la figure 2.7 un "glissement" des énergies quand κ croît.

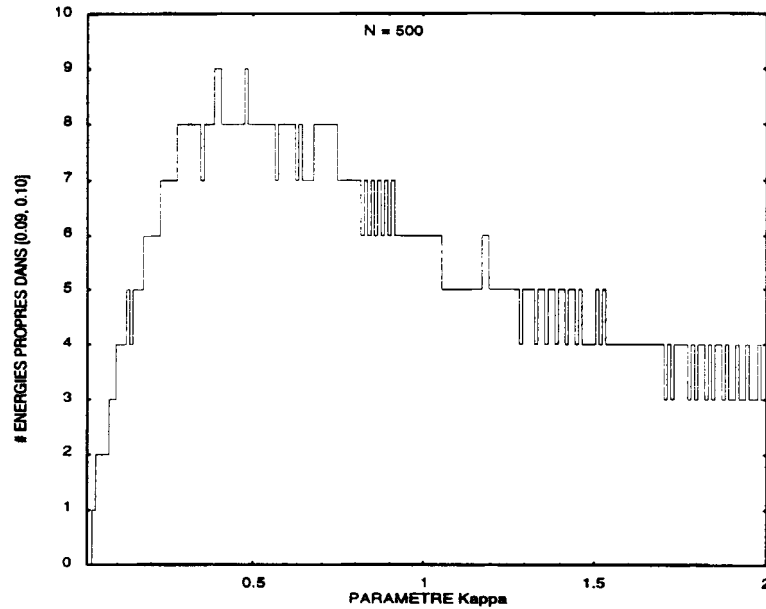


Figure 2.8 Nombre d'énergies propres dans l'intervalle allant de 0.09 à 0.10 u.a. en fonction de κ . $N = 500$ et $l = 0$. Dans cet intervalle, nous trouvons un maximum de fonctions pour $\kappa = 0.5$.

- La région de l'espace sur laquelle une fonction d'énergie fixée est décrite correctement augmente quand κ augmente (fig 2.9). Cette remarque peut paraître contradictoire avec la précédente. En réalité, l'étendue totale de la fonction est plus grande pour des κ petits, mais pour des r grands, les fonctions de la base oscillent tellement lentement (section 2.1.4) que leur recouvrement avec un état du continuum est quasi nul.
- Les fonctions d'onde du continuum ne sont pas normalisées car leur extension spatiale est infinie. Par contre, les fonctions sturmiennes dont l'étendue spatiale est finie, le sont (fonctions de carré sommable). Ceci explique la décroissance des amplitudes des fonctions reproduites sur une grande distance (figure 2.9). Nous agrandissons sur la figure 2.10 l'intervalle $[0; 50]$ de la figure 2.9 et nous représentons la fonction coulombienne exacte que ces bases tentent de reproduire. Nous remarquons un excellent accord (à un facteur près) pour $\kappa = 0.10$ ou 0.50 . La situation se dégrade, pour $\kappa = 0.02$ dans cet intervalle, pour des r plus grands.

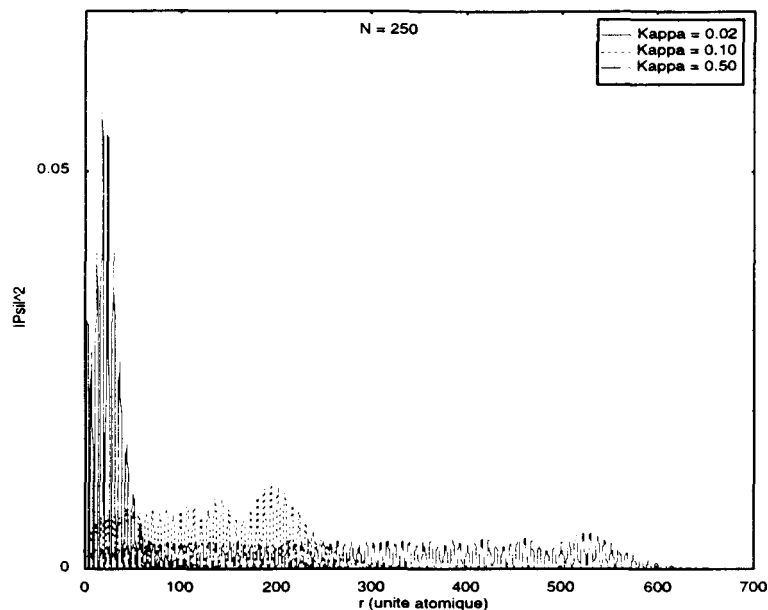


Figure 2.9 Module au carré d'un état du continuum décrit par 3 bases de fonctions sturmiennes comportant chacune 250 fonctions et dont les κ valent 0.02, 0.10 et 0.50. $l = 0$. Il n'est pas possible de reproduire la même discrétisation dans les 3 cas: les énergies des états reproduits valent respectivement: 0.0831, 0.0849 et 0.0828.

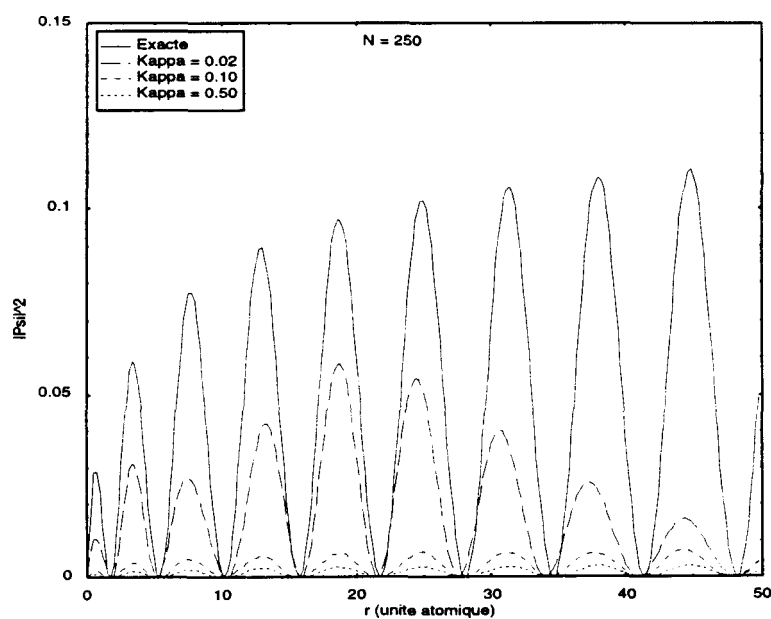


Figure 2.10 Agrandissement de l'intervalle $[0; 50]$ de la figure 2.9.

- Examinons la situation où, pour un κ fixé, N varie. Quand il augmente, nous remarquons une augmentation du nombre d'états (formule 2.52) et des énergies propres (fig 2.11).

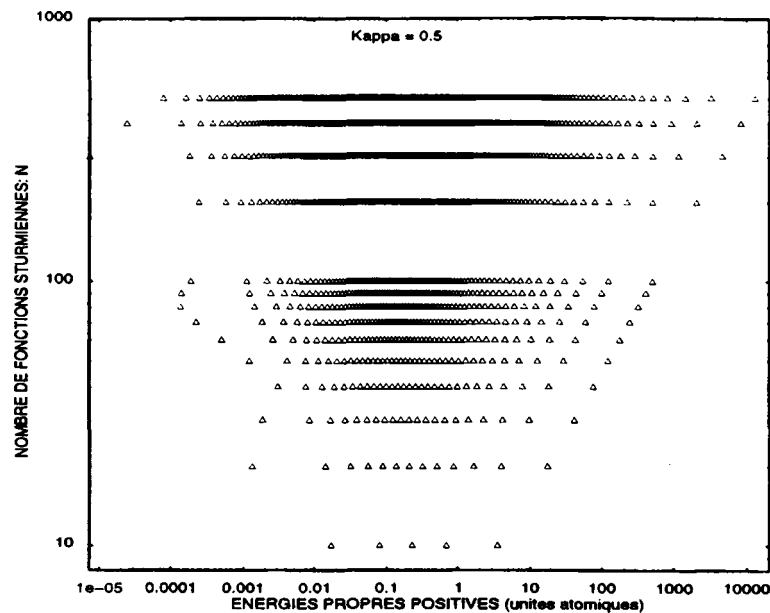


Figure 2.11 *Energies propres positives des états reproduits par une base fonctions sturmiennes lorsque N varie. $\kappa = 0.5$ et $l = 0$. Un N grand permet de reproduire des états d'énergies plus élevées.*

- Quand N croît, le nombre d'états dans un intervalle d'énergie donné augmente (fig 2.12).
- Des bases comportant un grand nombre de fonctions sturmiennes, décrivent un même état sur une région de l'espace plus étendue car la portée des sturmiennes augmente avec n (fig. 2.13).

Après ces remarques, nous présentons la méthode utilisée pour le choix des paramètres de la base. Il faut tout d'abord avoir une idée des états liés jouant un rôle dans le processus physique étudié ; il faut absolument qu'ils soient représentés exactement par la base sturmienne. On fixe ensuite arbitrairement le nombre de fonctions sturmiennes utilisé pour décrire chaque moment angulaire. En sachant qu'environ 75% des énergies propres négatives sont représentés exactement et en utilisant la relation (2.56), on détermine le paramètre κ maximum que l'on peut prendre. Pour terminer, on examine ensuite la discrétisation du continuum aux emplacements des pics dans le spectre en énergie des électrons émis à l'aide de l'algorithme de Dean (2.57). Si le nombre d'états représentés dans l'intervalle considéré n'est pas assez grand, on augmente le nombre de fonctions sturmiennes dans la base et on recommence au début.

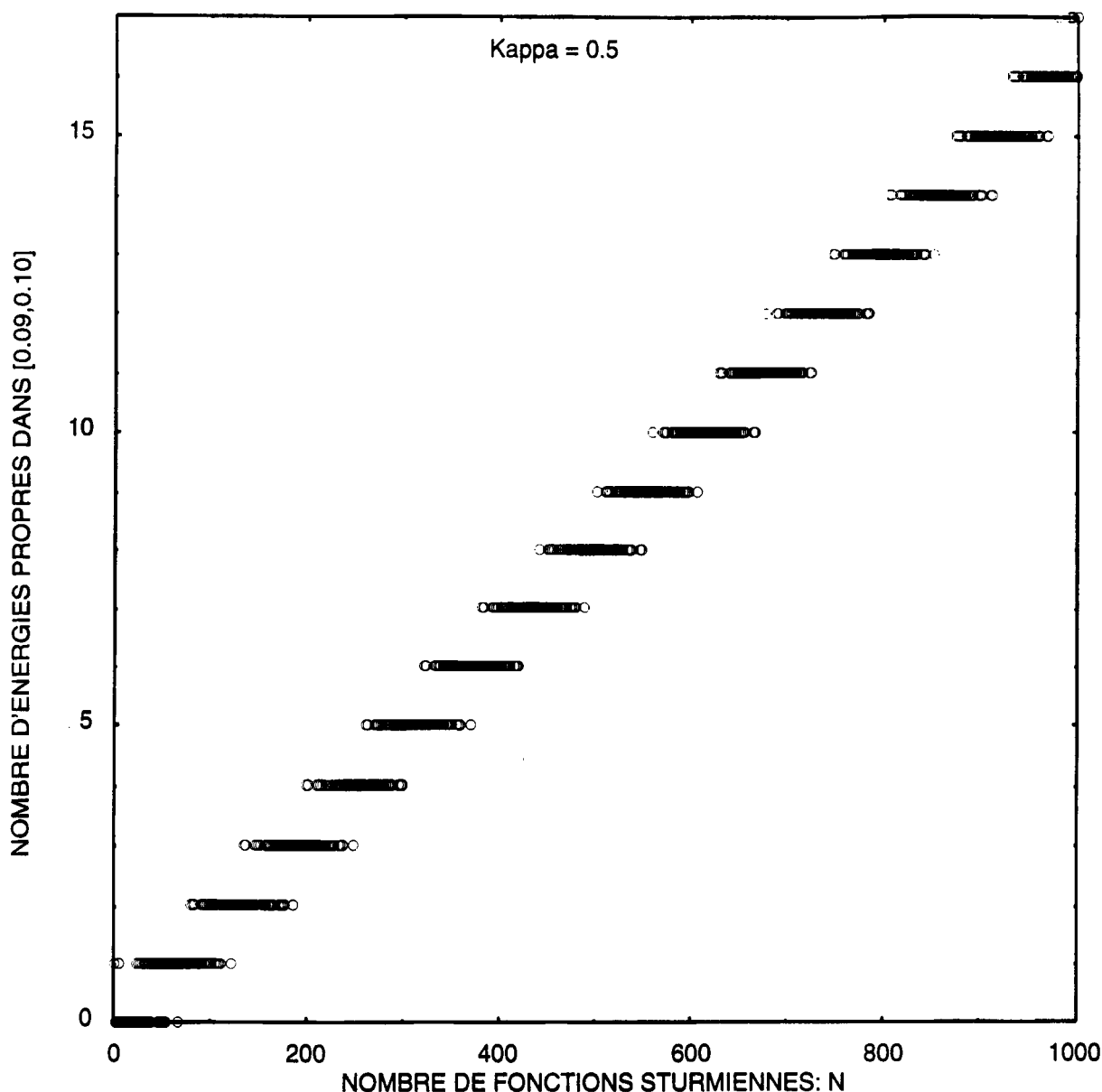


Figure 2.12 Pour un nombre de fonctions sturmiennes fixé pour décrire un moment angulaire (compris ici entre 0 et 1000), ce graphe indique le nombre de fonctions propres du continuum ayant une énergie propre correspondante comprise entre $[0.09; 0.10]$. Dans ce cas, ce nombre varie entre 0 et 16. Il croît quasi-linéairement avec N mais en "oscillant" rapidement; par exemple, pour $N = 400$, ce nombre est 6, pour $N = 401$, 7 et pour $N = 401$, de nouveau 6. Afin de rendre le graphe "lisible" les différents points ne sont pas reliés entre eux. $\kappa = 0.5$ et $l = 0$.

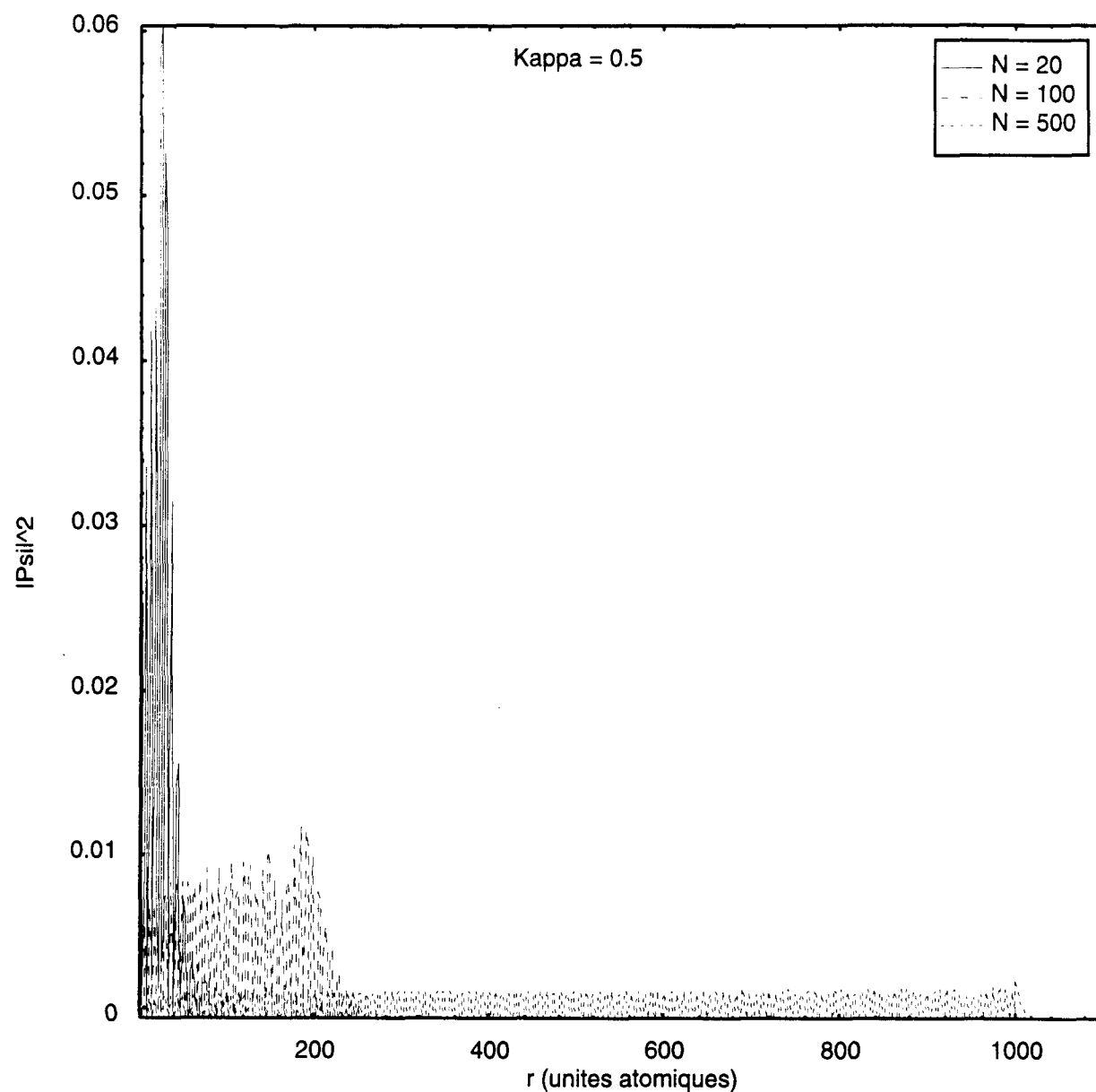


Figure 2.13 Module au carré d'un état du continuum décrit par 3 bases de fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.5$ et dont les N valent 20, 100 et 500. $l = 0$. Il n'est pas possible de reproduire la même discrétisation dans les 3 cas: les énergies des états reproduits valent respectivement: 0.0870, 0.0894 et 0.0871.

Chapitre 3

Résolution numérique de l'équation

Dans le premier chapitre, nous avons présenté l'équation différentielle dont la fonction d'onde du système est solution: l'équation de Schrödinger. Ensuite, dans le deuxième nous avons développé la fonction d'onde sur une base de fonctions sturmiennes; ceci nous a permis d'obtenir un système d'équations différentielles couplées pour les amplitudes. La résolution de ce système fait l'objet de ce troisième chapitre.

Nous commençons, dans une première partie, par montrer les difficultés auxquelles nous sommes confrontés: en développant la fonction d'onde sur une base de fonctions sturmiennes, des états de très haute énergie sont reproduits. On doit donc s'attendre à ce que les amplitudes correspondantes oscillent très rapidement: nous sommes confrontés à un problème stiff, en français *raide*.

Dans la deuxième partie, une étude détaillée dans la base atomique et dans la base sturmienne de la structure du système à résoudre nous donne de précieuses indications quant au type de méthode utilisable.

Pour terminer, nous présentons dans la troisième partie les différentes méthodes de résolutions utilisées: développement perturbatif et méthodes de type Runge-Kutta explicites, diagonalement implicites et implicites.

1 Origine du caractère stiff du problème

Rappelons d'abord la structure du problème à résoudre. Dans la base atomique (indiquée par a), le système d'équations différentielles prend la forme suivante:

$$\frac{d}{dt}\Psi_a(t) = (-i) [\mathbf{H}_{0,a} + g(t)\mathbf{V}_a] \Psi_a(t), \quad (3.1)$$

avec $\Psi_a(0)$ donné. $\Psi_a(t)$ est un vecteur colonne contenant les amplitudes de probabilité dans la base atomique. $\mathbf{H}_{0,a}$ est une matrice diagonale dont les éléments sont les

valeurs propres de l'Hamiltonien atomique. Nous les appelons (E_n) . Nous les classons en deux catégories: les valeurs propres négatives, comprises entre $-\frac{1}{2}$ et 0, auxquelles nous associons les états liés, et les valeurs propres positives qui peuvent être très grandes. Les états propres associés à ces dernières sont les états du continuum. Il est important de noter que le facteur $g(t)$, ainsi que la matrice $\mathbf{V}_a$ dépendent de la forme choisie pour exprimer l'Hamiltonien d'interaction. Pour les raisons présentées dans la section 1.5, nous travaillons dans la forme vitesse. Les résultats présentés dans la discussion qui suit supposent que l'on travaille avec cette forme ¹.

Si nous supposons, dans un premier temps, que $g(t)$ est constant. Le système (3.1) devient:

$$\frac{d}{dt}\Psi_a(t) = (-i)[\mathbf{H}_{0,a} + g\mathbf{V}_a]\Psi_a(t). \quad (3.2)$$

La solution générale de ce système peut s'écrire:

$$\Psi_a(t) = \sum_n \tilde{a}_n e^{i\tilde{\lambda}_n t} \tilde{e}_n \quad (3.3)$$

où les $\tilde{\lambda}_n$ sont les valeurs propres réelles de la matrice $\mathbf{H}_{0,a} + g\mathbf{V}_a$, les $\tilde{e}_n$ sont les vecteurs propres correspondants et les $\tilde{a}_n$, des constantes fixées par les conditions initiales. Examinons le comportement des $\tilde{\lambda}_n$ quand g varie. Pour des g moyens, les valeurs propres $\tilde{\lambda}_n$ de $\mathbf{H}_{0,a} + g\mathbf{V}_a$ correspondent plus ou moins à celles de $\mathbf{H}_{0,a}$. En effet, dans cette situation, $g\mathbf{V}_a$ est une perturbation de $\mathbf{H}_{0,a}$. Si g augmente, elles s'en écartent de plus en plus. Nous observons cette propriété sur la figure(3.1).

Nous approximations la solution (3.3) de l'équation (3.2) par:

$$\Psi_a(t) \approx \sum_n a_n e^{iE_n t} e_n = \begin{pmatrix} a_1 e^{iE_1 t} \\ \vdots \\ a_n e^{iE_n t} \\ \vdots \end{pmatrix}, \quad (3.4)$$

où les e_n sont les vecteurs propres de $\mathbf{H}_{0,a}$. Cette solution décrit l'évolution libre du système. Elle n'est correcte que pour des g quasi nuls. Nous remarquons clairement que les diverses composantes du vecteur $\Psi_a(t)$ varient très différemment les unes des autres avec le temps. Définissons $\bar{E} \in \{E_n; n = 1, 2, \dots\}$ tel que:

$$|\bar{E}| \geq |E_n|, n = 1, 2, \dots \quad (3.5)$$

et

$$T_{min} \propto \frac{1}{\bar{E}}. \quad (3.6)$$

$\bar{E}$ est la valeur propre de $\mathbf{H}_{0,a}$ dont la norme est la plus grande. Nous voyons qu'il faut propager des composantes de $\Psi_a(t)$ dont les périodes propres peuvent être très petites (T_{min}). La grandeur du pas Δt avec lequel la solution se propage est limitée par les oscillations très rapides de certaines composantes. Une autre formulation revient à dire

¹ Avec une autre forme pour l'Hamiltonien, un raisonnement semblable peut être fait.

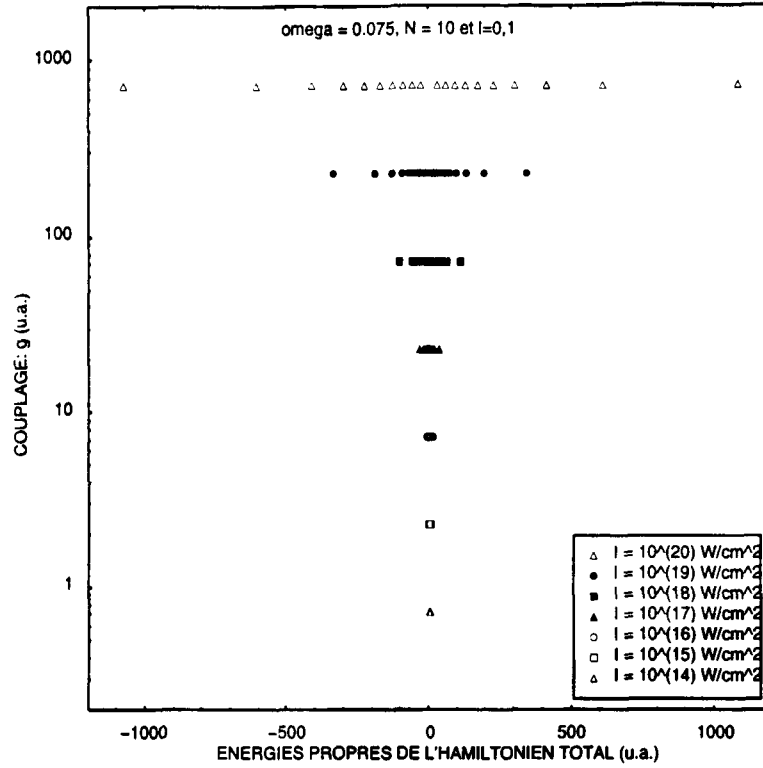


Figure 3.1 Quand $g = 0$, les $\tilde{\lambda}_n$ sont les valeurs propres de $H_{0,a}$ ($\tilde{\lambda}_n = E_n$): elles sont comprises entre -0.5 et 3.48 . Pour des g jusqu'à 1 environ, les $\tilde{\lambda}_n$ s'éloignent lentement des E_n . Par exemple, pour $g = 0.7$, l'intensité est de 10^{14} W/cm^2 (à titre de comparaison, l'intensité du champ électrique ressenti par l'électron dans son état fondamental est de $6.43 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$): elles sont comprises entre -0.7 et 4 . Lorsque g devient plus grand, la situation se dégrade. A ce moment, nous nous trouvons dans un régime où $H_{0,a}$ est une perturbation de gV_a .

que les composantes du vecteur $\Psi_a(t)$ varient sur des échelles de temps qui peuvent être très petites et dont il faut tenir compte lors de la résolution numérique du problème.

Venons-en au cas où $g(t)$ varie avec le temps. Dans le chapitre 2, nous définissons:

$$g(t) = A_0 f(t) \sin \omega t \quad (3.7)$$

où A_0 est l'amplitude maximale du potentiel vecteur, $f(t)$ est l'enveloppe de l'impulsion normalisée à 1 et ω est la pulsation du laser. Dans les cas auxquels nous nous intéressons, $f(t)$ varie lentement par rapport à $\sin \omega t$ (la largeur à mi-hauteur de $f(t)$ est au moins égale à 10 cycles) et $T_{laser} = \frac{2\pi}{\omega} \gg T_{min}$. Les variations temporelles de $g(t)$ sont donc nettement moins rapides que celles des composantes de $\Psi_a(t)$ dont la valeur absolue de l'énergie propre correspondante est grande. Comme nous nous intéressons aux variations temporelles des amplitudes, considérer g au lieu de $g(t)$ ne change donc rien à notre discussion (si ce n'est que les coefficients a_i dépendront du temps).

Nous comprenons l'origine du caractère stiff de notre problème: une méthode numérique sera forcée d'utiliser dans certains intervalles un pas Δt qui est excessivement petit par rapport aux variations temporelles de la majorité des composantes de la solution.

Pour terminer, revenons à l'équation (3.4). En ce qui concerne les variations temporelles des coefficients, le cas où $g = 0$ est nettement plus favorable que celui où $g \neq 0$, car, comme nous le montre la figure (3.1), quand g augmente:

$$\max |\bar{E}_n| < \max |\bar{\lambda}_n| \text{ où } n = 1, 2, \dots, \quad (3.8)$$

ce qui ne fait qu'aggraver la situation. L'expression (3.4), même si elle est incorrecte pour des g grands, nous montre le comportement temporel le plus favorable que peuvent avoir les composantes de la solution.

Dans la base sturmienne (indicée par s), le système d'équations différentielles que nous souhaitons résoudre est:

$$\frac{d}{dt} \Psi_s(t) = (-i) \mathbf{S}^{-1} [\mathbf{H}_{0,s} + g(t) \mathbf{V}_s] \Psi_s(t). \quad (3.9)$$

Comme les valeurs propres de $\mathbf{S}^{-1} \mathbf{H}_{0,s}$ sont identiques à celles de $\mathbf{H}_{0,a}$ et que celles de $\mathbf{S}^{-1} \mathbf{H}_{0,s} + g(t) \mathbf{S}^{-1} \mathbf{V}_s$ correspondent à celles de $\mathbf{H}_{0,a} + g(t) \mathbf{V}_a$, le développement exposé précédemment reste valable dans la base sturmienne: le problème est aussi stiff.

Il existe toutefois une différence importante entre les deux formulations du problème. Dans la base atomique, chaque composante de $\Psi_a(t)$ oscille à une fréquence propre, tandis que dans la base sturmienne, chacune des composantes de $\Psi_s(t)$ est une combinaison linéaire des composantes de $\Psi_a(t)$ (2.33) et donc, oscille à plusieurs fréquences dont certaines sont très élevées.

2 Choix d'une méthode

Qu'est-ce qui caractérise une bonne méthode de résolution numérique ? Deux critères sont à retenir:

- la précision des résultats obtenus;
- la rapidité avec laquelle ils sont produits.

Il est important de noter qu'un algorithme qui s'avère efficace lorsque l'on résout le problème pour certains paramètres, ne l'est pas forcément dans tous les cas. Par exemple, à très faible intensité (amplitude de $g(t)$ petite), nous pouvons nous contenter d'utiliser, comme méthode de résolution, le développement perturbatif de l'opérateur d'évolution. Par contre, à haute intensité, cette méthode ne fournit pas des résultats corrects. Il faut donc développer plusieurs méthodes, chacune d'elles étant plus efficace que les autres dans certains cas. Toutefois, comme l'objectif de ce travail est l'étude de phénomènes physiques,

nous n'analysons pas rigoureusement les domaines dans lesquels les algorithmes utilisés sont les plus performants.

Il est possible de résoudre le problème dans la base atomique ou dans la base sturmienne. Une étude plus détaillée de ces deux formulations nous donne des indications précieuses quant au type de méthodes utilisables.

2.1 Dans la base atomique

- L'équation à résoudre est:

$$\frac{d}{dt}\Psi_a(t) = (-i)[\mathbf{H}_{0,a} + g(t)\mathbf{V}_a]\Psi_a(t), \quad (3.10)$$

$$\equiv \mathbf{F}_a(t)\Psi_a(t). \quad (3.11)$$

La matrice $\mathbf{H}_{0,a}$ est diagonale et la matrice $\mathbf{V}_a$ bloc-tridiagonale avec les blocs de la diagonale du centre vides.

- Le problème est stiff : certaines composantes de $\Psi_a(t)$ peuvent osciller à des fréquences très élevées.
- Les états physiques associés aux composantes de $\Psi_a(t)$ qui oscillent rapidement ne jouent aucun rôle physique: ce sont des états du continuum d'énergie très grande (jusqu'à 10^4 eV). Il est possible d'éliminer les états d'énergie supérieure à un seuil E_{cut} fixé, et par conséquent d'atténuer le caractère stiff du problème, en tronquant les matrices.

Soit $\mathbf{P}$, la matrice transformant $\Psi_a(t)$ en $\Psi_a(t)$ tronqué; $\mathbf{P}$ est diagonale, les éléments $p_{i,i}$ valent 1 si $(\mathbf{H}_{0,a})_{i,i} < E_{cut}$ ou 0 si $(\mathbf{H}_{0,a})_{i,i} > E_{cut}$. L'équation devient:

$$\frac{d}{dt}\mathbf{P}\Psi_a(t) = (-i)[\mathbf{P}\mathbf{H}_{0,a}\mathbf{P} + g(t)\mathbf{P}\mathbf{V}_a\mathbf{P}]\mathbf{P}\Psi_a(t). \quad (3.12)$$

- Pour rendre le problème moins stiff, on peut aussi travailler dans la représentation d'interaction (indiquée par i):

$$\Psi_a(t) = e^{-i\mathbf{H}_{0,a}t}\Psi_{at,i}(t). \quad (3.13)$$

Comme la matrice $\mathbf{H}_{0,a}$ est diagonale, $e^{-i\mathbf{H}_{0,a}t}$ est trivial à calculer. Dans cette représentation, l'équation à résoudre est:

$$\frac{d}{dt}\Psi_{at,i}(t) = (-i)g(t)e^{i\mathbf{H}_{0,a}t}\mathbf{V}_ae^{-i\mathbf{H}_{0,a}t}\Psi_{at,i}(t) \quad (3.14)$$

$$\equiv \mathbf{F}_{at,i}(t)\Psi_{at,i}(t). \quad (3.15)$$

On élimine les oscillations rapides des composantes de $\Psi_a(t)$. Le prix à payer est que $\mathbf{F}_{at,i}(t)$ oscille beaucoup plus rapidement que $\mathbf{F}_a(t)$. Pour des intensités faibles, l'amplitude de ces oscillations est écrasée par $g(t)$ et elles deviennent non-significatives; le problème perd son caractère stiff. Pour des intensités plus élevées, ce n'est plus le cas et il n'y a plus aucun avantage à travailler dans cette représentation.

- Les blocs de la matrice $\mathbf{F}_a(t)$ sont pleins, inverser cette matrice est donc une opération coûteuse au niveau du nombre d'opérations à effectuer.

2.2 Dans la base sturmienne

- La forme que prend l'équation est:

$$\frac{d}{dt}\Psi_s(t) = (-i)\mathbf{S}^{-1}[\mathbf{H}_{0,s} + g(t)\mathbf{V}_s]\Psi_s(t). \quad (3.16)$$

$$\equiv \mathbf{F}_s(t)\Psi_s(t). \quad (3.17)$$

Les matrices $\mathbf{S}$ et $\mathbf{H}_{0,s}$ sont tridiagonales et $\mathbf{V}_s$ est une matrice bande avec 4 diagonales.

- Problème stiff: chaque composante de $\Psi_s(t)$ est une combinaison linéaire des composantes du vecteur $\Psi_a(t)$ qui, comme nous voyons ci-dessus, peuvent osciller à des fréquences très élevées.
- Contrairement à ce qui se passe dans la base atomique, il est impossible de tronquer $\Psi_s(t)$. Si nous transformons l'équation (3.16) en passant dans la base sturmienne, nous perdons le caractère creux des matrices.
- Il est difficile de travailler dans la représentation d'interaction. En effet, il est nécessaire d'évaluer des exponentielles de matrice du type:

$$e^{-i\mathbf{S}^{-1}\mathbf{H}_{0,s}}, \quad (3.18)$$

ce qui est non-trivial.

- Comme $\mathbf{F}_s(t)$ est très creuse (7 diagonales), l'inverser est une opération bon marché (avec des méthodes itératives par exemple).

Pour conclure cette analyse, nous disons que:

- A basse intensité le caractère stiff du problème provient des grandes valeurs propres de $\mathbf{H}_{0,a}$ ou $\mathbf{S}^{-1}\mathbf{H}_{0,s}$. Nous atténuons plus ou moins ce problème uniquement dans la base atomique en travaillant dans la représentation d'interaction et/ou en tronquant la base. Mais les matrices étant pleines, leur inversion est coûteuse, on doit se contenter de méthodes explicites.
- A plus haute intensité, le caractère stiff provient des grandes valeurs propres de $g(t)\mathbf{V}_a$ ou $g(t)\mathbf{S}^{-1}\mathbf{V}_s$. Comme il est impossible de les éliminer, nous sommes obligés d'utiliser des méthodes implicites qui nécessitent des inversions de matrice. Ceci ne peut se faire que dans la base sturmienne puisque les matrices sont creuses.

3 Méthodes de résolution

Les méthodes de résolution utilisées se classent en deux catégories:

- les méthodes perturbatives: développement de l'opérateur d'évolution
- les méthodes de type Runge-Kutta
 - explicites (ERK)
 - diagonalement implicites (DIRK)
 - implicites (IRK).

Les méthodes perturbatives ne fournissent des résultats corrects qu'à de très basses intensités. Nous les utilisons uniquement pour tester ceux fournis par les méthodes de type Runge-Kutta.

3.1 Développement perturbatif

Les méthodes perturbatives peuvent être assimilées à des méthodes explicites, nous devons donc rendre le problème le moins stiff possible et cela n'est faisable que dans la base atomique.

Si $\hat{H}$ et $\hat{H}_0$ sont respectivement les Hamiltoniens total et non-perturbé (atomique) du système, les opérateurs d'évolution temporelle associés satisfont aux équations suivantes (dans la représentation de Schrödinger):

$$i \frac{d}{dt} U(t, t_0) = \hat{H} U(t, t_0) = [\hat{H}_0 + \hat{V}(t)] U(t, t_0), \quad (3.19)$$

$$i \frac{d}{dt} U_0(t, t_0) = \hat{H}_0 U_0(t, t_0). \quad (3.20)$$

Nous posons:

$$U(t, t_0) = U_0(t, t_0) g(t, t_0). \quad (3.21)$$

Après substitution dans (3.19), nous obtenons:

$$i \left(\frac{d}{dt} U_0(t, t_0) \right) g(t, t_0) + i U_0(t, t_0) \frac{d}{dt} g(t, t_0) = \hat{H}_0 U_0(t, t_0) g(t, t_0) + \hat{V}(t) U_0(t, t_0) g(t, t_0). \quad (3.22)$$

En utilisant les équations (3.20) et (3.21), nous obtenons l'équation suivante pour $g(t, t_0)$:

$$i \frac{d}{dt} g(t, t_0) = U_0^{-1}(t, t_0) \hat{V}(t) U_0(t, t_0) g(t, t_0) \quad (3.23)$$

$$= U_0(t_0, t) \hat{V}(t) U(t, t_0). \quad (3.24)$$

Parce que $g(t_0, t_0) = 1$, l'intégration de la dernière équation donne:

$$g(t, t_0) = 1 - i \int_{t_0}^t d\tau U_0(t_0, \tau) \hat{V}(\tau) U(\tau, t_0). \quad (3.25)$$

En utilisant (3.21), nous obtenons:

$$U(t, t_0) = U_0(t, t_0) - i U_0(t, t_0) \int_{t_0}^t d\tau U_0(t_0, \tau) \hat{V}(\tau) U(\tau, t_0). \quad (3.26)$$

Nous utilisons alors la propriété suivante:

$$U_0(t, \tau) = U_0(t, t_0) U_0(t_0, \tau), \quad (3.27)$$

et obtenons l'équation intégrale suivante pour $U(t, t_0)$:

$$U(t, t_0) = U_0(t, t_0) - i \int_{t_0}^t d\tau U_0(t, \tau) \hat{V}(\tau) U(\tau, t_0). \quad (3.28)$$

Dans le but de générer un développement perturbatif, nous résolvons cette équation intégrale itérativement; l'approximation du premier ordre pour $U(t, t_0)$ est obtenue en remplaçant $U(\tau, t_0)$ dans l'intégrant de l'équation (3.28) par $U_0(\tau, t_0)$:

$$U^{(1)}(t, t_0) = U_0(t, t_0) - i \int_{t_0}^t d\tau U_0(t, \tau) \hat{V}(\tau) U_0(\tau, t_0). \quad (3.29)$$

De manière semblable, l'approximation du second ordre pour $U(t, t_0)$ est obtenue en remplaçant $U(\tau, t_0)$ dans l'intégrant de l'équation (3.28) par son approximation du premier ordre:

$$U^{(2)}(t, t_0) = U_0(t, t_0) - i \int_{t_0}^t d\tau U_0(t, \tau) \hat{V}(\tau) U_0(\tau, t_0) \quad (3.30)$$

$$- \int_{t_0}^t d\tau \int_{t_0}^{\tau} d\tau' U_0(t, \tau) \hat{V}(\tau) U_0(\tau, \tau') \hat{V}(\tau') U_0(\tau', t_0). \quad (3.31)$$

Les termes d'ordres plus élevés peuvent être générés de la même manière. Comme $\hat{H}_0$ est indépendant du temps, nous avons:

$$U_0(t, t_0) = \exp(-i\hat{H}_0(t - t_0)). \quad (3.32)$$

Si le système est dans un état $|i\rangle$ au temps t_0 , nous pouvons maintenant calculer l'amplitude de probabilité pour le système d'être dans l'état $|f\rangle$ au temps t :

$$U_{fi}(t) = \langle f | U(t, t_0) | i \rangle. \quad (3.33)$$

L'approximation du second ordre, développée ci-dessus, peut être significativement améliorée de la manière suivante; nous posons:

$$U_{fi} = \bar{U}_{fi}^{(0)} + \lambda \bar{U}_{fi}^{(1)} + \lambda^2 \bar{U}_{fi}^{(2)} + O(\lambda^3) \quad (3.34)$$

où nous introduisons pour plus de simplicité le paramètre λ ; il peut être considéré comme la force du potentiel ($V = \lambda \tilde{V}$). $\bar{U}_{fi}^{(0)}$, $\bar{U}_{fi}^{(1)}$ et $\bar{U}_{fi}^{(2)}$ sont respectivement les contributions aux ordres 0, 1 et 2. Nous introduisons maintenant l'approximant de Padé $[1, 1]$ associé au développement (3.34) et noté $U_{fi}^{[1,1]}(\lambda)$:

$$U_{fi}^{[1,1]}(\lambda) = \frac{U_{fi}^{(0)}U_{fi}^{(1)} - \lambda [U_{fi}^{(2)}U_{fi}^{(0)} - (U_{fi}^{(1)})^2]}{U_{fi}^{(1)} - \lambda U_{fi}^{(2)}}. \quad (3.35)$$

Il est facile de voir que, développés en puissances de λ , les trois premiers termes coïncident avec les trois premiers de l'expression (3.34). Dans la suite nous laissons tomber le paramètre λ (on pose $\lambda = 1$) et écrivons:

$$U_{fi}^{[1,1]} = \frac{U_{fi}^{(0)}U_{fi}^{(1)} - [U_{fi}^{(2)}U_{fi}^{(0)} - (U_{fi}^{(1)})^2]}{U_{fi}^{(1)} - U_{fi}^{(2)}}. \quad (3.36)$$

3.2 Runge-Kutta

Nous commençons par quelques généralités sur les méthodes de type Runge-Kutta [Hai91]. Une méthode de Runge-Kutta à s étapes pour un problème

$$y' = f(x, y), \quad y(0) = y_0, \quad f : R \times C^N \rightarrow C^N \quad (3.37)$$

est définie par:

$$y_{n+1} = y_n + h \sum_{i=1}^s b_i k_i \quad (3.38)$$

où

$$\begin{aligned} k_i &= f(x_n + c_i h, y_n + h \sum_{j=1}^s a_{ij} k_j) \text{ pour } i = 1, 2, \dots, s, \\ x_{n+1} &= x_n + h. \end{aligned} \quad (3.39)$$

Ou encore par

$$y_{n+1} = y_n + h \sum_{i=1}^s b_i f(x_n + c_i h, Y_i) \quad (3.40)$$

où

$$Y_i = y_n + h \sum_{j=1}^s a_{ij} f(x_n + c_j h, Y_j) \quad i = 1, 2, \dots, s. \quad (3.41)$$

Ces deux formulations sont équivalentes si l'on interprète:

$$k_i = f(x_n + c_i h, Y_i) \quad i = 1, 2, \dots, s. \quad (3.42)$$

En général, les a_{ij} et b_i satisfont aux conditions:

$$\begin{aligned} c_i &= \sum_{j=1}^s a_{ij} \\ \text{et } \sum_{i=1}^s b_i &= 1. \end{aligned} \quad (3.43)$$

Le problème que nous souhaitons résoudre (appendice B) est dans la base atomique:

$$\begin{aligned} y(x) &= \Psi_a(t) \text{ avec } y(0) = \Psi_a(t_{\text{initial}}), \\ \text{et } f(x, y) &= (-i) [\mathbf{H}_{0,a} + g(t)\mathbf{V}_a] \Psi_a(t) \equiv F_a(t)\Psi_a(t), \end{aligned} \quad (3.44)$$

et dans la base sturmienne:

$$\begin{aligned} y(x) &= \Psi_s(t) \text{ avec } y(0) = \Psi_s(t_{\text{initial}}), \\ \text{et } f(x, y) &= (-i)\mathbf{S}^{-1} [\mathbf{H}_{0,s} + g(t)\mathbf{V}_s] \Psi_s(t) \equiv F_s(t)\Psi_s(t). \end{aligned} \quad (3.45)$$

$F_a(t)$ et $F_s(t)$ sont des matrices $N \times N$.

Il est utile de présenter les coefficients de la méthode sous une forme appelée matrice de Butcher:

$$\begin{array}{c|cccc} c_1 & a_{11} & a_{12} & \cdots & a_{1s} \\ c_2 & a_{21} & a_{22} & & \vdots \\ \vdots & \vdots & & \ddots & \\ c_s & a_{s1} & \cdots & & a_{ss} \\ \hline & b_1 & b_2 & \cdots & b_s \end{array} \equiv \begin{array}{c|c} \mathbf{c} & \mathbf{A} \\ \hline & \mathbf{b}^T \end{array}, \quad (3.46)$$

où nous définissons les vecteurs $\mathbf{b}$ et $\mathbf{c}$ de dimension s et la matrice $\mathbf{A}$ de dimension $s \times s$ par:

$$\mathbf{c} = (c_1 c_2 \dots c_s)^T, \quad \mathbf{b} = (b_1 b_2 \dots b_s)^T, \quad \text{et } \mathbf{A} = (a_{ij}). \quad (3.47)$$

Il est utile, pour la suite de l'exposé, de présenter sous une forme matricielle la méthode de Runge Kutta (3.40, 3.41):

$$y_{n+1} = y_n + h \begin{pmatrix} b_{11} & b_{21} & \cdots & b_{s1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} F(x_n + c_1 h) Y_1 \\ F(x_n + c_2 h) Y_2 \\ \vdots \\ F(x_n + c_s h) Y_s \end{pmatrix} \quad (3.48)$$

et

$$\begin{pmatrix} Y_1 \\ \vdots \\ Y_s \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} y_n \\ \vdots \\ y_n \end{pmatrix} + h \begin{pmatrix} a_{11}F(x_n + c_1 h) & \cdots & a_{1s}F(x_n + c_s h) \\ \vdots & & \vdots \\ a_{s1}F(x_n + c_1 h) & \cdots & a_{ss}F(x_n + c_s h) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} Y_1 \\ \vdots \\ Y_s \end{pmatrix}. \quad (3.49)$$

On distingue trois classes de méthodes:

- Si dans (3.46) nous avons $a_{ij} = 0$ pour $j \geq i, j = 1, 2, \dots, s$ (c'est-à-dire $\mathbf{A}$ strictement triangulaire inférieure), alors chaque Y_i se calcule explicitement à partir des Y_j évalués précédemment et la méthode est appelée méthode de Runge-Kutta explicite (ERK).
- Si $a_{ij} \neq 0$ pour $j \geq i$, la méthode est implicite (IRK) et il est nécessaire de résoudre à chaque pas un système linéaire de dimension Ns (équation 3.49) pour les Y_i . La résolution directe peut poser un problème; nous présentons, dans la suite de ce chapitre, un moyen de l'éviter en utilisant une méthode itérative.

- Si $a_{ij} = 0$ pour $j > i$ (c'est-à-dire $\mathbf{A}$ triangulaire inférieure), la méthode est diagonalement implicite ou semi-implicite (DIRK). Il faut résoudre à chaque pas s systèmes linéaires de dimension N . Ces systèmes sont de la forme:

$$[1 - ha_{ii}F(x_n + c_i h)]Y_i = y_n + h \sum_{j=1}^{i-1} a_{ij}F(x_n + c_j h)Y_j. \quad (3.50)$$

Ils sont résolus à l'aide d'une méthode itérative (BiCGSTAB) présentée dans l'appendice 3.

Une méthode est d'ordre p si

$$y(x_{n+1}) - y_{n+1} = O(h^{p+1}) \quad (3.51)$$

où $y(x_{n+1})$ est la solution exacte au temps x_{n+1} , y_{n+1} est la valeur approchée générée par la méthode de Runge-Kutta et h le pas. On démontre que l'ordre d'une ERK à s étapes ne peut être supérieur à s , que celui d'une DIRK est au maximum $s + 1$ et que l'ordre maximal d'une IRK est $2s$ [Lamb91]. Pour minimiser les erreurs lors de la propagation dans le temps, il est intéressant de travailler avec une méthode dont l'ordre est le plus élevé possible.

On introduit aussi la notion de stabilité d'une méthode, c'est-à-dire l'étude de propriétés qualitatives telles que le caractère borné et la convergence vers zéro de la solution numérique du problème (si la solution exacte possède ces propriétés). Ce type d'analyse est aussi approprié pour étudier la croissance des erreurs numériques dans la solution d'une équation différentielle.

Pour illustrer cette notion, on considère une équation appelée "problème test standard":

$$y' = \lambda y \quad (3.52)$$

où λ est une constante éventuellement complexe telle que $\Re(\lambda) \leq 0$ ($\Re$ = partie réelle). Si $y(0) = 1$, la solution exacte est $y(x) = \exp(\lambda x)$ qui est bornée. Si l'on utilise une méthode de Runge-Kutta explicite pour résoudre (3.52), on obtient, en écrivant $h\lambda = z$:

$$y_n = [R(z)]^n y_0 \quad (3.53)$$

où $R(z)$ est un polynôme particulier déterminé par les coefficients de la méthode, h le pas. $R(z)$ est appelé fonction de stabilité de la méthode. Dans le cas d'une méthode implicite, $R(z)$ est une fonction rationnelle. Pour que la méthode ne diverge pas, nous nous intéressons à la région dans laquelle $R(z) \leq 1$: la région de stabilité, notée $\mathcal{R}_A$. On montre [Lamb91] que:

$$R(z) = \frac{\det [1 - z\mathbf{A} + z\mathbf{e}\mathbf{b}^T]}{\det [1 - z\mathbf{A}]} \quad (3.54)$$

où $\mathbf{e} = [1 \ 1 \ \dots \ 1]^T \in \mathbb{R}^s$ et $\mathbf{1}$ la matrice unité $s \times s$.

On dit qu'une méthode est

- *A-stable* si $\mathcal{R}_A \subset \{z | \Re(z) \leq 0\}$

- *L-stable* si elle est *A-stable* et si $|R(z)| \rightarrow 0$ quand $\Re(z) \rightarrow -\infty$.

Lorsque l'on se trouve face à un problème stiff, il faut utiliser une méthode possédant de bonnes propriétés de stabilité. Seules les DIRK et IRK peuvent être *A-stable* ou *L-stable*. Cela signifie que l'utilisation d'une ERK est donc proscrite pour la résolution de (3.44) ou (3.45) par les lois fédérales de notre pays.

Dans les systèmes que nous résolvons (équations 3.44 et 3.45), les valeurs propres de $F(t)$ sont purement imaginaires; cela implique la conservation de la norme du vecteur $y(x)$. Si nous voulons que la méthode de type Runge-Kutta conserve aussi la norme, c'est-à-dire que $|y_{n+1}| = |y_n|$, il faut que $|R(z)| = 1$ (car $y_{n+1} = R(z)y_n$). Nous présentons aux figures (3.2) et (3.3) les domaines de stabilité de deux méthodes implicites. Dans ces graphes, $R(z) = 1$ à la limite de la région de stabilité, c'est-à-dire à la limite de l'interface blanc-noir. Pour la DIRK (fig. 3.2), $R(z) = 1$ le long de l'axe imaginaire pour $z \in [-i, i]$ environ et, pour l'IRK, $R(z) = 1$ le long de l'axe imaginaire pour $z \in [-5i, 5i]$. Les pas h choisis doivent donc être suffisamment petits pour que les $z (= h\lambda, \lambda$ valeur propre) soient compris dans les régions décrites ci-dessus.

Passons en revue les deux méthodes utilisées dans ce travail.

DIRK

Cette méthode présentée par Cash est à 5 étapes, d'ordre 4 et est L-stable [Cas79]. Ces coefficients se présentent sous la forme:

$$\begin{array}{c|ccccc}
 \tau_1 & \alpha & & & & \\
 \tau_2 & a_{21} & \alpha & & & \\
 \tau_3 & a_{31} & a_{32} & \alpha & & \\
 \tau_4 & a_{41} & a_{42} & a_{43} & \alpha & \\
 1 & b_1 & b_2 & b_3 & b_4 & \alpha \\
 \hline
 & b_1 & b_2 & b_3 & b_4 & \alpha
 \end{array} \tag{3.55}$$

où

$$\begin{array}{ll}
 \alpha = 0.4358665215 & a_{21} = -1.13586652150 \\
 a_{31} = 1.08543330679 & a_{32} = -0.721299828287 \\
 a_{41} = 0.416349501547 & a_{42} = 0.190984004184 \\
 a_{43} = -0.118643265417 & \tau_1 = \alpha \quad \tau_2 = -0.7 \\
 \tau_3 = 0.8 & \tau_4 = 0.924556761814 \\
 b_1 = 0.896869652944 & b_2 = 0.0182725272734 \\
 b_3 = -0.0845900310706 & b_4 = -0.266418670647.
 \end{array} \tag{3.56}$$

Nous présentons à la figure (3.2) le domaine de stabilité de cette méthode. Elle possède l'avantage suivant: il est possible d'estimer l'erreur locale à chaque pas sans que cette estimation ne nécessite des calculs supplémentaires. On peut alors contrôler le pas lors de la propagation. On obtient une autre solution $\hat{y}_{n+1}$ à l'aide de la méthode d'ordre 3

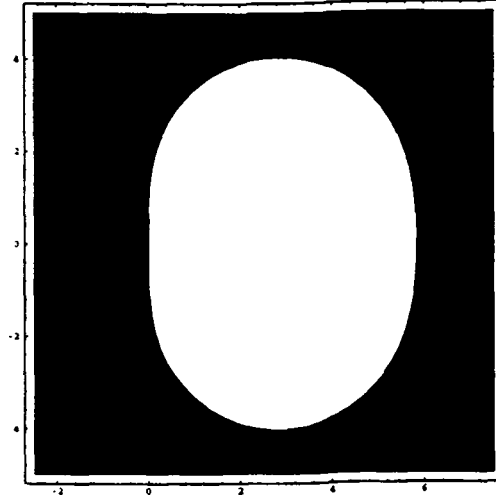


Figure 3.2 *Domaine de stabilité (en noir) de la méthode DIRK de Cash décrite par (3.55) et (3.56). A la limite de cette région, $R(z) = 1$.*

implicite suivante:

$$\begin{array}{c|cccc}
 \tau_1 & \alpha & & & \\
 \tau_2 & a_{21} & \alpha & & \\
 \tau_3 & a_{31} & a_{32} & \alpha & \\
 \tau_4 & a_{41} & a_{42} & a_{43} & \alpha \\
 \hline
 & c_1 & c_2 & c_3 & c_4
 \end{array} \tag{3.57}$$

où

$$\begin{aligned}
 c_1 &= 0.776691932910, & c_2 &= 0.0297472791484, \\
 c_3 &= -0.0267440239074, & c_4 &= 0.220304811849.
 \end{aligned} \tag{3.58}$$

L'erreur relative locale est estimée par

$$E_{\text{relative}} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N \frac{\|(y_{n+1})_i - (\hat{y}_{n+1})_i\|_2^2}{\|y_{n+1}\|_2^2}}{N}}. \tag{3.59}$$

Les composantes de y_{n+1} dont la norme est inférieure à une certaine valeur, en général 10^{-10} , n'interviennent pas dans cette somme (filtre). En effet, ces composantes ne jouent aucun rôle physique dans le processus étudié et de plus, les contributions des erreurs relatives de ces petites composantes à l'erreur relative totale peuvent être importantes. Si l'erreur est supérieure à une tolérance prescrite, la propagation est recommencée avec un pas deux fois plus petit, si elle est inférieure à une borne inférieure fixée, on double le pas de l'intervalle suivant, sinon le pas est inchangé. La tolérance est choisie empiriquement:

si elle vaut 10^{-3} , la norme 2^2 de la solution finale dans la base atomique: $\|\Psi_a(t = t_{final})\|$ est égale à 1 avec une erreur relative de l'ordre du pourcent, si la tolérance vaut 10^{-5} , on peut espérer une erreur relative de 10^{-3} . Ce choix dépend de la précision souhaitée.

IRK

Avec ce type de méthode il est nécessaire de résoudre un système d'équations linéaires à Ns inconnues (3.49). Une fois les Y_i obtenus, le calcul de y_{n+1} est immédiat. Vu les dimensions du système et le nombre de fois qu'il doit être résolu (de l'ordre de 10^4), une méthode de résolution directe n'est pas envisageable. Sommeijer et van der Houwen ont introduit un processus itératif pour le calcul des Y_i [van92]. Ce processus est construit à partir de l'équation (3.49):

$$\begin{pmatrix} Y_1^{(j)} \\ \vdots \\ Y_s^{(j)} \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} d_{11}F(x_n + c_1h) & & 0 \\ & \ddots & \\ 0 & & d_{ss}F(x_n + c_sh) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} Y_1^{(j)} \\ \vdots \\ Y_s^{(j)} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} y_n \\ \vdots \\ y_n \end{pmatrix} + h \begin{pmatrix} (a_{11} - d_{11})F(x_n + c_1h) & \cdots & a_{1s}F(x_n + c_sh) \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ a_{s1}F(x_n + c_1h) & \cdots & (a_{ss} - d_{ss})F(x_n + c_sh) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} Y_1^{(j-1)} \\ \vdots \\ Y_s^{(j-1)} \end{pmatrix}. \quad (3.60)$$

Il s'agit d'une méthode itérative stationnaire. $D = \text{diag}(d_{11}, \dots, d_{ss})$ est une matrice diagonale $s \times s$ choisie pour assurer une convergence rapide. Avec ce processus, une itération $Y_i^{(j)}$ se calcule à partir des $Y_k^{(j-1)}$, $k = 1, 2, \dots, s$ en résolvant à l'aide de BiCGSTAB (appendice C) un système de la forme:

$$[1 - d_{ii}F(x_n + c_ih)]Y_i^{(j)} = \Sigma_i \quad (3.61)$$

où Σ_i est la i ème composante du membre de droite de (3.60). On revient à s systèmes de dimension N qui doivent être résolus m fois, m étant le nombre d'itérations du processus. Ces s résolutions peuvent se faire en parallèle [van91].

Pour commencer (3.60), un bon choix pour les approximations initiales $Y_i^{(0)}$, $k = 1, 2, \dots, s$ (que l'on appelle aussi prédicteurs) consiste à prendre des y calculés aux temps $(x_n + c_ih)$ en propageant à l'aide d'une DIRK à deux étapes le y_n obtenu précédemment. Cette initialisation demande la résolution de $2s$ systèmes du type (3.50). Le processus itératif (3.60) corrige en quelque sorte l'approximation initiale choisie pour commencer; il est appelé correcteur. Il est continué jusqu'à l'obtention d'un itéré suffisamment précis. On peut montrer que l'erreur sur une itération, $Y - Y^{(j)}$ satisfait, en première approximation, la récurrence:

$$Y - Y^{(j)} = Z(z)[Y - Y^{(j-1)}] \quad (3.62)$$

où $z = h\lambda$, h le pas, λ , un élément de la matrice jacobienne et

$$Z(z) = zD(1 - zD)^{-1}(D^{-1}A - 1). \quad (3.63)$$

$$^2\|x\|_2 = \sqrt{\sum_{i=1}^N |x_i|^2}.$$

Pour minimiser $Z(z)$, on considère un D qui rend le rayon spectral de $(D^{-1}A - 1)$ le plus petit possible. Ce choix n'est pas le meilleur, mais il donne de bons résultats.

Le nombre d'itérations m est déterminé par l'ordre du prédicteur et du correcteur [van92].

Le pas est ajusté en fonction de la précision obtenue.

Pour terminer, signalons que l'IRK utilisé est de type Radau IIA (Navire) à 4 étapes, d'ordre 7 et qui est L-stable. Ses coefficients sont:

$$\begin{array}{c|cccc}
 c_1 & a_{11} & a_{12} & a_{13} & a_{14} \\
 c_2 & a_{21} & a_{12} & a_{23} & a_{24} \\
 c_3 & a_{31} & a_{32} & a_{33} & a_{34} \\
 1 & a_{41} & a_{42} & a_{43} & a_{44} \\
 \hline
 & a_{41} & a_{42} & a_{43} & a_{44}
 \end{array} \tag{3.64}$$

où

$$\begin{aligned}
 a_{11} &= 0.11299947932316, & a_{12} &= -.04030922072352, \\
 a_{13} &= 0.02580237742034, & a_{14} &= -.00990467650730, \\
 a_{21} &= 0.23438399574740, & a_{22} &= 0.20689257393536, \\
 a_{23} &= -.04785712804854, & a_{24} &= 0.01604742280652, \\
 a_{31} &= 0.21668178462325, & a_{32} &= 0.40612326386737, \\
 a_{33} &= 0.18903651817006, & a_{34} &= -.02418210489983, \\
 a_{41} &= 0.22046221117677, & a_{42} &= 0.38819346884317, \\
 a_{43} &= 0.32884431998006, & a_{44} &= 0.0625.
 \end{aligned} \tag{3.65}$$

Les c_i sont déterminés par (3.43). Nous présentons à la figure (3.3) le domaine de stabilité de cette méthode. Les éléments de D sont:

$$\begin{aligned}
 d_{11} &= 0.32049937, & d_{22} &= 0.08915379, \\
 d_{33} &= 0.18173957, & d_{44} &= 0.23336280.
 \end{aligned} \tag{3.66}$$

Si l'on reprend la discussion concernant les régions de stabilité, on en déduit qu'un meilleur choix consiste à utiliser des méthodes implicites de type Gauss-Legendre. Dans ce cas, la région de stabilité est le demi-plan négatif; en particulier, $R(z) = 1$ sur tout l'axe imaginaire. Nous n'avons alors aucune limitation du pas pour assurer la conservation de la norme. Une méthode de ce type très répandue est celle de *Crank-Nicolson*[Pre92]. Il s'agit d'une méthode à une étape d'ordre 2. Vu la complexité de notre problème, nous devons travailler avec un ordre plus élevé. Cela n'est possible qu'en résolvant des systèmes d'équations linéaires de dimensions importantes (équation 3.49). Malheureusement, van der Houwen montre que le processus itératif qu'il propose (équation 3.60) ne fonctionne bien qu'avec des méthodes dans lesquelles les coefficients b_j sont égaux aux coefficients a_{sj} : ce qui n'est pas le cas des méthodes de type Gauss-Legendre [van92]. La généralisation de (3.60) à ce type de méthode fera l'objet de nos prochaines recherches.

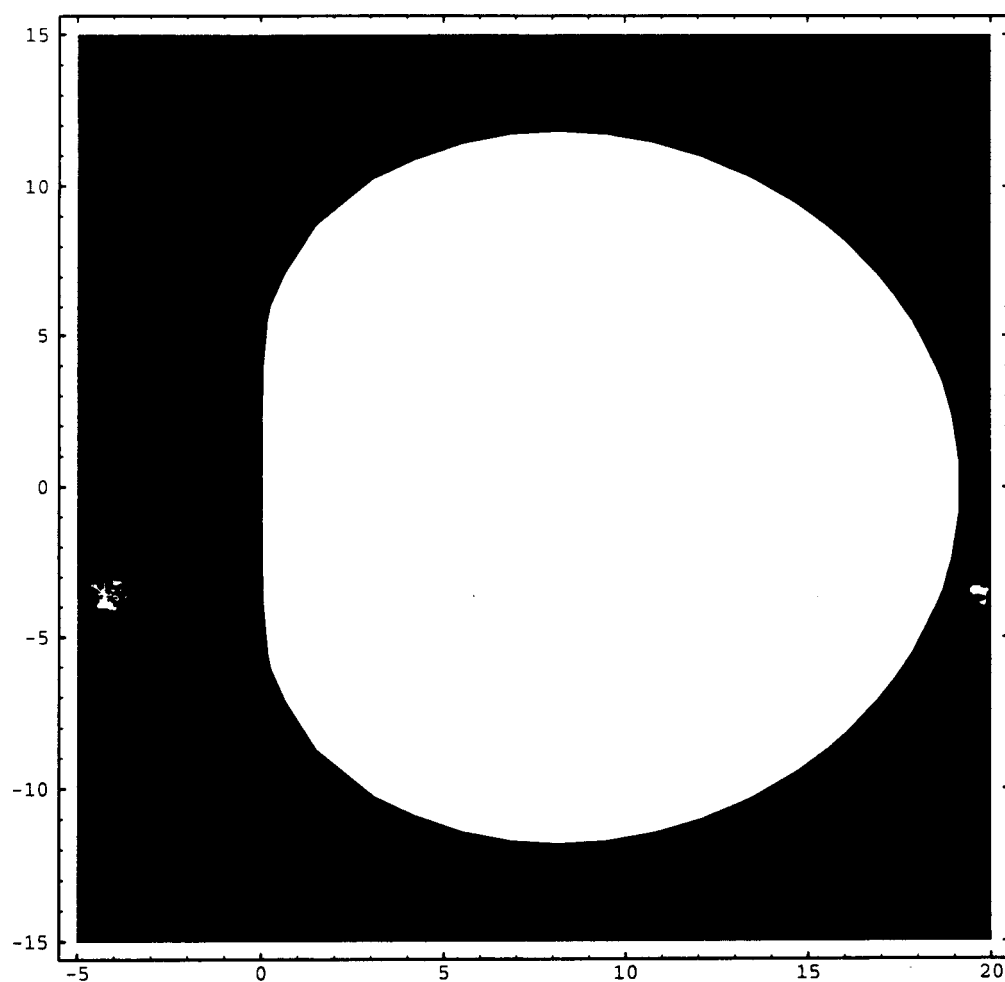


Figure 3.3 *Domaine de stabilité de la méthode IRK décrite par (3.64) et (3.65).*

Chapitre 4

Traitement de l'équation de Schrödinger à grande distance

Dans ce travail, $\Psi(\mathbf{r}, t)$, la fonction d'onde totale du système est approximée par une combinaison linéaire de N fonctions de carré sommable: les fonctions sturmiennes. Comme elles ont une extension spatiale finie, le système n'est décrit que dans une région limitée de l'espace. Tant que le système reste dans cette région de l'espace la base est adéquate. Mais après un certain temps, il est possible que le flux de densité de probabilité atteigne les limites de cette région.

Avec une base réelle, la norme de la fonction d'onde: $\langle \Psi(t) | \Psi(t) \rangle = \int d\mathbf{r}^3 |\Psi(\mathbf{r}, t)|^2$, est conservée dans le temps. Cela veut dire que des fragments atteignant la limite de cette région sont réfléchis et retournent vers l'intérieur. De telles réflexions factices peuvent évidemment être évitées en agrandissant la base. On peut aussi utiliser une dilatation complexe des coordonnées radiales de l'Hamiltonien ou encore, ce qui revient au même, travailler avec une base de fonctions sturmiennes complexes [Pir94].

1 Dilatation complexe

Cette méthode [Bal71][Reed78] est utilisée intensivement en théorie de la diffusion pour le calcul des résonnances en physique atomique et moléculaire [Rei82]. Elle peut être étendue à l'équation de Schrödinger dépendante du temps où elle se révèle d'une grande utilité [Fai87][McC89][McC91].

La dilatation complexe de l'Hamiltonien s'obtient à partir de l'Hamiltonien habituel en faisant la transformation:

$$r \rightarrow r \exp(i\theta) \tag{4.1}$$

où θ est un paramètre réel appelé angle de rotation. L'Hamiltonien total du système se

transforme en:

$$\begin{aligned}\hat{H}(\theta) &\equiv \hat{H}(re^{i\theta}, t) \\ &= -\frac{1}{2}e^{-2i\theta} \frac{d^2}{dr^2} - \frac{1}{r}e^{-2i\theta} \frac{d}{dr} + e^{-2i\theta} \frac{l(l+1)}{2r^2} - e^{-i\theta} \frac{1}{r} + e^{-i\theta} \vec{\mathbf{A}}(t) \cdot \hat{\mathbf{p}}\end{aligned}\quad (4.2)$$

et le système d'équation différentielle à résoudre devient:

$$\begin{aligned}i\mathbf{S} \frac{d}{dt} \Psi &= \mathbf{H}(\theta) \\ &= [\mathbf{H}_0(\theta) + g(t)\mathbf{V}(\theta)] \Psi\end{aligned}\quad (4.3)$$

où

$$\begin{aligned}\mathbf{H}_0(\theta) &= \left(\kappa^2 \mathbf{1} - \frac{\kappa^2}{2} \mathbf{S} \right) e^{-2i\theta} - \frac{\kappa}{\mathbf{N}} e^{-i\theta}, \\ \mathbf{V}(\theta) &= \mathbf{V} e^{-i\theta}.\end{aligned}\quad (4.4)$$

Les matrices apparaissant dans ces équations sont définies dans l'appendice B. On voit dans (4.4) que l'opérateur "énergie cinétique" est multiplié par $e^{-2i\theta}$ et que l'opérateur "énergie potentielle", par $e^{-i\theta}$.

$\hat{H}(\theta)$ n'est plus un opérateur hermitien: son spectre est complexe et dépend de l'angle de rotation θ . Le spectre de $\hat{H}_0(\theta)$ est lié à celui de $\hat{H}_0$ de la manière suivante;

- Les valeurs propres des états liés de $\hat{H}_0(\theta)$ coïncident avec celles de $\hat{H}_0$.
- Les valeurs propres du continuum subissent une rotation d'un angle 2θ dans le demi-plan inférieur autour du point de branchement (figure 4.1). On peut les écrire:

$$E_\theta \equiv \Re(E_\theta) + i\Im(E_\theta) \quad (4.5)$$

$\langle \Psi(t) | \Psi(t) \rangle$ diminue avec le temps si $\Im(E_\theta)$ est négatif.

Après une dilatation complexe de l'Hamiltonien total, l'opérateur d'évolution temporelle n'est plus unitaire et la densité de probabilité du flux qui s'échappe à grande distance diminue rapidement. On peut montrer que la dilatation complexe transforme une onde sphérique sortante e^{ikr}/r en une onde sortante décroissant exponentiellement:

$e^{ikr \cos \theta} e^{-kr \sin \theta}/r$ [Del91]. Cela implique que θ doit être compris entre 0 et $\Pi/2$. Ceci nous permet d'utiliser des bases comportant un nombre restreint de fonctions: environ 100 au lieu de 500 par moment angulaire car la région de l'espace décrite par la base ne doit plus être si grande. D'un point de vue pratique, nous observons que les résultats obtenus sont stables avec θ ce qui nous a mené à prendre le même θ pour toutes nos simulations : 0.1.

Si l'angle de rotation θ est choisi correctement, la norme de la fonction d'onde n'est plus conservée. On montre toutefois que la probabilité pour le système de se trouver dans un état lié, contrairement aux états du continuum, après l'interaction avec l'impulsion laser n'est pas changée. Nous pouvons alors calculer le taux d'ionisation comme suit:

$$\text{Taux d'ionisation} = 1 - \text{Probabilité de se trouver dans un état lié.} \quad (4.6)$$

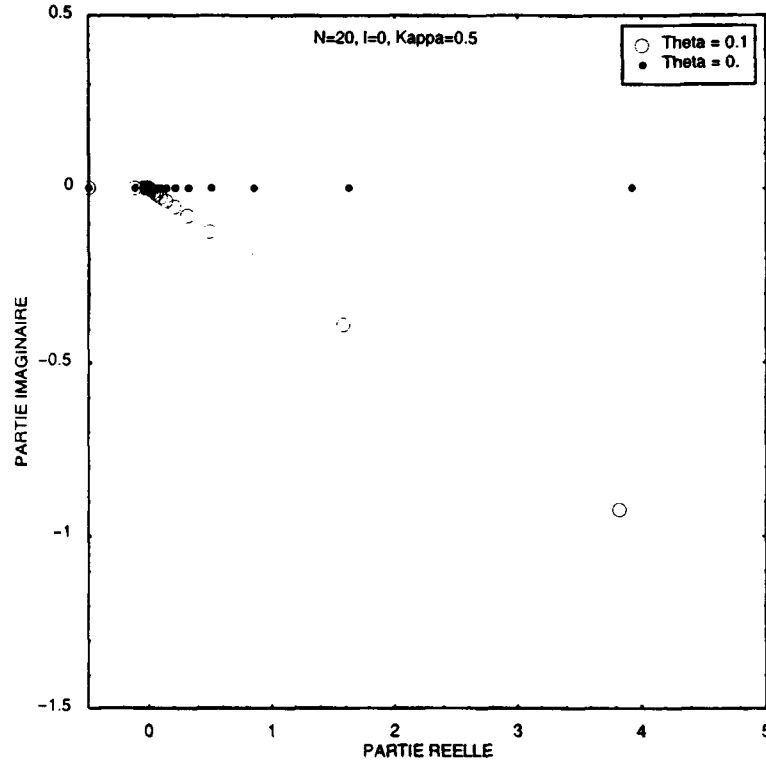


Figure 4.1 Transformation du spectre de $\hat{H}_0$ lors de l'utilisation d'une dilatation complexe. Les valeurs propres négatives restent inchangées, tandis que celles du continuum subissent une rotation d'un angle 2θ autour du point de branchement. $N = 20, l = 0, \kappa = 0.5$ et $\theta = 0.1$.

2 Fonctions sturmiennes complexes

Notons aussi qu'une dilatation complexe d'un angle θ de l'Hamiltonien ($r \rightarrow r \exp(i\theta)$) est équivalente à utiliser une base de fonctions sturmiennes avec un paramètre κ complexe. Il suffit de remplacer le κ des fonctions sturmiennes usuelles par $\kappa \exp(-i\theta)$. Nous appelons ce nouveau paramètre κ_c . Ces fonctions sturmiennes "complexes" sont alors:

$$S_{n,l}^{\kappa_c}(r) = N_{n,l}^{\kappa_c} r^{l+1} e^{-\kappa_c r} {}_1F_1(-n+l+1; 2l+2; 2\kappa_c r), \quad (4.7)$$

où le facteur de normalisation $N_{n,l}^{\kappa_c}$ s'écrit:

$$N_{n,l}^{\kappa_c} = \sqrt{\frac{\kappa_c}{n}} (2\kappa_c)^{l+1} \frac{1}{(2l+1)!} \left[\frac{(n+l)!}{(n-l-1)!} \right]^{1/2}, \quad (4.8)$$

et où ${}_1F_1$ est une fonction hypergéométrique confluyente et

$$\kappa_c = \kappa \exp(-i\theta). \quad (4.9)$$

3 Calcul des éléments de matrice

L'utilisation de fonctions sturmiennes complexes requiert le calcul d'éléments de matrice du type:

$$I \equiv \langle S_{n_1, l_1}^{\kappa_{c1}} | \Theta | S_{n_2, l_2}^{\kappa_{c2}} \rangle \equiv \int_0^\infty dr S_{n_1, l_1}^{\kappa_{c1}} \Theta S_{n_2, l_2}^{\kappa_{c2}}, \quad (4.10)$$

κ_{c1} et κ_{c2} sont des paramètres complexes et Θ est une fonction de r . Si nous souhaitons par exemple calculer la matrice de recouvrement, $\Theta = 1$. Ces intégrales s'évaluent en remplaçant $\langle S_{n_1, l_1}^{\kappa_{c1}} |$ par son développement sur un ensemble de fonctions $\langle S_{j, l_1}^{\kappa_{c2}} |$:

$$\langle S_{n_1, l_1}^{\kappa_{c1}} | = \sum_j a_j \langle S_{j, l_1}^{\kappa_{c2}} |. \quad (4.11)$$

Les valeurs des coefficients a_j , s'obtiennent en multipliant à droite l'équation (4.11) par $\frac{1}{r} |S_{j, l_1}^{\kappa_{c2}} \rangle$. On trouve alors que:

$$a_j = \frac{j}{\kappa_{c2}} \langle S_{n_1, l_1}^{\kappa_{c1}} | \frac{1}{r} | S_{j, l_1}^{\kappa_{c2}} \rangle. \quad (4.12)$$

L'intégrale I devient alors:

$$I = \sum_j \frac{j}{\kappa_{c2}} \langle S_{n_1, l_1}^{\kappa_{c1}} | \frac{1}{r} | S_{j, l_1}^{\kappa_{c2}} \rangle \langle S_{j, l_1}^{\kappa_{c2}} | \Theta | S_{n_2, l_2}^{\kappa_{c2}} \rangle. \quad (4.13)$$

Le calcul de l'intégrale (4.10) s'est transformé en la somme d'un produit de deux intégrales. L'intégrale du second terme du produit est simple à calculer car les fonctions sturmiennes ont le même paramètre: on peut utiliser les résultats obtenus dans l'appendice B. La première intégrale du produit est la seule que nous ayons à calculer avec deux paramètres différents, elle vaut:

$$\begin{aligned} \langle S_{n_1, l_1}^{\kappa_{c1}} | \frac{1}{r} | S_{j, l_1}^{\kappa_{c2}} \rangle &= N_{n_1, l_1}^{\kappa_{c1}} N_{j, l_1}^{\kappa_{c2}} (2l+1)! (-1)^{n_1 - l_1 - 1} \left(\frac{\kappa_{c1} - \kappa_{c2}}{\kappa_{c1} + \kappa_{c2}} \right)^{n_1 + j} \left(\frac{1}{\kappa_{c1} - \kappa_{c2}} \right)^{2l_1 + 2} \\ &\quad \times {}_2F_1 \left(-n_1 + l_1 + 1, -j + l_1 + 1; 2l_1 + 2; -\frac{4\kappa_{c1}\kappa_{c2}}{(\kappa_{c1} - \kappa_{c2})^2} \right). \end{aligned} \quad (4.14)$$

Chapitre 5

Calcul des observables

La plupart des simulations numériques de ce travail se font en propageant dans le temps la fonction d'onde totale du système développée dans la base sturmiennne. Après cette propagation, la solution $\Psi(\mathbf{r}, t = t_{final})$ est projetée dans la base atomique. Il est possible de calculer à partir de la fonction d'onde toute une série d'observables. Citons par exemple; la densité de probabilité radiale du système, la probabilité d'ionisation, le spectre en énergie et la distribution angulaire des électrons émis (qui est très sensible à la distribution spatiale du champ laser), ainsi que le spectre des harmoniques.

1 Densité de probabilité radiale

La densité de probabilité radiale $\mathcal{P}(r)$ est donnée par

$$\mathcal{P}(r) = \int d\Omega |\Psi(\mathbf{r}, t)|^2. \quad (5.1)$$

On peut aussi représenter la densité de probabilité dans un plan au choix (2 dimensions). Rappelons que la polarisation est linéaire (nous prenons comme axe de polarisation, l'axe OZ) et que par conséquent, le système possède une symétrie cylindrique. La figure (5.1) représente la densité de probabilité des états liés dans le plan Oxz pour une simulation où l'intensité maximale du champ laser est de $4.10^{15} \text{ W cm}^{-2}$, sa fréquence 3.32 eV, sa largeur à mi-hauteur de 100 cycles. La fonction d'onde est développée sur 500 fonctions sturmiennes par moment angulaire, nous considérons 7 moments angulaires et l'état initial est l'état $|2s\rangle$.

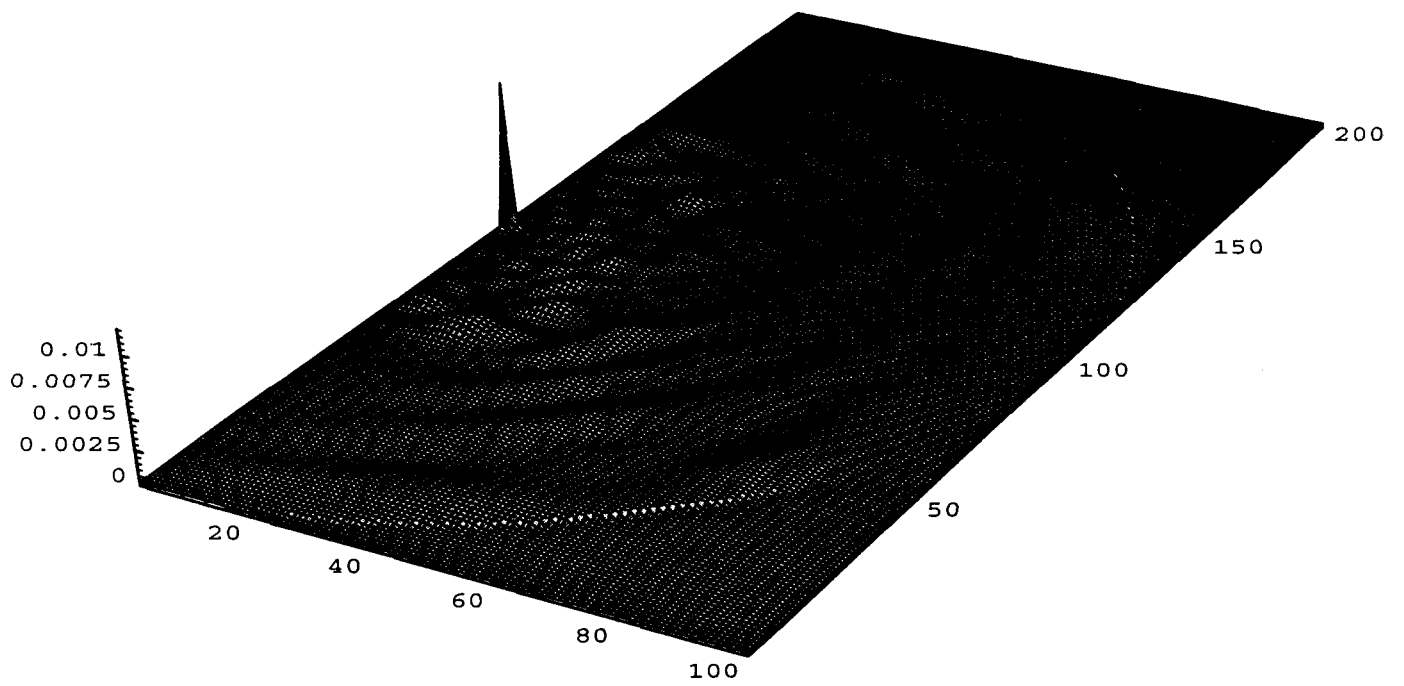


Figure 5.1 Densité de probabilité dans le plan Oxz pour une simulation où: $I = 4.10^{15} \text{ W cm}^{-2}$, $\omega = 3.32 \text{ eV}$, $FWHM$ (la largeur à mi-hauteur de l'impulsion) = 100 cycles et l'état initial est l'état $|2s\rangle$.

2 Spectre en énergie

$\Psi(\mathbf{r}, t = t_{final})$ dans la base atomique nous donne les amplitudes de probabilité $b_{E,l}$ pour les états représentés par la base (cfr chapitre 2 pour le passage de la base atomique à la base sturmiennne). L'interprétation donnée à $|b_{E,l}|^2$ est différente suivant que E est négatif ou positif :

- Pour $E < 0$, $|b_{E,l}|^2$ est la probabilité pour le système de se trouver dans l'état d'énergie E et de moment angulaire l .
- Pour $E > 0$, si E_i et E_{i+1} sont deux énergies consécutives, $|b_{E_{i+1},l}|^2$ représente la probabilité pour le système de se trouver dans un état du continuum de moment angulaire l et d'énergie E comprise entre E_i et E_{i+1} . Le spectre en énergie de l'électron $P(E)$ qui est une densité de probabilité est calculé comme suit :

$$P(E) = \frac{|b_{E_{i+1},l}|^2}{E_{i+1} - E_i}, \quad E_i < E \leq E_{i+1}. \quad (5.2)$$

La résolution de $P(E)$ diminue lorsque E augmente; nous le voyons à la figure (5.2) pour une simulation où l'intensité maximale du champ laser est de $2 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$, sa fréquence 3.21 eV, sa largeur à mi-hauteur de 20 cycles. La fonction d'onde est développée sur 600 fonctions sturmiennes par moment angulaire, nous considérons 10 moments angulaires et l'état initial est l'état $|2s\rangle$. Ceci s'explique par la diminution de la densité du nombre d'états du continuum décrits dans la base choisie pour des énergies croissantes (chapitre 2).

3 Probabilité d'ionisation

Si l'on utilise une base de fonctions réelles, la probabilité d'ionisation $P_{\text{ionisation}}$ est indifféremment donnée par

$$P_{\text{ionisation}} = P(E > 0) = \sum_{E>0,l} |b_{E,l}|^2 \quad (5.3)$$

ou

$$P_{\text{ionisation}} = 1 - P(E < 0) = 1 - \sum_{E<0,l} |b_{E,l}|^2 \quad (5.4)$$

car la norme de la fonction d'onde est conservée. Par contre, avec une base de fonctions complexes, $P_{\text{ionisation}}$ doit se calculer à l'aide de la formule (5.4) (cfr chapitre 4).

4 Génération des harmoniques

La méthode généralement utilisée pour le calcul du spectre est de prendre simplement le module au carré de la transformée de Fourier de la valeur du dipôle. Cela est facile à

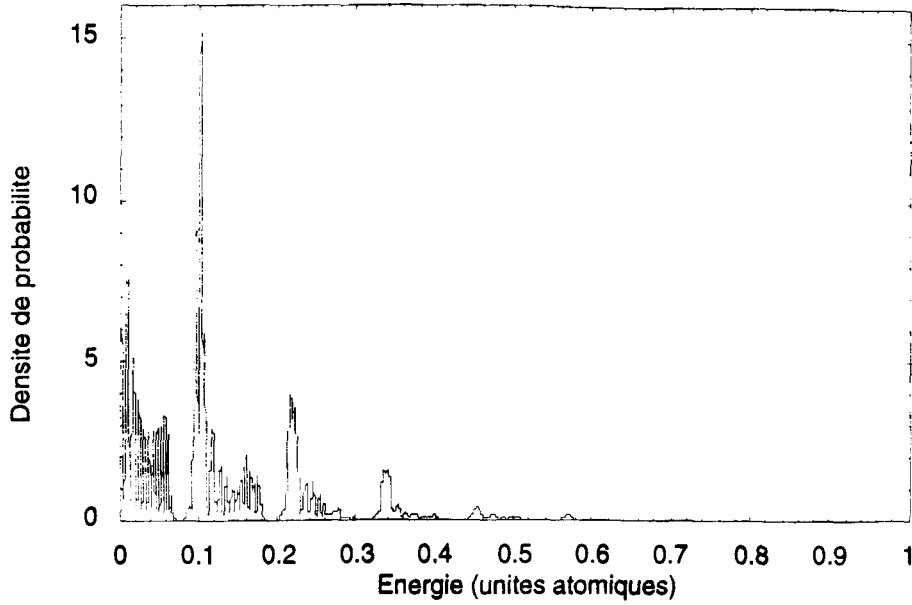


Figure 5.2 Spectre en énergie des électrons émis pour une simulation où l'intensité maximale du champ laser est de $2.10^{14} \text{ W cm}^{-2}$. La fonction d'onde est développée sur 600 fonctions sturmiennes par moment angulaire, nous considérons 10 moments angulaires et l'état initial est l'état $|2s\rangle$.

calculer:

$$|D(\omega)|^2 = \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int dt e^{-i\omega t} \langle \Psi | e \mathbf{r} | \Psi \rangle \right|^2. \quad (5.5)$$

Toutefois, la puissance P émise par un dipôle dans toutes les directions est donnée par [Sun90]:

$$P = \frac{2e^2}{3c^3} \left\langle \frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} \right\rangle^2. \quad (5.6)$$

On compense habituellement le fait de prendre le dipôle plutôt que son accélération en multipliant le spectre des harmoniques émises par un facteur ω^4 . Sundaram et Milonni [Sun90] ont montré que cela n'était pas rigoureusement correct car il est possible qu'à la fin de l'impulsion le dipôle et sa dérivée ne soient pas nuls (par exemple, quand l'ionisation de l'atome est importante, le moment dipolaire final, $d(t_f)$ est important). On remarque clairement l'influence de ces termes en examinant la relation entre la transformée de Fourier $A(\omega)$ de l'accélération et la transformée de Fourier du dipôle :

$$\begin{aligned} A(\omega) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int dt e^{-i\omega t} \ddot{d}(t) \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \{ e^{-i\omega t_f} \dot{d}(t_f) + i\omega e^{-i\omega t_f} d(t_f) - \omega^2 \int dt e^{-i\omega t} d(t) \}. \end{aligned} \quad (5.7)$$

La dernière intégrale représente ce qui est calculé habituellement : les deux premiers représentent les corrections à apporter à cette méthode. Ces expressions ne sont toutefois

pas commodes à évaluer ; en utilisant le théorème d'Ehrenfest on simplifie fortement le problème [Bur92]. Dans le cas d'une polarisation linéaire:

$$\begin{aligned}
 \frac{d}{dt}\langle \mathbf{p}_z \rangle &= \frac{d}{dt}\langle \mathbf{v}_z - \vec{\mathbf{A}}_z(t) \rangle \\
 &= \frac{d}{dt}\langle \mathbf{v}_z \rangle - \frac{d}{dt}A(t) \\
 &= -\langle \vec{\nabla}_z V(r) \rangle
 \end{aligned} \tag{5.8}$$

où $V(r)$ est le potentiel coulombien ($-1/r$). Par conséquent, on déduit de (5.8) que:

$$\begin{aligned}
 \ddot{d}(t) &= \frac{d_z^2}{dt^2}\langle \mathbf{r}_z \rangle = \frac{d}{dt}\langle \mathbf{v}_z \rangle \\
 &= -\langle \vec{\nabla}_z V(r) \rangle + \frac{d}{dt}A(t) \\
 &= \langle \frac{\cos \theta}{r^2} \rangle - E(t) \\
 &= \langle \Psi(t) | \frac{\cos \theta}{r^2} | \Psi(t) \rangle - E(t),
 \end{aligned} \tag{5.9}$$

avec $\vec{\mathbf{E}}(t)$, le champ électrique (chapitre 1). Pour illustrer ceci, nous présentons à la figure (5.3) $\ddot{d}(t)$ et à la figure (5.4) $|A(w)|^2$ pour l'interaction suivante : l'intensité atteint son maximum (10^{14}W/cm^2) en 4 cycles ($\sin^2$), elle reste constante pendant 16 cycles et redevient nulle en 4 cycles. L'état initial est l'état $|1s\rangle$, la polarisation est linéaire et l'énergie des photons est de 1.28 eV. Signalons qu'une analyse en ondelettes de $\ddot{d}(t)$ permet d'obtenir une information temporelle: le moment où chacune des harmoniques est émise [Ant95a][Ant95b] [Tai95][Ant96].

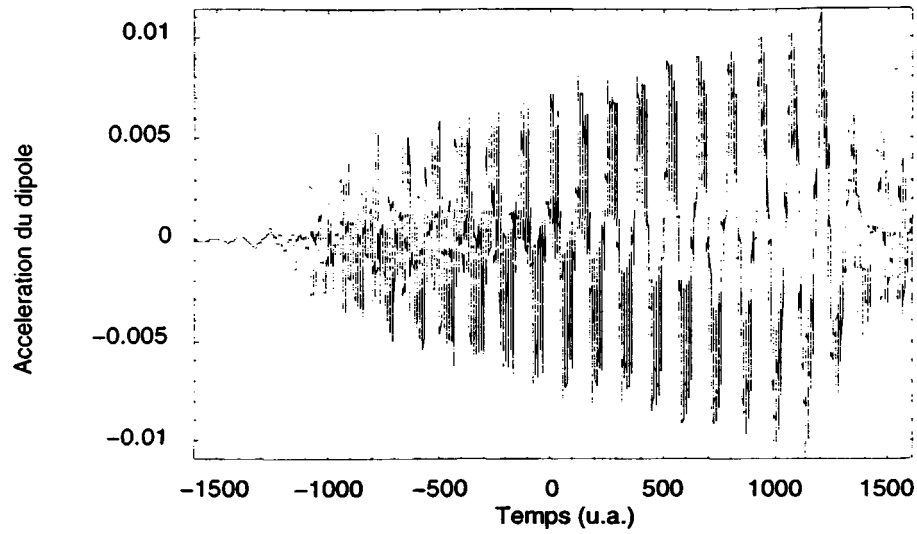


Figure 5.3 Accélération du dipôle: $\ddot{d}(t)$. Dans ce cas, l'intensité atteint son maximum (10^{14} W/cm^2) en 4 cycles ($\sin^2$), elle reste constante pendant 16 cycles et redevient nulle en 4 cycles. L'état initial est l'état $|1s\rangle$, la polarisation est linéaire et l'énergie des photons est de 1.28 eV.

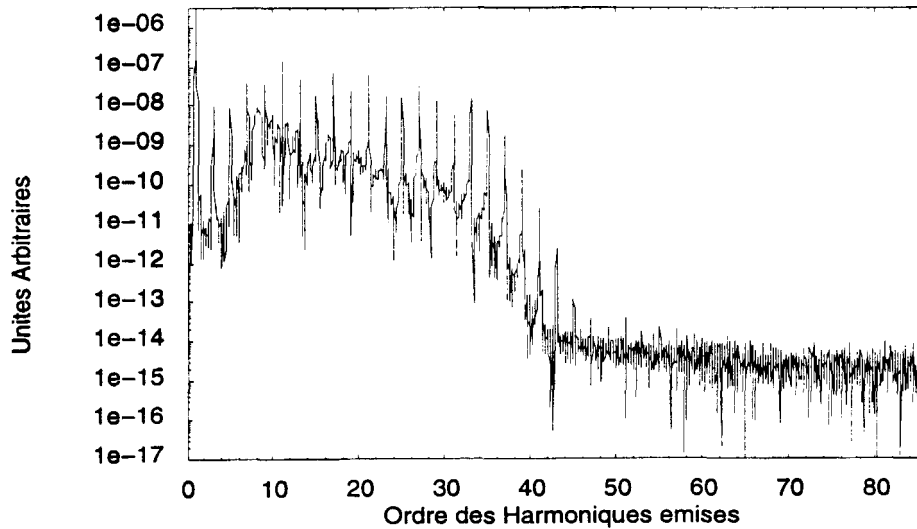


Figure 5.4 $|A(w)|^2$. Spectre des harmoniques émises. Même simulation que celle de la figure 5.4.

BIBLIOTHEQUE
1348 L
UNIVERSITE DE LILLE
FACULTE DE SCIENCES
CHIMIE
1984

Partie II

Stabilisation de l'hydrogène atomique en champ laser intense

Chapitre 6

En route vers la stabilisation

Dans ce travail, nous étudions certains aspects du comportement d'atomes dans des champs de lumière intense de basses et moyennes fréquences. Nous nous sommes intéressés en particulier à un système très simple: l'atome d'hydrogène. Actuellement, on produit en laboratoire des intensités de l'ordre de $10^{18} \text{ W cm}^{-2}$. On entre donc dans un régime d'intensité qui se situe bien au-delà de $I_0 = 3.5110^{16} \text{ Wcm}^{-2}$ qui est l'intensité correspondant à celle d'un champ électrique de une unité atomique en polarisation linéaire¹.

Ces champs très intenses génèrent une série des nouveaux phénomènes qui n'avaient jamais été rencontrés auparavant. Citons notamment l'ionisation multiphotonique (MPI), l'ionisation au-dessus du seuil (ATI), la génération des harmoniques et la stabilisation. Cette dernière fait l'objet des deux chapitres suivants.

Ce chapitre est une introduction à l'ionisation multiphotonique des atomes en champ laser intense. Nous y discutons brièvement les phénomènes MPI et ATI.

¹Un champ électrique de une unité atomique correspond au champ électrostatique moyen créé par le noyau ressenti par un électron sur la première orbite de Bohr de l'atome d'hydrogène. Le champ électrique moyen ressenti par un électron dans un état de nombre quantique principal n est de l'ordre de:

$$E \cong \frac{|e|}{4\pi\epsilon_0 a_0^2} \frac{1}{n^4}$$

où a_0 est le rayon de Bohr. Pour un électron dans l'état $|1s\rangle$, le champ moyen est environ $5 \cdot 10^9 \text{ V cm}^{-1}$, ce qui correspond à une intensité de $3.5 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ et pour un électron dans l'état $|2s\rangle$, le champ est environ $3 \cdot 10^8 \text{ V cm}^{-1}$, ce qui correspond à une intensité de $1.4 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$. Signalons que si le champ électrique est exprimé en V cm^{-1} , l'intensité de ce champ en W cm^{-2} est donnée par:

$$I = 1.33 \cdot 10^{-3} E^2.$$

1 L'ionisation multiphotonique (MPI)

La photoionisation se produit quand un atome absorbe un photon et émet un électron. L'énergie de l'électron émis (figure 6.1) est donnée par:

$$E_e = \hbar\omega - E_i \quad (6.1)$$

où $\hbar\omega$ est l'énergie du photon et E_i , le potentiel d'ionisation. Cette équation a été proposée en 1905 par Einstein [Ein05]. Elle expliquait pourquoi l'ionisation n'apparaissait que pour des fréquences au-dessus d'un certain seuil et ce, indépendamment de l'intensité de la source lumineuse.

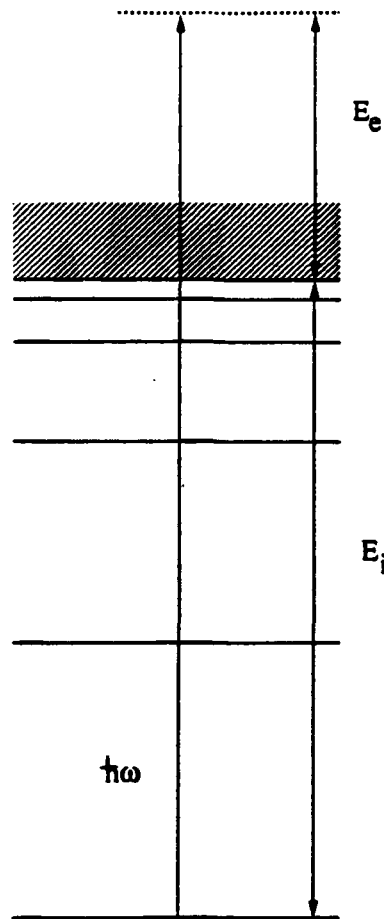


Figure 6.1 Représentation schématique de l'effet photoélectrique

Si des transitions mettant en jeu plusieurs photons ont été prédites par Göppert-Mayer [Gop31] dès 1931, ce n'est qu'avec l'apparition du laser en 1960 que l'on a pu les observer expérimentalement. C'est en 1965 que Voronov et Delone [Vor65] observent pour

la première fois l'ionisation multiphotonique. Ils ionisèrent des atomes de Xénon dans l'état fondamental ($E_i = 12.13$ eV) avec un laser rubis ($\hbar\omega = 1.78$ eV).

L'ionisation multiphotonique est simplement l'effet photoélectrique non-linéaire. A condition d'avoir une intensité lumineuse suffisante, un atome peut absorber plusieurs photons pour être ionisé. La figure 6.2 illustre un tel processus. La loi de conservation de l'énergie se réécrit simplement:

$$E_e = N \hbar\omega - E_i \quad (6.2)$$

où N représente le nombre de photons absorbés. Il s'agit d'une généralisation immédiate de la loi d'Einstein (6.1). Les expériences concernant l'ionisation multiphotonique mesurent le rendement total de l'ionisation par la détection des ions.

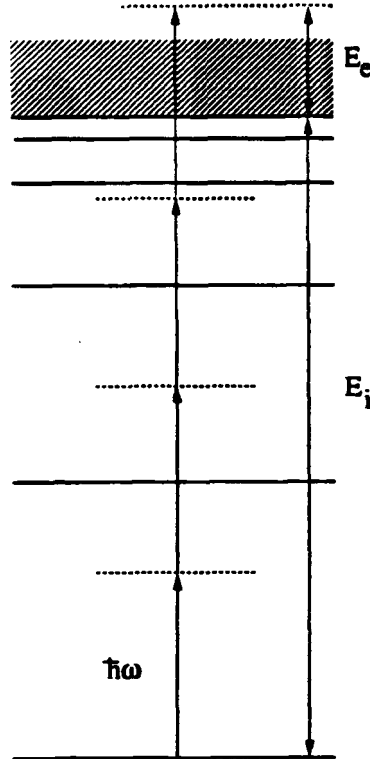


Figure 6.2 Représentation schématique de l'ionisation multiphotonique.

On peut montrer, en utilisant la théorie des perturbations à l'ordre N , que la règle d'or de Fermi généralisée à l'absorption de N photons, donne en première approximation un taux d'ionisation w_N :

$$w_N = \frac{2\pi}{\hbar} \left(\frac{2e^2}{\epsilon_0 c} \right)^N I^N \sum_c \left| \sum_{i,j,\dots,k} \frac{\langle g|z|i \rangle \langle i|z|j \rangle \dots \langle k|z|c \rangle}{(E_g + \hbar\omega - E_i)(E_g + 2\hbar\omega - E_j) \dots} \right|^2, \quad (6.3)$$

où $|i\rangle, |j\rangle, \dots, |k\rangle$ sont les états atomiques (liés et du continuum), I l'intensité et $|c\rangle$ l'état du continuum d'énergie $E_g + N\hbar\omega$, E_g étant l'énergie de l'état fondamental $|g\rangle$. En introduisant F , le flux de photons ($F = I/\hbar\omega$), on définit une section efficace généralisée σ_N :

$$\sigma_N = w_N / F^N. \quad (6.4)$$

La figure 6.3 représente la section efficace généralisée de l'ionisation de H(2s) par l'absorption de 2 photons en fonction de la longueur d'onde². Le calcul des éléments de matrice entre états du continuum $\langle k|z|k'\rangle$ diverge quand $k \rightarrow k'$. La somme sur les états intermédiaires dans l'expression (6.3) se fait alors en utilisant des techniques spéciales: représentation sturmienne de la fonction de Green coulombienne [Maq77], techniques variationnelles [Gao88] ou encore par la résolution successive d'équations différentielles inhomogènes [Dal55].

Un nombre important d'expériences ont vérifié la dépendance du taux d'ionisation en fonction de la puissance $N^{\text{ième}}$ de l'intensité du champ. Sur un graphe log-log, la relation:

$$\log w_N = N \log I + \text{const.} \quad (6.5)$$

montre que des droites de pentes N sont attendues. Ce type de résultat a été obtenu pour beaucoup d'atomes avec des N variant de 5 à 20. Nous présentons à la figure 6.4 l'ionisation du Xe, du Kr et de l'Ar par 11, 13 et 14 photons [Lom77].

La théorie des perturbations à l'ordre le plus bas, n'est valable que si le champ laser est réellement une perturbation du champ atomique. Si on pose $\hbar\tilde{\omega}$, l'écart à la résonance moyen:

$$E_i + \hbar\omega - E_k \sim \hbar\tilde{\omega}, \quad \text{pour tout } k \quad (6.6)$$

et $\tilde{\mu}$, le moment dipolaire moyen:

$$\langle i|z|k\rangle \sim \tilde{\mu}, \quad \text{pour tout } i, k, \quad (6.7)$$

on montre [Beb66] que la théorie des perturbations à l'ordre le plus bas donne des résultats divergents quand:

$$\frac{\tilde{\mu}E_0}{\hbar\tilde{\omega}} \sim 1, \quad (6.8)$$

où E_0 est l'amplitude du champ électrique. Il n'est pas possible d'évaluer $\tilde{\omega}$ et $\tilde{\mu}$ précisément mais on peut en donner un ordre de grandeur. Pour un atome typique, $\hbar\tilde{\omega}$ est de l'ordre de l'eV ($\sim 1/10$ u.a.) et $\tilde{\mu}$ est de l'ordre de 10 u.a.; par conséquent la théorie diverge quand:

$$E_0 \sim 10^{-2} \text{ u.a. de champ, i.e. } I \sim 10^{12} \text{ W cm}^{-2}. \quad (6.9)$$

Quand une résonance devient possible, il y a un écart à la loi donnée par l'équation (6.3). On définit l'ordre effectif d'un processus par la relation:

$$K = \frac{\partial \log w_N}{\partial \log I}. \quad (6.10)$$

²Si la longueur d'onde est exprimée en Angström, l'énergie des photons en eV est donnée par:

$$E = 1.24 \cdot 10^4 / \lambda.$$

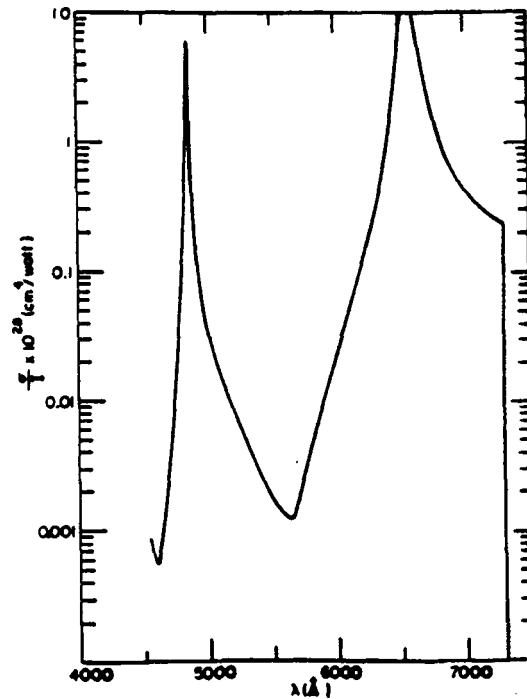


Figure 6.3 Section efficace généralisée de l'hydrogène atomique dans l'état $2s$ par absorption de 2 photons en fonction de la longueur d'onde de la lumière. Les singularités pour $\lambda = 4860$ et 6560 Å correspondent respectivement à des transitions résonnantes avec les états $4p$ et $3p$. Dans ce cas la section efficace est infinie (cfr équation 6.3) [Zer64].

Près d'une résonnance, K peut être fort différent de N (on peut observer des écarts jusqu'à un ordre de grandeur). En faisant varier la fréquence du laser pour passer à travers une résonnance, on obtient un comportement semblable à celui observé à la figure 6.5 [Pet79].

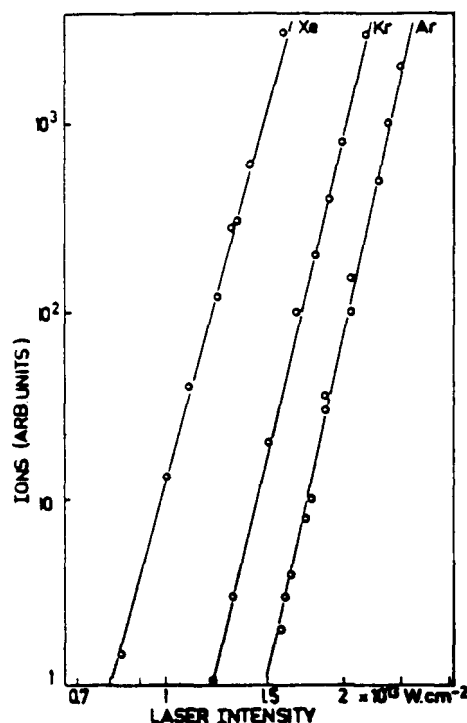


Figure 6.4 Ionisation multiphotonique du Xe, du Kr et de l'Ar. Les pentes sont égales au nombre de photons absorbés pour l'ionisation, soit 11 pour le Xe, 12 pour le Kr et 14 pour l'Ar [Lom77].

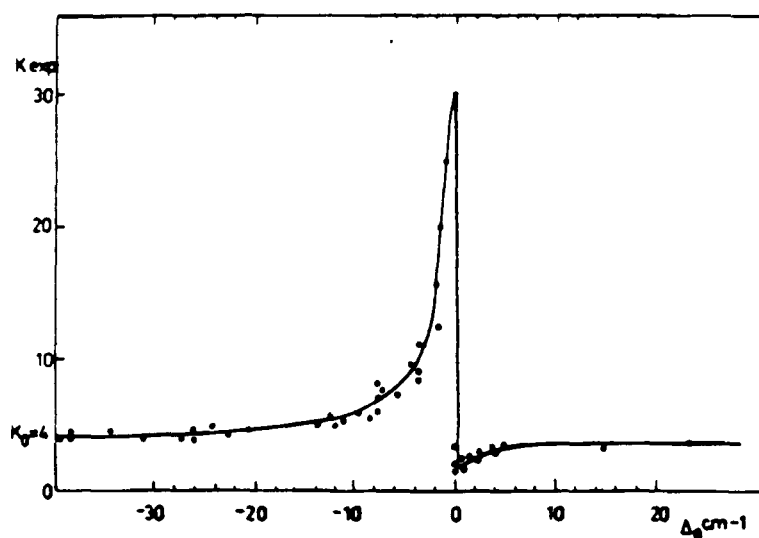


Figure 6.5 Variation de l'ordre effectif de l'ionisation à 4 photons du césium en fonction de l'écart à la résonance à 3 photons [Pet79].

Tout écart à la dépendance en fonction de l'intensité définie par la relation (6.3) ne doit pas être interprété comme une non-validité de cette relation. Il peut aussi traduire un effet de saturation qui apparaît lorsque la probabilité d'ionisation approche l'unité au cœur du faisceau laser. La figure 6.6 en est un exemple.

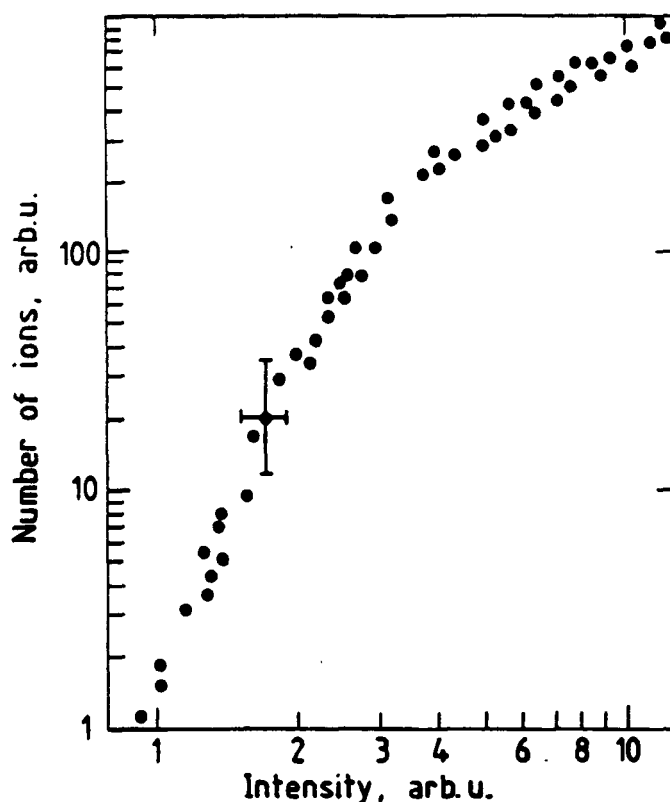


Figure 6.6 Saturation du signal d'ionisation du Na par absorption de 5 photons[Ars77].

Signalons aussi que le taux d'ionisation donné par l'équation (6.3) n'est correct que si la lumière est cohérente temporellement. Si ce n'est pas le cas, le taux doit être corrigé par un facteur $N!$ [Lec75]. L'importance de ce terme correctif est illustrée à la figure 6.7, dans le cas de l'ionisation du césium par 4 photons [Lom81].

2 Ionisation au-dessus du seuil (ATI)

Les premières études du spectre en énergie des électrons émis lors de l'ionisation multiphotonique des atomes produisent un résultat inattendu: les énergies cinétiques mesurées des atomes peuvent être plus grandes que celles données par l'équation (6.2). Les spectres en énergie se présentent comme une succession de pics espacés de l'énergie d'un photon

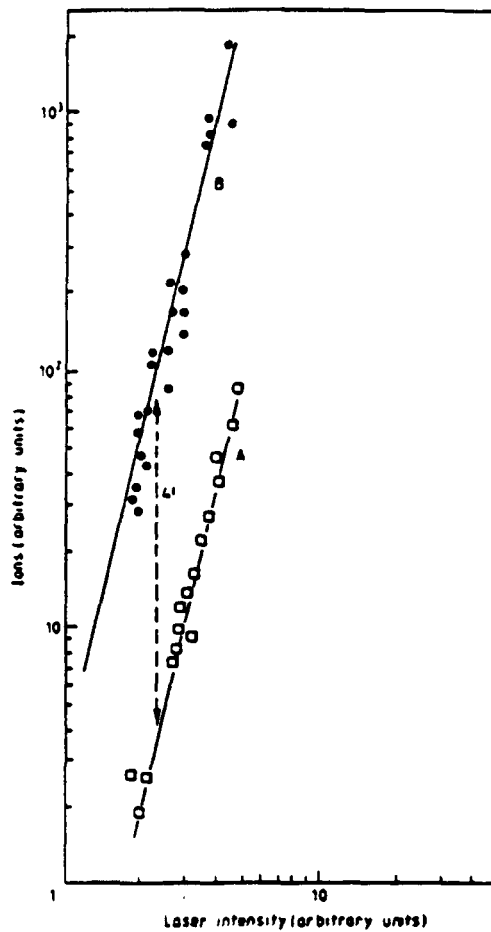


Figure 6.7 Comparaison du rendement de l'ionisation multiphotonique par des impulsions temporellement cohérentes (A) et incohérentes (B) (largeur spectrale = 3 GHz), dans le cas de l'ionisation de césium par absorption de 4 photons [Lom81].

(figure 6.8). Ils montrent la possibilité pour un atome d'absorber un nombre de photons supérieur au nombre minimal pour qu'il s'ionise. Ce processus, schématisé à la figure 6.9, est appelé ionisation au-dessus du seuil (Above Threshold Ionisation, ATI). L'amplitude des pics de l'ATI dépend de la longueur et de l'intensité de l'impulsion avec laquelle l'atome interagit.

A basse intensité, la dépendance de l'amplitude des pics en fonction de l'intensité du champ laser est prédite par un calcul perturbatif [Pet84]: le rapport de branchement de deux pics consécutifs (w_{n+1}/w_n) varie linéairement avec l'intensité I . A haute intensité, des électrons de plus haute énergie sont produits, mais des effets de saturation apparaissent: on l'observe à la figure 6.10. Le rapport de branchement de deux pics consécutifs sature.

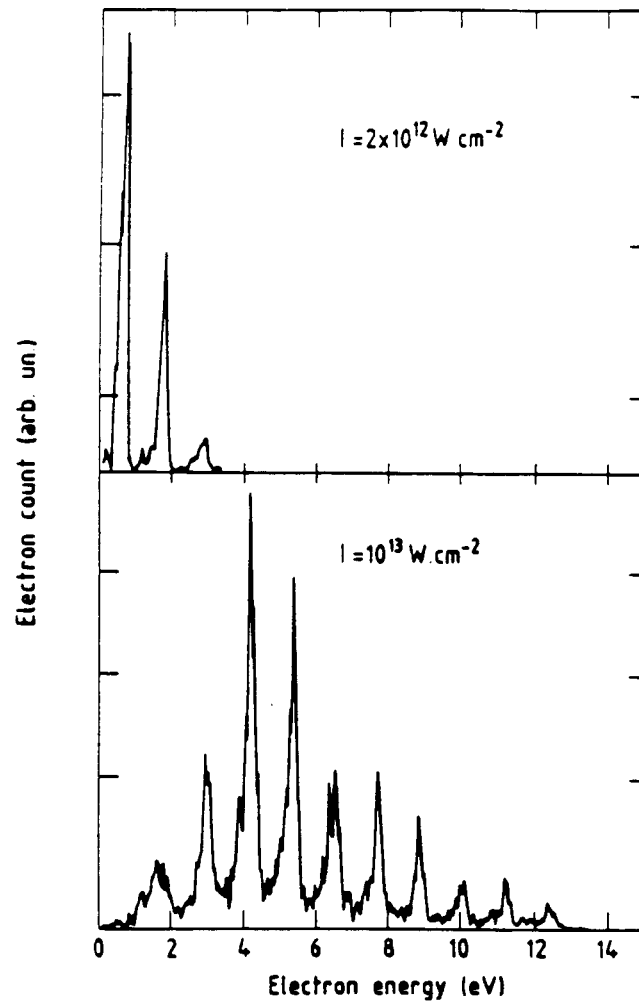


Figure 6.8 Spectre en énergie des électrons émis lors de l'ionisation du xénon [Pet88].

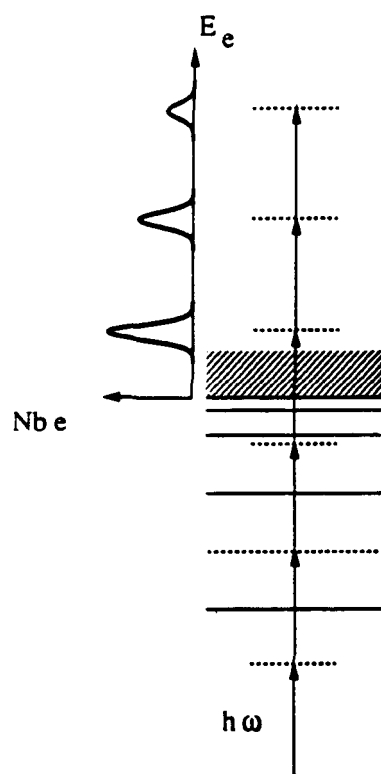


Figure 6.9 *Représentation schématique des processus ATI.*

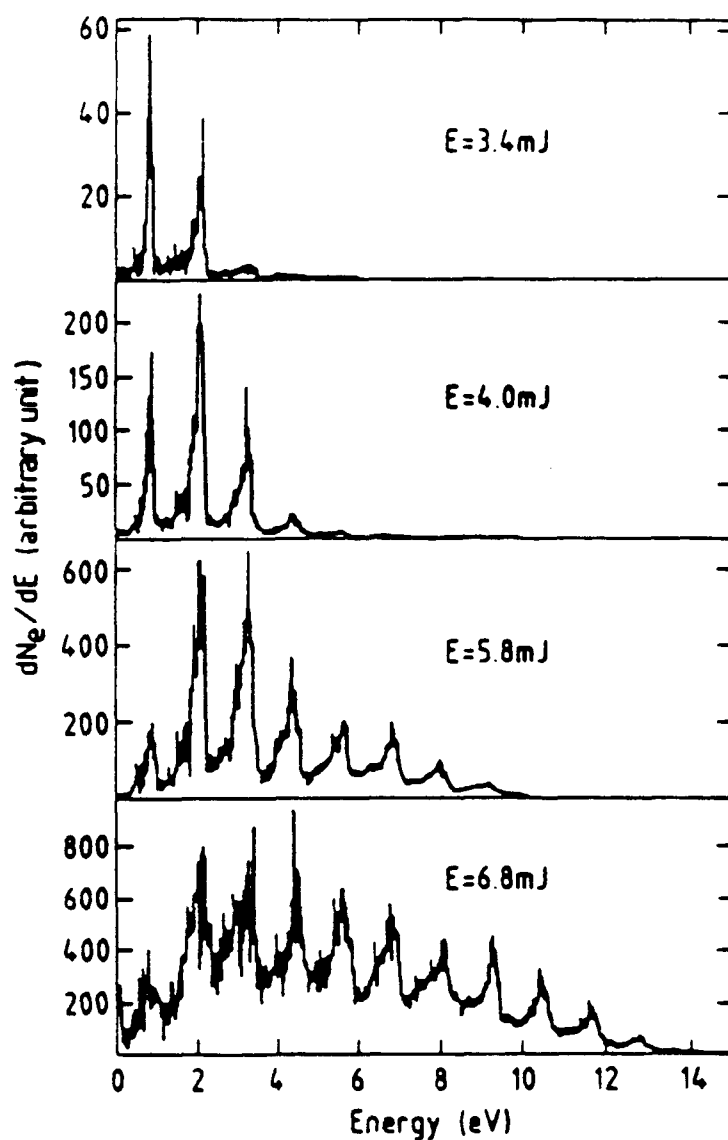


Figure 6.10 Spectre en énergie des électrons émis lors de l'ATI. Quand l'intensité croît, des pics de plus haute énergie apparaissent et les pics de basse énergie décroissent (saturation) [Yer86].

A intensité élevée, la détection des électrons a permis la mise en évidence de deux effets non-perturbatifs plus spectaculaires, liés à l'effet Stark dynamique.

Le premier est la "suppression" des premiers pics. La figure 6.8b en est un exemple. En présence d'un champ extérieur, le niveau fondamental est déplacé très faiblement vers le bas et les niveaux de Rydberg sont fortement déplacés vers le haut. Ce déplacement est à peu près égal à l'énergie cinétique moyenne d'oscillation de l'électron dans le champ laser, connue sous le nom d'énergie "pondéromotrice" U_p :

$$U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2} \quad (6.11)$$

où E_0 est l'amplitude du champ électrique oscillant. Il en résulte une augmentation du potentiel d'ionisation qui peut être suffisante pour rendre impossible l'ionisation par l'absorption de N photons. L'absorption d'un ou de plusieurs photons supplémentaires est alors nécessaire (figure 6.11a). Cela se traduit par une disparition des premiers pics dans le spectre des photoélectrons car l'énergie cinétique d'oscillation des électrons peut, comme nous le voyons dans la suite, se transformer en énergie cinétique de translation. Cela a pour effet une translation du spectre des photoélectrons vers des énergies plus élevées; ce qui donne cette impression de disparition. En réalité, ils ne disparaissent pas complètement puisque l'intensité lumineuse n'est généralement pas constante sur toute la distribution spatiale de l'impulsion.

Une fois l'atome ionisé, l'énergie totale de l'électron est composée d'énergie de translation et d'énergie cinétique d'oscillation. Mais cette dernière varie à mesure que l'électron s'éloigne de l'endroit où il est produit, pour s'annuler lorsqu'il a quitté le faisceau lumineux. L'énergie pondéromotrice se transforme en énergie cinétique de translation, de sorte qu'à l'arrivée sur le détecteur, l'électron retrouve l'énergie que l'on trouve en ignorant l'effet du potentiel pondéromoteur. Une telle situation est décrite à la figure 6.11b, la position des pics du spectre des photoélectrons reste inchangée.

Cette conversion de l'énergie cinétique d'oscillation de l'électron en énergie cinétique de translation est effective pour autant que l'impulsion laser ne se modifie pas durant le temps nécessaire à l'électron pour sortir de la région d'interaction. Cela n'est vrai que pour les impulsions longues. Par contre, avec des impulsions très courtes, l'impulsion disparaît avant que l'électron n'ait le temps de sortir du faisceau. L'énergie pondéromotrice n'est pas récupérée sous forme d'énergie cinétique. L'énergie cinétique finale est simplement égale à l'énergie cinétique de l'électron au moment où il est éjecté de l'atome.

Entre ces deux situations extrêmes, où toute l'énergie pondéromotrice est soit perdue, soit totalement convertie en énergie cinétique de translation, il existe une gamme de durées d'impulsions intermédiaires telle que seule une partie de U_p est convertie en énergie cinétique. La réduction de la durée de l'impulsion se traduit par un déplacement des pics. Ce déplacement est illustré à la figure 6.12.

Le deuxième effet découvert avec des impulsions d'intensité élevée (pour des raisons expérimentales, ces impulsions sont très courtes: inférieures à la picoseconde) est dû à des résonances multiphotoniques transitoires avec des états déplacés par effet Stark dynamique pendant l'impulsion laser elle-même (figure 6.13). Il s'agit de la combinaison de

l'augmentation du potentiel d'ionisation et d'une augmentation du taux d'ionisation due à la présence de résonances temporaires. Chacun des différents états est en résonance pour une intensité spécifique à un moment de l'impulsion. A cette intensité spécifique correspond un potentiel d'ionisation spécifique, il en résulte une structure dans le spectre des photoélectrons. La figure 6.14 est un exemple de ce type de structure. Elle n'est visible qu'avec des impulsions suffisamment courtes, lorsque l'énergie cinétique n'est pas modifiée par le potentiel pondéromoteur.

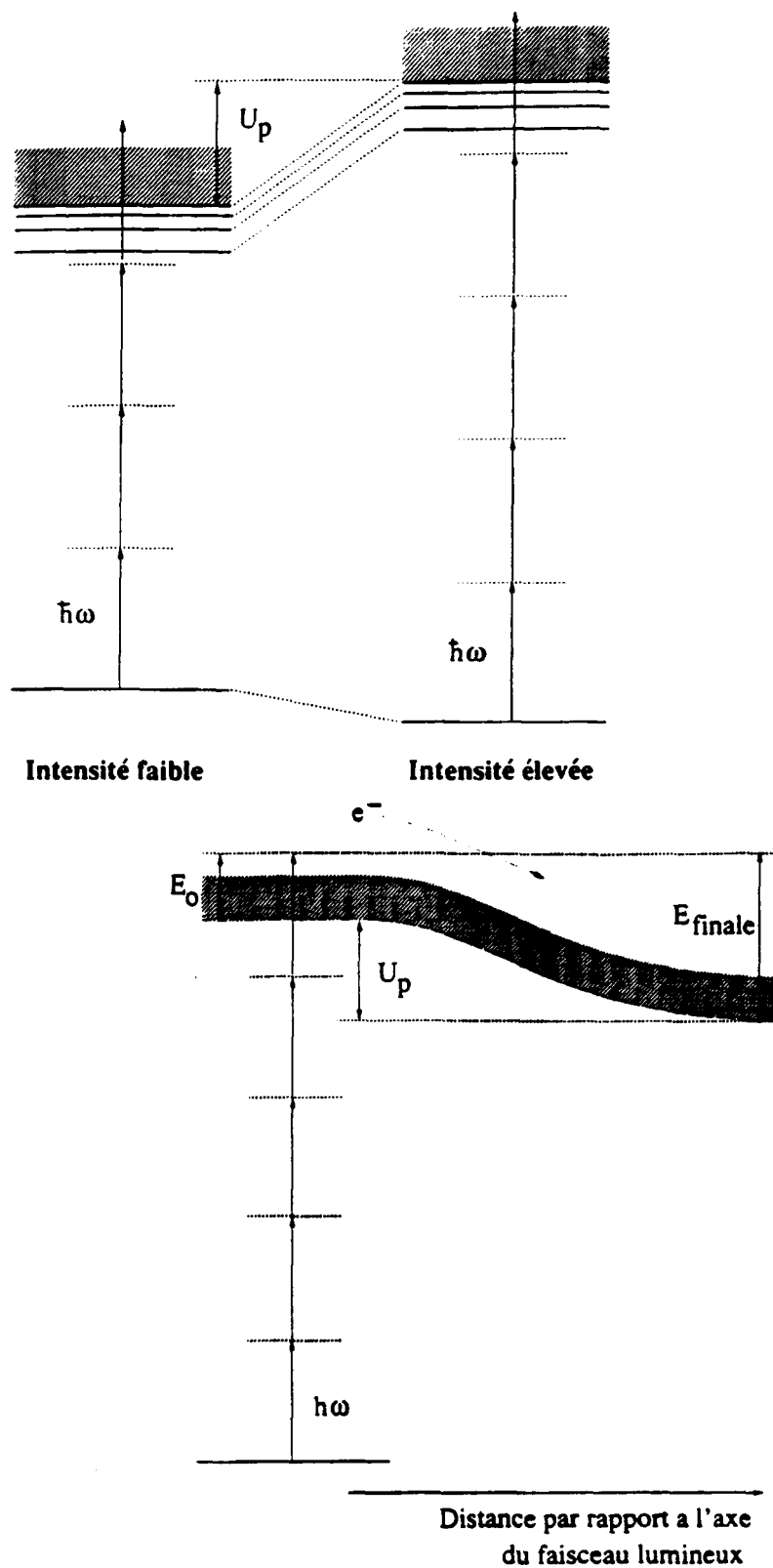


Figure 6.11 (a) Représentation schématique de l'augmentation du potentiel d'ionisation. (b) Représentation schématique de l'accélération des électrons éjectés par le potentiel pondéromoteur lors de leur sortie du faisceau laser. L'impulsion est supposée constante tant que l'électron est soumis à l'effet du potentiel pondéromoteur.

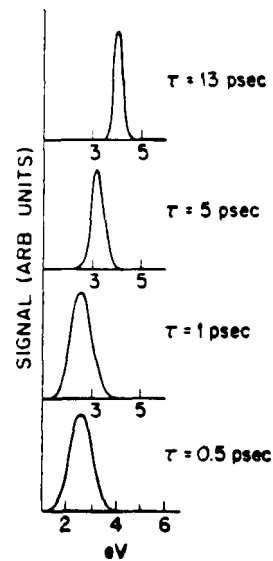


Figure 6.12 Représentation schématique de l'influence de la durée de l'impulsion sur l'énergie cinétique finale des électrons.

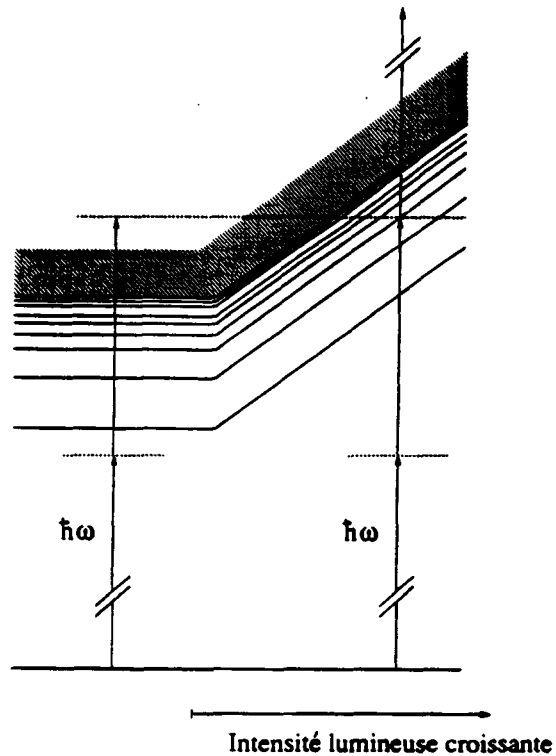


Figure 6.13 Représentation schématique des résonances multiphotoniques dues à des transitions avec des états intermédiaires déplacés par effet Stark dynamique.

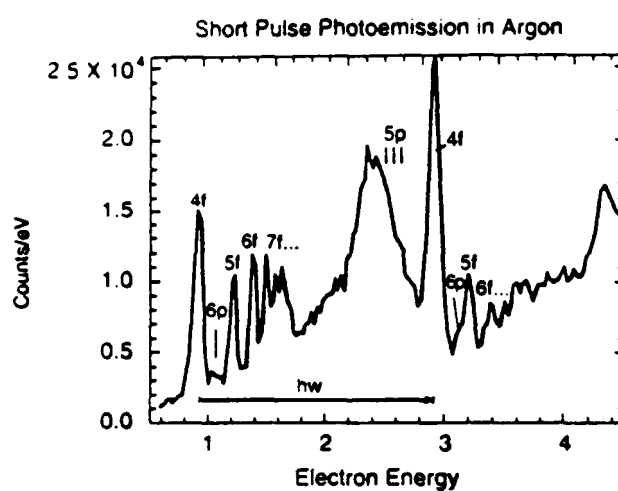


Figure 6.14 Spectre en énergie des photoélectrons correspondant à l'ionisation de l'Argon par une impulsion courte (2 ps) ($I = 7 \cdot 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$) [Fre92].

Chapitre 7

Stabilisation adiabatique

Sous certaines conditions, quand l'intensité du champ avec lequel interagit l'atome dépasse un certain seuil, le taux d'ionisation ne suit plus la règle d'or de Fermi, mais décroît quand l'intensité croît. Ce phénomène est appelé stabilisation. On distingue d'une part, la stabilisation dynamique que nous décrivons dans le chapitre 8 et d'autre part, la stabilisation adiabatique dont l'étude fait l'objet de ce chapitre.

Dans une première partie, nous présentons la théorie de Gavril et Kaminski qui est à l'origine de la découverte de la stabilisation à haute fréquence: l'atome se stabilise quand le paramètre $\alpha_0 = \frac{eE_0}{m\omega^2}$ est gardé constant et quand la fréquence croît.

La deuxième partie présente le travail de Pont et Gavril: la stabilisation à haute intensité (c'est-à-dire, la stabilisation telle que nous la définissons dans ce travail). Nous montrons aussi les résultats obtenus avec notre méthode pour ce type de stabilisation.

Dans la troisième et dernière partie, nous présentons les difficultés expérimentales liées à l'observation de ce type de stabilisation.

1 Théorie de Gavril et Kaminski

En 1984, Gavril et Kaminski [Gav84] ont développé une théorie non-perturbative pour décrire l'interaction d'atomes avec des radiations d'intensités et de fréquences élevées. Bien que développée initialement pour étudier les phénomènes de diffusion, cette théorie a été généralisée pour l'étude des phénomènes impliquant des transitions multiphotoniques [Gav87]. Le domaine de validité de cette théorie est: $\omega \gg I_p(\alpha_0)$, où ω est la fréquence de la lumière et I_p est le potentiel d'ionisation de l'atome dans le champ. Cette condition se vérifie plus facilement pour les états atomiques de nombre quantique principal élevé. Cette théorie, comme nous allons le voir, prédit un taux d'ionisation de l'atome relativement bas qui dépend de la façon dont la condition ci-dessus est satisfaite. Au plus cette condition est vérifiée, au plus le taux d'ionisation est faible. Pour le comprendre, il est nécessaire de décrire cette théorie avec un peu plus de détails.

1.1 La transformation de Kramers

Un point important de la théorie de Gavrila et Kaminski est l'utilisation de la transformation de Kramers-Henneberger. Cette transformation fut proposée originellement par Kramers[Kra56] dans le cadre de l'électrodynamique quantique et reprise par Henneberger[Hen68] dans le contexte des interactions laser-atome.

Examinons le mouvement classique d'un électron placé dans un champ électrique oscillant le long de l'axe z . L'équation de Newton correspondante est:

$$m \frac{d^2}{dt^2} \mathbf{r} = eE_0 \sin \omega t - e \frac{d}{d\mathbf{r}} V(\mathbf{r}). \quad (7.1)$$

La solution de l'électron libre dans le champ laser ($V(r) = 0$), est:

$$\vec{\alpha}(t) = -\alpha_0 \hat{\mathbf{e}}_z \sin \omega t, \quad (7.2)$$

où nous avons posé

$$\alpha_0 = \frac{eE_0}{m\omega^2}. \quad (7.3)$$

La transformation $\mathbf{r}' = \mathbf{r} - \vec{\alpha}(t)$ transforme l'équation de Newton (7.1) en:

$$m \frac{d^2}{dt^2} \mathbf{r}' = -e \frac{d}{d\mathbf{r}'} V(\mathbf{r}' + \vec{\alpha}(t)). \quad (7.4)$$

Cette transformation consiste à se placer dans un référentiel qui oscille avec un électron libre classique placé dans le champ électrique et dont la position est décrite par un vecteur $\vec{\alpha}(t)$.

L'équivalent quantique de cette transformation revient à appliquer une transformation unitaire à l'équation de Schrödinger (équations 1.53 et 1.61) pour se placer dans la représentation appelée "forme accélération". Dans ce cas, l'Hamiltonien devient:

$$\hat{H}(\mathbf{r}, t) = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + V(\mathbf{r} + \vec{\alpha}(t)) \quad (7.5)$$

où

$$V(\mathbf{r} + \vec{\alpha}(t)) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{|\mathbf{r} + \vec{\alpha}(t)|}, \quad (7.6)$$

$$\vec{\alpha}(t) = \frac{e}{m} \int_{-\infty}^t \vec{\mathbf{A}}(\tau) d\tau. \quad (7.7)$$

1.2 Théorie de Floquet dans le référentiel de Kramers

Si l'amplitude du champ est constante, le potentiel coulombien modifié de l'équation (7.5) dépend du temps de manière périodique. Ceci nous permet de résoudre cette équation en utilisant la théorie de Floquet [Gav84] [Dor91]. Elle permet de réduire l'équation de

Schrödinger dépendante du temps pour un atome dans un champ monochromatique à un ensemble d'équations non-dépendantes du temps couplées. L'idée est de chercher des solutions pour l'équation de Schrödinger de la forme:

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \exp(-iEt) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \exp(-in\omega t) \Psi_n(\mathbf{r}), \quad (7.8)$$

où E est un nombre complexe appelé quasi-énergie qui ne dépend pas du temps.

Nous sommes intéressés par la résolution de l'équation de Schrödinger qui décrit l'évolution d'un atome se trouvant initialement dans un état ϕ_λ d'énergie W_λ . Dans le cas d'un atome avec un spectre discret et continu, pour des raisons de bon comportement asymptotique, les quasi-énergies E sont de la forme:

$$E_\lambda = W_\lambda + \Delta - i\frac{\Gamma}{2} \quad (7.9)$$

où Δ et Γ sont réels. Comme en l'absence de champ, E_λ se ramène à W_λ , Δ est le déplacement Stark du niveau et tend vers 0 dans la limite du champ nul. La signification physique de Γ se déduit en remarquant que l'intégrale de la densité de probabilité de l'électron sur un volume fini décroît comme $\exp(-\Gamma t)$, ce qui signifie que Γ est le taux d'ionisation.

Nous développons le potentiel en série de Fourier:

$$V(\mathbf{r} + \vec{\alpha}(t)) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} V_n(\alpha_0, \mathbf{r}) \exp(-in\omega t); \quad (7.10)$$

α_0 est un paramètre qui caractérise le champ: $\alpha_0 = \frac{eE_0}{m\omega^2}$. Les coefficients $V_n(\alpha_0, \mathbf{r})$ peuvent s'exprimer comme suit:

$$V_n(\alpha_0, \mathbf{r}) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{+\pi} e^{in\phi} V(\mathbf{r} + \vec{\alpha}(\phi)) d\phi. \quad (7.11)$$

En particulier, dans le cas où $n = 0$, nous avons:

$$V_0(\alpha_0, \mathbf{r}) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{+\pi} V(\mathbf{r} + \vec{\alpha}(\phi)) d\phi, \quad (7.12)$$

qui n'est rien d'autre que le potentiel $V(\mathbf{r} + \vec{\alpha}(t))$ moyenné sur le temps.

En substituant (7.8) et (7.10) dans l'équation de Schrödinger avec l'Hamiltonien (7.5), nous nous ramenons à un système infini d'équations différentielles couplées:

$$\left[\frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + V_0(\alpha_0, \mathbf{r}) - (E_\lambda + n\hbar\omega) \right] \Psi_n = - \sum_{m=-\infty}^{+\infty} V_{n-m}(\alpha_0, \mathbf{r}) \Psi_m. \quad (7.13)$$

Nous allons maintenant décrire une méthode pour la résolution par approximations successives de ce système qui fonctionne dans le régime des hautes fréquences.

On remarque d'abord que pour $n \neq 0$ et ω grand (disons $\omega \rightarrow \infty$) avec α_0 constant, Ψ_n doit devenir petit pour que le terme de droite de l'équation (7.13) reste constant. En effet, dans cette équation, si $n \neq 0$ et si ω est grand, le terme de gauche devient grand alors que celui de droite reste constant; la seule façon de garder l'égalité est donc d'avoir des Ψ_n petits. Cela n'est pas le cas pour le terme $n = 0$. Par conséquent, Ψ_n (avec $n \neq 0$) doit être petit par rapport à Ψ_0 . Pour l'ordre le plus bas, nous devons résoudre l'équation indépendante du temps suivante:

$$\left[\frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + V_0(\alpha_0, \mathbf{r})\right]\Psi_0 = E_\lambda \Psi_0, \quad (7.14)$$

en tenant compte des conditions initiales et des conditions frontières adéquates. Cette équation se ramène à un problème aux valeurs propres du type: $\hat{H}\phi_\lambda = W_\lambda \phi_\lambda$. Comme dans cette équation, l'Hamiltonien est hermitien, W_λ est réel. Si nous nous limitons à l'ordre le plus bas, nous avons donc que: $\Psi_n \simeq \phi_\lambda \delta_{n,0}$ et $E_\lambda \simeq W_\lambda$.

Pour les termes d'ordre plus élevé, la suite de la résolution se fait en calculant les Ψ_n à l'aide de l'opérateur de Green associé à l'Hamiltonien de l'équation (7.14);

$$\Psi_n(\mathbf{r}) = \int G^{(+)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', W_\lambda + n\hbar\omega) V_n(\mathbf{r}') \Psi_0(\mathbf{r}') d\mathbf{r}'. \quad (7.15)$$

La convergence de ce schéma itératif, ne dépend pas de la valeur de α_0 . La théorie fonctionne aussi bien pour $\alpha_0 \ll 1$, que pour $\alpha_0 > 1$. Gavrilà et Kaminski montrent que le développement converge pour autant que:

$$\omega \gg W_\lambda. \quad (7.16)$$

Cela signifie que l'énergie du photon doit être grande par rapport à l'énergie de liaison de l'état propre dans lequel l'atome se trouve initialement. Il s'agit de ce que l'on appelle, la condition des hautes fréquences. Le processus itératif peut être considéré comme un développement en ω^{-1} pour α_0 fixé. Notons que W_λ correspond à une valeur propre de l'Hamiltonien modifié par le champ, cette condition est plus facilement vérifiée pour des champs dont le paramètre α_0 est élevé que pour les autres.

1.3 Stabilisation dans la limite des hautes fréquences

D'un point de vue mathématique, quand la fréquence ω est grande et que α_0 est gardé constant, les termes d'ordre supérieur ou égal à 1 apparaissant dans le développement (7.8) sont petits. Seul le terme d'ordre 0 joue un rôle significatif et la fonction d'onde du système satisfait à l'équation (7.14). L'énergie propre de cet état est principalement réelle, ce qui signifie que l'atome se trouve dans un état quasi-stable. A la limite quand ω est infini, les termes d'ordre supérieur sont nuls et l'atome est dans un état tout à fait stable, le taux d'ionisation est égal à zéro.

Physiquement, l'explication de ce phénomène est relativement claire [Groc91] [Grob92]. Si le proton dans le référentiel de Kramers-Henneberger oscille plus rapidement que l'électron

ne tourne autour du noyau, l'électron ne ressentira que le potentiel électrostatique moyen exercé par le proton et par conséquent sera stable. Le nuage électronique peut donc être fortement déformé en oscillant comme celui d'un électron libre dans le référentiel du laboratoire et être relativement stable en ce qui concerne l'ionisation. Ce type de stabilisation est appelé la stabilisation à haute fréquence.

2 La stabilisation adiabatique

2.1 Dichotomie de la fonction d'onde

En se basant sur cette méthode, Pont et Gavrila [Pon90] ont montré que le potentiel d'ionisation, dans le référentiel de Kramers-Henneberger, diminuait avec α_0 , ce phénomène s'accompagnant de la séparation du nuage électronique en deux parties disjointes (dichotomie).

D'un point de vue physique, la condition $\hbar\omega \geq |E|$ implique une variation rapide du champ extérieur par rapport aux temps caractéristiques de l'électron sur son orbite atomique. L'électron ressent, dès lors, en bonne approximation, l'influence de $V(\mathbf{r} + \vec{\alpha}(t))$ moyennée sur le temps (qui n'est rien d'autre que $V_0(\alpha_0, \mathbf{r})$) (équation 7.12). $V_0(\alpha_0, \mathbf{r})$ est appelé potentiel habillé. Ce potentiel est dû au proton qui oscille dans le système de référence dans lequel nous nous sommes placés. On montre facilement que pour une polarisation linéaire le long de l'axe Oz :

$$V_0(\alpha_0, \mathbf{r}) = -\frac{1}{\pi} \int_{-\alpha_0}^{\alpha_0} \frac{1}{|\mathbf{r} + \hat{\mathbf{e}}_z z| \sqrt{\alpha_0^2 - z^2}} dz. \quad (7.17)$$

Le potentiel habillé peut donc s'interpréter comme le potentiel coulombien créé par une distribution linéaire de charge le long de l'axe z de $-\alpha_0$ à α_0 : $(\pi \sqrt{\alpha_0^2 - z^2})^{-1}$ (fig. 7.1). On note une accumulation de charges aux extrémités. Pour $r \gg \alpha_0$, $V_0(\alpha_0, \mathbf{r})$ se réduit au potentiel coulombien sphérique habituel.

La nature particulière de ce potentiel débouche sur des fonctions d'onde fortement déformées, surtout lorsque $\alpha_0 \gg 1$. Pour $\alpha_0 \geq 50$, on parle de fonctions d'onde dichotomiques, car elles sont concentrées sur les singularités du potentiel et elles s'écrasent rapidement dans le reste de l'espace [Pon88] [Su90]. La figure 7.2 présente les fonctions d'onde normalisées de l'état fondamental dans le référentiel de Kramers pour différentes valeurs de α_0 .

Les énergies des états propres de l'atome d'hydrogène dans le référentiel de Kramers varient aussi en fonction de α_0 . Ces énergies sont les valeurs propres de l'équation (7.14); $V_0(\alpha_0, \mathbf{r})$ est le potentiel moyenné sur le temps. Quand le champ est nul, c'est-à-dire quand $\alpha_0 = 0$, on retrouve les énergies propres de l'atome non-perturbé. Un comportement général de ces énergies est qu'elles tendent globalement vers zéro pour des valeurs de α_0 grandes. Nous présentons, à la figure 7.3, l'énergie de l'état fondamental de l'hydrogène en fonction de α_0 .

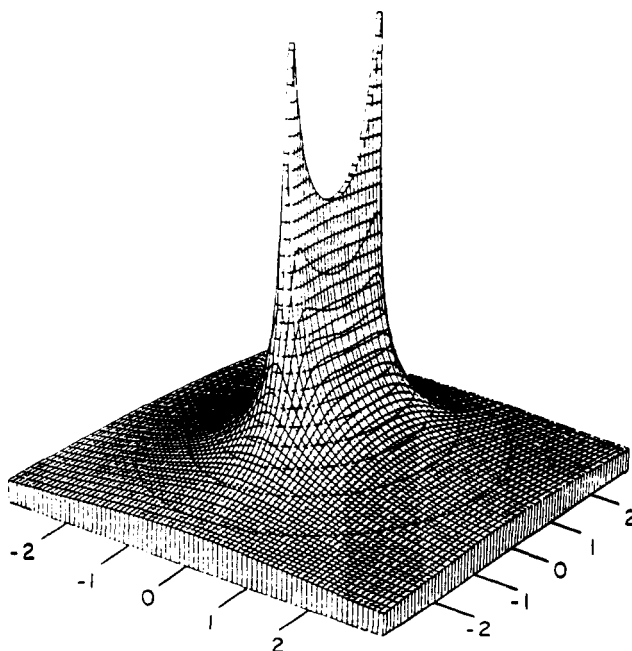


Figure 7.1 *Potentiel habillé V_0 pour le potentiel coulombien en fonction de la position dans un plan passant par l'axe de polarisation. Les distances sont exprimées en unité " α_0 ". La selle de la figure montre la croissance de $V_0(\alpha_0, \mathbf{r})$ le long de la singularité allant de $-\alpha_0$ à α_0 [Pon88].*

2.2 Diminution du taux d'ionisation

L'amplitude d'ionisation multiphotonique à n photons de l'atome initialement dans l'état Φ_λ (dans le référentiel de Kramers-Henneberger) est donnée par [Pon91a] [Pon91b]:

$$f_{\lambda,n} = \frac{1}{\pi k_n^2} \int_{-\pi}^{+\pi} e^{in\phi} e^{i\vec{\alpha}(\phi) \cdot \mathbf{k}_n} \Psi_\lambda(-\vec{\alpha}(\phi)) d\phi \quad (7.18)$$

avec $k_n = \sqrt{2(E_\lambda + n\omega)}$, le moment de l'électron après l'absorption de n photons par l'atome.

Cette équation prédit, nous allons le voir, une stabilisation à haute intensité et ce, même en l'absence de distorsion du nuage électronique. Jusqu'à ce qu'on obtienne cette expression, on croyait que la stabilisation était causée par deux effets reliés l'un à l'autre. D'une part, par la diminution du potentiel d'ionisation quand l'intensité augmente; cela a pour conséquence de rendre la fréquence des photons grande par rapport à celui-ci et donc de mieux satisfaire la condition (7.16). Dans ce cas, comme nous l'avons vu, le système se trouve dans un état stationnaire stable. Et d'autre part, par la distorsion du nuage électronique qui décroît la probabilité pour l'électron d'être au voisinage du noyau et donc, l'ionisation.

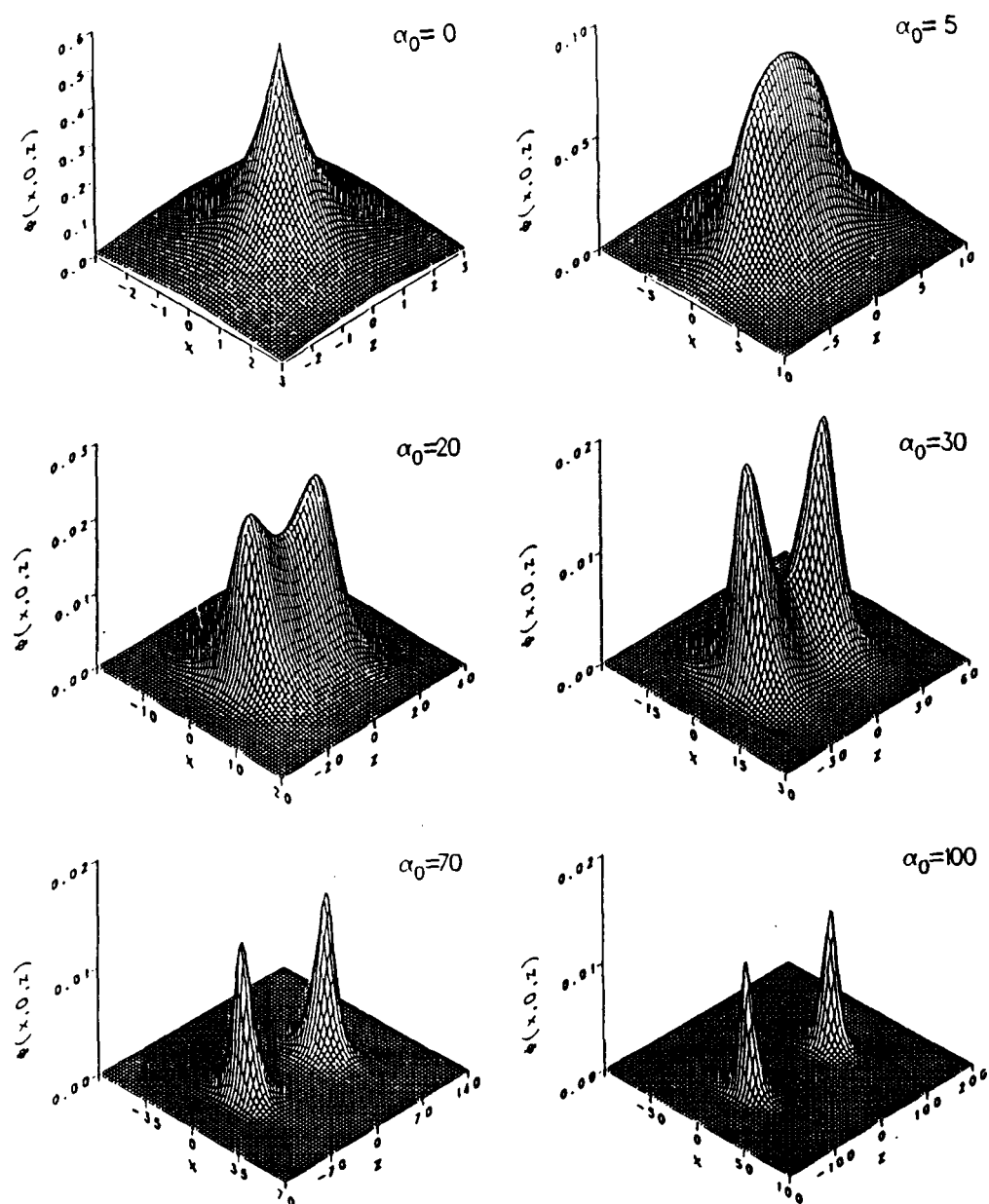


Figure 7.2 Fonctions d'onde normalisées de l'état fondamental de l'atome d'hydrogène dans le référentiel de Kramers pour des valeurs de α_0 croissantes. L'unité de longueur est le rayon de Bohr a_0 . Il y a un changement d'échelle pour les différents graphes. Notons que la dichotomie commence à se marquer nettement pour $\alpha_0 = 50$ [Pon88].

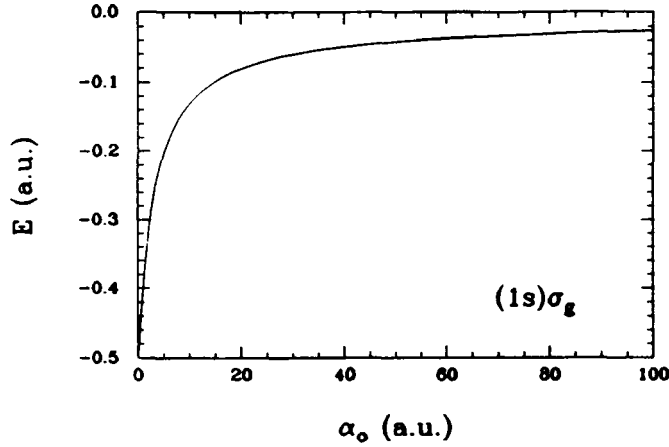


Figure 7.3 *Energie de l'état fondamental de l'hydrogène en fonction du paramètre du champ laser α_0 [Pon88].*

L'équation 7.18 fournit l'explication suivante pour le mécanisme de stabilisation à haute intensité. Dans le référentiel de Kramers-Henneberger, nous avons un nuage électronique (éventuellement distordu). Les fonctions d'onde électronique sortantes (représentant l'ionisation) sont créées au voisinage du proton lors de son va-et-vient. L'équation 7.18 contient l'amplitude de probabilité $\Psi_\lambda(-\vec{\alpha}(\phi))$ de trouver l'électron à la position du proton et un facteur de phase $e^{i\vec{\alpha}(\phi) \cdot \mathbf{k}_n}$ associé au déplacement du proton de l'origine du référentiel dans lequel nous travaillons. Le premier effet stabilisant provient donc d'une distorsion du nuage électronique.

Mais l'équation 7.18 montre un nouvel aspect de la stabilisation qui n'a rien à voir avec la distorsion: dans un champ très intense, nous avons $\alpha_0 k_n \gg 1$ et par conséquent, la longueur d'onde de de Broglie des électrons est très petite par rapport à l'extension spatiale ($2\alpha_0$) de la source à partir de laquelle ils sont émis (fig 7.4). Il s'en suit que la phase de $e^{i\vec{\alpha}(\phi) \cdot \mathbf{k}_n}$ varie très rapidement avec la phase ϕ du champ. Par conséquent, les ondes émises à partir de différentes positions autour du proton, dans le référentiel de Kramers-Henneberger, ont tendance à s'annuler mutuellement à cause d'interférences destructives sauf dans les directions presque orthogonales à l'axe de polarisation où $\vec{\alpha}(\phi) \cdot \mathbf{k}_n$ peut être petit. Cela diminue le flux sortant des électrons quand α_0 augmente (ou bien, pour une fréquence fixée, quand l'intensité croît) et nous avons donc de la stabilisation sans distorsion.

Pour observer la stabilisation adiabatique, il faut donc que la longueur d'onde de de Broglie soit plus petite que la taille de la source, ou encore, dès que $\alpha_0 k_n \gg 1$. En substituant

$$\alpha_0 = \frac{eE_0}{m\omega^2} \text{ (a.u.) et } k_n \sim \sqrt{\frac{2m\omega}{\hbar}}, \quad (7.19)$$

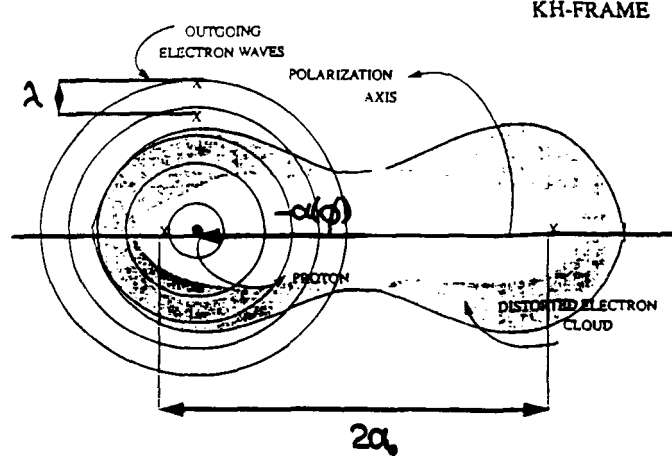


Figure 7.4 Les fonctions d'onde électroniques sortantes sont formées au voisinage du proton. Dans le régime de stabilisation, la longueur d'onde de de Broglie est petite par rapport à $2\alpha_0$ et, par conséquent, les ondes émises à différentes positions interfèrent de manière destructive [Pon93].

dans cette équation et en élevant au carré, on obtient

$$P \gg \frac{\hbar\omega}{8}. \quad (7.20)$$

P est l'énergie pondéromotrice ($= e^2 E_0^2 / 4m\omega^2$). C'est-à-dire, dès que l'énergie pondéromotrice devient plus grande que l'énergie du photon divisée par huit, ou encore, en s'intéressant seulement aux ordres de grandeur, si l'énergie pondéromotrice est plus grande que l'énergie du photon, le taux d'ionisation atteint un maximum et ensuite diminue.

Cette condition pour la stabilisation adiabatique est fondée sur une démarche purement quantique. Il est possible d'arriver à ce résultat à partir de considérations purement cinématiques [Pon91a]. Voici, en bref, ce développement.

Comme un électron libre ne peut absorber de photons (appendice D), l'ionisation ne peut se produire qu'à proximité du noyau lors d'une "collision". Avant cette collision, l'électron est soumis à un champ électrique oscillant $E_0 \cos \omega t \hat{z}$ et l'impulsion due à ce mouvement d'oscillation est $\mathbf{p}_{osc}(t) = (eE_0/\omega) \sin \omega t \hat{z}$. La collision a lieu au temps t_0 et sa durée est Δt_0 . Juste après la collision, l'impulsion totale de l'électron qui a maintenant absorbé 1 photon d'énergie $\hbar\omega$ élevée (haute fréquence) est: $\mathbf{p}_{osc}(t_0) + \mathbf{p}_{tr}$; en effet, l'électron acquiert un moment dû à son mouvement de translation approximativement égal à $p_{tr} \sim \sqrt{2m\hbar\omega}$. La conservation de l'énergie lors de cette collision implique que $\Delta E(t_0) = [|\mathbf{p}_{tr} + \mathbf{p}_{osc}(t_0)|^2 - |\mathbf{p}_{osc}(t_0)|^2] / (2m)$ soit très petit. Notons que si nous sommes dans le cas où $P \gg \hbar\omega$, on montre que $\Delta E(t_0)$ n'est petit que si $\mathbf{p}_{tr}$ est presque perpendiculaire à

$\mathbf{p}_{osc}(t_0)$. Cela réduit fortement l'angle dans lequel l'électron peut être éjecté. Le principe d'incertitude d'Heisenberg nous dit que la variation d'énergie lors de ce processus: $\Delta E(t_0)$, doit être de l'ordre $\hbar/\Delta t_0$. En écrivant $\Delta E(t_0)$ comme $[d\Delta E(t_0)/dt_0]\Delta t_0$, nous avons que: $\Delta t_0 \sim \sqrt{\hbar}/\sqrt{|d\Delta E(t_0)/dt_0|}$. Comme $\Delta E(t_0)$ peut se réécrire comme $(|\mathbf{p}_{tr}|^2 - 2\mathbf{p}_{osc}(t_0) \cdot \mathbf{p}_{tr})/2m$, on obtient que: $|d\Delta E(t_0)/dt_0| = (1/m)[d\mathbf{p}_{osc}(t_0)/dt] \cdot \mathbf{p}_{tr}$. Finalement, comme $|d\mathbf{p}_{osc}(t_0)/dt| \sim eE_0$ et comme $p_{tr} \sim \sqrt{2m\hbar\omega}$, on obtient que $\Delta t_0/T_{cyc} \sim (\hbar\omega/P)^{1/4}$, où T_{cyc} est la période optique ($T_{cyc} = 2\pi/\omega$) et P , le potentiel pondéromoteur. Il en découle que lorsque $\Delta t_0/T_{cyc} < 1$, c'est-à-dire lorsque $P > \hbar\omega$, la durée de la collision et, par conséquent, le taux d'ionisation diminuent quand l'intensité augmente (stabilisation). Notons que le taux d'ionisation est maximum quand $\Delta t_0 \sim T_{cyc}$ ou encore quand $P \sim \hbar\omega$.

L'approche développée dans ce travail nous permet de reproduire ce type de résultat. La figure 7.5 montre comment le taux d'ionisation varie en fonction de la grandeur du champ électrique lors de l'ionisation d'un atome d'hydrogène initialement dans un état $|1s\rangle$ par une impulsion de 10 cycles dont la fréquence est 1 ou 1.5 unités atomiques. On note que la stabilisation a lieu dès que le potentiel pondéromoteur est approximativement égal à $\omega/8$; pour $\omega = 1$ u.a., cela correspond à un champ de 0.7 u.a. et pour $\omega = 1.5$ u.a., à un champ de 1.3 u.a..

Signalons pour terminer que des calculs classiques ont permis de mettre en évidence cette stabilisation [Gaj92].

3 Observabilité

D'une manière générale, pour observer la stabilisation adiabatique, il faut satisfaire simultanément trois conditions [Vos92]. Premièrement, l'énergie des photons doit être assez grande pour ioniser l'atome; par exemple, si l'atome est dans son état fondamental, il faut que $\hbar\nu > 13.6\text{eV}$. Deuxièmement, il faut empêcher l'ionisation de tous les atomes durant la rampe montante de l'impulsion. Dans une expérience, l'atome est tout d'abord soumis à une intensité nulle qui croît jusqu'à un maximum et qui décroît ensuite; pour atteindre le régime de stabilisation, l'atome ne doit pas être ionisé avant le maximum. Il faut donc que la durée de vie minimum de l'atome soit au moins de l'ordre du temps de montée de l'impulsion. Et troisièmement, l'intensité de l'impulsion doit être suffisamment grande. Des calculs sur les états de Rydberg montrent qu'il y a déjà stabilisation pour des impulsions dont l'intensité est de $5 \times 10^{13}\text{W/cm}^2$ et l'énergie des photons est de 2 eV.

La stabilisation adiabatique a été observée expérimentalement par de Boer et al. au FOM [deB94]. Ils ont ionisé des atomes de néon placés dans l'état $|5g\rangle$ avec des impulsions de 100 fs d'une fréquence de 2 eV polarisées circulairement. La figure 7.6 présente le taux d'ionisation en fonction du flux d'énergie de l'impulsion. La durée de l'impulsion étant constante, cela revient à faire varier l'intensité. Ces résultats ne nous semblent pas très concluants. La diminution du taux d'ionisation avec la fluence n'est pas très claire.

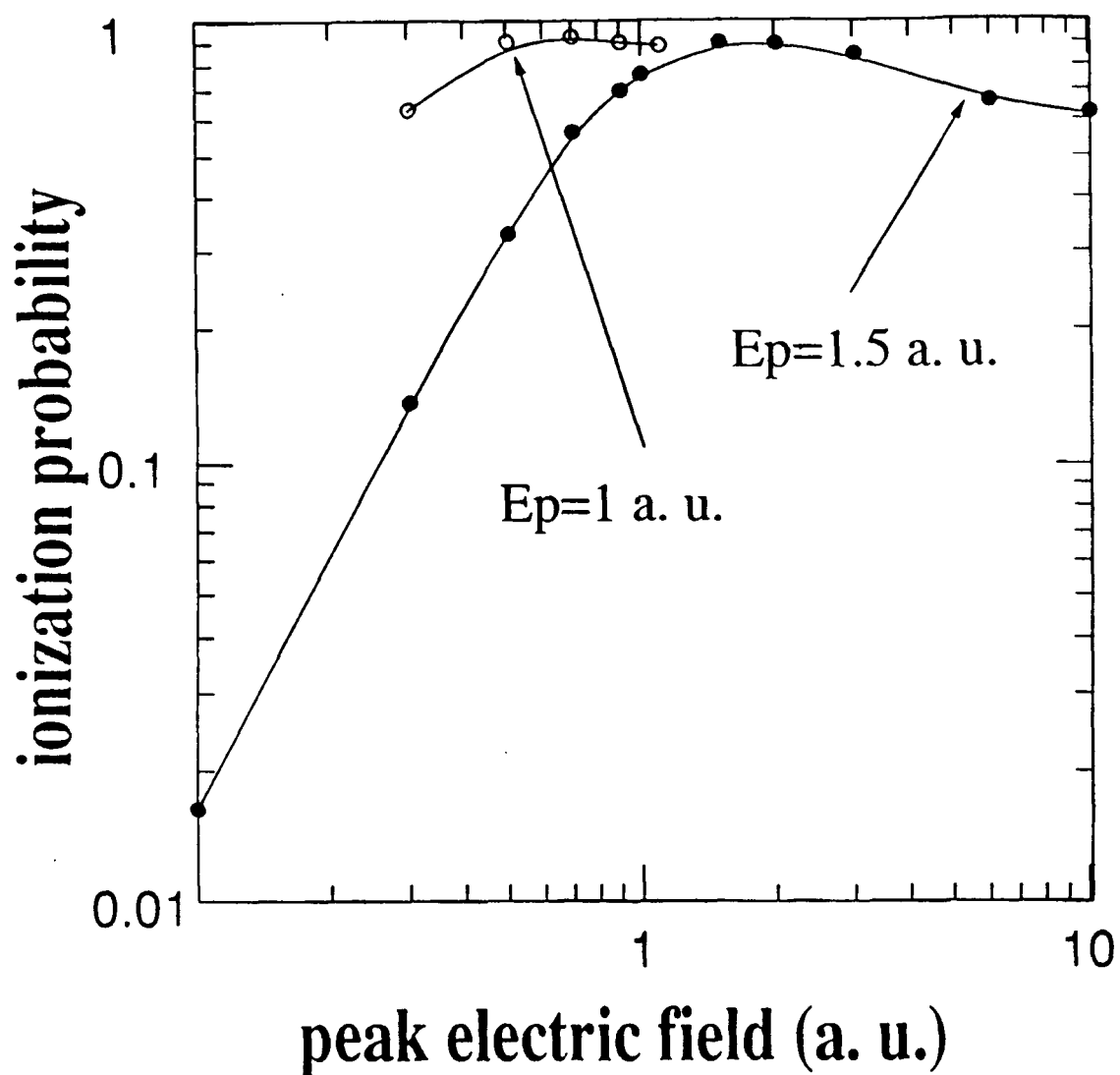


Figure 7.5 Probabilité d'ionisation en fonction de l'intensité maximale du champ électrique. L'impulsion est branchée soudainement et dure 10 cycles: $E(t) = E_0 \cos \omega t$ pour t compris entre 0 et 10 cycles et $E(t) = 0$ sinon. Le champ est polarisé linéairement et l'atome est initialement dans son état fondamental. Nous considérons deux énergies pour les photons: 1 a.u. et 1.5 a.u.

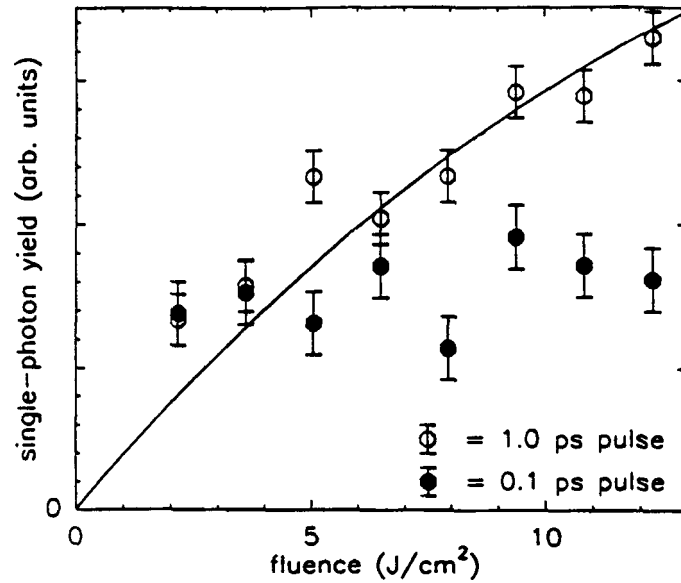


Figure 7.6 Ionisation de l'état $|5g\rangle$ par une impulsion polarisée circulairement en fonction du flux d'énergie. Les valeurs correspondant aux cercles creux sont pour des intensités basses (jusqu'à $1.2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 1 ps). Les valeurs correspondant aux cercles pleins sont pour des impulsions plus courtes. Comme le flux d'énergie est le même, l'intensité est plus élevée (jusqu'à $1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 0.1 ps). L'ionisation avec ces impulsions augmente difficilement avec le flux d'énergie, ce qui montrerait la stabilisation [deB94].

Chapitre 8

La stabilisation dynamique

1 Effets de cohérence en mécanique quantique

Un système quantique, par exemple un atome, est dans une superposition cohérente d'états quand sa fonction d'onde s'exprime comme une combinaison linéaire d'états propres et qu'il existe une relation bien définie entre les phases des amplitudes. Cela implique que les effets d'interférence peuvent être observés à l'échelle macroscopique car ils ne sont pas, en moyenne, nuls. Pour illustrer ce concept, considérons N systèmes à deux niveaux.

Si ces systèmes se trouvent dans une superposition cohérente d'états, leurs fonctions d'onde s'écrivent:

$$|\Psi\rangle = a_1 e^{-iE_1 t} |\Psi_1\rangle + a_2 e^{-iE_2 t} |\Psi_1\rangle \quad (8.1)$$

à une phase près. La différence de phase entre les deux amplitudes est définie et vaut pour chacun des N systèmes:

$$\Delta\phi = (E_1 - E_2)t. \quad (8.2)$$

La matrice densité correspondante est:

$$\rho = \begin{pmatrix} |a_1|^2 & a_1 a_2^* e^{-i(E_1 - E_2)t} \\ a_1^* a_2 e^{i(E_1 - E_2)t} & |a_2|^2 \end{pmatrix}. \quad (8.3)$$

Si nous moyennons cette matrice pour un ensemble de N systèmes, les termes non diagonaux (que l'on appelle cohérences) ne seront pas nuls. Les effets d'interférence apparaissant dans la mesure d'observables qui dépendent de ces termes non-diagonaux (dipôle, ...) sont alors visibles à l'échelle macroscopique.

Par contre, si une phase aléatoire apparaît dans la fonction d'onde de chacun des N systèmes, c'est-à-dire si leurs fonctions d'onde s'écrivent:

$$|\Psi\rangle = a_1 e^{-i(E_1 t + \phi)} |\Psi_1\rangle + a_2 e^{-iE_2 t} |\Psi_1\rangle \quad (8.4)$$

avec ϕ quelconque, les termes non diagonaux de la matrice densité sont nuls et les effets d'interférence ne sont alors plus observables à l'échelle macroscopique.

Dans le cas de l'interaction d'un atome d'hydrogène avec une impulsion laser, le système peut être excité dans un seul état si la largeur spectrale de l'impulsion est plus petite que la séparation en énergie de deux niveaux adjacents; par contre, si l'excitation est produite par une impulsion très courte, la largeur spectrale devient plus grande que la séparation entre états excités (figure 8.1) et dans ce cas, l'atome se trouve dans une superposition de plusieurs états excités de manière cohérente. Il existe alors une relation bien définie entre les phases des amplitudes des états propres sur lesquels la fonction d'onde est développée: l'atome est dans une superposition cohérente d'états. La stabilisation que nous mettons en évidence dans ce travail est une des manifestations des effets se produisant dans un tel cas. Avant d'en parler plus en détail, examinons quelques phénomènes dans lesquels interviennent des effets de cohérence.

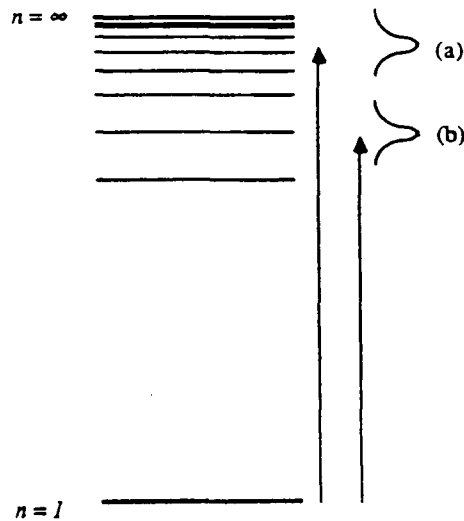


Figure 8.1 Schéma représentant l'excitation d'un atome à l'aide d'une impulsion laser. Dans le cas (a), la largeur spectrale de l'impulsion est plus grande que la séparation en énergie de deux niveaux adjacents et dans le cas (b), la largeur spectrale est plus petite.

1.1 Interférence quantique entre états stationnaires

Quand un laser interagit avec un système quantique à plusieurs niveaux, des effets d'interférences peuvent se produire dans l'absorption et dans la fluorescence qui en découlent. Cardomina et al. [Car82] montrent que l'émission spontanée d'un atome à plusieurs niveaux peut disparaître complètement si le système satisfait à trois conditions. La première, le champ laser incident doit être ajusté à une fréquence particulière. La deuxième, les états excités doivent posséder le même moment angulaire. Et finalement, la désexcitation doit se faire vers un état fondamental unique. Ce phénomène peut être compris de la façon suivante: dans le cas de deux états excités (figure 8.2a), le champ laser incident génère un dipole oscillant pour chaque transition. Les dipôles oscillent à la

fréquence du laser avec une phase qui dépend de l'écart à la résonnance de chacun des états. Pour une fréquence donnée, on s'attend à ce que les deux dipôles aient la même amplitude et soient exactement en opposition de phase. A ce moment, le moment dipolaire total devient nul, cela signifie que l'atome est complètement découplé du champ et il n'y a plus aucune fluorescence. Les mêmes conclusions s'appliquent pour la diffusion Raman (l'état final vers lequel se fait la désexcitation n'est pas l'état fondamental) (figure 8.2b). Dans le cas d'une absorption de deux photons ou d'une ionisation à deux photons (figures 8.2c et 8.2d), il est aussi possible, en ajustant la fréquence du laser, de n'avoir aucune population dans l'état final $|f\rangle$.

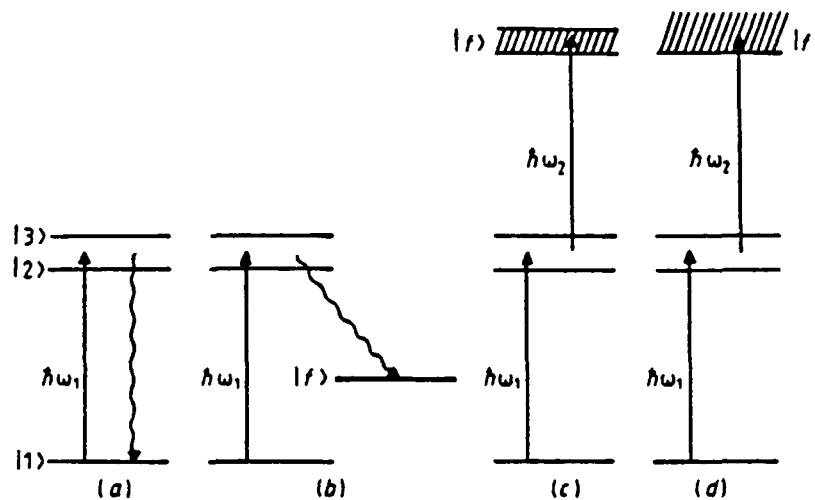


Figure 8.2 *Processus impliquant deux états intermédiaires dans lesquels il est possible d'obtenir des effets d'interférence conduisant à une disparition totale de la population de l'état final f : (a) fluorescence, (b) diffusion Raman, (c) absorption à deux photons et (d) ionisation à deux photons [Car82].*

1.2 Capture de population lors de l'ionisation par une impulsion laser courte

Parker et al. [Par90] considèrent un système composé d'états liés $|g_0\rangle$, $|g_1\rangle$ et $|g_2\rangle$ de moment angulaire l_0 et d'un continuum $|E\rangle$ de moment angulaire $l_0 + 1$. Le système est initialement dans l'état $|g_0\rangle$ et il interagit avec une impulsion laser courte (figure 8.3). Le trait plein indique la transition de l'état initial vers le continuum. La largeur spectrale finie de l'impulsion va stimuler des transitions de l'état du continuum atteint vers d'autres états liés (cfr trait discontinu); il s'agit d'un couplage Raman. Ces transitions de population vers les états $|g_0\rangle$, $|g_1\rangle$ et $|g_2\rangle$ placent l'atome dans un état qui est une superposition cohérente d'états liés, ce qui empêche fortement l'atome de s'ioniser.

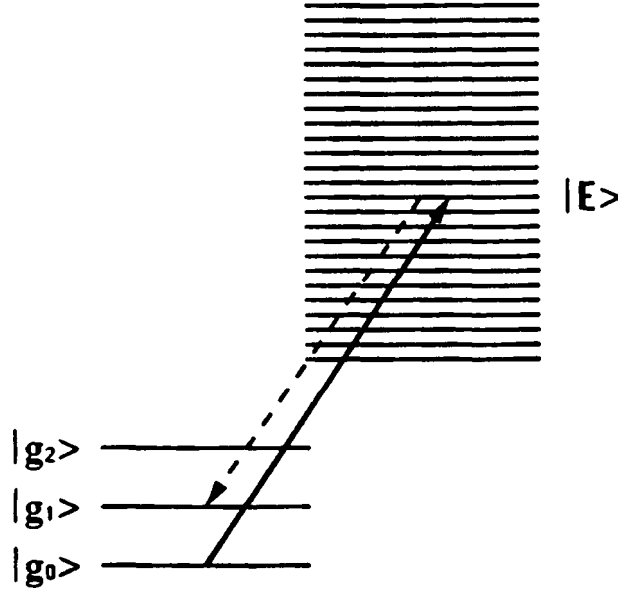


Figure 8.3 Schéma du modèle [Par90]; les états $|g\rangle$, sont des états liés de moment angulaire l_0 . Toute la population est initialement dans l'état $|g_0\rangle$. Les états $|E\rangle$ représentent les états du continuum de moment $l_0 + 1$.

La figure 8.4 montre le rôle essentiel que jouent les états $|g_1\rangle$ et $|g_2\rangle$ dans ce processus d'ionisation. Si on ne considère qu'un seul état lié, il n'est pas possible de créer une superposition cohérente d'états; la population restant à la fin de l'interaction dans l'état $|g_0\rangle$ est quasi nulle. Par contre, dans le cas où plusieurs états liés interviennent, la population finale de l'état $|g_0\rangle$ est plus importante.

1.3 Effets de cohérence et d'interférence dans un atome de Rydberg interagissant avec un champ laser intense

Dans une série d'articles, Fedorov *et al.* [Fed89a][Fed89b][Fed90] montrent que sous certaines conditions, la probabilité d'ionisation devient une fonction qui décroît avec l'intensité du champ incident.

Ils considèrent un atome initialement dans un état de Rydberg de nombre quantique principal $n_0 \gg 1$ et de moment angulaire $l = 0$. Les niveaux d'énergie des états liés sont représentés à la figure 8.5a. Il s'agit d'états de Rydberg de même parité ($l = 0$) couplés à un continuum de parité opposée ($l = 1$). Cet atome modélisé interagit avec un champ électrique monochromatique polarisé linéairement enclanché de manière soudaine: $E(t) = \Theta(t)E_0 \cos \omega t$ où $\Theta(t)$ est la fonction de Heaviside. Ils supposent aussi que ω soit plus grand que l'énergie de liaison de l'état initial de l'atome : $\omega > 1/(2n^2)$. Pour

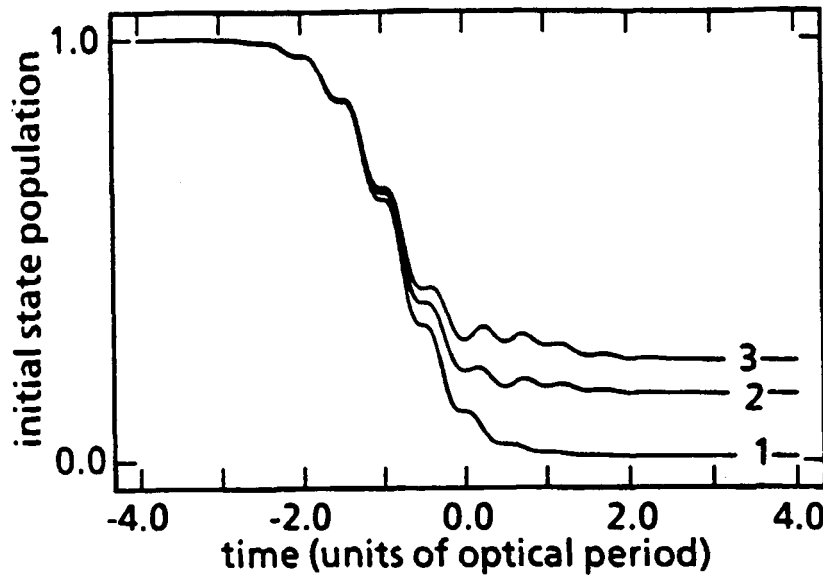


Figure 8.4 Population de l'état $|g_0\rangle$ pendant l'interaction avec le champ laser en fonction du nombre d'états liés $|g\rangle$ présents dans le système [Par90].

résoudre l'équation de Schrödinger correspondante, Fedorov fait plusieurs approximations. L'élément de matrice du couplage d'un état discret ϕ_n avec un état du continuum ϕ_E est approximé : $V_{nE} = \langle \phi_n | 1/2 E_0 r \cos \theta | \phi_E \rangle = V n^{-3/2}$ où V est une constante qui vaut $E_0 \omega^{-5/3}$. Ces éléments de matrice sont indépendants de l'énergie de l'état ϕ_E . Comme les états de Rydberg sont tous de même parité, il n'y donc aucun couplage entre eux si ce n'est via le continuum par couplage Raman (transition du second ordre). Pour cette raison, l'effet Stark dynamique n'est pas pris en considération. Toutefois, pour les états de Rydberg de nombre quantique principal n élevé, ce dernier se réduit au potentiel pondéromoteur ; comme tous les états se déplacent de la même quantité, cela n'a pas d'effet sur le processus d'ionisation. La suite de la résolution se fait à l'aide de la méthode de la transformée de Laplace. Deux régimes d'intensité sont définis: le régime des champs faibles tel que $V > 1$ et le régime des champs forts pour lequel $V < 1$. Dans les deux cas, la probabilité d'ionisation peut s'écrire comme $w(t) = \exp(-\Gamma t)$. Toutefois, dans les deux régimes, la constante Γ prend des formes différentes; $\Gamma_{\text{champ faible}} = 2\pi |V_{nE}|^2 \sim n^{-3} V^2$ et $\Gamma_{\text{champ fort}} = 2\pi^{-3} n^{-3} V^{-2}$. Plutôt que d'utiliser la constante Γ , le processus d'ionisation peut être caractérisé par le temps de vie de l'atome t , qui est l'inverse de Γ :

$$\begin{aligned} t &= \frac{1}{2\pi} n^3 V^{-2} \text{ pour } V < 1, \\ &= \frac{1}{2} \pi^3 n^3 V^2 \text{ pour } V > 1. \end{aligned} \quad (8.5)$$

La dépendance de t en fonction de V est donnée à la figure 8.5b. Le temps de vie est minimum (c'est-à-dire que la probabilité d'ionisation est maximale quand $V = 1$). L'augmentation de t avec V pour $V > 1$ correspond à la stabilisation.

D'un point de vue physique, la stabilisation observée provient d'interférences destructives dues aux transitions entre états de Rydberg voisins et le continuum. Initialement, l'atome se trouve dans l'état n_0 ; les transitions dues aux couplages Raman vont ensuite peupler des états de Rydberg de nombre quantique principal $n' \neq n$; des résultats expérimentaux l'ont mis en évidence[Noo92]. Dans un champ faible monochromatique, de telles transitions entre des états d'énergie E_{n1} et E_{n2} différentes sont interdites par les lois de conservation. Toutefois, elles sont possibles si le champ est suffisamment intense: les transitions Raman sont à l'origine du peuplement des différents états. D'après leurs calculs, la condition sur le champ pour observer la stabilisation est que la largeur des états de Rydberg $\Gamma_i = 2\pi|V_{nE}|^2$, donnée par la règle d'or de Fermi, soit de l'ordre de l'écart en énergie entre deux états de Rydberg: $E_{n+1} - E_n \sim n^{-3}$, c'est-à dire quand $V = 1$ (cfr ci-dessus). En approximant V_{nE} par l'expression ci-dessus, ils trouvent comme condition pour la stabilisation: $E_0 > \omega^{5/3}$. C'est donc à partir de cette valeur pour le champ que la repopulation cohérente des états de Rydberg voisins se produit et que les transitions de ces états vers le continuum interfèrent destructivement, ce qui a pour conséquence de supprimer l'ionisation ou encore de stabiliser l'atome.

Nous avons essayé en vain de reproduire ces résultats à l'aide de notre méthode. Nous montrons à la figure 8.5c la probabilité d'ionisation en fonction du champ. L'atome est initialement dans un état $n = 25$ et $\omega = 2.72$ ou 5.44 eV. Pour $\omega = 0.1$ eV, on devrait observer la stabilisation pour des valeurs du champ de l'ordre de 10^8V cm^{-2} ($P/\omega = 0.1$); ce qui n'est pas le cas. A notre avis, les aspects quantitatifs des résultats de Fedorov doivent être considérés avec prudence. Cela pourrait provenir des nombreuses approximations. Toutefois, il faut souligner que l'idée générale du mécanisme proposé pour la stabilisation (interférences destructives) est, comme nous le voyons dans la suite, correcte.

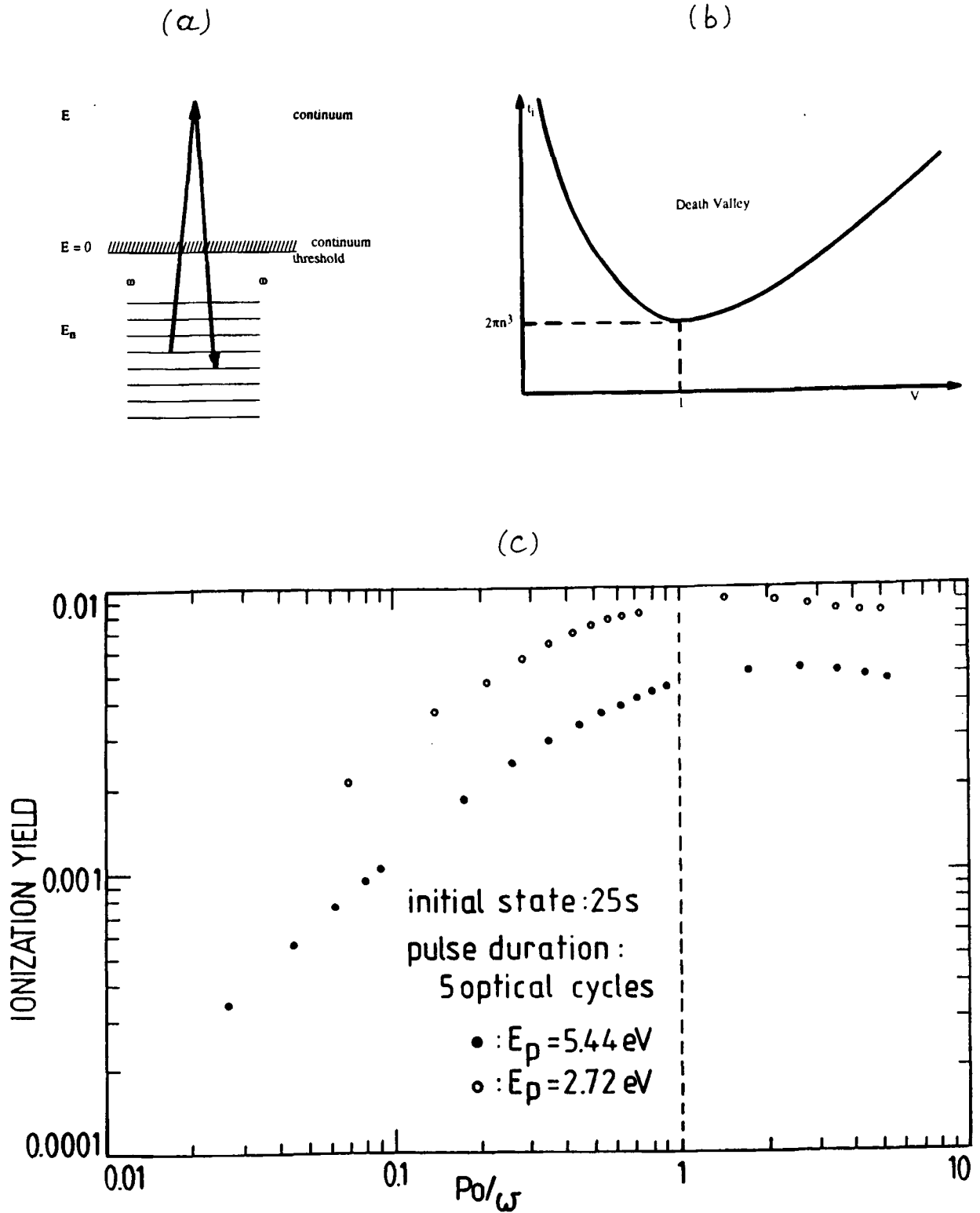


Figure 8.5 (a) Atome modélisé par Fédorov. (b) Temps de vie de l'atome en fonction du paramètre V qui est proportionnel au champ électrique E_0 . (c) Taux d'ionisation en fonction de l'intensité. L'atome est initialement dans l'état $|25s\rangle$ et l'énergie des photons est de 2.72 ou 5.44 eV. Contrairement à ce que Fedorov et Ivanov prédisent, on n'observe pas de stabilisation dès que $E_0 > \omega^{5/3}$, c'est-à-dire pour un champ de 10^8 V cm^{-2} ($P/\omega = 0.1$).

2 Effets de cohérence dans l'ionisation de H

Nous montrons que l'excitation de l'atome d'hydrogène, initialement dans l'état $|2s\rangle$, par une impulsion laser courte et intense peut mettre l'atome dans une superposition d'états p excités [Bur91] [Pir91]. Ce processus, qui provoque une inhibition substantielle de l'ionisation est, comme on peut s'y attendre, très sensible à la fréquence du laser et à la durée de l'impulsion; le but de cette section est d'analyser en détail le taux d'ionisation en fonction de ces paramètres du laser.

2.1 Influence de l'énergie des photons

Dans la figure 8.6, nous étudions le taux d'ionisation en fonction de l'énergie des photons. Nous supposons cette énergie inférieure au potentiel d'ionisation. Dans la figure 8.6a, la durée de l'impulsion, c'est-à-dire la largeur à mi-hauteur de l'enveloppe de l'impulsion, est égale à 5 cycles et deux intensités sont considérées pour le laser: $I_0 = 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ et $I_0 = 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$; ces intensités doivent être comparées avec $10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ qui est approximativement l'intensité du champ électrique coulombien associé à l'orbite $2s$. Bien que la durée de l'impulsion ne soit pas réaliste et change avec la fréquence, les résultats montrent l'existence de trois régimes.

Quand l'énergie du photon E_p est plus petite que 0.1 u.a. d'énergie, soit environ 2.7 eV, le taux d'ionisation croît, comme on peut s'y attendre, à cause de la résonance. Le maximum observé dans ce graphe pour $I_0 = 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ et $E_p = 0.09$ u.a d'énergie (2.5 eV) est le résultat de la transition résonnante $2s - 4p$. Pour une intensité de $I_0 = 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$, cette résonance n'est pas observée à cause de l'élargissement.

Le second régime correspond à des énergies pour les photons entre 0.1 et 0.12 u.a ou encore 2.7 eV et 3.25 eV; à la place d'une augmentation du taux d'ionisation dû à des résonances, on observe maintenant une suppression de l'ionisation. Il est important de noter que bien que nous ayons l'inhibition de l'ionisation, le taux d'ionisation continue à croître avec l'intensité du laser I_0 ; en d'autres mots, il n'y a pas encore de stabilisation au sens où nous l'entendons.

Finalement, nous observons une augmentation brutale du taux à des fréquences plus élevées. Dans ce cas, la largeur en fréquence de l'impulsion est suffisamment large pour recouvrir une partie du continuum et produire une ionisation à un photon significative.

Quand le FWHM (la largeur à mi-hauteur de l'impulsion) est de 20 cycles et que $I_0 = 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$, on observe des augmentations du taux d'ionisation aux résonances, et ce jusqu'à des énergies de photons de 3.13 eV. Les résonances correspondant aux transitions $2s - 4p$, $2s - 5p$ et $2s - 6p$ sont visibles. Le régime de suppression de l'ionisation est présent mais pour des fréquences de laser plus importantes; il est intéressant de remarquer que, dans ce cas, l'inhibition de l'ionisation est plus importante: le taux d'ionisation minimum est d'environ 5%, alors que pour des impulsions plus courtes, le taux minimum est de 10%. seulement quelques pourcents de la population totale s'ionisent.

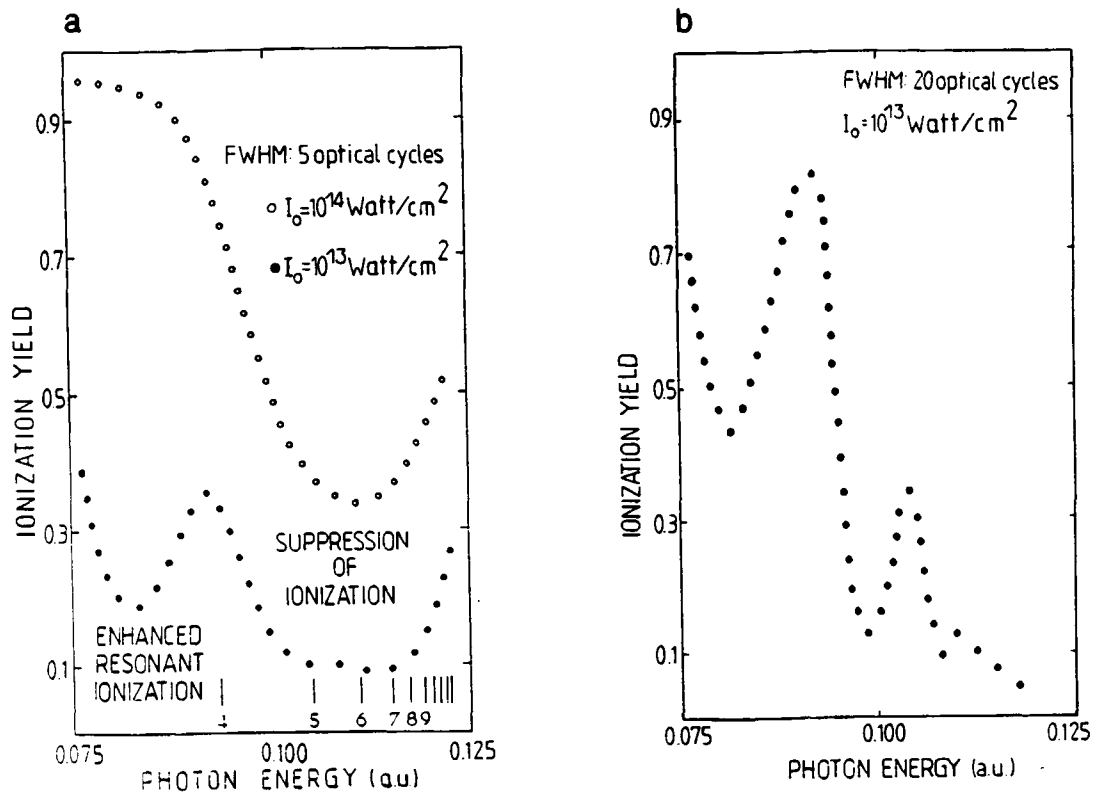


Figure 8.6 Taux d'ionisation à la fin de l'impulsion en fonction de l'énergie des photons. Les régimes d'augmentation de l'ionisation résonnante et de suppression de l'ionisation sont indiqués. Les lignes verticales 4, 5, 6, etc., réfèrent à la position non perturbée des résonances associées aux transitions $2s-4p$, $2s-5p$, $2s-6p$, etc. (graphe de gauche); la durée de l'impulsion (FWHM) est de 20 cycles et l'intensité maximum du champ est de $10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ (graphe de droite).

2.2 Influence de la durée de l'impulsion

Le comportement du taux d'ionisation en fonction de la durée de l'impulsion est étudié dans les figures 8.7 et 8.8 pour différentes fréquences du laser et pour une intensité fixée de $I_0 = 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$.

Quand l'énergie du photon E_p est égale à 2.5 eV, le taux d'ionisation augmente à cause de la résonnance intermédiaire correspondant à la transition $2s - 4p$. Comme la figure 8.7 le montre, l'ionisation complète de l'atome a lieu après seulement 35 cycles. Une étude plus détaillée montre qu'il ne subsiste aucune population dans l'état intermédiaire $4p$, excepté quand la durée de l'impulsion est très petite.

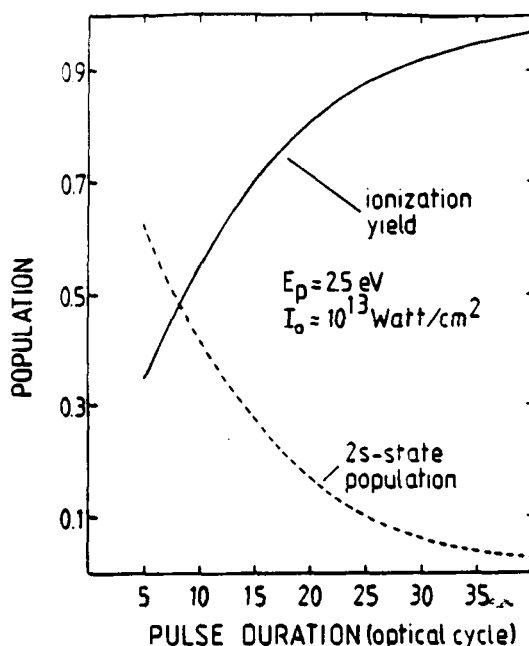


Figure 8.7 Taux d'ionisation (trait plein) et population restant dans l'état $2s$ à la fin de l'impulsion en fonction de la durée de l'impulsion (FWHM) exprimée en cycles optiques.

Comme on le voit à la figure 8.8, le comportement du taux d'ionisation est complètement différent pour des énergies de photons légèrement plus grandes. Quand E_p est égal à 3.21 eV, la transition $2s - 8p$ est quasi résonnante; dans ces conditions, le taux d'ionisation marque un minimum aux alentours de 30 cycles. Comme mentionné précédemment, l'augmentation rapide du taux pour des courtes durées d'impulsion est une conséquence de l'importante largeur spectrale de l'impulsion qui recouvre une partie importante du continuum. Près du minimum, les effets de cohérence deviennent dominants: 95 pourcents de la population est piégée dans une superposition d'états de Rydberg p , ce qui provoque une diminution substantielle de l'ionisation. Pour des impulsions plus longues, le taux d'ionisation croît avec la durée de l'impulsion; la situation est alors très semblable à celle rencontrée précédemment (figure 8.7); il n'y a plus d'effet de cohérence et la population

restant dans les états p (l'état $8p$ en particulier) à la fin de l'impulsion devient négligeable.

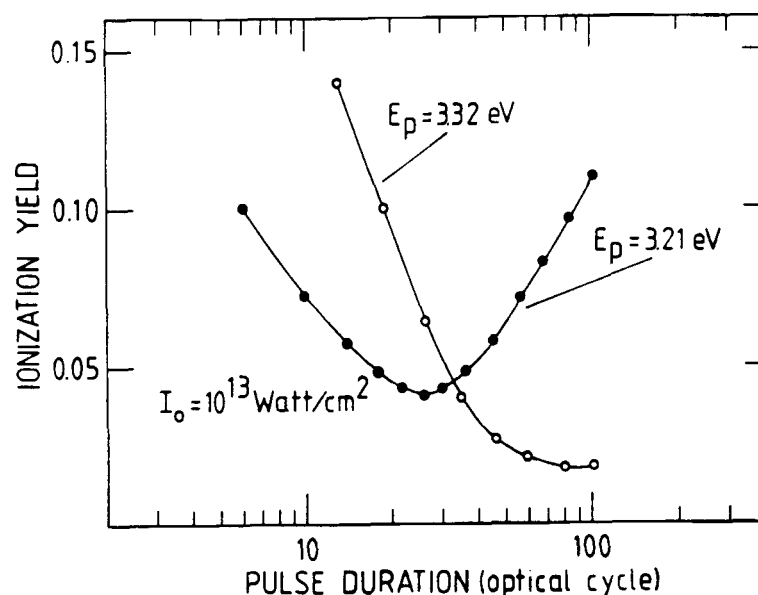


Figure 8.8 Taux d'ionisation à la fin de l'impulsion en fonction de la durée de l'impulsion. Quand E_p est égal à 3.21 eV, la transition $2s - 8p$ est quasi résonnante et quand E_p vaut 3.32 eV, c'est la transition $2s - 13p$ qui l'est.

Ceci est clairement visible à la figure 8.9 où la population de l'état $2s$ et la population totale laissée dans les états p sont données pour les mêmes paramètres. Après un régime transitoire caractérisé par une sorte d'oscillation de Rabi entre l'état $2s$ et plusieurs états p , la population du $2s$ commence à diminuer sans être piégée dans les états p à ce moment, le taux d'ionisation augmente. Il est intéressant de noter que ce piégeage de population subsiste jusqu'à ce que la durée de l'impulsion atteigne 100 cycles optiques; pour cette durée d'impulsion, la largeur spectrale de l'impulsion est plus petite que l'écart en énergie entre les états p intervenant dans le processus.

Quand l'énergie du photon E_p est égale à 3.32 eV, la transition $2s - 13p$ est quasi résonnante. Dans ce cas, le taux d'ionisation (figure 8.8) est minimal pour une durée d'impulsion de 100 cycles (130 fs). Il est aussi intéressant de noter que le taux d'ionisation au minimum est plus petit que pour $E_p = 3.21$ eV: seulement deux pourcents de la population s'ionisent au lieu d'environ cinq.

Ces résultats montrent clairement qu'à des intensités laser modérées, les effets de cohérence présentés ci-dessus, qui sont à l'origine d'une inhibition de l'ionisation, peuvent subsister pour des durées d'impulsions accessibles à l'expérimentation. A ce stade de la discussion, il est important de revenir une dernière fois sur le processus physique qui est à l'origine de l'inhibition de l'ionisation. Comme la transition $2s - np$ est quasi résonnante, la population est d'abord transférée de l'état $2s$ vers l'état intermédiaire np au tout début

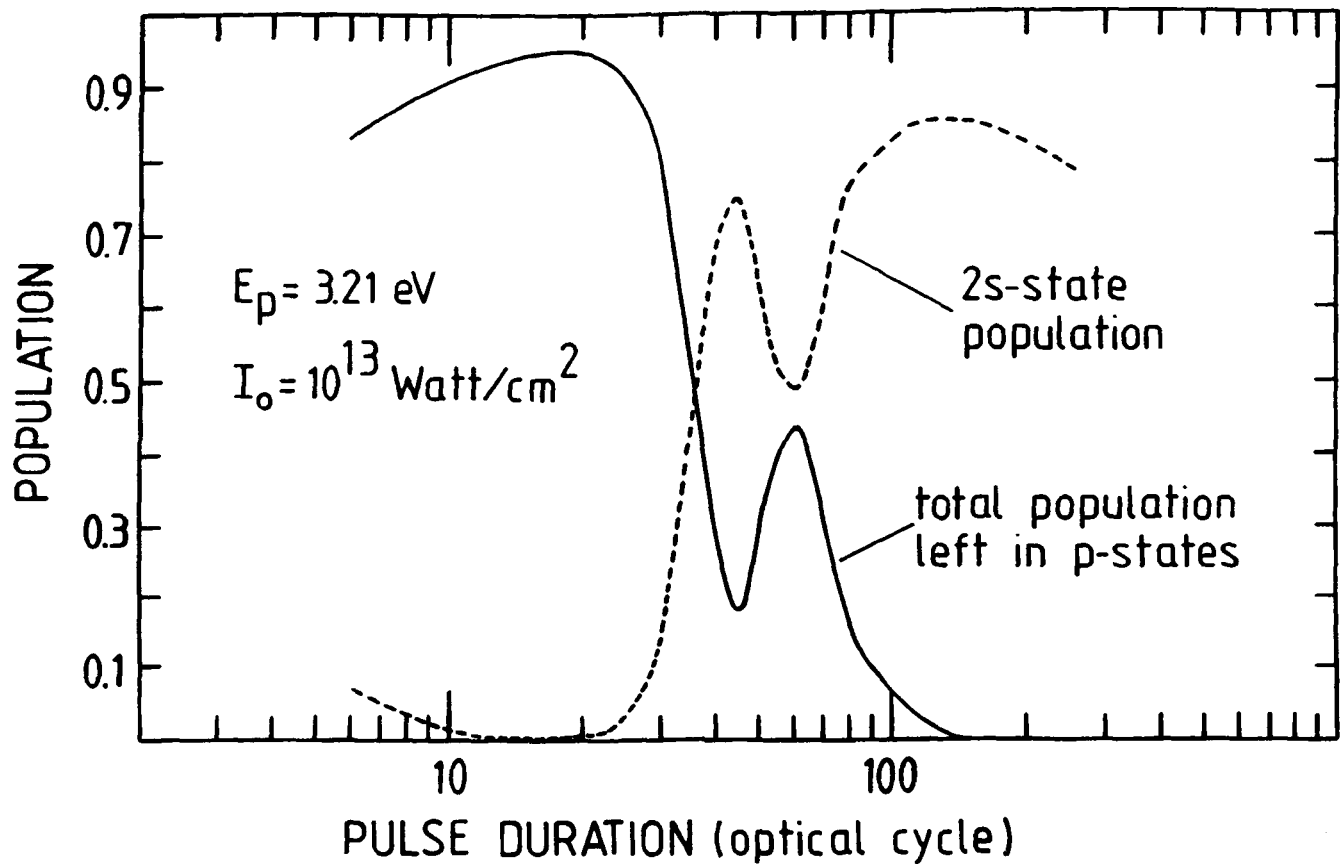


Figure 8.9 Population laissée à la fin de l'interaction dans l'état 2s et dans les états p.

de l'interaction de l'impulsion avec l'atome. Si la largeur en fréquence de l'impulsion est suffisamment grande, plusieurs états peuvent se peupler dès le début de l'impulsion. A des intensités plus grandes la population de l'état np est redistribuée parmi les autres états p via un couplage Raman ou parce que certains de ces états passent à la résonance. Comme résultat, un paquet d'onde d'états p est créé loin du noyau, dans une région de l'espace où l'interaction avec le noyau est faible. De plus, ce paquet d'onde est généralement non-harmonique: il s'étale donc très rapidement et son recouvrement avec le noyau reste très petit, ce qui conduit à une ionisation très faible.

3 Stabilisation à haute intensité

Des résultats expérimentaux montrent que le mécanisme physique décrit ci-dessus est à l'origine de l'inhibition de l'ionisation[Jon91]. Toutefois, la stabilisation à haute intensité telle que nous la définissons dans ce travail n'a pas encore été observée. Les résultats présentés ci-dessus, montrent clairement que la stabilisation ne se présente pas pour des champs électriques plus petits ou égaux au champ de liaison atomique. La situation change radicalement quand des intensités plus grandes sont considérées. A la figure 8.10, nous analysons le taux d'ionisation en fonction de l'intensité du champ laser I_0 pour plusieurs durées d'impulsion et énergies de photon E_p .

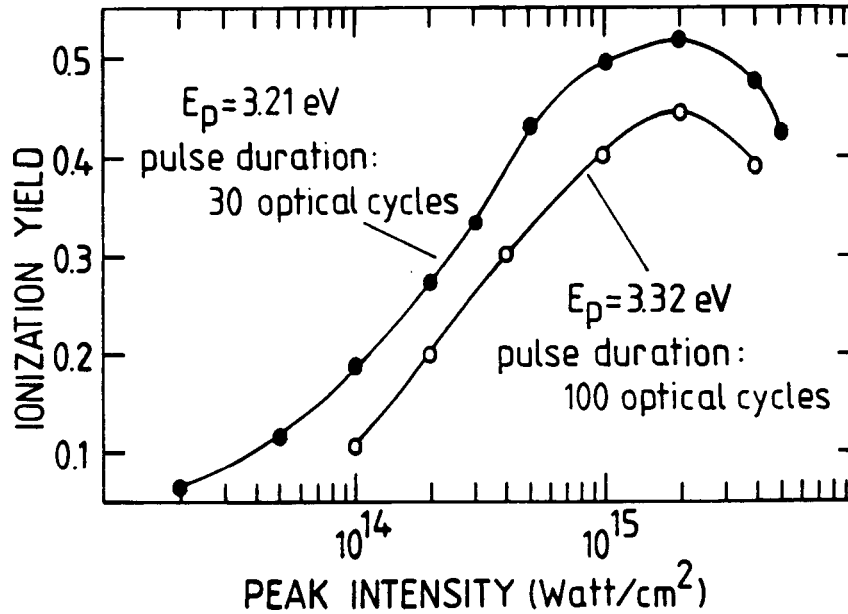


Figure 8.10 Taux d'ionisation en fonction de l'intensité maximale de l'impulsion I_0 en Watt/cm². Deux durées d'impulsion (fwhm) et énergie de photons E_p sont considérées. —●—: $E_p = 3.21$ eV et fwhm = 30 cycles; —○—: $E_p = 3.32$ eV et fwhm = 100 cycles.

Quand E_p est égal à 3.21 eV et la durée de l'impulsion vaut 30 cycles, le taux d'ionisation augmente lentement jusqu'à ce que I_0 égale 2×10^{15} Watt/cm² où il atteint un maximum avant de diminuer fortement. Dans le but de comprendre ce comportement, analysons maintenant comment, après l'interaction avec l'impulsion, la population totale laissée

dans tous les états liés d'un moment angulaire varie avec I_0 .

Ces résultats sont présentés à la figure 8.11. Pour des intensités modérées, $I_0 \leq 10^{14}$ Watt/cm², la population oscille entre les états s (principalement l'état $2s$) et un ensemble d'états p ; ces oscillations ne sont rien d'autre que les transitions de Rabi entre l'état initial et un ensemble d'états p excités durant l'interaction avec l'impulsion.

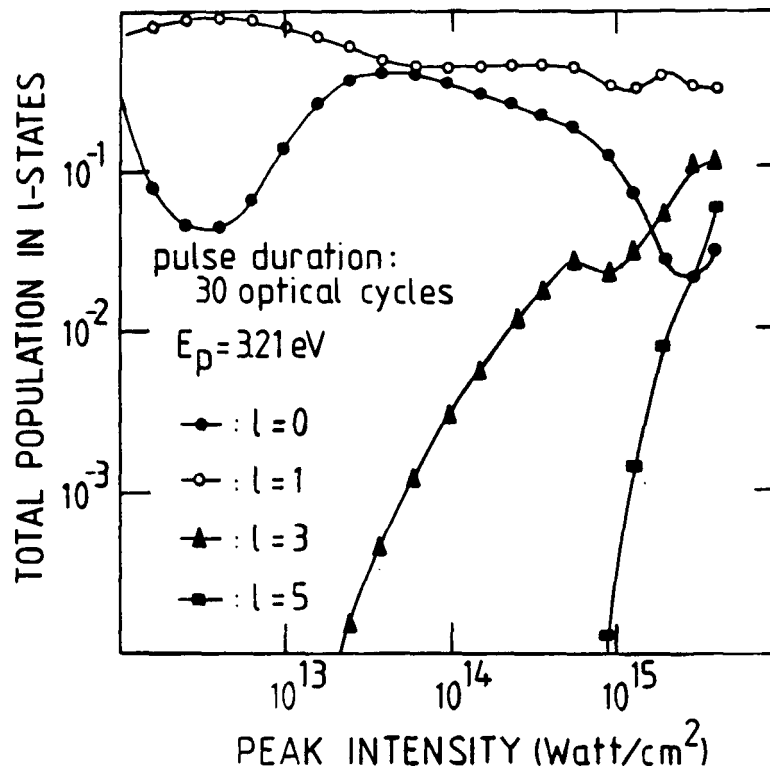


Figure 8.11 Population totale laissée (à la fin de l'impulsion) dans les états de moment angulaire l en fonction de l'intensité du laser en Watt/cm²; —●—: $l = 0$, —○—: $l = 1$, ▲: $l = 3$, ■: $l = 5$. L'énergie des photons est égale à 3.21 eV. Les populations des états $l = 2$ et $l = 4$ sont trop petites pour être représentées sur le graphe.

Il est intéressant de noter que pour $I_0 \leq 10^{15}$ Watt/cm², seulement trois moments angulaires ($l = 0, 1$ et 2) contribuent au développement de la fonction d'onde. Aux intensités plus grandes, une partie plus importante de la population est transférée vers des états excités de moment angulaire $l = 3$, $l = 5$ tandis que la population laissée dans les états de $l = 2, 4$ et 6 reste négligeable (voir figure 8.12). Cette migration de population se fait via un couplage Raman non-résonnant dégénéré que nous présentons à la figure 8.13.

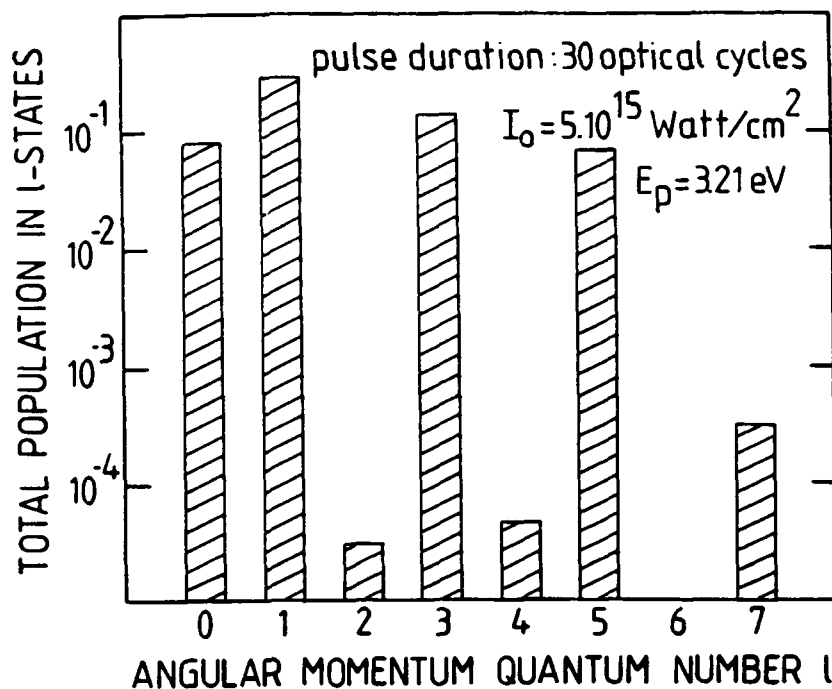


Figure 8.12 Population totale laissée (à la fin de l'impulsion) dans les états de moment angulaire l . L'intensité de l'impulsion est de 5×10^{15} Watt/cm², sa durée est de 30 cycles optiques et l'énergie du photon $E_p = 3.21$ eV.

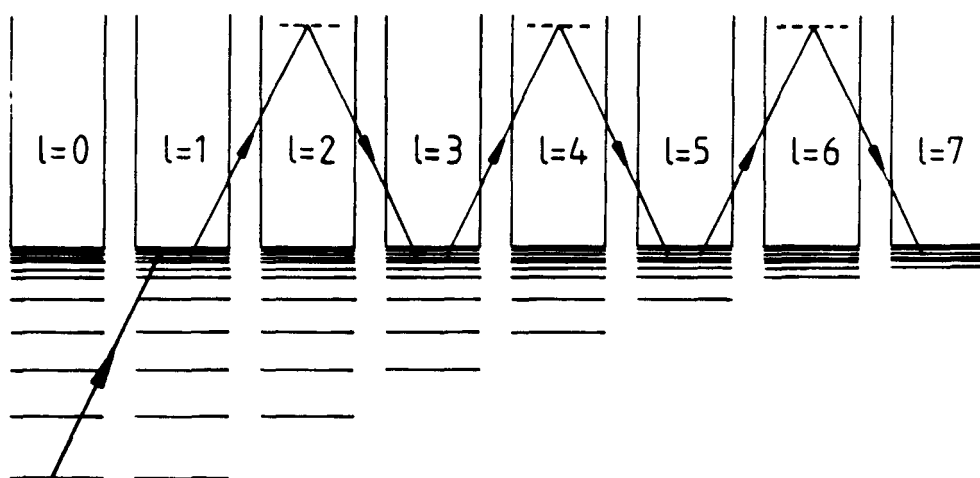


Figure 8.13 Représentation schématique du processus d'excitation qui provoque une migration de population vers les états de moment angulaire l élevé dans le cas de l'ionisation à deux photons de l'hydrogène initialement dans l'état $2s$ par une impulsion laser courte et intense.

Ce processus à deux photons qui couple des états de moment angulaire l et $l + 2$ est dégénéré car il implique des niveaux caractérisés par le même nombre quantique principal n . Il est non-résonnant parce que à la fréquence considérée ici, il n'y pas d'état intermédiaire discret de moment angulaire $l + 1$ accessible via une transition résonnante à un photon. Dans ce cas présent, le transfert de population se fait via des transitions avec le continuum. Le rôle du couplage Raman dégénéré a été étudié en détail par Grobe et al [Grob86]. Ils montrent que la migration de population est susceptible de se produire *seulement* si le processus est résonnant. Ce n'est pas le cas ici, mais pourtant, nous observons un transfert de population. Il est important de noter que, dans leur modèle, Grobe et al, analysent le transfert de population entre états uniques de l différents alors que, dans notre modèle, nous avons affaire à une superposition cohérente d'états qui est stable par rapport à l'ionisation pour une gamme importante d'intensité. Il en découle que le système peut être exposé à des intensités laser pour lesquelles le couplage Raman non-résonnant devient important par rapport au processus d'ionisation.

Pour une durée d'impulsion de 100 cycles et une énergie de photons de 3.32 eV, le comportement du taux d'ionisation en fonction de I_0 (fig 8.10) est très semblable à celui du cas précédent. Toutefois, la population laissée après l'interaction avec l'impulsion dans les états $l = 2, 4, 6, \dots$ n'est plus négligeable bien que, nous pouvons le voir à la figure 8.14, elle reste plus petite que dans les états de moment angulaire impair.

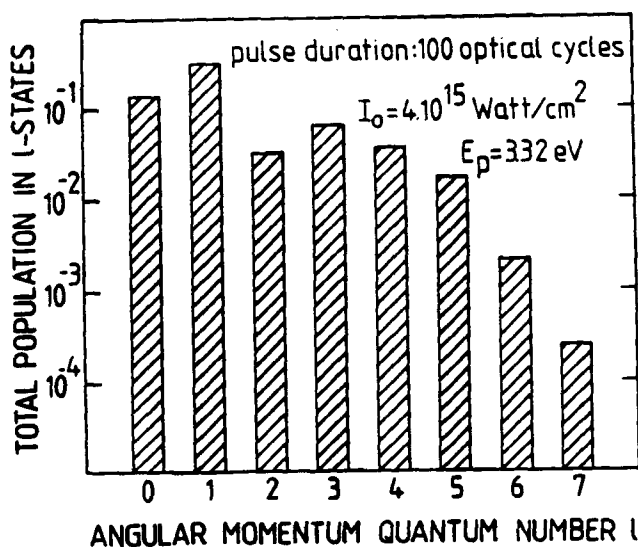


Figure 8.14 Population totale laissée (à la fin de l'impulsion) dans les états de moment angulaire l . L'intensité de l'impulsion est de $4 \times 10^{15} \text{ Watt/cm}^2$, sa durée est de 100 cycles optiques et l'énergie du photon $E_p = 3.32 \text{ eV}$.

La migration de population d'un ensemble d'états p vers des états de moment angulaire plus élevé donne lieu à la création de plusieurs paquets d'onde loin du noyau, c'est-à-dire

dans une région où l'interaction avec celui-ci est faible. C'est ce mécanisme qui est à l'origine de la diminution importante du taux d'ionisation en fonction de I_0 . Dans le but d'avoir une idée de l'extension spatiale du paquet d'onde, nous montrons à la figure 8.15, une coupe dans le graphe à 3 dimensions de $r^2|\Psi_B(\mathbf{r}, t)|^2 \sin \theta$ où $\Psi_B(\mathbf{r}, t)$ est la projection de la fonction d'onde totale sur les états liés de l'atome d'hydrogène. En d'autres mots, cela signifie que nous décomposons la fonction d'onde totale du système $\Psi(\mathbf{r}, t)$ comme suit:

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \Psi_B(\mathbf{r}, t) + \int dE a_E(t) \phi_E(\mathbf{r}) \quad (8.6)$$

avec

$$\Psi_B(\mathbf{r}, t) = \sum_{\text{états liés}} a_n(t) \phi_n(\mathbf{r}), \quad (8.7)$$

représentant la contribution des états liés à $\Psi(\mathbf{r}, t)$. L'axe vertical est l'axe z qui est choisi le long de l'axe de polarisation du champ électrique, et l'axe horizontal représente l'axe x . θ est l'angle entre l'axe z et $\mathbf{r}$. Les zones sombres correspondent aux régions de très faible densité de probabilité et les zones claires aux régions de très haute densité de probabilité. Nous voyons clairement, sur le graphe, deux régions principales de haute densité de probabilité: la première autour du noyau, couvre une surface assez importante et la seconde, caractéristique d'un paquet d'onde p , est approximativement à 500 unités atomiques du noyau.

Notons que le mécanisme proposé ici pour la stabilisation n'est en rien semblable à celui de Fedorov. Si nous considérons les paramètres de la simulation pour laquelle nous observons la stabilisation ($\omega = 0.118$ eV, impulsion gaussienne de 30 cycles, état initial: $|2s\rangle$), l'élargissement des états de Rydberg dans lesquels une partie de la population se trouve devient égal à l'écart en énergie de deux niveaux lorsque l'intensité vaut 2.8×10^{14} W cm $^{-2}$. D'après Fedorov, nous devrions déjà observer la stabilisation à cette intensité, ce qui n'est pas le cas.

A l'aide d'un modèle analytique simple, Ivanov [Iva93] a mis en évidence le même mécanisme pour la suppression de l'ionisation. Dans son article, il insiste plus sur les causes de l'extension spatiale du paquet d'onde. Elles sont au nombre de trois: (i) la largeur en fréquence de l'impulsion; (ii) le peuplement d'états de Rydberg voisins dû à la fois au couplage Raman avec le continuum et au couplage Raman avec l'état initial; (iii) l'extension spatiale rapide due au fait que les nombres quantiques principaux des états de Rydberg que nous considérons ne sont pas très élevés. Pour mettre en évidence l'importance du couplage des états de Rydberg avec l'état initial dans la suppression de l'ionisation, il considère des états de Rydberg de n grand afin d'avoir un étalement spatial lent et une impulsion longue pour que la largeur en fréquence de celle-ci soit petite par rapport à la distance entre les états de Rydberg. Il arrive à la conclusion que la stabilisation du paquet d'onde est due principalement au couplage des états de Rydberg avec l'état initial et aux interférences destructives des transitions vers le continuum.

Signalons pour terminer qu'un modèle analytique plus complexe développé par Wojcik et Parzynski [Woj95] confirme l'importance du transfert de population vers des états de moment angulaire élevé pour la stabilisation. Ce modèle montrerait aussi l'existence de "fenêtres de stabilité", c'est-à-dire des augmentations et diminutions successives du

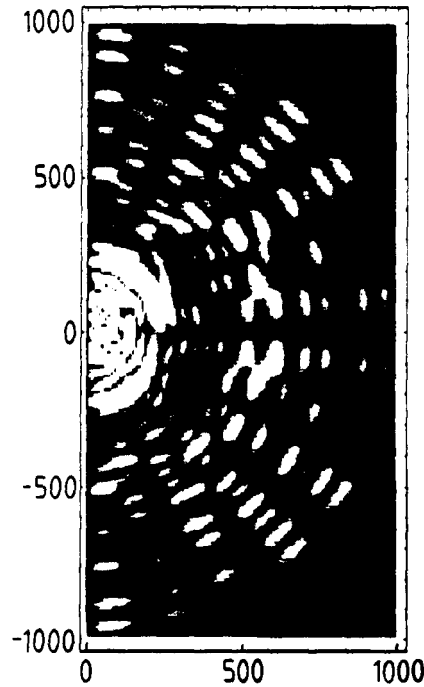


Figure 8.15 Coupe à trois dimensions du graphe de $r^2|\Psi_B(\mathbf{r}, t)|^2 \sin \theta$ pour la même simulation qu'à la fig 8.14; $\Psi_B(\mathbf{r}, t)$ est la projection (à la fin de l'impulsion) de la fonction d'onde totale sur les états liés de l'atome d'hydrogène (équation 8.5). L'axe vertical z est choisi le long de l'axe de polarisation du champ électrique et l'axe horizontal représente l'axe x . Les nombres indiqués sur le graphe sont les composantes z et x de $\mathbf{r}$ en unités atomiques. θ est l'angle entre l'axe z et $\mathbf{r}$. Les zones sombres correspondent aux régions de très faible densité de probabilité et les zones claires aux régions de très haute densité de probabilité.

taux d'ionisation lorsque l'intensité croît. A notre avis, ce résultat doit être pris avec la plus grande prudence. En effet, on s'attend à ce que l'ionisation par effet tunnel provoque une augmentation du taux d'ionisation lorsque l'intensité atteint un certain seuil. Concrètement, ce type d'ionisation joue un rôle significatif dès que le paramètre de Keldysh qui est défini comme:

$$\gamma = \sqrt{\frac{E_i}{2U_p}} \quad (8.8)$$

devient plus petit que 1 [Kel64]. E_i est le potentiel d'ionisation de l'atome et U_p , l'énergie pondéromotrice. Dans nos simulations, si l'état initial est le $|2s\rangle$ et si la fréquence des photons 0.118 u.a., le paramètre de Keldysh devient inférieur à 1 dès que l'intensité du champ est supérieure à $1.2 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$. Lorsque l'intensité atteint cette valeur (dans nos simulations, la stabilisation apparaît lorsque l'intensité vaut approximativement $2 \times 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$), on s'attend donc à une augmentation du taux d'ionisation.

Conclusions

Pour étudier l'interaction d'une impulsion laser courte et intense avec un atome d'hydrogène, nous avons développé une nouvelle approche de type spectral afin de résoudre l'équation de Schrödinger correspondante. Cette approche consiste à développer la fonction d'onde sur une base de fonctions de carré sommable (les fonctions sturmiennes) et à propager dans le temps la solution à l'aide d'une méthode de type Runge-Kutta implicite d'ordre élevé. L'algorithme numérique de propagation dans le temps est construit de manière telle à exploiter les ressources du calcul parallèle. Notons aussi que le nombre d'opérations pour la propagation sur un intervalle de temps est proportionnel au nombre de fonctions dans la base. Cette nouvelle méthode nous permet d'aborder des problèmes dans des interactions multiphotoniques non-accessibles par les méthodes usuelles.

Cette méthode nous a permis d'étudier l'inhibition de l'ionisation et la stabilisation de l'hydrogène atomique initialement dans l'état $|2s\rangle$ lors de l'interaction avec une impulsion laser polarisée linéairement. Dans les deux cas, l'ionisation se fait avec deux photons. L'inhibition de l'ionisation est la conséquence d'un effet de cohérence. Lors de l'interaction avec l'impulsion, l'atome est placé dans une superposition cohérente d'états de Rydberg qui rend l'atome stable pour l'ionisation. Ce transfert de population se fait soit par couplage Raman via le continuum ou les états fortement liés, soit par passage à des transitions résonnantes dues aux déplacements des niveaux, ou soit par le fait que la largeur en fréquence de l'impulsion courte est plus grande que l'écart en énergie des états de Rydberg. La stabilisation dynamique, c'est-à-dire la diminution du taux d'ionisation quand seule l'intensité augmente, s'explique à l'aide de deux mécanismes. Premièrement, par un transfert de population vers des états de Rydberg de moments angulaires élevés; dans ce cas, les paquets d'onde ainsi formés ont un recouvrement faible avec le noyau, ce qui empêche l'ionisation. Et deuxièmement, bien que nous n'avons pas pu le mettre clairement en évidence, par le rôle que joue l'état $|2s\rangle$; une partie de la population des états p est recapturée par ce dernier et ne peut donc pas s'ioniser.

Dans ce travail, nous ne nous sommes intéressés qu'à l'ionisation. Actuellement, cette méthode est utilisée pour étudier d'autres problèmes. Citons par exemple, la génération des harmoniques, l'interaction avec un champ dont la polarisation ou le profil temporel sont quelconques [Bug95a][Bug95b][Gaj96]. La généralisation de cette méthode se fait actuellement pour l'étude de l'équation de Dirac, pour le traitement des effets relativistes en champs forts ainsi que pour l'étude de l'interaction d'atomes à deux électrons avec une

impulsion laser.

Appendice A

Calculs sturmiens

1 Fonctions sturmiennes et polynômes de Laguerre

Les fonctions sturmiennes telles que nous les avons définies dans ce travail s'écrivent:

$$S_{n,l}^{\kappa}(r) = N_{n,l}^{\kappa} r^{l+1} e^{-\kappa r} {}_1F_1(-n+l+1; 2l+2; 2\kappa r), \quad (\text{A.1})$$

où

$$N_{n,l}^{\kappa} = \sqrt{\frac{\kappa}{n}} (2\kappa)^{l+1} \frac{1}{(2l+1)!} \left[\frac{(n+l)!}{(n-l-1)!} \right]^{1/2}; \quad (\text{A.2})$$

Ces fonctions peuvent s'exprimer en fonction des polynômes de Laguerre $L_n^{\alpha}(x)$. En utilisant (A.S. 13.6.9)[Abr70];

$$L_n^{\alpha}(x) = \frac{(n+\alpha)!}{n! \alpha!} {}_1F_1(-n; \alpha+1; x), \quad (\text{A.3})$$

nous avons

$${}_1F_1(-n+l+1; 2l+2; 2\kappa r) = \frac{(n-l-1)!(2l+1)!}{(n+l)!} L_{n-l-1}^{2l+1}(2\kappa r), \quad (\text{A.4})$$

et nous arrivons finalement à

$$S_{n,l}^{\kappa}(r) = \tilde{N}_{n,l}^{\kappa} r^{l+1} e^{-\kappa r} L_{n-l-1}^{2l+1}(2\kappa r) \quad (\text{A.5})$$

où

$$\tilde{N}_{n,l}^{\kappa} = N_{n,l}^{\kappa} \frac{(n-l-1)!(2l+1)!}{(n+l)!} = \sqrt{\frac{\kappa}{n}} (2\kappa)^{l+1} \left[\frac{(n-l-1)!}{(n+l)!} \right]^{1/2}. \quad (\text{A.6})$$

2 Relation de récurrence

En utilisant la relation de récurrence suivante pour les fonctions hypergéométriques (A.S. 13.4.1):

$$(b-a) {}_1F_1(a-1; b; z) + (2a-b+z) {}_1F_1(a; b; z) - a {}_1F_1(a+1; b; z) = 0, \quad (\text{A.7})$$

nous arrivons à une relation de récurrence pour les sturmiennes:

$$\begin{aligned} & \sqrt{(n-l)(n+l+1)(n+1)} S_{n+1,l}^\kappa(r) = \\ & 2\sqrt{n(n-\kappa r)} S_{n,l}^\kappa(r) + \sqrt{(n-l-1)(n+l)(n-1)} S_{n-1,l}^\kappa(r). \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

Il est possible de trouver d'autres expressions de ce type à partir des relations existantes entre les ${}_1F_1$ (A.S. 13.4.1 $\rightarrow$ A.S. 13.4.14).

3 Algorithme de calcul des hypergéométriques

L'évaluation de fonctions sturmiennes lorsque r devient grand pose un problème. En effet, si l'on développe la ${}_1F_1$, nous obtenons un polynôme de degré $n-l-1$ dont les termes sont alternativement positifs et négatifs. Pour des r grands, des imprécisions peuvent se présenter lors du calcul de cette somme. Nous contournons cette difficulté en utilisant l'algorithme suivant qui est basé sur la relation (A.S. 13.4.1)

4 Calcul des éléments de matrice

La forme générale des intégrales à évaluer pour calculer les éléments de matrice est la suivante:

$$\langle S_{n,l}^\kappa | r^\alpha | S_{n',l'}^\kappa \rangle = \int_0^\infty dr S_{n,l}^\kappa(r) r^\alpha S_{n',l'}^\kappa(r). \quad (\text{A.9})$$

Nous distinguons deux cas:

$$\alpha \geq 2 \max(l, l') - (l + l' + 1) = |l - l'| - 1 \quad (\text{A.10})$$

et

$$\alpha < 2 \max(l, l') - (l' + l + 1). \quad (\text{A.11})$$

Dans le premier cas ($\alpha \geq |l - l'| - 1$), nous ramenons l'intégrale (A.9) à une expression de la forme:

$$\int_0^\infty dx x^\beta e^{-x} L_n^\beta L_m^\beta. \quad (\text{A.12})$$

Ceci se fait à l'aide de la relation de récurrence suivante pour les polynômes de Laguerre:

$$L_n^{\beta-1}(x) = L_n^\beta(x) - L_{n-1}^\beta(x). \quad (\text{A.13})$$

Elle nous permet d'augmenter les indices supérieurs des L pour arriver à une intégrale de la forme (A.12) qui se calcule très facilement en utilisant (G.R. 7.414.3) [Gra94]:

$$\int_0^\infty dr x^\beta e^{-x} L_n^\beta L_m^\beta = \frac{\Gamma(\beta + n + 1)}{n!} \delta_{n,m}. \quad (\text{A.14})$$

Illustrons cela par un exemple:

$$\begin{aligned} \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n',l}^\kappa \rangle &= \tilde{N}_{n,l}^\kappa \tilde{N}_{n',l}^\kappa \int_0^\infty dr r^{2l+2} e^{-2\kappa r} L_{n-l-1}^{2l+1}(2\kappa r) L_{n'-l-1}^{2l+1}(2\kappa r) \\ &= \tilde{N}_{n,l}^\kappa \tilde{N}_{n',l}^\kappa (2\kappa)^{2l+3} \int_0^\infty dx x^{2l+2} e^{-x} \\ &\quad [L_{n-l-1}^{2l+2}(x) - L_{n-l-2}^{2l+2}(x)] [L_{n'-l-1}^{2l+2}(x) - L_{n'-l-2}^{2l+2}(x)] \\ &= \tilde{N}_{n,l}^\kappa \tilde{N}_{n',l}^\kappa (2\kappa)^{2l+3} \left[\frac{\Gamma(n+l+2)}{(n-l-1)!} \delta_{n,n'} + \frac{\Gamma(n+l+1)}{(n-l-2)!} \delta_{n,n'} \right. \\ &\quad \left. - \frac{\Gamma(n+l+2)}{(n-l-1)!} \delta_{n,n'-1} - \frac{\Gamma(n+l+1)}{(n-l-2)!} \delta_{n,n'+1} \right]. \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

Cette intégrale est non-nulle dans trois cas seulement: $n' = n - 1$, $n' = n$ et $n' = n + 1$. Nous obtenons finalement que:

$$\begin{aligned} \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n,l}^\kappa \rangle &= \tilde{N}_{n,l}^\kappa \tilde{N}_{n,l}^\kappa (2\kappa)^{2l+3} \left[\frac{(n+l+1)!}{(n-l-1)!} + \frac{(n+l)!}{(n-l-2)!} \right] \\ &= 1 \end{aligned} \quad (\text{A.16})$$

$$\begin{aligned} \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n+1,l}^\kappa \rangle &= \tilde{N}_{n,l}^\kappa \tilde{N}_{n+1,l}^\kappa (2\kappa)^{2l+3} \left[-\frac{(n+l+1)!}{(n-l-1)!} \right] \\ &= -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n-l)(n+l+1)}{n(n+1)}} \end{aligned} \quad (\text{A.17})$$

$$\begin{aligned} \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n-1,l}^\kappa \rangle &= \tilde{N}_{n,l}^\kappa \tilde{N}_{n-1,l}^\kappa (2\kappa)^{2l+3} \left[-\frac{(n+l)!}{(n-l-2)!} \right] \\ &= -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n-l-1)(n+l)}{n(n-1)}}. \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

Examinons maintenant le cas (nettement plus compliqué) où $\alpha < |l - l'| - 1$. L'idée générale est de développer les ${}_1F_1$ en polynômes, de calculer l'intégrale et ensuite de faire apparaître une ${}_2F_1$ dont l'argument est 1. Cette dernière peut se réexprimer à l'aide de la fonction Γ . Voici le détail des calculs;

$$\begin{aligned} I &= \langle S_{n,l}^\kappa | r^\alpha | S_{n',l'}^\kappa \rangle \\ &= N_{n,l}^\kappa N_{n',l'}^\kappa \int_0^\infty dr r^\alpha [r^{l+1} e^{-\kappa r} {}_1F_1(-n+l+1; 2l+2; 2\kappa r) \\ &\quad r^{l'+1} e^{-\kappa r} {}_1F_1(-n'+l'+1; 2l'+2; 2\kappa r)], \end{aligned} \quad (\text{A.19})$$

en posant $2\kappa r = x$ et en développant les ${}_1F_1$, on arrive à:

$$I = N_{n,l}^\kappa N_{n',l'}^\kappa (2\kappa)^{-(\alpha+l+l'+3)} \sum_{s=0}^{n-l-1} \left[\sum_{t=0}^{n'-l'-1} \frac{(-n+l+1)_s}{(2l+2)_s} \frac{1}{s!} \frac{(-n'+l'+1)_t}{(2l'+2)_t} \frac{1}{t!} \right]$$

$$\int_0^\infty dx e^{-x} x^{\alpha+l+l'+2+s+t} \Big], \quad (\text{A.20})$$

où $(a)_n = a(a+1)(a+2)\dots(a+n-1)$ est un symbole de Pochhammer. L'intégrale apparaissant dans cette expression se calcule facilement:

$$\int_0^\infty dx e^{-x} x^{\alpha+l+l'+2+s+t} = (\alpha+l+l'+2+s+t)!. \quad (\text{A.21})$$

Si nous posons maintenant $m = \min(n-l-1, n'-l'-1) \equiv n_m - l_m - 1$ et $\mu = \max(n-l-1, n'-l'-1) \equiv n_\mu - l_\mu - 1$, I se réécrit alors,

$$\begin{aligned} I &= N_{n_m, l_m}^\kappa N_{n_\mu, l_\mu}^\kappa (2\kappa)^{-(\alpha+l_m+l_\mu+3)} \\ &\sum_{\tau=0}^m \left[\frac{(-1)^\tau (n_m - l_m - 1)!}{(n_m - l_m - 1 - \tau)!} \frac{(2l_m + 1)!}{(2l_m + 1 + \tau)!} \frac{1}{\tau!} (\alpha + l_m + l_\mu + \tau + 2)! \right. \\ &\quad \left. \sum_{\sigma=0}^\mu \frac{(-n_\mu + l_\mu + 1)_\sigma}{(2l_\mu + 2)_\sigma} \frac{1}{\sigma!} (\alpha + l_m + l_\mu + \tau + 3)_\sigma \right]. \end{aligned} \quad (\text{A.22})$$

Nous utilisons les relations suivantes entre les symboles de Pochhammer pour arriver à l'équation (A.22)

$$(a)_n = \frac{(a+n-1)!}{(a-1)!} \quad (\text{A.23})$$

et

$$(-a)_n = (-1)^n \frac{a!}{(a-n)!}. \quad (\text{A.24})$$

La dernière somme dans (A.22) est le développement polynômial de ${}_2F_1(-n_\mu + l_\mu + 1, \alpha + l_m + l_\mu + \tau + 3; 2l_\mu + 2; 1)$, qui vaut (A.S. 15.1.20):

$$\begin{aligned} &{}_2F_1(-n_\mu + l_\mu + 1, \alpha + l_m + l_\mu + \tau + 3; 2l_\mu + 2; 1) \\ &= \frac{\Gamma(2l_\mu + 2) \Gamma(n_\mu - l_m - \alpha - \tau - 2)}{\Gamma(n_\mu + l_\mu + 1) \Gamma(l_\mu - l_m - \alpha - \tau - 1)} \\ &= \frac{(2l_\mu + 1)!}{(n_\mu + l_\mu)!} (l_\mu - l_m - \alpha - \tau - 1)_{n_\mu - l_\mu - 1}. \end{aligned} \quad (\text{A.25})$$

En utilisant ce résultat, nous arrivons finalement à:

$$\begin{aligned} I &= N_{n_m, l_m}^\kappa N_{n_\mu, l_\mu}^\kappa (2\kappa)^{-(\alpha+l_m+l_\mu+3)} \\ &\times (2l_m + 1)!(2l_\mu + 1)! \frac{(n_m - l_m - 1)!}{(n_\mu + l_\mu)!} \sum_{\tau=0}^m \left[\frac{(-1)^\tau}{\tau!} \right. \\ &\quad \left. \times \frac{(\alpha + l_m + l_\mu + \tau + 2)!}{(2l_m + 1 + \tau)!} \frac{(l_\mu - l_m - \alpha - \tau - 1)_{n_\mu - l_\mu - 1}}{(n_m - l_m - 1 - \tau)!} \right], \end{aligned} \quad (\text{A.26})$$

qui après quelques manipulations se transforme comme suit:

$$I = \frac{\kappa(2\kappa)^{-(\alpha+1)}}{\sqrt{n_\mu n_m}} \sqrt{\frac{\binom{n_m + l_m}{2l_m + 1}}{\binom{n_\mu + l_\mu}{2l_\mu + 1}}} \sqrt{\frac{(2l_m + 1)!}{(2l_\mu + 1)!}}$$

$$\times \sum_{\tau=0}^{n_m-l_m-1} \left[\frac{(-1)^\tau (\alpha + l_m + l_\mu + \tau + 2)!}{\tau! (2l_m + 1 + \tau)!} (n_m - l_m - \tau)_\tau \frac{(l_\mu - l_m - \alpha - \tau - 1)_{n_\mu-l_\mu-1}}{(n_\mu - l_\mu - 1)!} \right] \quad (\text{A.27})$$

où $m = \min(n-l-1, n'-l'-1) \equiv n_m - l_m - 1$ et $\mu = \max(n-l-1, n'-l'-1) \equiv n_\mu - l_\mu - 1$. Ces méthodes d'intégration nous permettent de calculer n'importe quel type d'intégrale faisant intervenir deux fonctions sturmiennes et une puissance de r , positive ou négative. Nous présentons les résultats des intégrales utilisées dans ce travail.

Examinons d'abord les cas où $l' = l$:

$$\langle S_{n,l}^\kappa | \frac{1}{r^2} | S_{n',l}^\kappa \rangle = \frac{2\kappa^2}{\sqrt{nn'}} \left(\frac{1}{2l+1} \right) \sqrt{\frac{\binom{n_{<}+l}{2l+1}}{\binom{n_{>}+l}{2l+1}}} \quad \text{où } n_{>} = \max(n, n') \text{ et } n_{<} = \min(n, n') \quad (\text{A.28})$$

$$\begin{aligned} \langle S_{n,l}^\kappa | \frac{1}{r} | S_{n',l}^\kappa \rangle &= \frac{\kappa}{n} \text{ si } n = n' \\ &= 0 \text{ sinon} \end{aligned} \quad (\text{A.29})$$

$$\begin{aligned} \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n',l}^\kappa \rangle &= -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n-l-1)(n+l)}{n(n-1)}} \text{ si } n' = n-1 \\ &= 1 \text{ si } n' = n \\ &= -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n-l)(n+l+1)}{n(n+1)}} \text{ si } n' = n+1 \\ &= 0 \text{ sinon} \end{aligned} \quad (\text{A.30})$$

Passons aux cas où $l' = l \pm 1$:

$$\begin{aligned} \langle S_{n,l}^\kappa | \frac{1}{r^2} | S_{n',l-1}^\kappa \rangle &= \frac{2\kappa^2}{\sqrt{nn'}} \frac{(n-n')}{\sqrt{2l(2l+1)}} \sqrt{\frac{\binom{n'+l-1}{n'-l}}{\binom{n+l}{n-l-1}}} \text{ si } n > n' \\ &= 0 \text{ sinon} \end{aligned} \quad (\text{A.31})$$

$$\begin{aligned} \langle S_{n,l}^\kappa | \frac{1}{r^2} | S_{n',l+1}^\kappa \rangle &= \frac{2\kappa^2}{\sqrt{nn'}} \frac{(n'-n)}{\sqrt{(2l+2)(2l+3)}} \sqrt{\frac{\binom{n+l}{n-l-1}}{\binom{n'+l+1}{n'-l-2}}} \text{ si } n' > n \\ &= 0 \text{ sinon} \end{aligned} \quad (\text{A.32})$$

$$\begin{aligned} \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n',l-1}^\kappa \rangle &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n+l)(n+l-1)}{n(n-1)}} \text{ si } n' = n-1 \\ &= -\frac{1}{n} \sqrt{(n-l)(n+l)} \text{ si } n' = n \\ &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n-l)(n-l+1)}{n(n+1)}} \text{ si } n' = n+1 \\ &= 0 \text{ sinon} \end{aligned} \quad (\text{A.33})$$

$$\begin{aligned}
\langle S_{n,l}^\kappa | S_{n',l+1}^\kappa \rangle &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n-l-1)(n-l-2)}{n(n-1)}} \text{ si } n' = n-1 \\
&= -\frac{1}{n} \sqrt{(n-l-1)(n+l+1)} \text{ si } n' = n \\
&= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n+l+1)(n+l+2)}{n(n+1)}} \text{ si } n' = n+1 \\
&= 0 \text{ sinon}
\end{aligned} \tag{A.34}$$

$$\begin{aligned}
\langle S_{n,l}^\kappa | r | S_{n',l-1}^\kappa \rangle &= -\frac{1}{4\kappa} \sqrt{\frac{(n-l-1)(n-l-2)(n-l-3)(n+l)}{n(n-2)}} \text{ si } n' = n-2 \\
&= \frac{1}{2\kappa} \sqrt{\frac{(n-l-1)(n-l-2)}{n(n-1)}} (2n+l) \text{ si } n' = n-1 \\
&= -\frac{3}{2\kappa} \sqrt{(n-l-1)(n+l+1)} \text{ si } n' = n \\
&= \frac{1}{2\kappa} \sqrt{\frac{(n+l+1)(n+l+2)}{n(n+1)}} (2n-l) \text{ si } n' = n+1 \\
&= -\frac{1}{4\kappa} \sqrt{\frac{(n+l+1)(n+l+2)(n+l+3)(n-l)}{n(n+2)}} \text{ si } n' = n+2 \\
&= 0 \text{ sinon}
\end{aligned} \tag{A.35}$$

$$\begin{aligned}
\langle S_{n,l}^\kappa | r | S_{n',l+1}^\kappa \rangle &= -\frac{1}{4\kappa} \sqrt{\frac{(n+l-1)(n+l-2)(n+l)(n-l-1)}{n(n-2)}} \text{ si } n' = n-2 \\
&= \frac{1}{2\kappa} \sqrt{\frac{(n+l-1)(n+l)}{n(n-1)}} (2n-l-1) \text{ si } n' = n-1 \\
&= -\frac{3}{2\kappa} \sqrt{(n-l)(n+l)} \text{ si } n' = n \\
&= \frac{1}{2\kappa} \sqrt{\frac{(n-l+1)(n-l)}{n(n+1)}} (2n+l-1) \text{ si } n' = n+1 \\
&= -\frac{1}{4\kappa} \sqrt{\frac{(n-l+2)(n-l+1)(n-l)(n+l+1)}{n(n+2)}} \text{ si } n' = n+2 \\
&= 0 \text{ sinon .}
\end{aligned} \tag{A.36}$$

```

double precision function fl1(nn,nb,yy)
c *****
c *   Evaluates the confluent hypergeometric function denoted by   *
c *   fl1(-nn,nb,yy) where nn and nb are integers (--> it reduces   *
c *   to polynomials). The method of calculation is based on a     *
c *   recursion formula (Abramowitz and Stegun 13.4.1).             *
c *****

implicit double precision (a-h,o-z)

one=1.d0
two=2.d0

b=dbl( float(nb) )
u0=one
u1=one-yy/b

fl1=u0
if(nn.eq.0) return

fl1=u1
if(nn.eq.1) return

do 1 m=2,nn
  am=dbl( float(m) )
  rm=am-one
  rx=rm*u0
  ry=(-two*rm-b+yy)*u1
  u2=-(rx+ry)/(b+rm)
  u0=u1
  u1=u2
1 continue

fl1=u2
return
end

```

Figure A.1 Algorithme de calcul des ${}_1F_1$.

Appendice B

Equation de Schrödinger

Dans cet appendice, nous présentons le détail des calculs qui nous permettent d'obtenir une formulation matricielle pour l'équation de Schrödinger

$$i\frac{\partial}{\partial t}\Psi(\mathbf{r}, t) = \left[-\frac{1}{2}\nabla^2 - \frac{1}{r} + \vec{\mathbf{A}}(t) \cdot \hat{\mathbf{p}} \right] \Psi(\mathbf{r}, t), \quad (\text{B.1})$$

quand la fonction d'onde $\Psi(\mathbf{r}, t)$ est développée sur une base de fonctions sturmiennes:

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \sum_{n', l', m'} a_{n', l', m'}(t) \frac{S_{n', l'}^\kappa(r)}{r} Y_{l', m'}(\hat{\mathbf{r}}). \quad (\text{B.2})$$

1 Effet des opérateurs

Examinons tout d'abord le cas de l'opérateur hamiltonien atomique $\hat{H}_0$:

$$\begin{aligned} \hat{H}_0 \Psi(\mathbf{r}, t) &= \left(-\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} - \frac{1}{r} \frac{d}{dr} + \frac{l(l+1)}{2r^2} - \frac{1}{r} \right) \sum_{n', l', m'} a_{n', l', m'}(t) \frac{S_{n', l'}^\kappa(r)}{r} Y_{l', m'}(\hat{\mathbf{r}}) \\ &= \sum_{n', l', m'} a_{n', l', m'}(t) \left(\frac{\kappa n'}{r} - \frac{1}{r} - \frac{\kappa^2}{2} \right) \frac{S_{n', l'}^\kappa(r)}{r} Y_{l', m'}(\hat{\mathbf{r}}), \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

Pour obtenir ces résultats, nous utilisons l'équation différentielle satisfaite par les fonctions sturmiennes:

$$\left(-\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} - \frac{1}{r} \frac{d}{dr} + \frac{l(l+1)}{2r^2} - \frac{\kappa n}{r} + \frac{\kappa^2}{2} \right) \frac{S_{n, l}^\kappa(r)}{r} = 0. \quad (\text{B.4})$$

Passons à $\vec{\mathbf{A}}(t) \cdot \hat{\mathbf{p}}$. Dans le cas d'une polarisation linéaire, le potentiel vecteur peut être pris comme étant parallèle à l'axe OZ : $\vec{\mathbf{A}}(t) \parallel OZ$; on peut donc le réécrire sous la forme $\vec{\mathbf{A}}(t) \equiv g(t)\hat{\mathbf{z}}$.

$$\vec{\mathbf{A}}(t) \cdot \hat{\mathbf{p}} \Psi(\mathbf{r}, t) = g(t)\hat{\mathbf{z}} \left(-i \left[\mathbf{r}, \hat{H}_0 \right] \right) \sum_{n', l', m'} a_{n', l', m'}(t) \frac{S_{n', l'}^\kappa(r)}{r} Y_{l', m'}(\hat{\mathbf{r}})$$

$$= -ig(t) \sum_{n',l',m'} \left[a_{n',l',m'}(t) \left(r \hat{H}_0 - \hat{H}_0 r \right) \frac{S_{n',l'}^\kappa(r)}{r} \cos \theta Y_{l',m'}(\hat{\mathbf{r}}) \right] \quad (\text{B.5})$$

où $\hat{\mathbf{p}} = -i(r\hat{H}_0 - \hat{H}_0 r)$ et $\hat{\mathbf{z}} \cdot \mathbf{r} = r \cos \theta$.

2 Formulation matricielle

Pour obtenir des équations différentielles pour chacune des amplitudes $a_{n,l,m}(t)$ et présenter le système ainsi obtenu sous une forme matricielle, nous multiplions l'équation (B.1) par $\frac{S_{n,l}^\kappa(r)}{r} Y_{l,m}^*(\hat{\mathbf{r}})$ et nous intégrons sur tout l'espace ($\int_0^\infty r^2 dr \int d\Omega$). Le membre de gauche de (B.3) devient:

$$\begin{aligned} & i \frac{\partial}{\partial t} \sum_{n',l',m'} a_{n',l',m'}(t) \int_0^\infty r^2 dr \frac{S_{n,l}^\kappa(r)}{r} \frac{S_{n',l'}^\kappa(r)}{r} \int d\Omega Y_{l,m}^*(\hat{\mathbf{r}}) Y_{l',m'}(\hat{\mathbf{r}}) \\ &= i \frac{\partial}{\partial t} \sum_{n',l',m'} a_{n',l',m'}(t) \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n',l'}^\kappa \rangle \delta_{l,l'} \delta_{m,m'} \\ &= i \left[a_{n-1,l,m}(t) \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n-1,l}^\kappa \rangle + a_{n,l,m}(t) \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n,l}^\kappa \rangle + a_{n+1,l,m}(t) \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n+1,l}^\kappa \rangle \right]. \end{aligned} \quad (\text{B.6})$$

Le premier terme du membre de droite (hamiltonien atomique $\hat{H}_0$) se transforme comme suit:

$$\begin{aligned} & \sum_{n',l',m'} a_{n',l',m'}(t) \int_0^\infty r^2 dr \frac{S_{n,l}^\kappa(r)}{r} \left(\frac{\kappa n'}{r} - \frac{1}{r} - \frac{\kappa^2}{2} \right) \frac{S_{n',l'}^\kappa(r)}{r} \int d\Omega Y_{l,m}^*(\hat{\mathbf{r}}) Y_{l',m'}(\hat{\mathbf{r}}) \\ &= \sum_{n',l',m'} a_{n',l',m'}(t) \left[(\kappa n' - 1) \langle S_{n,l}^\kappa | \frac{1}{r} | S_{n',l'}^\kappa \rangle - \frac{\kappa^2}{2} \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n',l'}^\kappa \rangle \right] \delta_{l,l'} \delta_{m,m'} \\ &= (\kappa n - 1) \frac{\kappa}{n} a_{n,l,m}(t) - \frac{\kappa^2}{2} \left[a_{n-1,l,m}(t) \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n-1,l}^\kappa \rangle + a_{n,l,m}(t) \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n,l}^\kappa \rangle \right. \\ & \quad \left. + a_{n+1,l,m}(t) \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n+1,l}^\kappa \rangle \right], \end{aligned} \quad (\text{B.7})$$

tandis que l'hamiltonien d'interaction nous donne:

$$\begin{aligned} & -ig(t) \sum_{n',l',m'} a_{n',l',m'}(t) \int_0^\infty r^2 dr \left[\frac{S_{n,l}^\kappa(r)}{r} (r \hat{H}_0 - \hat{H}_0 r) \frac{S_{n',l'}^\kappa(r)}{r} \right. \\ & \quad \left. \int d\Omega Y_{l,m}^*(\hat{\mathbf{r}}) \cos \theta Y_{l',m'}(\hat{\mathbf{r}}) \right] \\ &= -ig(t) \sum_{n',l',m'} a_{n',l',m'}(t) \langle S_{n,l}^\kappa | \kappa(n - n') | S_{n',l'}^\kappa \rangle (\delta_{l-1,l'} \Theta_{l-1,m} + \delta_{l+1,l'} \Theta_{l+1,m}) \delta_{m,m'} \\ &= -ig(t) \left[a_{n-1,l-1,m}(t) \Theta_{l-1,m} \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n-1,l-1}^\kappa \rangle \right. \\ & \quad \left. + a_{n+1,l-1,m}(t) \Theta_{l-1,m} \langle S_{n,l}^\kappa | S_{n+1,l-1}^\kappa \rangle \right] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& +a_{n-1,l+1,m}(t)\Theta_{l+1,m}\langle S_{n,l}^\kappa|S_{n-1,l+1}^\kappa\rangle \\
& +a_{n+1,l+1,m}(t)\Theta_{l+1,m}\langle S_{n,l}^\kappa|S_{n+1,l+1}^\kappa\rangle]
\end{aligned} \tag{B.8}$$

où

$$\Theta_{l-1,m} = \sqrt{\frac{(l-m)(l+m)}{(2l+1)(2l-1)}} \tag{B.9}$$

$$\Theta_{l+1,m} = \sqrt{\frac{(l-m+1)(l+m+1)}{(2l-1)(2l+1)}} \tag{B.10}$$

Dans le cas d'une polarisation linéaire, le nombre quantique m ne varie pas. Dans la suite de ce travail, et afin d'alléger les notations, nous ne l'écrivons plus. Jusqu'à présent, l'indice n des fonctions sturmiennes prend les valeurs $n = l+1, l+2, \dots$; il est utile, pour la programmation, de considérer un indice qui commence à 1. Nous effectuons le changement de variable $n_{old} = n_{new} + l$.

Si l'on tient compte de ces remarques et de (B.6), (B.7) et (B.8), l'équation de Schrödinger (B.1) prend une forme matricielle très simple:

$$iS \frac{\partial}{\partial t} \Psi = [H_0 + g(t)V] \Psi. \tag{B.11}$$

Ψ est le vecteur d'état du système dans la base sturmienne:

$$\Psi = \begin{pmatrix} a_{1,m}(t) \\ \vdots \\ a_{N,m}(t) \\ a_{1,m+1}(t) \\ \vdots \\ a_{N,m+1}(t) \\ \vdots \\ \vdots \\ a_{1,m+L}(t) \\ \vdots \\ a_{N,m+L}(t) \end{pmatrix} \quad (\text{B.12})$$

en supposant la fonction d'onde développée sur une base comportant les moments angulaires $l = m, \dots, m+L$ et N fonctions sturmiennes par moment angulaire ($n = 1, \dots, N$). S , que nous appelons matrice de recouvrement, est tridiagonale, réelle et symétrique:

$$S = \begin{bmatrix} S^0 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & S^1 & \ddots & \vdots \\ & \ddots & \ddots & \ddots \\ \vdots & & \ddots & \ddots & 0 \\ 0 & \dots & 0 & S^L \end{bmatrix}, \quad (\text{B.13})$$

avec

$$S^l = \begin{bmatrix} s_{1,1}^l & s_{1,2}^l & \dots & 0 \\ s_{2,1}^l & s_{2,2}^l & \ddots & \vdots \\ & \ddots & \ddots & \ddots \\ \vdots & & \ddots & \ddots & s_{N-1,N}^l \\ 0 & \dots & s_{N,N-1}^l & s_{N,N}^l \end{bmatrix}, \quad (\text{B.14})$$

où

$$s_{n,n}^l = 1, \quad (\text{B.15})$$

$$s_{n,n+1}^l = -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{n(n+2l+1)}{(n+l)(n+l+1)}}, \quad (\text{B.16})$$

$$s_{n,n-1}^l = -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n-1)(n+2l)}{(n+l-1)(n+l)}}. \quad (\text{B.17})$$

La matrice de l'Hamiltonien atomique, $\mathbf{H}_0$, est aussi tridiagonale, symétrique et réelle:

$$\mathbf{H}_0 = \begin{bmatrix} H^0 & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & H^1 & \ddots & \vdots \\ & \ddots & \ddots & \ddots \\ \vdots & & \ddots & 0 \\ 0 & \cdots & 0 & H^L \end{bmatrix}, \quad (\text{B.18})$$

avec

$$H^l = \begin{bmatrix} h_{1,1}^l & h_{1,2}^l & \cdots & 0 \\ h_{2,1}^l & h_{2,2}^l & \ddots & \vdots \\ & \ddots & \ddots & \ddots \\ \vdots & & \ddots & h_{N-1,N}^l \\ 0 & \cdots & h_{N,N-1}^l & h_{N,N}^l \end{bmatrix}, \quad (\text{B.19})$$

où

$$h_{n,n}^l = \frac{\kappa^2}{2} - \frac{\kappa}{n+l}, \quad (\text{B.20})$$

$$h_{n,n+1}^l = \left(-\frac{\kappa^2}{2}\right) \cdot \left(-\frac{1}{2} \sqrt{\frac{n(n+2l+1)}{(n+l)(n+l+1)}}\right), \quad (\text{B.21})$$

$$h_{n+1,n}^l = \left(-\frac{\kappa^2}{2}\right) \cdot \left(-\frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n-1)(n+2l)}{(n+l-1)(n+l)}}\right). \quad (\text{B.22})$$

La matrice d'interaction, $\mathbf{V}$, est bloc-tridiagonale et hermitienne. Les blocs de la rangée centrale sont nuls; les blocs de la rangée supérieure sont tridiagonaux, avec la diagonale du centre creuse; et les blocs de la rangée inférieure sont les anti-symétriques de ceux de la rangée supérieure:

$$\mathbf{V} = \begin{bmatrix} 0 & V^{1,2} & \cdots & 0 \\ V^{2,1} & 0 & \ddots & \vdots \\ & \ddots & \ddots & \ddots \\ \vdots & & \ddots & V^{L-1,L} \\ 0 & \cdots & V^{L,L-1} & 0 \end{bmatrix}, \quad (\text{B.23})$$

avec

$$V^{l,l+1} = \begin{bmatrix} v_{1,1}^{l,l+1} & & \cdots & 0 \\ 0 & v_{2,2}^{l,l+1} & & \vdots \\ v_{3,1}^{l,l+1} & 0 & \ddots & \\ & v_{4,2}^{l,l+1} & \ddots & \ddots \\ \vdots & & \ddots & \ddots & \ddots \\ 0 & \cdots & & v_{N,N-2}^{l,l+1} & 0 & v_{N,N}^{l,l+1} \end{bmatrix}, \quad (\text{B.24})$$

et avec

$$V^{l,l-1} = \begin{bmatrix} v_{1,1}^{l,l-1} & 0 & v_{1,3}^{l,l-1} & \dots & 0 \\ & v_{2,2}^{l,l-1} & 0 & v_{2,4}^{l,l-1} & \vdots \\ & & \ddots & \ddots & \ddots \\ & & & \ddots & v_{N-2,N}^{l,l-1} \\ \vdots & & & & 0 \\ 0 & \dots & & & v_{N,N}^{l,l-1} \end{bmatrix}. \quad (\text{B.25})$$

La forme explicite de ces éléments de matrice est:

$$v_{n,n}^{l,l+1} = (-i)(\kappa) \sqrt{\frac{(l-m+1)(l+m+1)}{(2l+1)(2l+3)}} \frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n+2l+1)(n+2l+2)}{(n+l)(n+l+1)}} \quad (\text{B.26})$$

$$v_{n,n-2}^{l,l+1} = (-i)(-\kappa) \sqrt{\frac{(l-m+1)(l+m+1)}{(2l+1)(2l+3)}} \frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n-1)(n-2)}{(n+l)(n+l-1)}} \quad (\text{B.27})$$

$$v_{n,n+2}^{l,l-1} = (-i)(\kappa) \sqrt{\frac{(l-m)(l+m)}{(2l+1)(2l-1)}} \frac{1}{2} \sqrt{\frac{n(n+1)}{(n+l)(n+l+1)}} \quad (\text{B.28})$$

$$v_{n,n}^{l,l-1} = (-i)(-\kappa) \sqrt{\frac{(l-m)(l+m)}{(2l+1)(2l-1)}} \frac{1}{2} \sqrt{\frac{(n+2l)(n+2l-1)}{(n+l)(n+l-1)}}. \quad (\text{B.29})$$

Pour être complet, il nous reste à signaler que $g(t)$ est une fonction scalaire dépendante du temps qui contient tous les paramètres de l'impulsion:

$$g(t) = A_0 \sin \omega t f(t) \quad (\text{B.30})$$

où A_0 est l'amplitude maximale du potentiel vecteur, ω est la fréquence du champ laser et $f(t)$ le profil temporel de l'impulsion normalisé à 1.

Appendice C

Méthode des gradients biconjugués

Un problème souvent rencontré en analyse numérique est la résolution de systèmes linéaires du type

$$Ax = b \tag{C.1}$$

où A est une matrice régulière $N \times N$ et x et b des vecteurs de dimension N . Dans cet appendice, les matrices sont représentées par des lettres majuscules, les vecteurs par des lettres minuscules et les scalaires par des lettres grecques. Pour des systèmes de petite taille, l'approche standard consiste à utiliser des méthodes directes telles que l'élimination gaussienne. Ces algorithmes obtiennent une solution de (C.1) basée sur la factorisation de la matrice A . Cependant, en pratique, la taille du problème est souvent très importante; une approche directe devient alors prohibitive en terme de temps calcul et de stockage. Heureusement, de tels systèmes possèdent habituellement une structure spéciale: ils sont creux!. Cela signifie qu'ils ne comprennent que quelques éléments non-nuls. Il est alors très intéressant d'utiliser des méthodes itératives qui ne font intervenir que des produits matrices-vecteurs: elles exploitent naturellement la structure spéciale des systèmes creux. Le terme "méthode itérative" fait référence à un large éventail de techniques qui utilisent des approximations successives pour obtenir des solutions plus précises d'un système à chaque pas [Fre91].

On distingue deux types de méthode itérative:

- Les méthodes stationnaires. Dans ce type de méthode, les itérations successives de la solution sont de la forme:

$$x^{(k)} = Bx^{(k-1)} + C \tag{C.2}$$

où ni B , ni C ne dépendent de l'ordre de l'itération (k). Les principales méthodes de ce type sont: la méthode de Jacobi, la méthode de Gauss-Seidel, la méthode SOR (successive overrelaxation method) et la SSOR (symetric successive overrelaxation method)[Var62]. Ces méthodes sont très simples et s'implémentent facilement mais en général ne sont pas très efficaces.

- Les méthodes non-stationnaires. Elles diffèrent des précédentes par le fait que les calculs impliquent des informations qui changent à chaque itération. Typiquement, des constantes sont calculées à partir de produits intérieurs de résidus ou d'autres vecteurs provenant de la méthode. Ces méthodes sont généralement beaucoup plus performantes que les méthodes stationnaires.

Les systèmes linéaires que nous rencontrons dans ce travail — ils apparaissent dans la résolution numérique d'un système d'équations différentielles ordinaires par une méthode de type Runge-Kutta implicite — font intervenir des matrices de grande taille ($N = 5000$) complexes qui ne possèdent aucune particularité (symétrie, hermiticité, caractère défini positif, ...), si ce n'est leur caractère creux: seulement 7 diagonales de coefficients non-nuls. Le caractère quelconque de ces matrices restreint fortement l'éventail des méthodes utilisables. Parmi les méthodes non-stationnaires (on trouve de bons résumés de ces méthodes dans [Fre91] et [Bar94]), on notera:

- GMRES (generalized minimal residual method). Cette méthode requiert un stockage et un volume de calcul qui croît linéairement à chaque itération. Par conséquent, il est prohibitif d'utiliser la version complète de cette méthode et des "redémarrages" sont nécessaires, ce qui mène généralement à une convergence lente.
- QMR (quasi-minimal residual method)
- BiCG (biconjugate gradient method). Cette méthode génère deux séquences de vecteurs mutuellement orthogonales ou encore bi-orthogonales (elle est décrite en détail dans la suite de cet appendice). Elle utilise un stockage limité et requiert une multiplication de vecteurs avec la matrice et sa transposée à chaque itération. Toutefois sa convergence peut être irrégulière.
- CGS (conjugate gradient squared method). C'est une variante de BiCG. Idéalement son taux de convergence devrait être doublé mais en pratique la convergence peut être encore plus irrégulière que pour BiCG.
- BiCGSTAB - BiCGSTAB(ℓ) (BiCG stabilized): ce sont d'autres variantes de BiCG qui présentent des convergences beaucoup plus régulières.

Pour ce travail, nous utilisons la méthode BiCGSTAB. Dans les différents cas traités, elle donne de meilleurs résultats que BiCG. Vu les performances obtenues, nous ne l'avons pas comparée à GMRES, QMR ou CGS.

Toutes ces méthodes s'appuient sur la méthode des sous-espaces de Krylov qui, dans certains cas (comme pour BiCG), se base sur le processus de Lanczos non-symétrique [Lan50]. Dans une première partie, nous décrivons la méthode des sous-espaces de Krylov. Dans une deuxième, nous exposons le processus de Lanczos non-symétrique et montrons comment il mène à BiCG. Ensuite, dans la troisième partie, nous présentons une variante de BiCG: BiCGSTAB. Enfin, pour terminer, nous montrons comment, à l'aide d'un pré-conditionneur, on peut encore améliorer significativement la convergence. L'utilisation

d'un préconditionneur a pour effet de transformer le système à résoudre en un système équivalent dans le sens où il possède la même solution mais pour lequel l'algorithme est plus efficace.

1 Méthode des sous-espaces de Krylov

Beaucoup de méthodes itératives pour résoudre un système linéaire appartiennent à la classe des méthodes impliquant des sous-espaces de Krylov: elles produisent des approximations x_n de $A^{-1}b$ de la forme:

$$x_n \in x_0 + \mathcal{K}_n(r_0, A) \quad n = 1, 2, \dots \quad (\text{C.3})$$

Ici, $x_0 \in C^N$ est le candidat initial pour la solution de (C.1), $r_0 = b - Ax_0$ est le vecteur résiduel correspondant et $\mathcal{K}_n(r_0, A)$ est le n -ième sous-espace de Krylov généré par r_0 et A :

$$\mathcal{K}_n(r_0, A) = \{\phi(A)r_0 \mid \phi \in \mathcal{P}_{n-1}\}, \quad (\text{C.4})$$

où

$$\mathcal{P}_n = \{\phi(\lambda) \equiv \sigma_0 + \sigma_1\lambda + \dots + \sigma_n\lambda^n \mid \sigma_0, \sigma_1, \dots, \sigma_n \in C\} \quad (\text{C.5})$$

est l'ensemble des polynômes complexes de degré n .

En particulier, le vecteur résiduel correspondant à la n -ième itération de x_n peut s'exprimer en termes de polynômes:

$$r_n = b - Ax_n = P_n(A)r_0 \quad (\text{C.6})$$

où

$$P_n \in \mathcal{P}_n, P_n(0) = 1. \quad (\text{C.7})$$

Comme le montre (C.6), le but, en élaborant une méthode impliquant des sous-espaces de Krylov, est de choisir à chaque pas le polynôme P_n tel que, dans un certain sens, $r_n \approx 0$.

Un choix possible est de minimiser une norme du résidu r_n :

$$\begin{aligned} \|r_n\| &= \min_{x \in x_0 + \mathcal{K}_n(r_0, A)} \|b - Ax\| \\ &= \min_{P \in \mathcal{P}_n, P(0)=1} \|P(A)r_0\|, \end{aligned} \quad (\text{C.8})$$

$\|\cdot\|$ est une norme vectorielle sur C^N qui peut éventuellement dépendre de l'itération n .

Une autre option est d'imposer que le résidu satisfasse une condition de type Galerkin:

$$s^H r_n = 0 \quad \text{pour tout } s \in \mathcal{S}_n \quad (\text{C.9})$$

où $\mathcal{S}_n \subset C^N$ est un sous-espace de dimension n et s^H est le complexe conjugué transposé de s .

2 Processus de Lanczos classique et BiCG

Soit $A \in C^{N \times N}$ et posons $v_0, w_0 \in C^N$ deux vecteurs non-nuls arbitraires. En partant de v_0 et w_0 , l'algorithme classique de Lanczos génère deux séquences de vecteurs

$$\{v_j\} \text{ et } \{w_j\} \quad n = 0, 1, \dots \quad (\text{C.10})$$

telles que, pour tout n ,

$$\begin{aligned} \text{span}\{v_0, v_1, \dots, v_n\} &= \mathcal{K}_{n+1}(v_0, A) \\ \text{span}\{w_0, w_1, \dots, w_n\} &= \mathcal{K}_{n+1}(w_0, A^T) \end{aligned} \quad (\text{C.11})$$

et que les deux séquences soient biorthogonales i.e.:

$$w_j^T v_k = 0 \quad \text{si } j \neq k \quad (\text{C.12})$$

$$= \delta_k \neq 0 \quad \text{si } j = k \quad (\text{C.13})$$

pour tout $j, k = 0, 1, \dots, n$.

L'algorithme proprement dit est le suivant:

```

choisir  $v_0, w_0 \in C^N$  avec  $v_0, w_0 \neq 0$ ;
 $v_{-1} = w_{-1} = 0$ ;  $\delta_{-1} = 1$ ;
pour  $n = 0, 1, \dots$ 
     $\delta_n = w_n^T v_n$ ;
    si  $\delta_n = 0$ , alors stop;
     $\alpha_n = \frac{w_n^T A v_n}{\delta_n}$ ;
     $\beta_n = \frac{\delta_n}{\delta_{n-1}}$ ;
     $v_{n+1} = A v_n - v_n \alpha_n - v_{n-1} \beta_n$ ;
     $w_{n+1} = A^T w_n - w_n \alpha_n - w_{n-1} \beta_n$ ;
fin

```

En pratique, on utilise une version normalisée des récurrences dans le but d'éviter des nombres trop grands ou trop petits. Un bon choix est d'imposer aux vecteurs de Lanczos une longueur 1:

$$\|v_n\| = \|w_n\| = 1 \quad \text{pour tout } n. \quad (\text{C.14})$$

Les relations de récurrence de cet algorithme pour tous les vecteurs $\{v_j\}_{j=0}^{n+1}$ et $\{w_j\}_{j=0}^{n+1}$ peuvent être écrites sous une forme matricielle plus compacte:

$$\begin{aligned} A V_n &= V_n T_n + [0 \dots 0 v_{n+1}] \\ A^T W_n &= W_n T_n + [0 \dots 0 w_{n+1}] \end{aligned} \quad (\text{C.15})$$

où

$$V_n = [v_0 \ v_1 \ \dots \ v_n] \quad \text{et} \quad W_n = [w_0 \ w_1 \ \dots \ w_n] \quad (\text{C.16})$$

sont des matrices dont les colonnes sont les vecteurs de Lanczos, et

$$T_n = \begin{bmatrix} \alpha_0 & \beta_1 & & \cdots & 0 \\ 1 & \alpha_1 & \ddots & & \vdots \\ & \ddots & \ddots & \ddots & \\ \vdots & & \ddots & \ddots & \beta_n \\ 0 & \cdots & & 1 & \alpha_n \end{bmatrix} \quad (\text{C.17})$$

est une matrice tridiagonale $(n+1) \times (n+1)$ dont les entrées sont calculées par l'algorithme.

Revenons maintenant au système linéaire

$$Ax = b \quad (\text{C.18})$$

avec $A \in C^{N \times N}$, que nous souhaitons résoudre en calculant des solutions approchées de la forme:

$$x_n \in x_0 + \mathcal{K}_n(r_0, A) \quad n = 1, 2, \dots, \quad (\text{C.19})$$

où $x_0 \in C^N$ est un candidat initial arbitraire pour (C.18) et $r_0 = b - Ax_0$, le vecteur résiduel associé. D'une manière générale, nous notons le vecteur résiduel de l'itération $n+1$:

$$r_{n+1} = b - Ax_{n+1}. \quad (\text{C.20})$$

Choisissons maintenant $v_0 = r_0$ et $w_0 \in C^N$ arbitraire non-nul comme vecteurs de démarrage pour l'algorithme de Lanczos. Avec ce choix particulier:

$$\text{span}\{v_j\}_{j=0}^n = \mathcal{K}_{n+1}(r_0, A). \quad (\text{C.21})$$

Par conséquent, en utilisant la matrice V_n définie en (C.16), les solutions approchées (C.19) peuvent s'écrire:

$$x_n = x_0 + V_n z_n \text{ où } z_n \in C^{n+1}. \quad (\text{C.22})$$

Il nous reste à sélectionner le vecteur z_n . Un choix parmi d'autres consiste à prendre pour z_n la solution du système linéaire:

$$T_n z_n = e_1 \text{ où } e_1 = [1 \dots 0]^T \in R^{n+1}. \quad (\text{C.23})$$

Pour motiver ce choix, nous remarquons que par (C.15), (C.20) et le choix fait pour v_0 , le vecteur résiduel correspondant à n'importe quelle itération satisfait:

$$r_{n+1} = -(z_n)_n v_{n+1} \quad (\text{C.24})$$

où $(z_n)_n$ est la dernière composante du vecteur z_n . On remarque que v_n , et par conséquent le vecteur résiduel r_{n+1} , satisfait à une condition de type Galerkin. En effet, vu les propriétés des vecteurs générés par l'algorithme de Lanczos, on a:

$$s^H r_n = 0 \text{ pour tout } s \in \mathcal{S}_n \quad (\text{C.25})$$

où

$$\mathcal{S}_n = \{s = \bar{w} \mid w \in \mathcal{K}_n(w_0, A^T)\}. \quad (\text{C.26})$$

On génère de cette manière une série de solutions approchées x_n qui, en principe, convergent vers la solution exacte du problème. Cet algorithme s'appelle l'algorithme du gradient biconjugué (BiCG). Il se formule de la manière suivante:

```

choisir  $x_0$  candidat initial arbitraire;
 $r_0 = b - Ax_0$ ;
choisir  $\hat{r}_0$  vecteur arbitraire tel que
     $(\hat{r}_0, r_0) \neq 0$  par exemple  $\hat{r}_0 = r_0$ ;
 $\rho_0 = 1$ ;
 $p_0 = \hat{p}_0 = 0$ ;
pour  $i = 1, 2, \dots$ 
     $\rho_i = (\hat{r}_{i-1}, r_{i-1})$ ;
     $\beta_i = \frac{\rho_i}{\rho_{i-1}}$ ;
     $p_i = r_{i-1} + \beta_i p_{i-1}$ ;
     $\hat{p}_i = \hat{r}_{i-1} + \beta_i \hat{p}_{i-1}$ ;
     $v_i = Ap_i$ ;
     $\alpha_i = \frac{\rho_i}{(\hat{p}_i, v_i)}$ ;
     $x_i = x_{i-1} + \alpha_i p_i$ ;
    si  $x_i$  est suffisamment précis alors quitter;
     $r_i = r_{i-1} - \alpha_i v_i$ ;
     $\hat{r}_i = \hat{r}_{i-1} - \alpha_i A^T \hat{p}_i$ ;
fin

```

où $(x, y) = x^H y$.

3 BiCGSTAB

Le point faible de BiCG est que sa convergence est parfois erratique avec des oscillations du résidu r_n que l'on peut qualifier de "sauvages" ou encore d'"anarchiques". Comme $r_n = P_n(A)r_0$, on en déduit que les problèmes proviennent de $P_n(A)$ qui peut être vu comme un "réducteur" agissant sur r_0 . Une possibilité pour améliorer le réducteur est de prendre:

$$r_n = Q_n(A)P_n(A)r_0 \quad (\text{C.27})$$

avec

$$Q_n(x) = (1 - \omega_1 x)(1 - \omega_2 x) \dots (1 - \omega_n x) \quad (\text{C.28})$$

et de sélectionner les ω_n pour qu'à la n -ième itération, ils minimisent r_n avec la norme 2. On arrive de cette manière à l'algorithme BiCGSTAB de H. van der Vorst [vdV92]. Il se formule de la manière suivante:

```

choisir  $x_0$  candidat initial arbitraire;
 $r_0 = b - Ax_0$ ;
choisir  $\hat{r}_0$  vecteur arbitraire tel que
     $(\hat{r}_0, r_0) \neq 0$  par exemple  $\hat{r}_0 = r_0$ ;
 $\rho_0 = \alpha = \omega_0 = 1$ ;
 $p_0 = v_0 = 0$ ;
pour  $i = 1, 2, \dots$ 

```

```

 $\rho_i = (\hat{r}_{i-1}, r_{i-1});$ 
 $\beta = \frac{\rho_i \alpha}{\rho_{i-1} \omega_{i-1}};$ 
 $p_i = r_{i-1} + \beta(p_{i-1} - \omega_{i-1} v_{i-1});$ 
 $v_i = A p_i;$ 
 $\alpha = \frac{\rho_i}{(\hat{r}_0, v_i)};$ 
 $s = r_{i-1} - \alpha v_i;$ 
 $t = A s;$ 
 $\omega_i = \frac{(t, s)}{(t, t)};$ 
 $x_i = x_{i-1} + \alpha p_i + \omega_i s;$ 
si  $x_i$  est suffisamment précis alors quitter;
 $r_i = s - \omega_i t;$ 
fin

```

Gutnecht a proposé une version améliorée de BiCGSTAB: BiCGSTAB2 [Gut91], qui elle-même a été généralisée par Sleijpen: BiCGSTAB(ℓ) [Sle93]. Il annonce la publication de versions encore plus élaborées de cet algorithme. Ce domaine fait l'objet de nombreuses recherches. En ce qui nous concerne, les résultats excellents fournis par BiCGSTAB avec un préconditionneur nous ont conduits à ne pas essayer d'autres méthodes.

4 Préconditionnement

On peut montrer que le taux de convergence d'une méthode itérative dépend des propriétés spectrales de la matrice A du système linéaire [Fre91]. Par conséquent, il est intéressant de transformer le système initial en un autre possédant la même solution mais dont les propriétés spectrales sont plus favorables. Un préconditionneur est une matrice qui effectue une telle transformation.

Si la matrice M approxime la matrice A dans une certaine mesure, le système transformé:

$$M^{-1}Ax = M^{-1}b \quad (\text{C.29})$$

a la même solution que le système original $Ax = b$, mais les propriétés spectrales de $M^{-1}A$ peuvent être plus favorables. En concevant un préconditionneur, on a le choix soit de trouver une matrice M qui approxime A et pour laquelle résoudre un système est plus facile que d'en résoudre un avec A , soit de trouver directement une matrice M qui approxime A^{-1} , de façon telle que seules des multiplications par M soient nécessaires. La majorité des préconditionneurs tombe dans la première catégorie alors que celui que nous utilisons rejoint la seconde catégorie: il s'agit d'un préconditionneur polynomial.

Les systèmes que nous souhaitons résoudre se présentent sous la forme:

$$(S - \alpha \Delta t [H_0 + g(t)V])x = b \quad (\text{C.30})$$

où S et H_0 sont des matrices tridiagonales, V une matrice creuse comprenant 4 bandes, α un coefficient de la méthode Runge-Kutta et Δt , le pas. L'équation (C.30) peut se

réécrire:

$$(A - B)x = b \quad (\text{C.31})$$

où

$$\begin{aligned} A &= S - \alpha \Delta t H_0, \\ B &= -\alpha \Delta t g(t) V. \end{aligned} \quad (\text{C.32})$$

A est tridiagonale, donc facile à inverser et B comprend 4 diagonales de largeur de bande de l'ordre de $N/10$, N étant la dimension du système. La matrice M qui approxime $(A - B)^{-1}$ et par laquelle on multiplie le système est:

$$M = \left[\sum_{n=0}^{np} (A^{-1}B)^n \right] A^{-1} \quad (\text{C.33})$$

Il s'agit simplement du développement en série de Taylor d'ordre np de la matrice $(1 - A^{-1}B)^{-1}$. Le système transformé est:

$$\left[1 + (A^{-1}B)^{np+1} \right] x = \tilde{b} \quad (\text{C.34})$$

où

$$\tilde{b} = \left[\sum_{n=0}^{np} (A^{-1}B)^n \right] A^{-1}b \quad (\text{C.35})$$

Il faut en principe optimiser le choix de np pour qu'avec un Δt fixé, le nombre d'opérations, pour obtenir une solution approchée du système avec une précision imposée, soit le plus petit possible. Ce préconditionneur possède ses limites: pour des $\Delta t g(t)$ grands, $A^{-1}B$ peut être "beaucoup plus grand" que 1. Dans ce cas, son utilisation ne fait qu'empirer la situation déjà tendue par la conjoncture actuelle. Nous avons fixé l'ordre à 2.

Pour quantifier les performances de BiCGSTAB avec ce type de préconditionnement, nous présentons deux graphes qui donnent la norme du résidu en fonction du nombre d'itérations. Idéalement, il faut étudier ce processus en fonction du nombre d'opérations nécessaires (plutôt que le nombre d'itérations) en sachant que la résolution demande:

$$(41+29 \text{ np}) + \text{ni}(27+14 \text{ np}) \text{ multiplications vecteurs-vecteurs} \quad (\text{C.36})$$

où ni est le nombre d'itérations nécessaires et np l'ordre du préconditionneur.

Nous présentons à la figure (C.1) la norme du vecteur résiduel en fonction du nombre d'itérations et pour divers np . $g(t) = 1$ et $(\alpha \Delta t) = 1$. Dans ce cas, un np élevé augmente la précision obtenue. La figure (C.2) nous présente la même situation mais $(\alpha \Delta t) = 10$. $np = 1$ améliore la convergence de la méthode par rapport au cas où il n'y a pas de préconditionneur ($np = 0$). Mais, pour des np plus grands, la situation se dégrade.

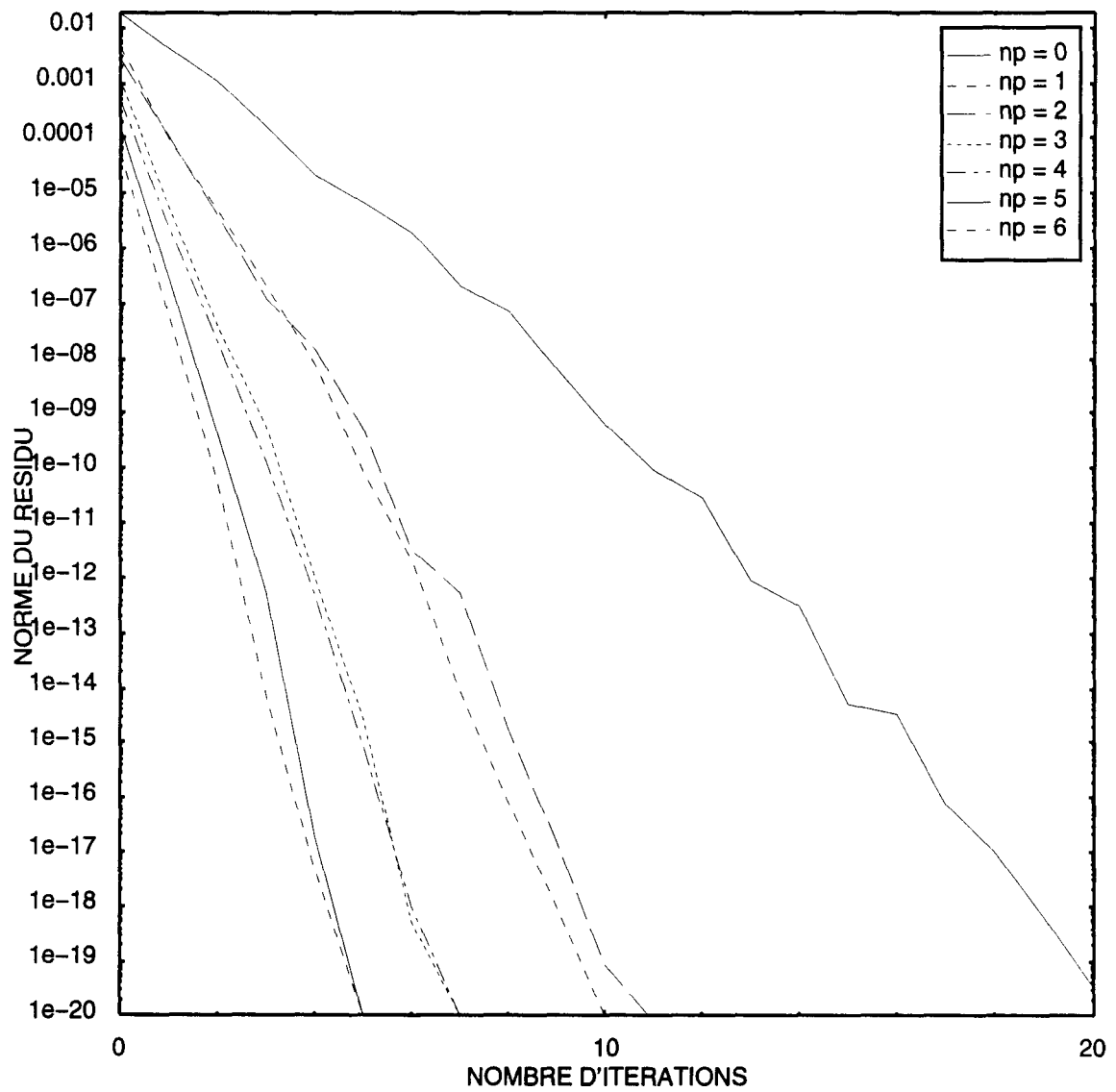


Figure C.1 Norme du vecteur résiduel en fonction du nombre d'itérations. $nbfr = 100$, $lmax = 2$, $\kappa = 0.1$, $g(t) = 1$, $(\alpha\Delta t) = 1$. Le x_0 initial est arbitraire.

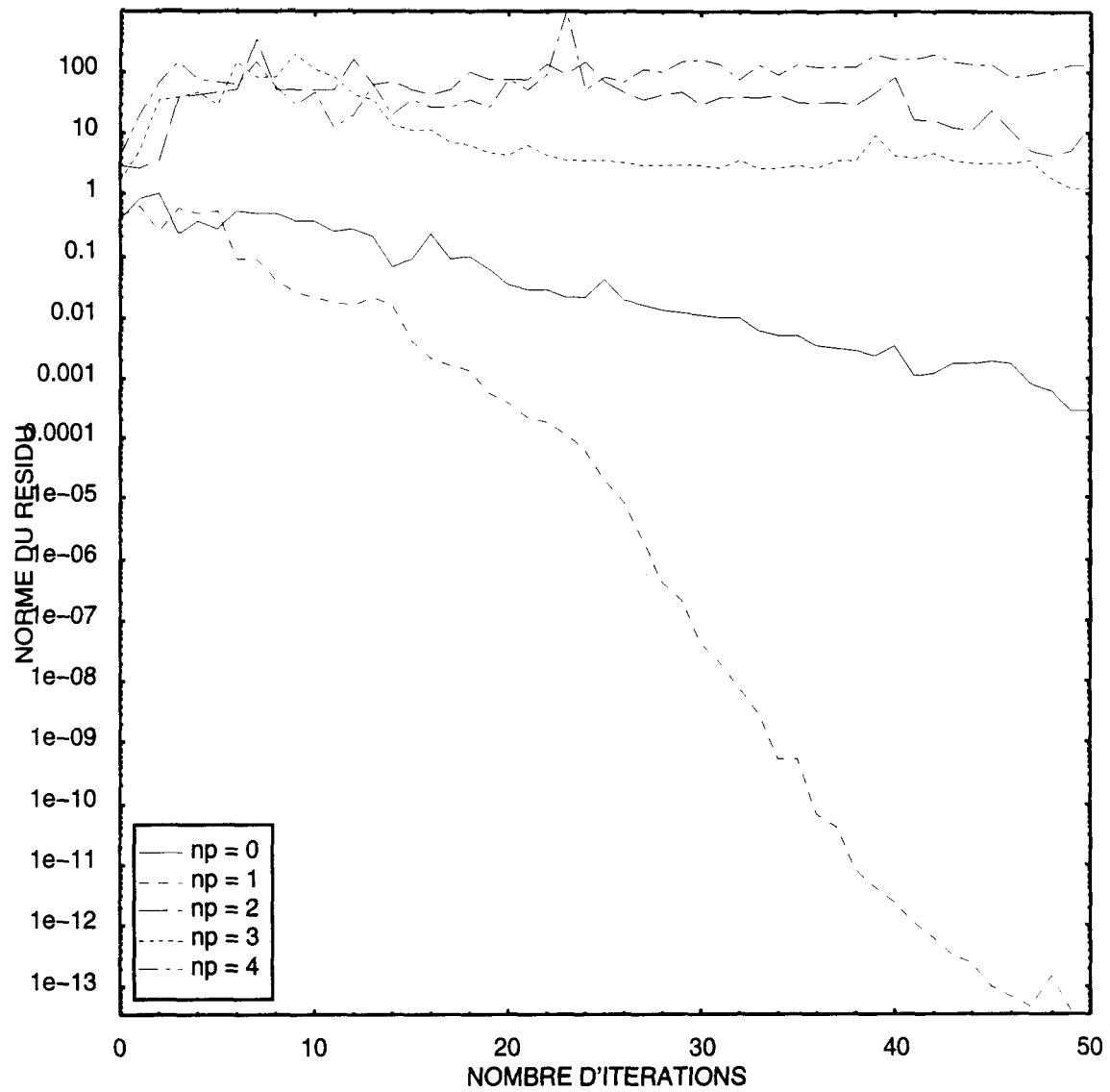


Figure C.2 Norme du résidu en fonction du nombre d'itérations pour $nbfr = 100$, $lmax = 2$, $\kappa = 0.1$, $g(t) = 1$, $(\alpha\Delta t) = 10$. Le x_0 initial est arbitraire.

Appendice D

Electron libre et absorption de photons

Un électron libre ne peut absorber de photons. Notons $p_0 = (E_0/c, \mathbf{p}_0)$ et $p_f = (E_f/c, \mathbf{p}_f)$ les quadri-vecteurs représentant les moments initiaux et finaux d'électrons libres, et supposons que la différence entre ces quantités soit due à l'absorption de N photons de moment $k = (\hbar\omega, \hbar\mathbf{k})$. Un processus d'absorption multiphotonique est gouverné par la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement. A l'aide des quadri-vecteurs, cela s'écrit:

$$p_f - p_0 = Nk.$$

Nous allons montrer que cette équation ne peut pas être satisfaite pour n'importe quel $N > 0$. Comme k représente le quadri-vecteur d'un photon, nous avons $k \cdot k = 0$ (ce qui est la même chose que $\omega^2 - c^2\mathbf{k} \cdot \mathbf{k} = 0$). En calculant le carré de chaque membre de la relation ci-dessus, nous avons:

$$p_f^2 + p_0^2 - 2p_f \cdot p_0 = N^2 k \cdot k = 0.$$

Pour un électron libre, $p^2 = m^2c^2$, où m est la masse de l'électron. L'équation précédente devient donc:

$$2m^2c^2 = 2p_f \cdot p_0 = 2(E_f E_0 / c^2, \mathbf{p}_f \cdot \mathbf{p}_0).$$

C'est une expression covariante qui reste la même dans n'importe quel référentiel. Le référentiel le plus simple à considérer est celui dans lequel le moment initial $\mathbf{p}_0$ s'annule. Quand $\mathbf{p}_0 = 0$, on a aussi $E_0 = mc^2$ et on obtient:

$$2m^2c^2 = 2mE_f.$$

Cette relation n'est vraie que si $E_f = mc^2$, c-à-d si $\mathbf{p}_f = 0$. Comme nous sommes déjà dans un référentiel où $\mathbf{p}_0 = 0$, ce résultat revient à dire, comme nous l'annoncions, qu'il n'y a pas d'absorption de photons par un électron libre.

Bibliographie

- [Abr70] Abramowitz M. and Stegun I.A., *Handbook of Mathematical Functions*, (Dover Publications, New York, 1970).
- [Ago79] Agostini P., Fabre F., Mainfray G., Petite G. and Rahman N.K., *Phys. Rev. Lett.*, **42**, (1979), 1127.
- [Ant95a] Antoine Ph., Piraux B. and Maquet A., *Phys. Rev. A*, **51**, (1995), R1750.
- [Ant95b] Antoine Ph., Carré B., Lewenstein M., L'Huillier A., Piraux B. and Gajda M., "Harmonic generation with elliptical polarization", in *Super Intense Laser-Atom Physics*, edited by Muller H.G., Plenum Press, New-York (1995).
- [Ant96] Antoine Ph., Piraux B., Milošević D. B. and Gajda M., accepté pour publication dans *Phys. Rev. A*, (1996).
- [Ars77] Arslanbekov T.U., Delone N.B., Masalov A.V., Todorashku S.J. and Fainshtein A.G., *Sov. Phys. JETP*, **45**, (1977), 473.
- [Bal71] Balslev E. and Combes J.M., *Comm. Math. Phys.*, **22**, (1971), 280.
- [Bar94] Barrett R., Berry M., Chan T.F., Demmel J., Donato J., Dongarra J., Eijkhout V., Pozo R., Romine C. and Van der Vorst H., *Templates for the Solution of Linear Systems: Building Blocks for Iterative Methods, 2nd Edition*, (SIAM, Philadelphia, 1994).
- [Beb66] Bebb H.B. and Gold A., *Phys. Rev. A*, **143**, (1966), 1.
- [Bia84] Bialynicka-Birula, *J. Phys. B*, **17**, (1984), 3091.
- [Bjo65] Bjorken J.D. and Drell S.D., *Relativistic Quantum Fields*, (Mc Graw-Hill, 1965).
- [Bra83] Bransden B.H. and Joachain C.J., *Physics of Atoms and Molecules*, (Longman, 1983).
- [Buc93] Buchleitner A., *Atomes de Rydberg en Champ Micro-Onde : Régularité et Chaos*, Thèse de Doctorat de l'Université Pierre et Marie Curie, Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne (1993).
- [Bug95a] Bugacov A., Pont M., Shakeshaft R. and Piraux B., *Phys. Rev. A*, **51**, (1995), 1490.

- [Bug95b] Bugacov A., Piraux B., Pont M. and Shakeshaft R., *Phys. Rev. A*, **51**, (1995), 4877.
- [Burk91] Burke P.G., Francken P. and Joachain C.J., *J. Phys. B*, **21**, (1991), 761.
- [Bur91] Burnett K., Knight P.L., Piraux B. and Reed V.C., *Phys. Rev. Lett.*, **66**, (1991), 301.
- [Bur92] Burnett K., Reed V.C., Cooper J. and Knight P.L., *Phys. Rev. A*, **45**, (1992), 3347.
- [Car82] Cardomina D.A., Raymer M.G. and Stroud C.R. Jr., *J. Phys. B*, **15**, (1982), 55.
- [Cas79] Cash J.R., *J. Inst. Maths Applies*, **24**, (1979), 293.
- [Chu77] Chu S.I. and Reinhardt W.P., *Phys. Rev. Lett.*, **39**, (1977), 1195.
- [Chu85] Chu S.I. and Cooper J., *Phys. Rev. A*, **32**, (1985), 2769.
- [Coh88] Cohen-Tannoudji C., Dupont-Roc J., Grynberg G., *Processus d'interaction entre photons et atomes*, (InterEditions - Editions du CNRS, 1988).
- [Col88] Collins L.A. and Merts A.L., *Phys. Rev. A*, **37**, (1988), 2415.
- [Col89] Collins L.A. and Merts A.L., *Phys. Rev. A*, **40**, (1989), 4127.
- [Cor96] Cormier E. and Lambropoulos P., *J. Phys. B*, **29**, (1996), 1667.
- [Cou53] Courant R. and Hilbert D., *Methods of Mathematical Physics*, (Interscience, 1953), **1**, 291.
- [Cra80] Crance M. and Aymer M., *J. Phys. B*, **13**, (1980), L421.
- [Dal55] Dalgarno A. and Lewis J.T., *Proc. R. Soc. London, Series A*, **233**, (1955), 70.
- [Dea72] Dean P., *Review of Modern Physics*, **44**, (1972), 127.
- [Deb78] De Boor C., *A Practical Guide to Splines*, (Springer-Verlag, 1978).
- [deB94] de Boer M.P., Hoogenraad J.H., Vrijen R.B., Constantinescu R.C., Noordam L.D. and Muller H.G., *Phys. Rev. A*, **50**, (1994), 4085.
- [Deh91] Dehesa J.S., Dominguez Adame F., Arriola E.R. and Zarzo A., in *Proceeding of the Third International Symposium on Orthogonal Polynomials and their Applications*, edited by Brezinski C., Gori L. and Ronveaux A., (J.C. Baltzer, Scientific Publishing Company, 1991), p 223.
- [Del91] Delande D., Bommier A. and Gay J.C., *Phys. Rev. Lett.*, **66**, (1991), 141.
- [Dor90] Dorr M., Potvliege R. and Shakeshaft R., *Phys. Rev. Lett.*, **64**, (1990), 2003.
- [Dor91] Dorr M., Potvliege R., Proulx D. and Shakeshaft R., *Phys. Rev. A*, **43**, (1991), 3729.

- [Dul87] Dulcic A., *Phys. Rev. A*, **35**, (1987), 1673.
- [Ein05] Einstein A., *Ann. Phys.*, **4**, (1905), 132.
- [Eps26] Epstein P.S., *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **12**, (1926), 630.
- [Fab82] Fabre F., Petite G., Agostini P. and Clement M., *J. Phys. B*, **15**, (1982), 1982.
- [Fai87] Faisal F.H.M., *Theory of Multiphoton Processes*, (Plenum, 1987), chap. 11.
- [Fed89a] Fedorov M.V. and Movsesian A.M., *J. Opt. Soc. Am. B*, **6**, (1989), 928.
- [Fed89b] Fedorov M.V. and Movsesian A.M., *J. Opt. Soc. Am. B*, **6**, (1989), 1504.
- [Fed90] Fedorov M.V. and Ivanov M.Y., *J. Opt. Soc. Am. B*, **7**, (1990), 569.
- [Fer89] Ferray M., L'Huillier A., Li X.F., Lompré L., Mainfray M. and Manus C., *J. Phys. B*, **21**, (1989), L31.
- [Fre91] Freund R.W., Golub G.H. and Nachtigal N.M., *Acta Numerica*, (1991), 57.
- [Fre92] Freeman R.R., Bucksbaum P.H., Cooke W.E., Gibson G., McIllrath T.J. and van Woerkom L.D., *Atoms in Intense laser Fields*, ed. by Gavril M. in *Adv. At. Mol. and Opt. Phys.*, Suppl. **1**, (1992), 43.
- [Gaj92] Gajda M., Grochmalicki J. and Lewenstein M., *Phys. Rev. A*, **46**, (1992), 1638.
- [Gaj96] Soumis pour publication à *Phys. Rev. A*.
- [Gao88] Gao B. and Starace A., *Phys. Rev. Lett.*, **61**, (1988), 404.
- [Gav84] Gavril M. and Kaminski J.Z., *Phys. Rev. Lett.*, **52**, (1984), 614.
- [Gav87] Gavril M., *Atoms in Unusual Situations*, Vol. 143 of NATO Advanced Study Institute Series B: Physics, ed. by Briand J.P. (Plenum, New York, 1987), p. 225.
- [Gaz80] Gazeau J.-P., *J. Phys. A : Math. Gen.*, **13**, (1980), 3605.
- [Giu87] Giusti-Suzor A. and Zoller P. *Phys. Rev. A*, **36**, (1987), 5178.
- [Gla63] Glauber R.J., *Phys. Rev.*, **131**, (1963), 2766.
- [Gon80] Gontier Y. and Trahin M., *J. Phys. B*, **13**, (1980), 4383.
- [Gop31] Goppert-Mayer M., *Ann. Phys.*, **9**, (1931), 273.
- [Gra94] Gradshteyn I.S. and Ryzhik I.M., *Table of Integrals, Series and Products*, (Academic Press, Boston, 1994).
- [Grob86] Grobe R., Leuchs G. and Rzazewski K., *Phys. Rev. A*, **34**, (1986), 1188.
- [Grob92] Grobe R. and Fedorov V., *Phys. Rev. Lett.*, **68**, (1992), 2592.

- [Groc91] Grochmalicki J., Lewenstein M. and Rzazewski K., *Phys. Rev. Lett.*, **66**, (1991), 1038.
- [Gut91] Gutknecht M.H., *IPS Research Report*, **91-14**, (1991).
- [Hai91] Hairer E. and Wanner G., *Solving Ordinary Differential Equations II: Stiff and Differential-Algebraic Problems*, (Springer Verlag, 1991).
- [Hak84] Haken H., *Laser Theory*, (Springer Verlag, 1984).
- [Hal65] Hall J.L., Robinson E.J. and Branscomb L.M., *Phys. Rev. Lett.*, **14**, (1965), 1013.
- [Hen68] Henneberger W.C., *Phys. Rev. Lett.*, **21**, (1968), 838.
- [Hue93a] Huens E. and Piraux B., *Laser Physics*, **3**, (1993), 274.
- [Hue93b] Huens E. and Piraux B., *Phys. Rev. A*, **47**, (1993), 1568.
- [Hue93c] Huens E. and Piraux B., *Super-Intense Laser-Atom Physics*, Vol. 316 of NATO Advanced Study Institute Series B: Physics, ed. by Piraux B., L'Huillier A. and Rzazewski K., (Plenum, New York, 1987), p. 233.
- [Hue96] Huens E., Piraux B., Bugacov A. and Gajda M., *Accepté pour publication dans Phys. Rev. A*.
- [Iva93] Ivanov M.Y., *Phys. Rev. A*, **49**, (1994), 1165.
- [Jav88] Javanainen J., Eberly J.H. and Su Q., *J. Opt. Soc. Am. B*, **7**, (1990), 564.
- [Jon91] Jones R.R. and Bucksbaum P.H., *Phys. Rev. Lett.*, **67**, (1991), 3215.
- [Kel64] Keldysh L.V., *Sov. Phys. JETP (Engl. Transl.)*, **47**, (1964), 1945.
- [Kra56] Kramers H.A., *Collected Scientific Papers*, North-Holland, Amsterdam, (1956).
- [Kul87] Kulander K., *Phys. Rev. A*, **35**, (1987), 445.
- [Kul90] Kulander K. and Shore B., *J. Opt. Soc. Am. B*, **7**, (1990), 502.
- [Kul91a] Kulander K., Schafer K.J. and Krause J.L., *Phys. Rev. Lett.*, **66**, (1991), 2601.
- [Kul91b] Special Issue of *Comput. Phys. Commun.*, **63**, (1991), 1, edited by Kulander K.
- [Lam87] Lamb W.E., Schlicher R.R. and Scully O., *Phys. Rev. A*, **36**, (1987), 2763.
- [Lamb91] Lambert J.D., *Numerical Methods for Ordinary Differential Systems: the Initial Value Problem*, John Wiley and Sons, Chichester, (1991).
- [Lan50] Lanczos C., *J. Res. Nat. Bur. Stand.*, **45**, (1950), 255.
- [Lec75] Lecompte C., Mainfray G., Manus C. and Sanchez F., *Phys. Rev. A*, **11**, (1975), 1009.

- [Li89] Li X., L'Huillier A., Ferray M., Lompre L.A. and Mainfray G., *Phys. Rev. A*, **39**, (1989), 5751.
- [Lom77] Lompre L.A., Mainfray C., Manus C. and Thebault S., *Phys. Rev. A*, **15**, (1977), 1604.
- [Lom81] Lompre L.A., Mainfray C., Manus C. and Marinier J.P., *J. Phys. B*, **14**, (1981), 4307.
- [Lou73] Loudon R., *The Quantum Theory of Light*, (Oxford University Press, 1973).
- [McC89] McCurdy C.W., and Stroud C.K., *Chem. Phys. Lett.*, **156**, (1989), 483.
- [McC91] McCurdy C.W., Stroud C.K. and Wisinski M.K., *Phys. Rev. A*, **43**, (1991), 5980.
- [Maq77] Maquet A., *Phys. Rev. A*, **15**, (1977), 1088.
- [Mit82] Mittleman M.H., *Introduction to the Theory of Laser-Atom Interactions*, (Plenum, 1982).
- [Mol75] Mollow B.R., *Phys. Rev. A*, **12**, (1975), 1919.
- [Noo92] Noordam L.D., Stapelfeldt H., Duncan D.I. and Gallagher T.F., *Phys. Rev. Lett.*, **68**, (1992), 1496.
- [Par90] Parker J. and Stroud C.R. Jr., *Phys. Rev. A*, **41**, (1990), 1602.
- [Per89] Perry M.D., Szoke A. and Kulander K., *Phys. Rev. Lett.*, **63**, (1989), 1058.
- [Pet79] Petite G., Morellec J. and Normand D., *J. Phys. (Orsay, Fr)*, **40**, (1979), 115.
- [Pet84] Petite G., Agostini P., Crance M. and Aymar M., *Phys. Rev. A*, **29**, (1984), 2677.
- [Pet88] Petite G., Agostini P. and Muller H.G., *J. Phys. B*, **21**, (1988), 4097.
- [Pir91] Piraux B., Huens E. and Knight P.L., *Phys. Rev. A*, **44**, (1991), 721.
- [Pir94] Piraux B. and Shakeshaft R., *Phys. Rev. A*, **49**, (1994), 3903.
- [Pon88] Pont M., Walet N., Gavrilu M. and McCurdy C.W., *Phys. Rev. Lett.*, **61**, (1988), 939.
- [Pon90] Pont M. and Gavrilu M., *Phys. Rev. Lett.*, **65**, (1990), 2362.
- [Pon91a] Pont M. and Shakeshaft R., *Phys. Rev. A*, **44**, (1991), R4110.
- [Pon91b] Pont M., Proulx D. and Shakeshaft R., *Phys. Rev. A*, **44**, (1991), 4486.
- [Pon93] Pont M., *Super-Intense Laser-Atom Physics*, Vol. 316 of NATO Advanced Study Institute Series B: Physics, ed. by Piraux B., L'Huillier A. and Rzazewski K., (Plenum, New York, 1987). 225.

[Vor65]

[Pot88] Potvliege R.M. and Shakeshaft R., *Phys. Rev. A*, **40**, (1989), 3061.

[Pre92] Press W.H., Teukolsky S.A., Vetterling W.T. and Flannery B.P., *Numerical Recipes*, (Cambridge University Press, 1992).

[Reed78] Reed M. and Simon B., *Methods of Modern Mathematical Physics, IV : Analysis of Operators*, Academic Press (1978).

[Ree90] Reed V. and Burnett K., *Phys. Rev. A*, **42**, (1990), 3152.

[Ree91] Reed V. and Burnett K., *Phys. Rev. A*, **43**, (1991), 6217.

[Rei82] Reinhardt W.P., *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **33**, (1982), 223.

[Rot70] Rotenberg M., *Adv. At. Mol. Phys.*, **6**, (1970), 233.

[Rot90] Rottke H., Wolff B., Brickwedde M., Feldmann D. and Welge K.H., *Phys. Rev. Lett.*, **64**, (1990), 404.

[Sar74] Sargent M., Scully M.O. and Lamb W.E., *Laser Physics*, (Addison-Wesley, 1974).

[Sch84] Schlicher R.R., Becker W., Bergou J. and Scully O., *Quantum Electrodynamics and Quantum Optics*, ed. by Barut A.O. (Plenum, 1984).

[Sle93] Sleijpen G.L.G. and Fokkema D.R., *Electronic Transactions on Numerical Analysis*, **1**, (1993), 11.

[Su90] Su Q., Eberly J.H. and Javanainen J., *Phys. Rev. Lett.*, **64**, (1990), 862.

[Su91] Su Q. and Eberly J.H., *Phys. Rev. A*, **43**, (1991), 2472.

[Sun90] Sundaram B. and Milonni P.W., *Phys. Rev. A*, **41**, (1990), 6571.

[Tai95] Taieb R., Maquet A., Antoine Ph. and Piraux B., "Time dependence of harmonic generation by a single atom", in *Super Intense Laser-Atom Physics*, edited by Muller H.G., Plenum Press, New York (1995).

[Tan90] Tang X., Rudolph H. and Lambropoulos P., *Phys. Rev. Lett.*, **65**, (1990), 3269.

[van91] van der Houwen P.J. and Sommeijer B.P., *SIAM J. Sci. Stat. Comput.*, **12**, (1991), 1000.

[van92] van der Houwen P.J., Sommeijer B.P. and Couzy W., *Math. Comp.*, **58**, (1992), 135.

[Var62] Varga R., *Matrix Iterative Analysis*, (Prentice-Hall Inc., Englewood Cliffs, 1962).

[vdV92] van der Vorst H.A., *SIAM J. Sci. Stat. Comput.*, **13**, (1992), 631.

- [Vén93] Vénard V., Maquet A. and Ménéis T., *Super-Intense Laser-Atom Physics*, Vol. 316 of NATO Advanced Study Institute Series B: Physics, ed. by Piraux B., L'Huillier A. and Rzazewski K., (Plenum, New York, 1987), p. 225.
- [Vor65] Voronov G. S. and Delone N. B., *JETP Lett.*, **1**, (1965), 66.
- [Vos92] Vos R. and Gavrilă M., *Phys. Rev. Lett.*, **68**, (1992), 170.
- [Woj95] Wojcik A. and Parzynski R., *Phys. Rev. A*, **51**, (1995), 3154.
- [Yam75] Yamani H.A. and Reinhardt W.P., *Phys. Rev. A*, **11**, (1975), 1144.
- [Yer86] Yergeau F., Petite G. and Agostini P., *J. Phys. B*, **19**, (1986), 1669.
- [Zer64] Zernik W., *Phys. Rev. A*, **135**, (1964), 51.