



**HAL**  
open science

# Etude théorique de petits systèmes quantiques en champ laser intenses (infrarouges et/ou hautes fréquences)

Soumia Chqondi

► **To cite this version:**

Soumia Chqondi. Etude théorique de petits systèmes quantiques en champ laser intenses (infrarouges et/ou hautes fréquences). Physique [physics]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI; Université Moulay Ismaïl (Meknès, Maroc), 2016. Français. NNT : 2016PA066546 . tel-01528565

**HAL Id: tel-01528565**

**<https://theses.hal.science/tel-01528565>**

Submitted on 29 May 2017

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



## THÈSE DE DOCTORAT

Pour obtenir le grade de Docteur

DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Ecole doctorale : Chimie Physique et Analytique de Paris Centre

ET

DE L'UNIVERSITÉ MOULAY ISMAIL

Ecole doctorale : Sciences Physiques et Ingénieries

### Etude Théorique de petits Systèmes Quantiques en Champ Laser Intenses (Infrarouge et/ou Haute fréquences)

Présentée par Soumia CHQONDI

le 28 octobre 2016

devant le jury composé de :

<b>Président</b>	Pr. Driss KHALIL
<b>Rapporteur</b>	Pr. Said OUASKIT
<b>Rapporteur</b>	Pr. Youssef TAHRI
<b>Rapporteur</b>	Dr. Henri BACHAU
<b>Examineur</b>	Pr. Rodolphe VUILLEUMIER
<b>Directeur de thèse</b>	Dr. Richard TAIEB
<b>Directeur de thèse</b>	Pr. Abdelkader MAKHOUTE

---

*"La connaissance s'acquiert par l'expérience,  
tout le reste n'est que de l'information".*

*Albert Einstein*

---

# Remerciements

Je commencerai par remercier tout d'abord tous les membres du jury d'avoir accepté de juger cette thèse. Un grand merci aux professeurs Bachau Henri, Yousef Tahri et Siad Ouaskit pour avoir accepté d'être rapporteurs scientifiques de cette thèse.

Mes sincères remerciements et ma gratitude vont aussi à Pr Driss Khalil pour avoir accepté de juger ce travail et d'en présider le jury de soutenance.

Merci également Monsieur le Professeur Vuilleumier Rodolphe (Université Pierre et Marie Curie, Paris 6 - France) qui a accepté de juger ce travail en tant qu'examineur.

Je tiens à remercier sincèrement mes deux codirecteurs de thèse les professeurs Richard Taïeb et Abdelkader Makhoute pour leur patience, leur soutien et ses aides.

Je tiens à remercier chaleureusement le professeur Alain DUBOIS, le directeur du Laboratoire de Chimie Physique-Matière et Rayonnement (LCPMR) à Paris-France de m'avoir accueilli dans son Laboratoire où j'ai rencontré mon directeur Richard Taïeb et effectué la grande partie de simulation grâce aux dispositifs informatiques de laboratoire de haute performance.

Je souhaite remercier très également l'ensemble des membres de l'équipe Physique du Rayonnement et des Interactions Laser-Matière (PRILM) qui ont participé humainement à ma thèse.

Finalement Je tiens à remercier ma famille, mes parents et mes frères. A mon Papa et à ma Maman, merci pour tout ce que vous avez fait pour moi, merci de

---

m'avoir toujours soutenue même sans comprendre ce que je faisais, ni dans quoi je m'embarquais. Et bien sûr, je ne peux terminer sans exprimer ma profonde gratitude pour mon mari qui a supportée mes sautes d'humeur pendant les périodes les plus dures avec amour et grand coeur.

Le mot de la fin sera pour ma fille qui m'a offert le bonheur de devenir maman. Ce n'est pas de tout repos mais ça en vaut vraiment la peine!

# Table des matières

<b>Introduction générale</b>	<b>9</b>
Organisation du travail . . . . .	9
Source de rayonnements infrarouges . . . . .	4
<b>I Méthodes de résolution numérique de l'équation de Schrödinger dépendante du temps</b>	<b>7</b>
I.1 Équation de Schrödinger dépendante du temps à 1D . . . . .	8
I.1.1 Questions de stabilité . . . . .	8
I.1.2 Méthode de Crank-Nicholson . . . . .	10
I.1.3 Schéma de discrétisation . . . . .	11
I.1.4 Génération de l'état initial de l'hydrogène . . . . .	12
I.2 L'équation de Schrödinger dépendante du temps pour l'hydrogène atomique en présence d'un champ laser . . . . .	19
I.2.1 Caractéristiques du champ laser . . . . .	20
I.2.2 Hamiltonien du système . . . . .	20
I.2.3 Discrétisation du problème . . . . .	22
I.2.4 Propagation temporelle de la fonction d'onde . . . . .	26
I.2.5 Démarches de résolution . . . . .	28
I.3 Conclusion . . . . .	30

<b>II Réponse de l'atome d'hydrogène soumis à un champ laser intense (Haute fréquences ou Infrarouge )</b>	<b>33</b>
II.1 Paramètres de simulation et convergence des résultats . . . . .	33
II.1.1 Dimension de la boîte de simulation . . . . .	34
II.1.2 Pas temporel et spatial . . . . .	35
II.1.3 Moment angulaire maximal . . . . .	35
II.1.4 Représentation du champ laser . . . . .	36
II.2 Ionisation au dessus du seuil . . . . .	39
II.3 Quantités physiques mesurables . . . . .	40
II.3.1 Spectre d'électron libéré-Technique d'opérateur fenêtre . . . . .	40
II.3.2 Probabilité d'ionisation . . . . .	50
II.4 résultats de simulation-Ionisation simple à plusieurs photons infrarouges	51
<b>III Photoionisation à deux couleurs de l'atome d'hydrogène</b>	<b>57</b>
III.1 Champ résultant . . . . .	58
III.2 Résultats et discussion . . . . .	59
III.2.1 Spectres caractéristiques . . . . .	59
III.2.2 Effet de l'intensité laser sur la photoionisation . . . . .	63
III.3 Comparaison entre les résultats numériques et l'approximation Kroll-Watson (AKW) . . . . .	65
III.4 Résultats numériques . . . . .	69
III.4.1 Convergence des résultats . . . . .	71
<b>IV Distributions angulaires</b>	<b>75</b>
IV.1 Adaptation de la forme de l'impulsion laser . . . . .	75
IV.2 Méthode de calcul . . . . .	76
IV.3 Génération des états propres du continuum . . . . .	77

TABLE DES MATIÈRES

---

IV.3.1	Energie du niveau du continuum-Méthode de "Shooting" . . . . .	78
IV.3.2	Runge-Kutta d'ordre 4-RK4 . . . . .	78
IV.3.3	Comparaison avec les ondes coulombiennes . . . . .	80
IV.3.4	Normalisation des fonctions du continuum obtenues . . . . .	81
IV.4	Résultats et discussion . . . . .	82
IV.5	Effet de l'intensité laser sur la distribution angulaire . . . . .	86
IV.5.1	Pics harmoniques . . . . .	86
IV.5.2	Pics satellites . . . . .	87
IV.6	Conclusion . . . . .	88
<b>A</b>	<b>Système d'unités atomiques</b>	<b>95</b>
<b>B</b>	<b>Différents processus d'ionisation</b>	<b>99</b>
<b>C</b>	<b>Génération d'harmoniques</b>	<b>105</b>
<b>D</b>	<b>Représentation numérique des fonctions du continuum</b>	<b>111</b>
D.1	Normalisation numérique des fonctions du continuum . . . . .	113

<b>Sigle</b>	<b>Signification</b>
ATI	Above Threshold Ionization (ionisation au dessus du seuil)
ESS	Equation de Schrödinger Stationnaire
ESDT	Equation de Schrödinger Dépendante du Temps
IR	Infrarouge
IR-C	Infrarouge lointain
IR-B	Infrarouge moyen
IR-A	Infrarouge proche
BL	bandes latérales
SB	side-bands
AKW	approximation Kroll-Watson
HHG	High Harmonic Generation (harmoniques d'ordre élevé)
RK4	Runge-Kutta d'ordre 4
LFA	Low-Frequency Approximation (approximation de basse fréquence)
eV	Electron-Volt
u.a.	Unités Atomiques

Table 1 – Abréviations utilisées dans le manuscrit.

Nous avons présenté dans le tableau (1) les diverses abréviations employées dans ce travail, et nous les rappellerons au premier usage.

# Introduction générale

L'étude de l'interaction entre un champ laser<sup>1</sup> et les systèmes atomiques est sujet d'intérêt depuis l'invention du laser au début des années 60. Le développement de lasers pulsés de haute puissance au cours des deux dernières décennies a permis l'atteindre des intensités supérieures à  $10^{14}W/cm^2$  et avec des durées d'impulsions de quelques femtosecondes<sup>2</sup>. Avec de telles caractéristiques, l'interaction d'un tel champ avec un système atomique conduit, d'une part, à l'observation expérimentale des processus non linéaires où un grand nombre de photons peuvent être émis ou absorbés, tandis que, d'autre part, d'un point de vue théorique, à l'utilisation des techniques non perturbatives pour le traitement de l'interaction laser-matière. En 1979, Agostini et al. [1] ont découvert, en mesurant le spectre en énergie des photoélectrons, que l'électron éjecté peut absorber des photons au dessus du seuil d'ionisation . Ce phénomène est connu sous le nom ATI ("Above Threshold Ionization"). L'augmentation de l'intensité laser à permis de pousser plus loin les investigations expérimentales et théoriques de l'ATI et de faire apparaître d'autres caractéristiques du spectre des électrons comme par exemple le déplacement des pics ATI en raison des décalages Stark dynamiques [2], la présence de sous structures sur les pics ATI liées à des couplages résonnants avec des états proches du seuil d'ionisation [3], on parle alors d'ionisation REMPI

---

1. LASER : Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation (amplification de la lumière par émission stimulée de rayonnement)

2. 1 *femtosecondes* =  $10^{-15}s \simeq 41.3413u.a.$

("Resonantly Enhanced MultiPhoton Ionisation") [4]. À la fin des années 80 les expérimentateurs ont pu observer un autre phénomène de l'interaction laser-gaz dans le régime de haute intensité : c'est la génération d'harmoniques d'ordres élevés (ou HHG pour "High Harmonic Generation") (voir annexe C) qui a été observée pour la première fois en 1987 par l'équipe de Rhodes et coll. à Chicago [5] et par celle de Mainfray et coll. à Saclay [6]. L'étude théorique de ces processus s'avère complexe. En effet, à ces intensités, les développements théoriques jusque là utilisés, tels que la théorie des perturbations, deviennent caduques. D'autres approches théoriques ont donc été élaborées pour obtenir la réponse atomique. Elles reposent sur la résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps (ESDT)<sup>3</sup>, équation fondamentale de la physique quantique. La plupart des efforts théoriques ont porté sur la résolution directe de cette équation pour un système atomique à un électron actif notamment l'hydrogène atomique dans un champ laser intense, car c'est le système le plus simple qui peut être résolu exactement et, en plus, il possède un potentiel d'ionisation qui est proche de celui de l'argon ( $I_P = 15.76 \text{ eV}$ ) ou du xénon ( $I_P = 12.13 \text{ eV}$ ). L'argon et le xénon sont actuellement utilisés dans des expériences, mais, en raison de leur structure électronique, il est extrêmement difficile de les traiter dans une approche de l'ESDT et seulement des approximations à un électron actif ont été utilisées jusqu'à présent.

La résolution exacte de l'ESDT est la méthode la plus complète, mais la plus coûteuse numériquement. Elle fut résolue numériquement dès l'apparition des premiers ordinateurs dans les années 1950. Le travail des physiciens a donc été concentré sur l'élaboration des méthodes et techniques numériques permettant de calculer la dynamique d'un système atomique dans un champ laser intense. On peut citer, par exemple, les techniques reposant sur le développement de la solution de l'ESDT sur une base radiale de fonctions Sturmienne [7] ou bien sur une base de fonctions B-Splines [8], ou encore sur une grille de points [9]. Ces techniques de résolution se sont améliorées

---

3. Equation élaborée par le physicien autrichien Erwin Schrödinger en 1925

progressivement avec l'augmentation des capacités des ordinateurs.

Notre étude commence donc par décrire les méthodes ayant été utilisées pour résoudre numériquement l'ESDT pour un système à un électron actif. Pour rappeler des méthodes de résolution les plus efficaces, nous considérons tout d'abord le cas simple de l'ESDT en une dimension d'espace pour un atome sans champ extérieur. Grâce à cette étude, nous pouvons améliorer les méthodes numériques globales pour résoudre le problème à trois dimensions afin d'étudier les processus de l'interaction entre un système à un seul électron actif et un champ laser, à savoir la photoionisation, l'ionisation par plusieurs photons, l'ionisation à deux couleurs . . . La compréhension des processus d'ionisation est très importante pour plusieurs domaines comme, par exemple, la physique des plasmas, l'astrophysique et la radiobiologie.

Selon les paramètres du champ d'interaction tels que l'intensité et la fréquence, nous pouvons déterminer la nature du processus d'ionisation à étudier. La photoionisation est le processus prédominant dans le régime des hautes fréquences où l'énergie du photon incident est supérieure au premier seuil d'ionisation  $I_p$ , par contre, le processus d'ionisation multiphotonique est dominant aux basses fréquences, alors que l'ionisation à deux couleurs nécessite la combinaison des deux : hautes et basses fréquences.

De nombreuses études théoriques [10, 11] et expérimentales [12, 13, 14] ont porté sur l'analyse spectrale du processus d'ionisation simple par le rayonnement harmonique combiné à l'infrarouge (laser générateur) dans un gaz rare en mesurant le signal dépendant du recouvrement temporel entre une impulsion harmonique et une impulsion laser IR. Si le recouvrement temporel a lieu, le spectre d'énergie de photoélectrons obtenu montre l'apparition d'autres pics satellites autour du pic harmonique appelés bandes latérales ( $BL_{\pm n}$ ) d'ordre  $\pm n$  ou "side-bands" en anglais ( $SB_{\pm n}$ ) (notés par la suite ( $BL_{\pm n}$ )), qui sont la signature des transitions à deux photons : l'absorption d'un photon harmonique et l'échange des photons infrarouges. Les résultats de simulation de ce processus d'ionisation obtenus par la résolution de l'ESDT, va permettre par la

suite de discuter les distributions angulaires des pics du spectre de photoélectron soit du pic harmonique, soit des pics satellites.

## Source de rayonnements infrarouges

Plus récemment, les sources des lasers infrarouges ont connu une croissance importante en raison de leur fiabilité, la compacité et la diversité des processus physiques impliqués dans l'interaction laser-matière. Les techniques habituellement utilisées, pour produire ce type de rayonnement, sont basées sur l'utilisation d'un système du cristal saphir (Sa) dopé aux ions titane (Ti). Ces sources de rayonnement devenues disponibles dans les laboratoires de recherche, permettent de délivrer des impulsions femtosecondes pour un large spectre d'émission centré à  $\lambda = 800 \text{ nm}$  correspondant à une fréquence de  $\omega = \frac{c}{\lambda} \simeq 0.057 \text{ u.a.}$  ( $1.55 \text{ eV}$ ). Grâce à elles, les chercheurs ont pu mettre en évidence des phénomènes non linéaires lors de l'interaction des atomes avec des champs excitateurs extrêmement forts, tels que l'ionisation multiphotonique, l'ionisation au-dessus du seuil (ATI) ou encore la génération d'harmoniques d'ordre élevé.

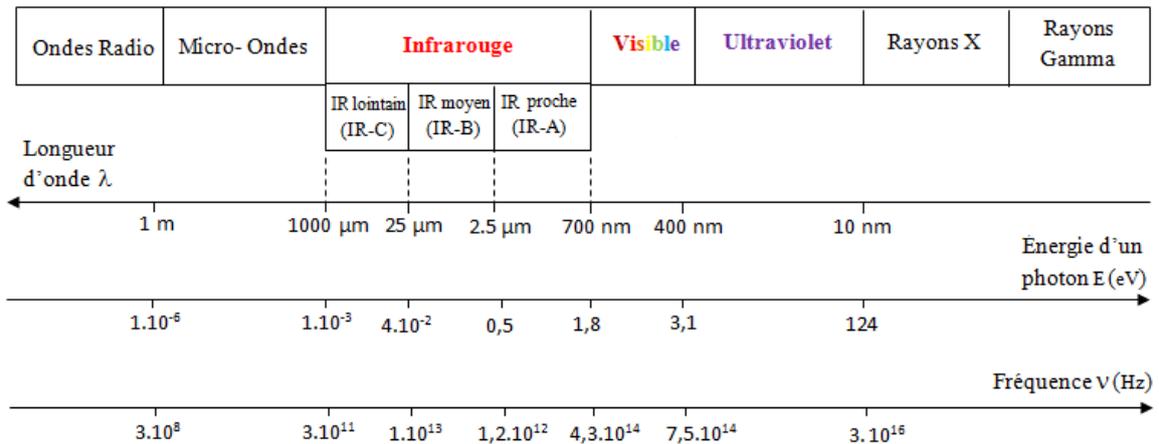


Figure 1 – Domaines de l'IR dans le spectre électromagnétique.

## Organisation du travail

Ce manuscrit est structuré en quatre chapitres selon le plan suivant :

☛ **Chapitre I** : Ce chapitre est consacré à la description de différentes méthodes et techniques numériques permettant de résoudre l'ESDT associée à l'interaction d'un système atomique à un électron actif interagissant avec un champ laser intense, en se basant sur une méthode de discrétisation à la fois spatiale et temporelle. Grâce à ces techniques de résolution d'une part et à la capacité des ordinateurs utilisés d'autre part, nous avons pu développer un algorithme qui nous a permis de résoudre l'ESDT. Après la vérification de sa stabilité numérique et sa précision nous l'utilisons pour engendrer l'état initial de notre système à travers la résolution de l'ESDT dans le cas unidimensionnel. Ensuite, nous avons adapté ce code numérique pour la résolution en trois dimensions.

☛ **Chapitre II** : Ce chapitre concerne la première application du code numérique développé au premier chapitre, il s'agit de l'ionisation de l'atome d'hydrogène par un champ laser intense et haute fréquence dans un premier temps, puis par un champ laser intense et basse fréquence (Infrarouge).

☛ **Chapitre III** : Dans ce chapitre nous adaptons le code numérique pour présenter les résultats de simulation des processus de photoionisation à "deux couleurs", c'est-à-dire combinant au moins deux photons, infrarouge et l'un de ses harmoniques. Nos résultats de simulations sont ensuite comparés avec des méthodes approchées couramment utilisées. Nous choisissons pour ce faire les résultats du calcul de la section efficace d'ionisation effectué à l'aide des approches de Kroll et Watson.

✦ **Chapitre IV** : Dans ce chapitre nous pouvons pousser l'analyse des résultats obtenus dans le chapitre III aussi loin que possible en étudiant la distribution angulaire des spectres de la photoionisation à deux couleurs. Nous présentons tout d'abord la méthode de projection utilisée à cet effet, qui est principalement basée sur un calcul numérique des états du continuum. Nous discuterons ensuite les résultats de simulation pour un photon harmonique relativement bas (H15) pour différentes intensités laser IR. Nous terminons ce travail par une conclusion générale.

# Chapitre I

## Méthodes de résolution numérique de l'équation de Schrödinger dépendante du temps

Dans ce chapitre nous allons présenter les méthodes numériques utilisées pour résoudre l'ESDT, qui décrit l'évolution au cours du temps de la fonction d'onde d'un système atomique à un électron actif interagissant avec un champ laser intense. Comme nous l'avons noté dans l'introduction, la résolution de ce problème nécessite l'utilisation des méthodes de simulations numériques qui doivent bien sûr être convergentes et bien adaptées au cas de l'hydrogène et des ions hydrogénoïdes caractérisés par leur potentiel Coulombien.

Nous commencerons ce chapitre en établissant les méthodes numériques mises en oeuvre pour résoudre l'ESDT à une dimension associée à l'évolution de la fonction d'onde  $\psi(x, t)$  sans champ extérieur et donnerons l'algorithme adapté à la description du système représentant notre problème ; puis nous utiliserons cet algorithme pour résoudre l'ESDT à trois dimensions dans le cas de l'interaction laser-atome d'hydrogène

en modifiant la méthode de propagation temporelle.

## I.1 Équation de Schrödinger dépendante du temps à 1D

Les méthodes de calcul numérique qui permettent de résoudre l'ESDT dans le cas monodimensionnel consistent à discrétiser l'espace et le temps de cette équation sur une grille de points, c'est-à-dire à ne sélectionner qu'un nombre  $n$  fini de points  $x_i$  du domaine spatial et  $t_j$  du domaine temporel afin d'approcher la solution exacte aux points  $(x_i, t_j)$  de la discrétisation.

### I.1.1 Questions de stabilité

La difficulté du problème demeure dans la pertinence dans le choix des méthodes numériques conduisant à la discrétisation concernée. L'ESDT à 1D pour l'atome d'hydrogène, en représentation  $\{|x\rangle\}$ , s'écrit en unités atomiques comme suit

$$i\frac{\partial}{\partial t}\psi(x, t) = H(x, t)\psi(x, t), \quad (\text{I.1})$$

où  $H(x, t)$  est l'opérateur Hamiltonien du système et  $\psi(x, t)$  la fonction d'onde électronique, cette dernière peut être obtenue à partir de l'opérateur d'évolution  $U(t, t_0)$  qui agit sur un état initial donné  $\psi(x, t_0)$ . La solution formelle s'écrit sous la forme

$$\psi(x, t) = U(t, t_0)\psi(x, t_0), \quad (\text{I.2})$$

avec  $U(t_0, t_0) = 1$ , condition initiale nécessaire pour que son action sur l'état initial  $\psi(x, t_0)$  redonne trivialement la même fonction d'état.

Par analogie avec l'équation différentielle du premier ordre, l'opérateur d'évolution  $U(t + \Delta t, t)$  associé à l'équation de Schrödinger se réduit à une simple exponentielle.

La solution formelle de l'équation (I.1) s'écrit donc comme suit

$$\psi(x, t + \Delta t) \simeq e^{-i \int_t^{t+\Delta t} H(x, \tau) d\tau} \psi(x, t). \quad (\text{I.3})$$

L'approximation de l'intégrale  $\int_t^{t+\Delta t} H(x, \tau) d\tau$  peut être obtenue à partir de la méthode de rectangle centré qui est juste l'aire d'un rectangle de base  $\Delta t$  et de hauteur  $H$  au demi-intervalle de temps :

$$\int_t^{t+\Delta t} H(x, \tau) d\tau \simeq H\left(x, t + \frac{\Delta t}{2}\right) \Delta t + O(\Delta t^2). \quad (\text{I.4})$$

L'équation (I.3) devient

$$\psi(x, t + \Delta t) \simeq e^{-iH\left(x, t + \frac{\Delta t}{2}\right)\Delta t} \psi(x, t). \quad (\text{I.5})$$

Pour une valeur de  $\Delta t$  suffisamment petite, l'opérateur exponentiel peut être approximé par la méthode explicite d'Euler qui est la plus simple et qui consiste à retenir les premiers termes du développement de Taylor au premier ordre, on a alors

$$e^{-iH\left(x, t + \frac{\Delta t}{2}\right)\Delta t} \simeq 1 - iH\left(x, t + \frac{\Delta t}{2}\right)\Delta t + O(\Delta t^2). \quad (\text{I.6})$$

Ainsi, la valeur de la fonction d'onde  $\psi$  à l'instant  $t + \Delta t$  dépend explicitement de la fonction d'onde  $\psi$  à l'instant  $t$ , la solution (I.5) devient alors

$$\psi(x, t + \Delta t) \simeq \left[ 1 - iH\left(x, t + \frac{\Delta t}{2}\right)\Delta t \right] \psi(x, t) \quad (\text{I.7})$$

Malheureusement, cette équation donne une fonction d'onde non normée car on a  $\left\| 1 - iH\left(x, t + \frac{\Delta t}{2}\right)\Delta t \right\| > 1$ , ceci prouve que le schéma d'Euler adopté n'est pas normé,

ce qui pose un problème pour la conservation de la norme. De plus on peut montrer que ce schéma est instable quelque soit la valeur de  $\Delta t$  [15].

### I.1.2 Méthode de Crank-Nicholson

L'approximation la plus pratique afin de corriger le problème d'instabilité de la méthode d'Euler est de remplacer l'opérateur exponentielle  $e^{-iH\Delta t}$  par la forme de Cayley suivante

$$e^{-iH(x,t+\frac{\Delta t}{2})\Delta t} = \frac{e^{-iH(x,t+\frac{\Delta t}{2})\frac{\Delta t}{2}}}{e^{iH(x,t+\frac{\Delta t}{2})\frac{\Delta t}{2}}} \tag{I.8}$$

$$\simeq \frac{1-iH(x,t+\frac{\Delta t}{2})\frac{\Delta t}{2}}{1+iH(x,t+\frac{\Delta t}{2})\frac{\Delta t}{2}} + O(\Delta t^3),$$

ce qui conduit à une méthode cubique pour un pas de temps  $\Delta t$  et donc quadratique pour une propagation complète. Cette formule est la base de la méthode numérique de Crank-Nicolson dont les dérivées en espace contenues dans le Hamiltonien  $H$  sont approchées par la méthode des différences finies.

Utilisant l'approximation (I.8), l'équation (I.5) peut alors s'écrire

$$\psi(x, t + \Delta t) \simeq \frac{1 - iH(x, t + \frac{\Delta t}{2})\frac{\Delta t}{2}}{1 + iH(x, t + \frac{\Delta t}{2})\frac{\Delta t}{2}}\psi(x, t). \tag{I.9}$$

Il est clair que l'approximation utilisée de l'opérateur exponentiel (I.8) est unitaire et

quel que soit le pas de temps  $\Delta t$ , on a  $\left\| \frac{1 - iH\left(x, t + \frac{\Delta t}{2}\right) \frac{\Delta t}{2}}{1 + iH\left(x, t + \frac{\Delta t}{2}\right) \frac{\Delta t}{2}} \right\| = 1$ . De plus, on peut montrer que cette méthode est inconditionnellement convergente.

L'équation (I.9) devient plus simple si on l'écrit sous la forme suivante

$$\left[ 1 + iH\left(x, t + \frac{\Delta t}{2}\right) \frac{\Delta t}{2} \right] \psi(x, t + \Delta t) \simeq \left[ 1 - iH\left(x, t + \frac{\Delta t}{2}\right) \frac{\Delta t}{2} \right] \psi(x, t). \quad (\text{I.10})$$

On peut noter que cette équation est la combinaison d'une forme explicite (membre de droite) qui fait évoluer la fonction d'onde  $\psi$  de l'instant  $t$  jusqu'à l'instant  $t + \Delta t/2$  et une forme implicite (membre de gauche) qui permet d'évoluer  $\psi$  de  $t + \Delta t/2$  jusqu'à la fonction d'onde cherchée à  $t + \Delta t$ .

L'équation (I.10) peut donc se mettre sous la forme du système d'équations suivant

$$\psi\left(x, t + \frac{\Delta t}{2}\right) = \left[ 1 - iH\left(x, t + \frac{\Delta t}{2}\right) \frac{\Delta t}{2} \right] \psi(x, t) \quad (\text{I.11})$$

et

$$\left[ 1 + iH\left(x, t + \frac{\Delta t}{2}\right) \frac{\Delta t}{2} \right] \psi(x, t + \Delta t) = \psi\left(x, t + \frac{\Delta t}{2}\right). \quad (\text{I.12})$$

Même si la méthode de Crank-Nicholson est inconditionnellement stable, il est impératif de choisir une valeur suffisamment petite du pas de temps pour obtenir des résultats convergés.

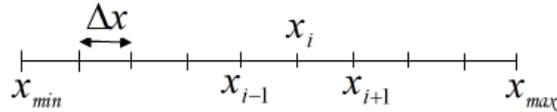
### I.1.3 Schéma de discrétisation

Sachant que les ordinateurs ne connaissent que le fini et le discret, le problème physique qui est continu doit donc être passé au problème approché qui est discret à l'aide des techniques numériques plus ou moins compliquées.

Dans le but de résoudre numériquement l'ESDT, nous avons choisi les méthodes de grille qui consistent en la discrétisation des quantités que nous voulons propager à la fois dans l'espace et dans le temps, où les dérivées partielles en espace sont approximées par des méthodes de différences finies. En effet, pour faire une discrétisation pour les modèles à 1D, nous devons définir une grille unidimensionnelle (segment de droite de taille finie) à l'intérieur d'une boîte de simulation, puis nous la divisons en  $n$  points espacés par un pas constant et uniforme  $\Delta x$

- **Pour l'espace** : on divise de manière régulière un segment de taille  $x_{max}$  en  $n$  points comme suit :

$$x_{min} = x_1 < x_2 < \dots < x_i = (i - 1)\Delta x + x_{min} < \dots < x_{n-1} < x_n = x_{max},$$



où  $i$  est un indice entier représentant le  $i^{\text{ème}}$  point du segment.

- **Pour le temps** : de la même façon, on discrétise l'intervalle du temps  $[0, t_{max}]$  en  $N$  points comme suit

$$0 = t_1 < t_2 < \dots < t_j = j\Delta t < \dots < t_{N-1} < t_N = t_{max},$$

où  $j$  est le  $j^{\text{ème}}$  point du segment.

#### I.1.4 Génération de l'état initial de l'hydrogène

Il est clair que l'équation que nous voulons résoudre (ESDT) est une équation aux dérivées partielles, ce qui signifie qu'elle nécessite une condition initiale, c'est-à-dire une valeur pour la fonction d'onde en un instant  $t_0$ .

Nous considérons très souvent que l'atome d'hydrogène est initialement dans son état fondamental  $\psi(t_0)$  (le temps initial  $t_0$  de l'interaction est  $t = 0$  où le champ laser

est nul). Cette fonction d'onde d'un système décrit par le Hamiltonien  $H_0 = \frac{P^2}{2} - \frac{1}{r}$  est une solution exacte de l'ESDT et qui serait une solution continue.

#### I.1.4.1 Discrétisation de l'opérateur hamiltonien non perturbé

Le Hamiltonien non perturbé  $H_0$  est défini en u.a. par  $H_0 = E_c + E_p = -\frac{1}{2}\Delta_x + V(x)$ , où  $E_c$  est l'opérateur de l'énergie cinétique de l'électron et  $E_p$  est l'opérateur de l'énergie potentiel qui représente l'interaction coulombienne entre le noyau et l'électron.

##### ✓ l'opérateur potentiel

La discrétisation de l'opérateur d'énergie potentiel  $V(x)$  dans le domaine spatial  $[x_{min}, x_{max}]$  peut facilement s'effectuer comme suit

$$V(x_i) = -\frac{1}{|x_i|} \text{ avec } x_i = (i-1)\Delta x + x_{min} \text{ pour } i = 1, \dots, n. \quad (\text{I.13})$$

##### ✓ l'opérateur cinétique

L'opérateur de l'énergie cinétique peut être discrétisé par la méthode des différences finies à trois points qui est la méthode la plus adaptée pour approcher les dérivées partielles du fait de sa grande simplicité d'écriture et son faible coût de calcul. Cette approximation basée sur les développements de Taylor se déduit directement de la définition de la dérivée.

Par exemple pour approximer la dérivée seconde en espace de la fonction  $f_i$  où  $f_i = f(x_i)$ , nous utilisons les développements de Taylor au voisinage de  $x_i$

$$f_{i+1} = f(x_i + \Delta x) = f_i + \Delta x \left( \frac{\partial f}{\partial x} \right)_i + \frac{\Delta x^2}{2} \left( \frac{\partial^2 f}{\partial x^2} \right)_i + \frac{\Delta x^3}{6} \left( \frac{\partial^3 f}{\partial x^3} \right)_i + O(\Delta x^4) \quad (\text{I.14})$$

et

$$f_{i-1} = f(x_i - \Delta x) = f_i - \Delta x \left( \frac{\partial f}{\partial x} \right)_i + \frac{\Delta x^2}{2} \left( \frac{\partial^2 f}{\partial x^2} \right)_i - \frac{\Delta x^3}{6} \left( \frac{\partial^3 f}{\partial x^3} \right)_i + O(\Delta x^4). \quad (\text{I.15})$$

Si on fait la somme de ces deux égalités (I.14) et (I.15), on obtient un schéma d'ordre deux dit "centré", de la forme

$$\left(\frac{\partial^2 f}{\partial x^2}\right)_i = \frac{f_{i+1} - 2f_i + f_{i-1}}{\Delta x^2} + O(\Delta x^2). \quad (\text{I.16})$$

Cette formulation discrétisée décrit l'approximation du Laplacien sur notre grille unidimensionnelle.

La discrétisation du problème suggère que son état initial doit dépendre de l'espacement de la boîte de simulation, c'est-à-dire qu'il faut le calculer sur une grille unidimensionnelle discrétisée spatialement. Cet état peut être généré soit par la diagonalisation directe de l'Hamiltonien non perturbé  $H_0$  [16], ou par l'évolution libre -sans champ laser- du système dans le temps imaginaire comme une équation de diffusion [17] ou par la méthode de l'itération inverse. Les deux dernières méthodes sont en fait plus faciles à mettre en oeuvre en pratique. Nous préférons utiliser la méthode de l'itération inverse pour une raison que nous verrons au paragraphe suivant.

#### I.1.4.2 Méthode de diffusion

La méthode de diffusion consiste en la propagation temporelle sans champ extérieur de la fonction d'onde  $\chi$  sur une grille discrète à 1D.

L'étude de l'évolution libre au cours du temps d'une fonction  $\chi(x, t)$  est régie par l'ESDT non perturbée

$$i\frac{\partial \chi(x, t)}{\partial t} = H_0 \chi(x, t). \quad (\text{I.17})$$

Cette équation admet une solution sous la forme :

$$\chi(x, t) = e^{-iH_0 t} \chi(x, t_0 = 0). \quad (\text{I.18})$$

La fonction d'onde initiale  $\chi(x, t_0)$  peut être développée sur une base des états

propres de l'Hamiltonien non perturbé  $H_0$

$$\chi(x, t_0) = \sum_n c_n^{(0)} \phi_n(x) \quad \text{avec} \quad H_0 \phi_n(x) = E_n \phi_n(x), \quad (\text{I.19})$$

où  $E_n$  est l'énergie associée à l'état propre  $\phi_n$  de  $H_0$  et les coefficients  $c_n^{(0)}$  sont des constantes et le symbole de sommation implique une somme sur l'ensemble des états propres  $\phi_n$ .

La solution générale de l'ESDT non perturbé est donc donnée par la superposition des états stationnaires

$$\chi(x, t) = \sum_n c_n^{(0)} e^{-iE_n t} \phi_n(x). \quad (\text{I.20})$$

#### ◆ Équation de diffusion

L'équation de diffusion est obtenue en posant  $t = -i\tau$ . l'ESDT (I.17) devient alors

$$\frac{\partial \chi(x, \tau)}{\partial \tau} = -H_0 \chi(x, \tau) \quad (\text{I.21})$$

La solution (I.20) s'écrit ainsi

$$\chi(x, \tau) = \sum_n c_n^{(0)} e^{-E_n \tau} \phi_n(x) = c_0^{(0)} e^{-E_{1s} \tau} \phi_0 + \sum_{n \geq 1} c_n^{(0)} e^{-E_n \tau} \phi_n(x) \quad (\text{I.22})$$

Rappelons que  $E_0 = E_{1s} \simeq -\frac{1}{2}$  et  $E_n > E_{1s}$ . la solution (I.22) peut être réécrite sous la forme :

$$\chi(x, \tau) = e^{\frac{1}{2}\tau} \left( c_0^{(0)} \phi_0 + \sum_{n \geq 0} c_n^{(0)} e^{-\overbrace{(E_n - E_{1s})}^{\rangle 0}} \tau \phi_n(x) \right) \quad (\text{I.23})$$

A la fin de la propagation, c'est-à-dire lorsque  $\tau \rightarrow \tau_{max}$ , le seconde terme du membre de droite tend vers zéro, ce qui implique  $\chi(x, \tau_{max}) \rightarrow C \phi_0$



liant les valeurs de  $\chi_i^j$  aux deux points voisins, il faut alors résoudre à chaque pas de temps un système tridiagonal de taille  $n$  pour obtenir  $\chi_i^{j+1}$  à partir de  $\chi_i^j$ , qui s'écrit matriciellement sous la forme

$$\begin{pmatrix} \beta_1 & \gamma_1 & & & 0 \\ \alpha_2 & \beta_2 & \gamma_2 & & \\ & \ddots & \ddots & \ddots & \\ & & \alpha_{n-1} & \beta_{n-1} & \gamma_{n-1} \\ 0 & & & \alpha_n & \beta_n \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \chi_1^{j+1} \\ \chi_2^{j+1} \\ \vdots \\ \chi_{n-1}^{j+1} \\ \chi_n^{j+1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} r_1^j \\ r_2^j \\ \vdots \\ r_{n-1}^j \\ r_n^j \end{pmatrix} \quad \text{pour } j = 0, \dots, N \quad (\text{I.29})$$

avec  $\alpha_i$  ( $i = 2, \dots, n$ ),  $\beta_i$  ( $i = 1, \dots, n$ ) et  $\gamma_i$  ( $i = 1, \dots, n-1$ ) sont respectivement l'élément sous-diagonal, diagonal et sur-diagonal de la matrice tridiagonale. Ils sont définis comme suit

$$\alpha_i = -\frac{\Delta\tau}{4\Delta x^2}, \quad \beta_i = 1 + \frac{\Delta\tau}{2} \left( \frac{1}{\Delta x^2} + V(x) \right) \quad \text{et} \quad \gamma_i = -\frac{\Delta\tau}{4\Delta x^2}, \quad (\text{I.30})$$

tandis que les éléments  $r_i^j$  du vecteur du membre de droite sont définis par

$$r_i^j = \left[ 1 - \frac{\Delta\tau}{2} \left( \frac{1}{\Delta x^2} + V(x) \right) \right] \chi_i^j + \frac{\Delta\tau(\chi_{i-1}^j + \chi_{i+1}^j)}{4\Delta x^2} \quad \text{pour } i = 2, \dots, n-1 \quad \text{et } j = 0, \dots, N. \quad (\text{I.31})$$

On peut facilement résoudre le système (I.29) à l'aide d'un sous-programme numérique utilisé pour la résolution d'un système avec une matrice tridiagonale de dimension  $n \times n$  [15].

### I.1.4.3 Méthode d'itération inverse

Pour approximer la fonction initiale on peut utiliser une des méthodes itératives plus simple et précise, c'est la méthode d'itération inverse qui consiste à trouver un

vecteur propre d'une matrice à partir d'une valeur approchée de la valeur propre correspondante.

Il s'agit de résoudre le système suivant

$$(H_0 - \varepsilon I)|v\rangle = |\varphi\rangle, \quad (\text{I.32})$$

avec  $I$  la matrice unité,  $|v\rangle$  la solution de cette équation,  $|\varphi\rangle$  le vecteur d'essai et  $\varepsilon$  une valeur d'essai proche d'une valeur propre de la matrice  $H_0$ .

On peut développer  $|\varphi\rangle$  sur la base des vecteurs propres de  $H_0$

$$|\varphi\rangle = \sum_n C_n |\psi_n\rangle. \quad (\text{I.33})$$

D'où

$$|v\rangle = \sum_n \frac{C_n}{(E_n - \varepsilon)} |\psi_n\rangle. \quad (\text{I.34})$$

Si  $\varepsilon \simeq E_0$ , le poids de  $|\psi_0\rangle$  dans  $|v\rangle$  augmente fortement par rapport à celui dans  $|\varphi\rangle$  et on a  $|v\rangle \approx |\psi_0\rangle$  au bout de quelques itérations.

Il est alors possible de choisir comme vecteur d'essai la fonction d'onde suivante

$$|\varphi^{(0)}\rangle = 2xe^{-x} \quad \text{pour} \quad \varepsilon^{(0)} = E_0 = -\frac{1}{2}. \quad (\text{I.35})$$

Le système à résoudre s'écrit alors comme suit

$$(H_0 - \varepsilon^{(i-1)} I)|v^{(i)}\rangle = |\varphi^{(i-1)}\rangle \quad \text{avec} \quad i = 1 \dots m \quad (\text{I.36})$$

$m$  est le nombre d'itérations.

Comme nous l'avons fait précédemment, la discrétisation spatiale du système s'ef-

fectue à l'aide de la méthode des différences finies, ce qui conduit à un système tridiagonal que l'on peut résoudre en utilisant la même routine qui a été programmée dans le cas de la diffusion.

Un nouveau vecteur d'essai est donné par

$$|\varphi^{(i)}\rangle = \frac{|v^{(i)}\rangle}{\sqrt{\langle v^{(i)}|v^{(i)}\rangle}} \quad (\text{I.37})$$

et

$$\varepsilon^{(i)} = \varepsilon^{(i-1)} - \frac{1}{\langle \varphi^{(i)}|v^{(i)}\rangle}. \quad (\text{I.38})$$

Cependant, dans l'intervalle  $[x_{min}, x_{max}]$  et à chaque itération, on a bien assuré que la fonction d'onde  $\varphi^{(i)}$  vérifie la relation de normalisation suivante

$$\int_0^{+\infty} |\varphi^{(i)}|^2 dx \approx \sum_{i=1}^n |\varphi^{(i)}|^2 \Delta x \simeq 1. \quad (\text{I.39})$$

Nous avons préféré utiliser cette méthode d'itération inverse pour sa convergence rapide et son principe qui est assez simple.

Pour un nombre  $m = 5$  d'itérations qui est en fait suffisant pour la convergence des résultats, on peut approcher la fonction d'onde de l'état initial  $|\psi(t = 0)\rangle$  par la fonction d'onde  $|\varphi^{(5)}\rangle$  correspond une valeur de l'énergie  $\varepsilon^{(5)} = \varepsilon^{(4)} - 1.56 \times 10^{-7} \approx E_0$ .

## I.2 L'équation de Schrödinger dépendante du temps pour l'hydrogène atomique en présence d'un champ laser

Dans le but d'étudier la dynamique de l'interaction d'un atome d'hydrogène avec un champ laser intense, nous avons effectué une simulation numérique via la résolution numérique de l'ESDT en trois dimensions. Nous décrivons dans cette section briève-

ment notre méthode numérique de la propagation de la fonction d'onde électronique dans le temps. Nous avons choisi l'algorithme qui est une extension de celui de Crank Nicholson. Il s'agit d'une méthode implicite de Peaceman-Rachford [18]. Ensuite, Nous discutons la façon dont la fonction d'onde dépendante du temps ainsi obtenue est utilisée pour produire un spectre de photoélectrons.

### **I.2.1 Caractéristiques du champ laser**

L'impulsion laser que nous utilisons par la suite est décrite dans une représentation semi-classique, avec une enveloppe temporelle  $f(t, \omega_0)$  qui englobe, durant la durée de l'impulsion, les oscillations du champ électrique  $\vec{E}(\vec{r}, t)$  d'amplitude maximale  $E_0$  (correspondant à une intensité crête  $I_0$ ). Nous nous plaçons dans le cadre de l'approximation dipolaire (approximation des grandes longueurs d'onde) qui suppose que la longueur d'onde  $\lambda$  caractéristique des variations spatiales du champ électrique est beaucoup plus importante que l'extension spatiale du système atomique, c'est-à-dire  $\lambda \gg a_0$  avec  $a_0$  est le rayon atomique de Bohr correspondant à la première orbitale ( $n = 1$ ).

La représentation du champ électrique d'amplitude maximale  $E_0$  et de fréquence  $\omega_0$  peut se mettre alors sous la forme

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = E_0 f(t, \omega_0) \sin(\omega_0 t) \vec{e}_z \quad (\text{I.40})$$

$\vec{e}_z$  est la direction de polarisation linéaire, choisie parallèle à l'axe de quantification  $z$ .

### **I.2.2 Hamiltonien du système**

L'équation de Schrödinger dépendante du temps décrivant l'interaction laser-atome d'hydrogène s'écrit, dans l'approximation dipolaire et en u.a. (voir annexe A), sous la

forme suivante :

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi(\vec{r}, t) = H(\vec{r}, t) \psi(\vec{r}, t), \quad (\text{I.41})$$

où  $H$  est l'Hamiltonien total du système, qui se décompose comme suit

$$H = H_0 + H_{int}(t). \quad (\text{I.42})$$

$H_0$  est l'Hamiltonien de l'atome,  $H_0 = -\frac{1}{2}\Delta_r - \frac{1}{r}$ , et  $H_{int}$  représente le terme d'interaction entre le champ et le système atomique donné par :

$$H_{int} = \vec{E}(t) \cdot \vec{r} \quad \text{en jauge des longueurs proposée par Göppert-Mayer en 1931 [20]}$$

$$H_{int} = \vec{A}(t) \cdot \vec{p} + \frac{\vec{A}^2(t)}{2} \quad \text{en jauge des vitesses}$$

Cette dénomination des deux jauges provient de la présence du vecteur position des électrons  $\vec{r}$  ou du vecteur impulsion  $\vec{p}$  dans les termes d'interaction avec le champ. La relation entre le champ électrique  $\vec{E}(t)$  et le potentiel vecteur  $\vec{A}(t)$  est donnée par l'expression  $\vec{E}(t) = -\frac{\partial \vec{A}(t)}{\partial t}$ , en u.a.. Signalons que, en jauge vitesse, le terme de phase  $\frac{\vec{A}^2(t)}{2}$  ne sera pas pris en compte dans les calculs car dans l'approximation dipolaire, ce terme peut être facilement éliminé du Hamiltonien.

Pour des raisons de simplicité, nous travaillerons avec la jauge longueur. Avec ce choix de la jauge, l'ESDT définissant l'interaction d'un atome d'hydrogène avec un champ laser est donnée par :

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi(\vec{r}, t) = \left[ -\frac{1}{2}\Delta_r - \frac{1}{r} + \vec{E}(t) \cdot \vec{r} \right] \psi(\vec{r}, t) \quad (\text{I.43})$$

En coordonnées sphériques  $r, \theta$  et  $\phi$ , l'opérateur Laplacien s'exprime, en u.a., comme

$$\Delta_r = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) - \frac{1}{r^2} L^2 \quad (\text{I.44})$$

où  $L^2$  est le Laplacien angulaire :

$$L^2 = -\frac{1}{\sin^2\theta} \frac{\partial^2}{\partial\phi^2} - \frac{1}{\sin\theta} \frac{\partial}{\partial\theta} \left( \sin\theta \frac{\partial}{\partial\theta} \right), \quad (\text{I.45})$$

associé au moment angulaire orbital.

L'équation (I.43) s'écrit alors en coordonnées sphériques comme suit

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi(\vec{r}, t) = \left[ -\frac{1}{2r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{2r^2} L^2 - \frac{1}{r} + \vec{E}(t) \cdot \vec{r} \right] \psi(\vec{r}, t). \quad (\text{I.46})$$

### I.2.3 Discrétisation du problème

Nous nous limitons dans la suite à des lasers polarisés linéairement suivant l'axe  $z$ . Dans ce cas, les règles de transitions électriques applicables sur les moments magnétiques et angulaires sont

$$\Delta m = m - m', \quad (\text{I.47})$$

et

$$\Delta \ell = \ell - \ell' = \pm 1. \quad (\text{I.48})$$

On ne prend que  $m = 0$ , car le Hamiltonien  $H$  possède une symétrie cylindrique ce qui permet de conserver le nombre quantique magnétique  $m$  et que l'état initial  $1s$  est  $m=0$ .

Nous commençons la discrétisation de l'équation de Schrödinger avec les hypothèses suivantes :

$$\begin{aligned} \psi(r_{max}) &= 0 \text{ la grille contient la fonction d'onde} \\ \lim_{r \rightarrow 0} r\psi &= 0 \\ \lim_{r \rightarrow 0} r \frac{\partial\psi}{\partial r} &= 0 \end{aligned} \quad (\text{I.49})$$

Au lieu de faire la discrétisation directe de l'ESDT, nous commençons par la discrétisation de l'action  $S$  [16, 19], définie comme

$$S = \int_{t_1}^{t_2} dt \mathcal{L}(\psi, \psi^*) \quad (\text{I.50})$$

où le lagrangien  $\mathcal{L}$  est

$$\mathcal{L} = \left\langle \psi \left| i \frac{\partial}{\partial t} - H_0 - H_{int} \right| \psi \right\rangle = \left\langle \psi \left| i \frac{\partial}{\partial t} - T - V - H_{int} \right| \psi \right\rangle \quad (\text{I.51})$$

avec  $T$  est l'énergie cinétique de l'électron et  $V$  est l'énergie potentiel.

La stationnarité de l'action  $S$  implique

$$\frac{d}{dt} \left( \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\psi}^*} \right) - \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \psi^*} = 0 \quad (\text{I.52})$$

En coordonnées sphériques, la fonction d'onde  $\psi$ , qui décrit l'évolution du système laser-atome, peut être écrite comme une somme sur les fonctions radiales  $R_\ell(r, t)$  fois les harmoniques sphériques  $Y_{\ell, m}$  (aussi appelée base du moment angulaire)

$$\psi(r, \theta, \phi) = \sum_{\ell=0}^L R_\ell(r, t) Y_{\ell, 0}(\theta, \phi), \quad (\text{I.53})$$

On utilise le fait que

$$L^2 Y_{\ell, 0}(\theta, \phi) = \ell(\ell + 1) Y_{\ell, 0}(\theta, \phi) \quad (\text{I.54})$$

Nous incluons le terme centrifuge  $\frac{\ell(\ell+1)}{2r^2}$  dans  $V$ . L'expression de  $\mathcal{L}$  peut être écrite séparément pour chaque valeur de  $\ell$ . Ainsi, les énergies cinétiques et potentielles sont

$$\langle T_r \rangle = \frac{1}{2} \int_0^{r_{max}} dr r^2 \left| \frac{\partial R_\ell(r, t)}{\partial r} \right|^2 \quad (\text{I.55})$$

I.2. L'équation de Schrödinger dépendante du temps pour l'hydrogène atomique  
en présence d'un champ laser

---

$$\langle V_\ell \rangle = \int_0^{r_{max}} dr r^2 R_\ell^*(r, t) \left( V + \frac{\ell(\ell+1)}{2r^2} \right) R_\ell(r, t) \quad (\text{I.56})$$

Pour discrétiser  $\mathcal{L}$  sur une grille spatiale, nous commençons par la définition d'une règle d'intégration. La fonction est évaluée à chaque point  $r_i$  de la grille. Les dérivés sont évalués au milieu de chaque intervalle. La distance d'incrémentatation est calculée comme la distance entre les demi-points. Ainsi, nous avons

$$R_\ell(r_i, t) = R_{i,\ell}(t) \quad (i \text{ variant de } 1 \text{ à } n) \quad (\text{I.57})$$

$$r_i = \left( i - \frac{1}{2} \right) \Delta r \quad (\text{I.58})$$

$$\Delta r = \frac{r_{i+1} + r_i}{2} - \frac{r_i + r_{i-1}}{2} = \frac{r_{i+1} - r_{i-1}}{2} \quad (\text{I.59})$$

$$\left| \frac{\partial R_\ell(r, t)}{\partial r} \right|^2 r^2 dr = r_{i+\frac{1}{2}}^2 \left| \frac{R_{i+1,\ell}(t) - R_{i,\ell}(t)}{\Delta r} \right|^2 \Delta r \quad (\text{I.60})$$

En utilisant l'expression (I.53) et en substituant ces expressions dans les équations (I.55) et (I.56),  $\mathcal{L}$  est écrit comme

$$\begin{aligned} \mathcal{L} = \Delta_r \sum_{i=1}^n r_i^2 R_{\ell,i}^*(t) \left\{ i \frac{\partial R_{\ell,i}(t)}{\partial t} + \frac{1}{2\Delta r^2} \left[ \left( R_{i+1,\ell}(t) - R_{i,\ell}(t) \right) \frac{r_{i+\frac{1}{2}}^2}{r_i^2} - \left( R_{i,\ell}(t) - R_{i-1,\ell}(t) \right) \frac{r_{i-\frac{1}{2}}^2}{r_i^2} \right] \right. \\ \left. - V_{i,\ell} - \sum_{\ell'} H_{\ell\ell'} R_{i,\ell}(t) \right\} \end{aligned} \quad (\text{I.61})$$

avec  $H_{\ell\ell'}$  sont les éléments de matrice de l'hamiltonien d'interaction

$$H_{\ell\ell'} = \langle Y_{\ell,0}(\theta, \phi) | H_{int} | Y_{\ell',0}(\theta, \phi) \rangle. \quad (\text{I.62})$$

L'hamiltonien de l'interaction laser-électron  $H_{int}$  en jauge longueur, s'écrit sous la

forme suivante

$$H_{int} = zE(t) = E(t)r\cos\theta \quad (\text{I.63})$$

En remplaçant cette expression dans l'équation (I.62), les éléments de la matrice de l'hamiltonien d'interaction dans la base du moment angulaire sont donnés par

$$\langle \ell 0 | H_{int} | \ell' 0 \rangle = E(t)r \langle \ell 0 | \cos\theta | \ell' 0 \rangle = E(t)r \left( \frac{\ell + 1}{\sqrt{(2\ell + 1)(2\ell + 3)}} \delta_{\ell', \ell+1} + \frac{\ell}{\sqrt{(2\ell + 1)(2\ell - 1)}} \delta_{\ell', \ell-1} \right) \quad (\text{I.64})$$

Si nous faisons le changement suivant

$$R_{i,\ell}(t) = \frac{u_{i,\ell}(t)}{r_i}. \quad (\text{I.65})$$

où la condition de stabilité est bien vérifiée par la fonction  $u_{i,\ell}(t)$

$$\Delta r \sum_{\ell=0}^{\ell_{max}} \sum_{i=1}^n |u_{i,\ell}(t)|^2 = 1 \quad (\text{I.66})$$

L'ESDT (I.43) discrétisée devient alors

$$i \frac{\partial u_{i,\ell}(t)}{\partial t} = (H_0 u(t))_{i,\ell} + (H_{\ell\ell'} u_i(t))_{i,\ell}, \quad (\text{I.67})$$

avec

$$(H_0 u(t))_{i,\ell} = -\frac{1}{2(\Delta r)^2} [c_{i-1} u_{i-1,\ell}(t) - 2d_i u_{i,\ell}(t) + c_i u_{i+1,\ell}(t)] + \left( \frac{\ell(\ell + 1)}{2r_i^2} - \frac{1}{r_i} \right) u_{i,\ell}(t), \quad (\text{I.68})$$

et

$$(H_{\ell\ell'} u_i(t))_{i,\ell} = E_0 r_i f(t, \omega_0) \sin(\omega_0 t) [a_\ell u_{i,\ell+1}(t) + a_{\ell-1} u_{i,\ell-1}(t)]. \quad (\text{I.69})$$

les coefficients  $a_\ell$  et  $c_i$  et  $d_i$  sont définis par

$$a_\ell = \frac{\ell + 1}{\sqrt{(2\ell + 1)(2\ell + 3)}} \quad c_i = \frac{r_{i+\frac{1}{2}}^2}{r_i^2} = \frac{i^2}{i^2 - 1/4}, \quad d_i = \frac{r_{i+\frac{1}{2}}^2 + r_{i-\frac{1}{2}}^2}{r_i^2} = \frac{i^2 - i + 1/2}{i^2 - i + 1/4}. \quad (\text{I.70})$$

Loin de la frontière  $r = 0$  les deux coefficients  $c_i$  et  $d_i$  approchant de 1, et on retrouve la méthode des différences finies à trois points standard (équation(I.16)).

Nous voyons clairement que la représentation matricielle de  $H_0$  est une matrice tridiagonale sur l'indice  $i$  de la grille et diagonale dans la base du moment angulaire  $\ell$ , tandis que  $H_{int}$  est une matrice tridiagonale sur la base du moment angulaire  $\ell$  et diagonale sur l'indice radial  $i$ .

## I.2.4 Propagation temporelle de la fonction d'onde

Dans le cas présent où l'ESDT définissant l'interaction d'un atome d'hydrogène avec un champ laser, le système devient de taille non négligeable et la matrice de son Hamiltonien n'est plus tridiagonale. Dans ce cas, la méthode de Crank-Nicholson devient inutile.

Afin d'avoir traité numériquement notre processus d'interaction laser-atome d'hydrogène, nous intégrons l'ESDT résultante (I.67) dans le temps en utilisant une autre méthode d'intégration similaire à celle utilisée par K. C. Kulander [16]. Il s'agit de la méthode de Peaceman-Rachford [18] aussi appelée méthode des directions alternées (ADI, Alternate Direction Implicit). Cette méthode qui est stable exploite le fait que, dans la pratique, les matrices tridiagonales de  $H_0$  et  $H_{int}$  peuvent facilement être inversées. Elle nécessite donc la séparation de l'Hamiltonien total  $H$  en sous-Hamiltoniens  $H_0$  et  $H_{int}$ . D'après cette méthode utilisée sur la période  $\frac{\Delta t}{2}$ , la solution de l'équation

(I.67) est donnée par

$$(u_{i,\ell}^{j+1}) = \left[ I + iH_0 \frac{\Delta t}{2} \right]^{-1} \left[ I + iH_{int} \frac{\Delta t}{2} \right]^{-1} \left[ I - iH_0 \frac{\Delta t}{2} \right] \left[ I - iH_{int} \frac{\Delta t}{2} \right] (u_{i,\ell}^j) + O(\Delta t^3) \quad (\text{I.71})$$

où  $I$  est la matrice unité,  $i$  désigne la  $i$ ème position sur la grille ( $i = 1, \dots, n$ ) et  $j$  le nombre d'itération temporelle ( $j = 0, \dots, N$ ).

Pour simplifier la résolution, nous pouvons réécrire l'équation (I.71) comme suit

$$\left[ I + iH_0 \frac{\Delta t}{2} \right] \left[ I + iH_{int} \frac{\Delta t}{2} \right] u_{i,\ell}^{j+1} = \left[ I - iH_0 \frac{\Delta t}{2} \right] \left[ I - iH_{int} \frac{\Delta t}{2} \right] u_{i,\ell}^j \quad (\text{I.72})$$

La méthode de résolution utilisée sera fondamentalement itérative, chaque itération temporelle  $j + 1$  nécessite de calculer la fonction d'onde  $u_{i,\ell}^{j+1}$  sur la grille  $[r_{min}, r_{max}]$ <sup>1</sup> à partir de  $u_{i,\ell}^j$  par résolution du système (I.56).

On pose

$$\left[ I - iH_0 \frac{\Delta t}{2} \right] \left[ I - iH_{int} \frac{\Delta t}{2} \right] u_{i,\ell}^j = \chi_{i,\ell}^j \quad (\text{I.73})$$

$\chi_{i,\ell}^j$  sera calculé par une simple multiplication.

On en déduit la solution de l'équation suivante

$$\underbrace{\left[ I + iH_0 \frac{\Delta t}{2} \right]}_{tridiagonale} \xi_{i,\ell}^{j+1} = \chi_{i,\ell}^j. \quad (\text{I.74})$$

Cette équation se traduit par un système de  $n$  équations qui est en fait semblable au système (I.29), ce qui nous permet de calculer aisément  $\xi_{i,\ell}^{j+1}$  en utilisant la même routine programmée pour la résolution du système tridiagonale.

Finalement il faut résoudre le système suivant pour trouver  $u_{i,\ell}^{j+1}$

---

1. Rappelons que  $r_{min} = r_1$  et  $r_{max} = r_n$  avec  $r_i = (i - 0.5)\Delta r$  ( $i = 1, \dots, n$ )

$$\underbrace{\left[ I + iH_{int} \frac{\Delta t}{2} \right]}_{\text{tridiagonle par bloc}} u_{i,\ell}^{j+1} = \xi_{i,\ell}^{j+1} \quad (\text{I.75})$$

## I.2.5 Démarches de résolution

La résolution numérique est basée sur la représentation matricielle des différentes composantes du problème.

La fonction d'onde  $u^j$  sera représentée numériquement par un vecteur de dimension  $(\ell_{max} + 1)n$  :

$$u^j = \begin{pmatrix} u_0^j \\ u_1^j \\ \vdots \\ u_{\ell_{max}-1}^j \\ u_{\ell_{max}}^j \end{pmatrix} \quad \text{avec} \quad u_\ell^j = \begin{pmatrix} v_{1,\ell}^j \\ v_{2,\ell}^j \\ \vdots \\ v_{n-1,\ell}^j \\ v_{n,\ell}^j \end{pmatrix} \quad \ell = 0, \dots, \ell_{max} \quad (\text{I.76})$$

Comme nous l'avons déjà fait remarquer, la matrice représentant l'Hamiltonien  $H_0$  est tridiagonale en  $i$  (l'indice de la grille) et diagonale en  $\ell$ , alors que la matrice de  $H_{int}$  est une matrice tridiagonale en  $\ell$  et diagonale en  $i$ .

Par conséquent, le Hamiltonien  $H_0$  sera représenté dans la base du moment angulaire  $\ell$  par une matrice diagonale par bloc de dimension  $(\ell_{max} + 1)n \times (\ell_{max} + 1)n$  obtenu à partir de  $(\ell_{max} + 1)$  matrices tridiagonales  $h^\ell$ ,  $\ell = 0, \dots, \ell_{max}$ , de dimension  $n \times n$  :

$$H_0 = \begin{pmatrix} h^0 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & h^1 & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & \dots & h^{\ell_{max}} \end{pmatrix} \quad (\text{I.77})$$

où L'élément de la matrice  $h^\ell$  est donné par :

$$h_{i,i'}^{\ell,\ell'} = \delta_{\ell,\ell'} \begin{cases} \alpha_i = -\frac{1}{2(\Delta r)^2} c_{i-1} & \text{pour } i' = i - 1 \text{ avec } i = 2, \dots, n \\ \beta_i = \frac{d_i}{(\Delta r)^2} + \frac{\ell(\ell+1)}{2r_i^2} - \frac{1}{r_i} & \text{pour } i' = i \text{ avec } i = 1, \dots, n \\ \gamma_i = -\frac{1}{2(\Delta r)^2} c_i & \text{pour } i' = i + 1 \text{ avec } i = 1, \dots, n - 1 \end{cases} \quad (\text{I.78})$$

On peut alors écrire la matrice  $h^\ell$  sous la forme suivante

$$h^\ell = \begin{pmatrix} \beta_1 & \gamma_1 & 0 & \cdots & 0 \\ \alpha_2 & \beta_2 & \gamma_2 & \cdots & 0 \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & \cdots & \alpha_{n-1} & \beta_{n-1} & \gamma_{n-1} \\ 0 & 0 & \cdots & \alpha_n & \beta_n \end{pmatrix}. \quad (\text{I.79})$$

La matrice représentant l'Hamiltonien d'interaction  $H_{int}$  s'écrit sous la forme d'une matrice tridiagonale par bloc de dimension  $(\ell_{max} + 1)n \times (\ell_{max} + 1)n$  obtenue à partir des matrices diagonales de dimension  $n \times n$

$$H_{int} = \begin{pmatrix} B & C^{j,0} & 0 & \cdots & 0 \\ A^{j,1} & B & C^{j,1} & \cdots & 0 \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & \cdots & A^{j,\ell_{max}-1} & B & C^{j,\ell_{max}-1} \\ 0 & 0 & \cdots & A^{j,\ell_{max}} & B \end{pmatrix} \quad (\text{I.80})$$

où les matrices  $A^{j,\ell}$ ,  $B$  et  $C^{j,\ell}$  à l'instant  $t_j = j\Delta t$  sont définies par :

$$A^{j,\ell} = E_0 f(t_j, \omega_0) \sin(\omega_0 t_j) \begin{pmatrix} a_{\ell-1} r_1 & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & a_{\ell-1} r_2 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \cdots & \vdots \\ 0 & 0 & \cdots & a_{\ell-1} r_n \end{pmatrix} \text{ avec } \ell = 1, \dots, \ell_{max} \quad (\text{I.81})$$

$$B = \begin{pmatrix} 0 & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & 0 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & \cdots & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{I.82})$$

et

$$C^{j,\ell} = E_0 f(t_j, \omega_0) \sin(\omega_0 t_j) \begin{pmatrix} a_{\ell} r_1 & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & a_{\ell} r_2 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \cdots & \vdots \\ 0 & 0 & \cdots & a_{\ell} r_n \end{pmatrix} \text{ pour } \ell = 0 \cdots, \ell_{max} - 1 \quad (\text{I.83})$$

Le coefficient  $a_{\ell}$  a été mentionné plus haut (I.70).

## I.3 Conclusion

Après avoir présenté les différentes méthodes numériques qui nous ont permis de décrire l'algorithme de résolution de l'ESDT en une dimension et en trois dimensions d'espace, nous allons exploiter le programme de résolution construit à partir de cet algorithme dans le but d'étudier la dynamique du processus d'interaction laser-atome d'hydrogène dans les deux cas suivant : la photoionisation simple de l'hydrogène par un seul photon (haute fréquence) et l'ionisation à plusieurs photons infrarouges (basse

fréquence). Le même programme sera ensuite employé pour étudier la photoionisation simple à deux photons de couleurs différentes.



## Chapitre II

# Réponse de l'atome d'hydrogène soumis à un champ laser intense (Haute fréquences ou Infrarouge )

Dans cette section, nous avons employé notre code numérique présenté dans le chapitre I, en propageant dans le temps la solution de l'ESDT (en trois dimensions) calculée sur une grille radiale, pour étudier le spectre des électrons éjectés lors de la photoionisation de l'hydrogène, ce spectre est obtenu par l'analyse spectrale de la fonction d'onde atomique à la fin de l'impulsion.

### II.1 Paramètres de simulation et convergence des résultats

Pour minimiser le nombre de test de convergence des résultats obtenus au cours de simulations numériques, on va discuter à partir de considérations physiques les règles qui permettent d'estimer les valeurs optimales des paramètres de simulation.

### II.1.1 Dimension de la boîte de simulation

Rappelons tout d'abord qu'à l'instant  $t = 0$ , c'est-à-dire en l'absence du champ laser, la fonction initiale du système est celle trouvée numériquement par la méthode d'itération inverse (cf. § I.1.4.3 du chapitre I). La description spatiale de la boîte de simulation serait évidemment tronquée à une distance finie. La fonction d'onde est alors limitée à une région finie de l'espace, lorsqu'elle atteint la limite de cette région, elle est artificiellement réfléchi. Nous devons choisir alors une boîte de simulation suffisamment grande afin d'éviter ces réflexions non physiques, ce qui nous a permis d'effectuer l'analyse avant que la fonction d'onde frappe les frontières de la boîte. Cependant, à haute intensité laser, les électrons ionisés atteignent de très hautes énergies cinétiques. Ceci conduit à la nécessité d'avoir une boîte de taille assez grande, ce qui implique l'augmentation du temps de calcul et de la taille de l'espace mémoire nécessaire. Pour cela nous devons intégrer un absorbeur près des bords de la boîte de simulation pour supprimer le flux qui atteint les limites et pour être bien protégé contre la divergence des résultats tout en gardant une taille de boîte raisonnable.

Il existe plusieurs méthodes pour absorber les parties du paquet d'onde avant qu'elles n'arrivent au bord de la boîte de simulation, telles que l'utilisation d'un potentiel complexe [21, 22], la rotation complexe des coordonnées (exterior complex scaling [23]) ou la multiplication de la fonction d'onde par une fonction masque à chaque pas de temps. C'est cette dernière que nous avons utilisé et nous avons choisi la fonction masque de la forme

$$f(r) = \begin{cases} 1 & 0 \leq r \leq r_{max} - d \\ \cos^{1/8} \left[ \frac{\pi}{2} \left( \frac{r - (r_{max} - d)}{d} \right) \right] & \text{ailleurs} \end{cases}, \quad (\text{II.1})$$

où  $r_{max}$  la taille de la boîte,  $r_{max} - d$  la distance à partir de laquelle la fonction masque

absorbe et  $d$  la longueur d'absorption.

Cette fonction est illustrée par

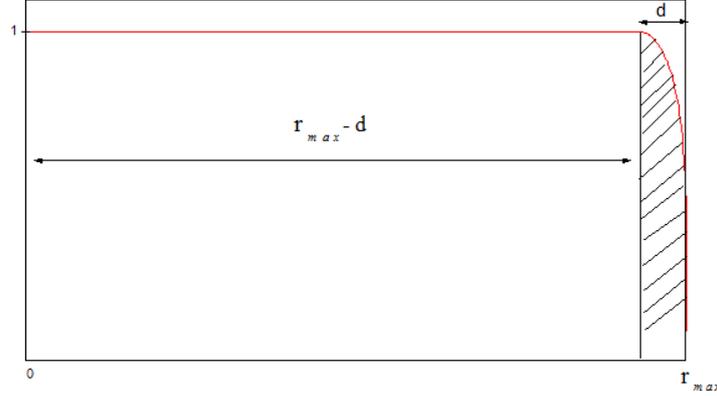


Figure II.1 – forme de la fonction absorbeur utilisée dans notre calcul.

### II.1.2 Pas temporel et spatial

La valeur estimée du pas spatial ou temporel est en fait fixée de manière indirecte, soit par le nombre  $n$  de discrétisation spatiale et la dimension  $r_{max}$  de la boîte de simulation pour le pas spatial  $\Delta r$ , soit par le nombre  $N$  de discrétisation temporelle et le nombre de cycle optique<sup>1</sup>  $n_{c.o.}$ . Ces deux paramètres sont définis alors comme :

$$\Delta r = \frac{r_{max}}{n} \quad \text{et} \quad \Delta t = \frac{n_{c.o.} T_L}{N} \quad (\text{II.2})$$

### II.1.3 Moment angulaire maximal

Le choix de la valeur du moment angulaire total  $\ell_{max}$  n'est pas évident, mais il dépend du système considéré, de l'intensité et de la fréquence du champ d'interaction. Ce qui rend difficile l'estimation à priori de la valeur de  $\ell_{max}$ . Cette valeur dépend aussi de la jauge dans laquelle on représente le champ électrique soit avec le terme

---

1. la durée d'un cycle optique : est la période d'une oscillation du champ électrique

d'interaction  $E(t).r$  en "jauge longueur", soit avec le terme d'interaction  $A(t).p$  en "jauge vitesse". Lorsque nous effectuons le calcul dans la jauge de la longueur, nous avons besoin d'inclure plus de moments angulaires pour atteindre la convergence des résultats numériques comme montré par Cormier et al. [24].

En pratique, les deux jauges donnent des résultats identiques. Mais  
 $\Rightarrow$  jauge "longueur" : la structure des Hamiltoniens du système est tridiagonale ce qui implique une résolution facile mais pour une valeur de  $\ell_{max}$  très grande.  
 $\Rightarrow$  jauge "vitesse" : la structure des Hamiltoniens du système n'est plus tridiagonale ce qui implique une résolution plus compliquée mais pour une valeur de  $\ell_{max}$  petite.

### II.1.4 Représentation du champ laser

Comme nous l'avons défini dans le chapitre I (cf. §I.2.1), le champ électrique  $\vec{E}(\vec{r}, t)$  est représenté en fonction de son amplitude maximale  $E_0$ , de l'enveloppe temporelle  $f(t, \omega_0)$  et de la fréquence  $\omega_0$  tel que

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = E_0 f(t, \omega_0) \sin(\omega_0 t) \vec{e}_z \quad (\text{II.3})$$

avec  $\vec{e}_z$  le vecteur unitaire du champ électrique associé au champ laser suivant la direction  $\vec{Oz}$  et  $f(t, \omega_0)$  l'enveloppe de l'impulsion laser que l'on peut choisir sous la forme d'une fonction en sinus carré ou trapézoïdale.

Pour une enveloppe sinusoïdale la fonction  $f(t, \omega_0)$  prend la forme suivante

$$f(t, \omega_0) = \sin^2\left(\frac{\pi t}{t_{max}}\right) \quad \text{avec } t_{max} = n_{c.o} T_L \quad (\text{II.4})$$

La durée totale de l'impulsion  $t_{max}$  est définie à partir de la période du laser  $T_L$  par l'expression suivante :

$$t_{max} = n_{c.o} T_L = n_{c.o} \frac{2\pi}{\omega_0} \quad (\text{II.5})$$

où  $n_{c,o}$  est le nombre de cycle optique du champ laser.

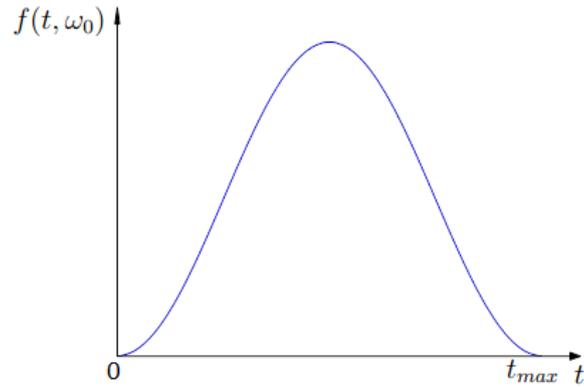


Figure II.2 – Enveloppe en sinus carré.

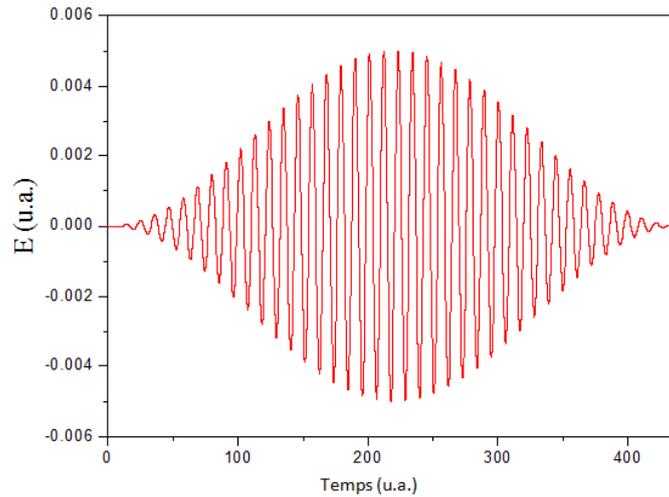


Figure II.3 – Evolution temporelle du champ électrique laser avec une enveloppe en sinus carré de 40 cycles optiques, d'énergie de photon  $\omega_0 = 0.57$  u.a.  $\equiv 15.5$  eV et d'amplitude maximale  $E_0 = 5.10^{-3}$  u.a. (correspond à un éclairement crête de  $8.77 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>)

Pour une enveloppe trapézoïdale de  $n_{c.o}$  cycles laser avec  $m$  cycles de montée,  $(n_{c.o} - 2m)$  constants et  $m$  cycles de descente nous avons

$$f(t, \omega_0) = \begin{cases} \frac{t}{m.T_L} & \text{si } 0 < t < m.T_L \\ 1 & \text{si } m.T_L < t < (n_{c.o} - m).T_L \\ -\frac{t}{m.T_L} + \frac{n_{c.o}}{m} & \text{si } (n_{c.o} - m).T_L < t < n_{c.o}.T_L \end{cases} \quad (\text{II.6})$$

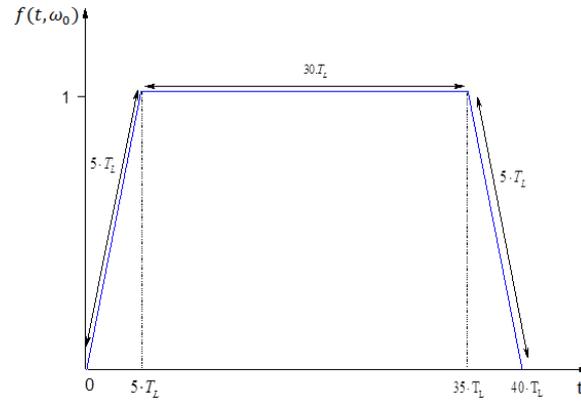


Figure II.4 – Enveloppe trapézoïdale de 40 cycles optiques de 5 cycles en montée 30 dans le plateau (constants) et 5 en descente.

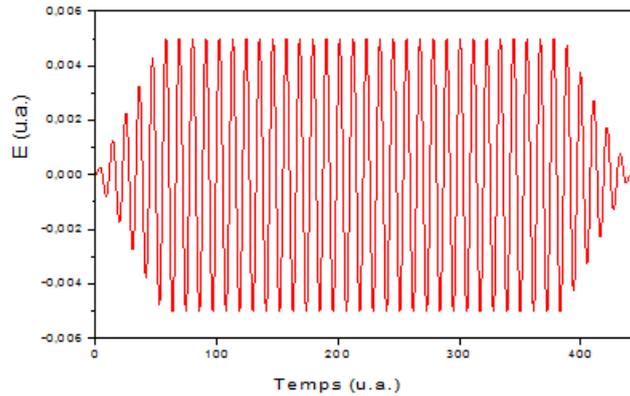


Figure II.5 – Evolution temporelle du champ électrique laser d'enveloppe trapézoïdale avec les mêmes paramètres ( $E_0, \omega_0, n_{c.o}$ ) que la figure(II.3) .

## II.2 Ionisation au dessus du seuil

A titre d'illustration, nous allons exposer dans cette partie les résultats fondamentaux obtenus par la résolution numérique de l'ESDT lors de l'interaction d'un atome d'hydrogène avec un champ laser de haute fréquence. L'énergie du photon laser est choisie, comme nous l'avons noté, supérieure au seuil d'ionisation de l'atome d'hydrogène ( $I_p = \frac{e^2}{8\pi a_0 \epsilon_0} \simeq 13.6 \text{ eV} \equiv 0.5 \text{ u.a.}$ ) pour que le photon laser puisse arracher l'électron de l'atome d'hydrogène, le processus d'ionisation dominant sera alors la photoionisation à 1 photon (voir annexe B).

Une fois l'électron éjecté dans le continuum, le champ laser peut lui fournir une énergie supplémentaire à l'énergie nécessaire à son ionisation, en ayant absorbé un nombre  $S$  de photons supplémentaire au-dessus du seuil, on parle alors d'ionisation au dessus du seuil ou ATI. L'énergie de cet excès de photons étant convertie en énergie cinétique cédée à l'électron éjecté et qui vaut

$$E_C = (N + S)\omega_0 - E_I \quad (\text{II.7})$$

où  $N$  est le nombre minimum de photons nécessaire pour ioniser l'atome,  $S$  est le nombre de photons absorbés au-dessus du seuil d'ionisation et  $E_I$  est l'énergie d'ionisation, c'est-à-dire l'énergie minimale qu'il faut fournir à l'électron initialement dans l'état fondamental ( $n = 1$ ) pour qu'il ne soit plus lié à l'atome.

Quelque soit le régime dans lequel l'ionisation ATI se produit, le spectre en énergie des électrons éjectés montre une succession de pics (que l'on nomme pics ATI), séparés par un même intervalle d'énergie, égal à l'énergie du photon laser.

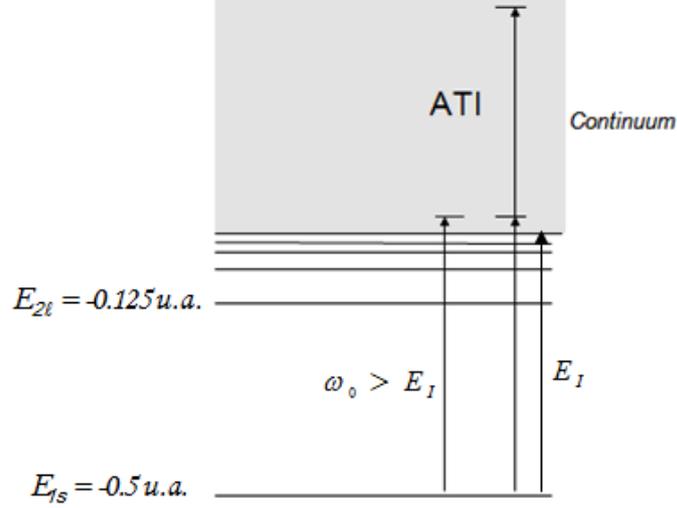


Figure II.6 – Atome d'hydrogène d'énergie d'ionisation  $E_I = 0.5 \text{ u.a.}$  est ionisé par un photon d'énergie  $\omega_0$ . Ensuite, l'électron libéré peut absorber un photon supplémentaire, il s'agit de l'ATI.

## II.3 Quantités physiques mesurables

La résolution de l'ESDT fournit seulement l'état du système à partir duquel on doit extraire les informations sur les quantités physiques mesurables. Nous allons examiner dans la présente section les techniques couramment utilisées pour obtenir des informations pertinentes comme les populations, les probabilités d'ionisation, les spectres d'électrons,....

### II.3.1 Spectre d'électron libéré-Technique d'opérateur fenêtre

A la fin de l'interaction avec le champ laser, c'est-à-dire au temps  $t_{max} = n_{c.o}T_L$ , notre système atomique est représenté par la fonction d'onde finale  $u_f(r, t_{max})$ . On peut évaluer le spectre en énergie de l'électron libéré par le champ laser grâce à une analyse spectrale de la fonction d'onde trouvée. Nous utiliserons pour ce faire une technique beaucoup plus facile que la technique de projection standard [26] qui nécessite la

génération des états propres du continuum de l'atome, cette technique nous a permis également d'éviter le calcul explicite de tous les états propres du système. Elle est fondée sur l'utilisation de l'opérateur fenêtre  $\hat{F}(E_k, q, \gamma)$  [27] à savoir

$$\hat{F}(E_k, q, \gamma) = \frac{\gamma^{2q}}{(H_0 - E_k)^{2q} + \gamma^{2q}}, \quad (\text{II.8})$$

avec  $E_k$  est l'énergie de la fonction d'onde extraite, le nombre entier  $q$  est l'ordre de l'opérateur fenêtre et  $\gamma$ , qui fixe la largeur de la fenêtre spectrale, est la demi-largeur d'opérateur fenêtre.

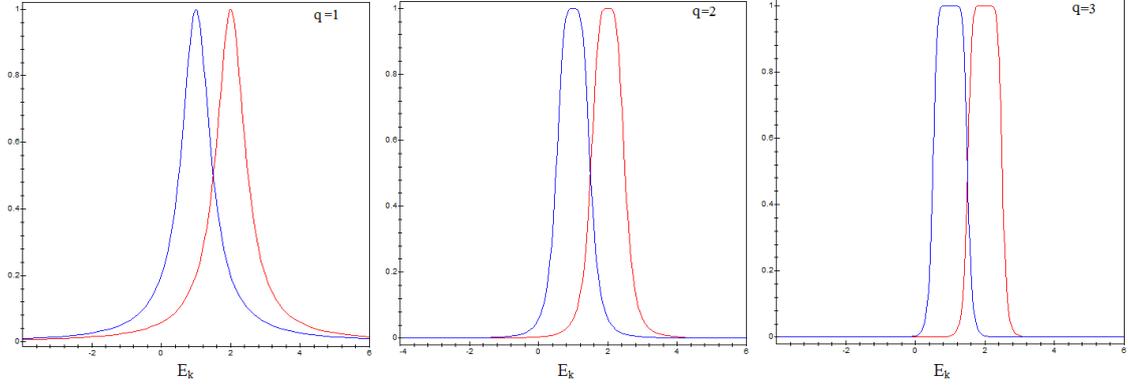
A partir de l'opérateur fenêtre mentionné ci-dessous (équation II.8), nous voulons une approximation de  $P(E_k, q, \gamma)$  la probabilité totale de trouver l'énergie de l'électron après l'interaction dans une gamme étroite (fenêtre) autour d'une énergie particulièrement choisie  $E_k \pm \gamma$  :

$$P(E_k, q, \gamma) = \left\langle u_f \left| \frac{\gamma^{2q}}{(H_0 - E_k)^{2q} + \gamma^{2q}} \right| u_f \right\rangle \quad (\text{II.9})$$

En effet, cette probabilité peut être évaluée très facilement parce que l'opérateur fenêtre peut être exprimée comme un produit d'opérateurs de la forme  $\frac{\gamma}{(H_0 - E_k) + i\gamma}$  agissant sur la fonction  $u_f(r, t_{max})$  connue qui, pour une représentation discrétisée de l'hamiltonien, peut d'inverser très efficacement.

En utilisant la factorisation suivante

$$(H_0 - E_k)^{2q} + \gamma^{2q} = \left( (H_0 - E_k)^{2q-1} + i\gamma^{2q-1} \right) \left( (H_0 - E_k)^{2q-1} - i\gamma^{2q-1} \right), \quad (\text{II.10})$$


 Figure II.7 – Deux fonctions fenêtres successives séparées par l'énergie  $2\gamma$ 

nous pouvons poser

$$|\chi\rangle = \frac{\gamma^{2^{q-1}}}{(H_0 - E_k)^{2^{q-1}} + i\gamma^{2^{q-1}}} |u_f\rangle, \quad (\text{II.11})$$

La probabilité  $P(E_k, q, \gamma)$  est donc simplement

$$P(E_k, q, \gamma) = \langle \chi | \chi \rangle. \quad (\text{II.12})$$

L'efficacité numérique de la méthode dépend du choix des paramètres adéquats tels que  $\gamma$  et  $q$ . Une bonne valeur de  $\gamma$  ne doit pas être trop importante si l'on veut être en mesure d'extraire des informations physiques du spectre d'électrons tels que les pics ATI. La valeur de l'ordre de l'opérateur fenêtre  $q$  peut être déterminée en illustrant les fenêtres et leurs recouvrements en traçant deux fonctions fenêtres successives séparées par l'énergie  $2\gamma$  comme le montre la figure (II.7). Avec l'augmentation de  $q$  le recouvrement diminue rapidement et la forme de la fonction de fenêtre devient de plus en plus rectangulaire et la largeur de la fenêtre restant constante. Ainsi, pour faciliter l'emploi de la fonction fenêtre et satisfaire une bonne résolution en énergie, on va choisir le cas

où  $q = 2$  [27], l'équation (II.11) devient alors

$$\left[ (H_0 - E_k)^2 + i\gamma^2 \right] |\chi\rangle = \gamma^2 |u_f\rangle \quad (\text{II.13})$$

Qui peut être décomposé comme

$$\underbrace{\left[ (H_0 - E_k) + \sqrt{i}\gamma \right]}_{\text{tridiagonale}} \underbrace{\left[ (H_0 - E_k) - \sqrt{i}\gamma \right]}_{\text{tridiagonale}} |\chi\rangle = \gamma^2 |u_f\rangle. \quad (\text{II.14})$$

Pour résoudre ce système nous devons poser

$$\left[ (H_0 - E_k) - \sqrt{i}\gamma \right] |\chi\rangle = |v\rangle. \quad (\text{II.15})$$

L'équation (II.14) devient alors

$$\left[ (H_0 - E_k) + \sqrt{i}\gamma \right] |v\rangle = \gamma^2 |u_f\rangle. \quad (\text{II.16})$$

La résolution de ce système nous a permis de trouver facilement la fonction d'onde  $|v\rangle$  grâce à l'algorithme utilisé précédemment adapté au système tridiagonal. Finalement, nous pouvons calculer la probabilité  $P(E_k, q, \gamma)$  en adoptant les mêmes démarches de résolution pour trouver la fonction d'onde  $|\chi\rangle$  décrivant l'électron éjecté à partir de l'équation (II.15).

### II.3.1.1 Résultats

La représentation du spectre en énergie des photoélectrons, produit par un atome d'hydrogène soumis à une impulsion laser polarisée linéairement, est obtenue via le calcul de la probabilité  $P(E_k, q, \gamma)$ . Des résultats représentatifs du spectre total de

l'atome d'hydrogène en fonction de l'énergie de l'électron éjecté sont présentés dans la figure (II.8). Ces résultats sont obtenus avec une impulsion laser de haute fréquence  $\omega_0 = 0.57 \text{ u.a.}$  et d'amplitude  $E_0 = 5.10^{-3} \text{ u.a.}$  avec une enveloppe trapézoïdale  $f(t, \omega_0)$  qu'on a présentée précédemment (figure (II.4)). Nous considérons ici que l'atome d'hydrogène est initialement dans son état fondamental  $1s$  ( $\ell = 0$ ) d'énergie électronique  $E_{1s} = -0.5 \text{ u.a.}$  Si l'atome d'hydrogène est soumis à une impulsion laser avec des paramètres cités ci-dessus ( $E_0$  et  $\omega_0$ ), il devra absorber seulement un seul photon pour s'ioniser. Selon la loi de conservation de l'énergie, l'électron éjecté acquiert dans le continuum une énergie cinétique donnée par

$$E_C = (N + S)\omega_0 - I_P. \quad (\text{II.17})$$

avec  $N$  le nombre de photons absorbés par l'électron pour parvenir dans le continuum d'ionisation et  $S$  le nombre de photons supplémentaire absorbés au-delà de  $N$ .

Dans la figure (II.8), les pics dont l'énergie de l'électron éjecté  $E_k < 0$  correspondent aux états liés de l'atome d'hydrogène, alors que dans le continuum où  $E_k > 0$ , on observe bien trois pics positionnés aux énergies  $0.069 \text{ u.a.}$ ,  $0.639 \text{ u.a.}$  et  $1.209 \text{ u.a.}$ , et séparés exactement par l'énergie du photon incident  $\omega_0 = 0.57 \text{ u.a.}$ , en tenant compte de la précision numérique imposé par la valeur de la largeur de la fenêtre ( $\gamma$ ) que nous avons choisi dans notre analyse et qui est de  $10^{-3} \text{ u.a.}$ , ces résultats concordent bien avec les valeurs théoriques calculées à partir de la relation (II.17). En effet, le premier pic du spectre correspond à l'ionisation de l'atome d'hydrogène depuis son état fondamental  $1s$  par l'absorption d'un photon d'énergie  $\omega_0 = 0.57 \text{ u.a.}$ , tandis que les deux autres sont liés à l'ATI, ils correspondent respectivement à l'absorption d'un et de deux photons supplémentaires au-dessus du seuil d'ionisation. La forme de ces pics est compatible avec la forme de la transformée de Fourier de l'impulsion laser.

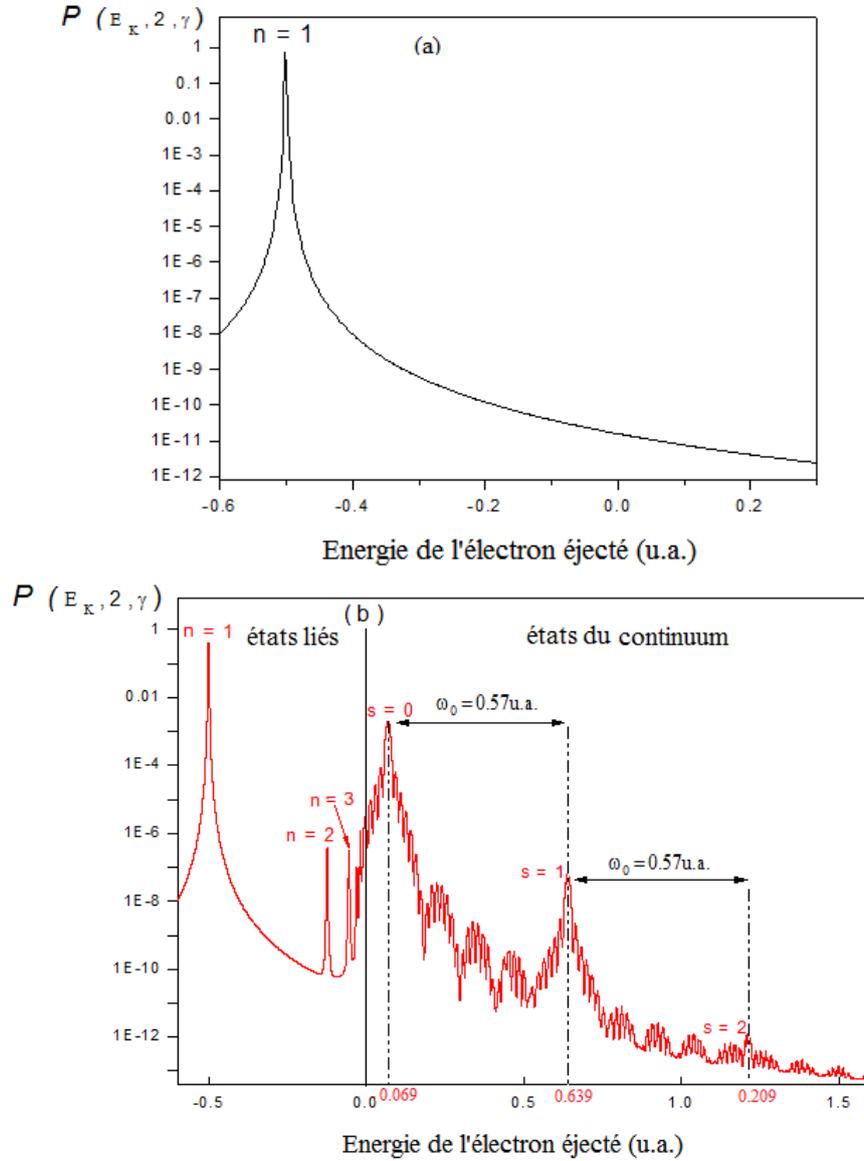


Figure II.8 – Spectre de probabilité  $P(E_k, n, \gamma)$  en échelle logarithmique pour  $n=2$ ,  $\gamma = 10^{-3}$  et un moment angulaire  $L_{max} = 16$  pour une impulsion laser de 40 cycles d'énergie de photon  $\omega_0 = 0.57$  u.a. et d'amplitude maximale : (a)  $E_0 = 0$  u.a. (b)  $E_0 = 5 \cdot 10^{-3}$  u.a..

Une autre caractéristique intéressante apparaissant dans le spectre, est le profil assez large de chaque pic. D'après la figure (II.9), la largeur des deux pics d'ATI  $S = 1$  et  $S = 2$  est de l'ordre de  $0.029$  u.a. et  $0.03$  u.a. respectivement. Ces deux valeurs sont

très proches de la largeur de l'impulsion laser obtenu par la transformée de Fourier de l'enveloppe temporelle, soit  $\Delta\omega = \frac{2\pi}{t_{max}/2} \simeq 0.028 \text{ u.a.}$ .

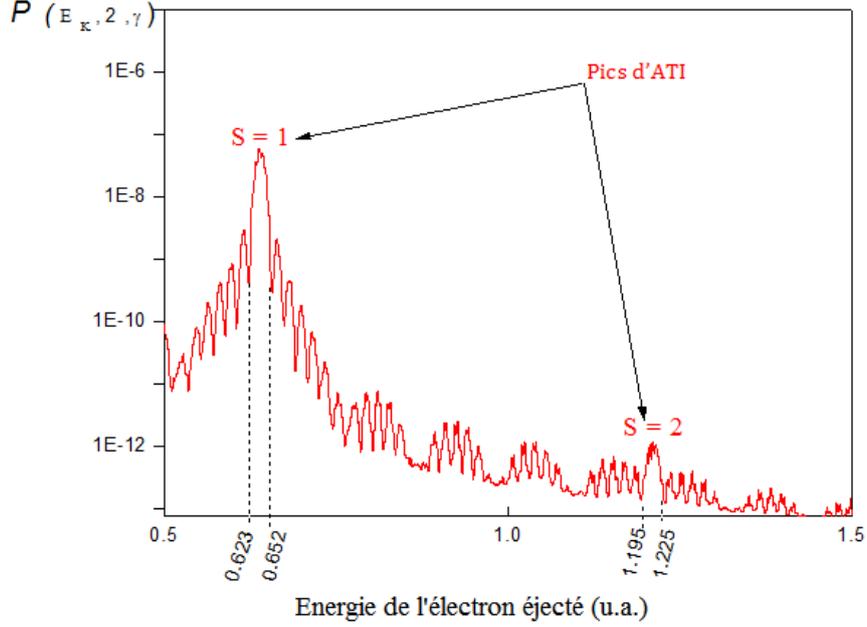


Figure II.9 – Les pics du spectre de probabilité de la figure (II.8) liés à l'ATI.

### II.3.1.2 Effet de l'énergie du photon laser

Pour examiner comment le spectre d'ATI est sensible à l'énergie du photon absorbé, nous avons fait varier la fréquence laser de  $0.6 \text{ u.a.}$  à  $2 \text{ u.a.}$  avec un pas de  $0.1 \text{ u.a.}$ , qui sera notée ci-dessous  $\omega_i$ . Nos résultats sont présentés sur la figure (II.10). On voit clairement que chaque spectre de la figure présente deux pics bien définis et séparés par une énergie de l'ordre de  $\omega_i$ ; le premier pic est effectivement situé à une énergie de  $E_C(i) = \omega_i - E_I$  ( $i = 1, \dots, 15$ ), il correspond à une ionisation de l'atome d'hydrogène par l'absorption d'un seul photon, tandis que le second pic est la signature de l'absorption d'un deuxième photon, il se trouve à l'énergie  $E_C(i) = 2\omega_i - E_I$  ( $i = 1, \dots, 15$ ). De plus on remarque sur les spectres de la probabilité  $P(E_k, n, \gamma)$  que

l'amplitude des pics décroît lorsque l'on passe d'un spectre à un autre en faisant augmenter l'énergie du photon  $\omega_i$ . L'interprétation physique de cette décroissance est simple. En effet, plus l'énergie du photon incident  $\omega_i$  est grande devant l'énergie de l'ionisation, plus l'électron atomique apparaît libre pour le photon incident. Or, on sait qu'un électron libre ne peut pas absorber réellement un photon. Un deuxième effet, quoique faible, correspondant à la diminution de la durée d'impulsion avec  $\omega_i$  car nous avons travaillé à nombre de cycles constants de durée  $T_i = \frac{2\pi}{\omega_i}$ , inversement proportionnel à la fréquence du rayonnement.

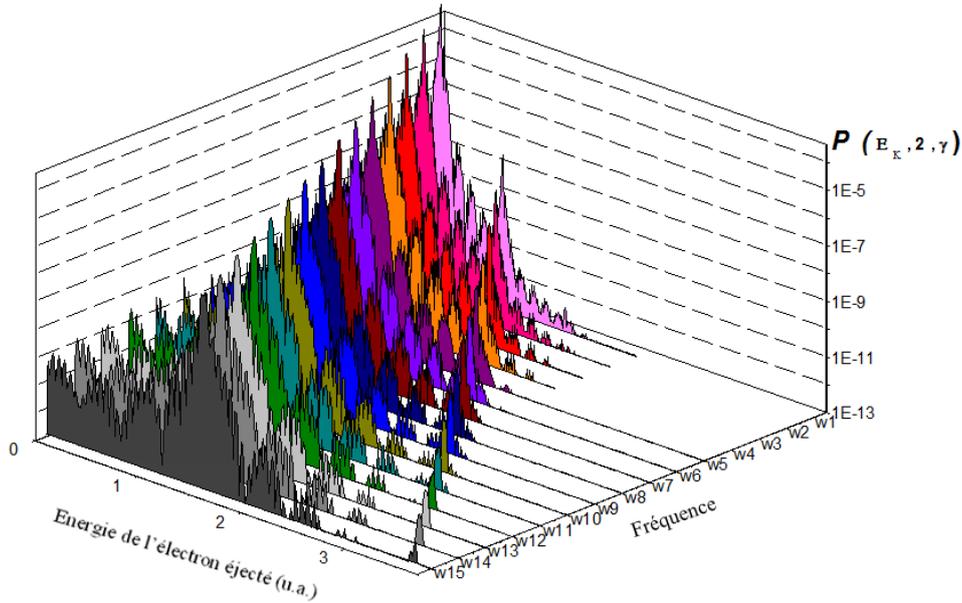


Figure II.10 – Spectres en énergie de photoionisation de l'hydrogène soumis à un rayonnement de fréquence  $\omega_0$  varie de  $\omega_1 = 0.6$  u.a. à  $\omega_{15} = 2$  u.a. avec un pas de  $0.1$  u.a. et d'amplitude maximale  $E_0 = 5.10^{-3}$  u.a. (correspond à un éclairement crête de  $8.77 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>).

### II.3.1.3 Effet de l'intensité du champ laser

Dans ce paragraphe, il s'agit d'étudier l'influence de l'intensité du laser sur la structure des pics d'ATI. Pour cela nous avons varié l'intensité du laser et fixé la fréquence

à 1 *u.a.*. Les résultats des calculs numériques sont présentés sur la figure (II.11) pour les différentes amplitudes de champ électrique  $E_0 = 5.10^{-4} \text{ u.a.}$ ,  $10^{-3} \text{ u.a.}$ ,  $2.10^{-3} \text{ u.a.}$ ,  $5.10^{-3} \text{ u.a.}$ ,  $10^{-2} \text{ u.a.}$  et  $2.10^{-2} \text{ u.a.}$ . D'après la figure et pour la fréquence considérée, nous constatons que les pics d'ATI commencent à apparaître à partir de l'amplitude  $E_0 = 10^{-3} \text{ u.a.}$ . Nous pouvons aussi remarquer que l'augmentation de l'intensité laser implique une augmentation du nombre de pics ATI détectés, et leurs amplitudes deviennent de plus en plus élevées. Pour bien expliquer cette dernière remarque, nous allons tracer l'amplitude de la probabilité  $P(E_k, n, \gamma)$  de chaque pic du spectre de la figure (II.11) en fonction de l'éclairement laser.

La figure (II.12 (a)) montre que l'amplitude des pics liés à l'absorption d'un seul photon ( $S = 0$ ) est proportionnelle à l'intensité du champ laser  $I$ , alors que celle des pics liés à l'absorption d'un photon supplémentaire au-dessus du seuil d'ionisation ( $S = 1$ ) est proportionnelle à  $I^2$  comme nous l'avons vu sur la figure (II.12 (b)). On peut déduire alors que  $P(E_k, q, \gamma) \propto I^{(S+N)}$ . Cette relation est vérifiée comme dans le cas de la théorie des perturbations, où la probabilité d'ionisation  $P$  est proportionnelle à l'intensité  $I$  du champ laser amenée à la puissance du nombre  $N$  de photons absorbés  $P \propto I^N$ .

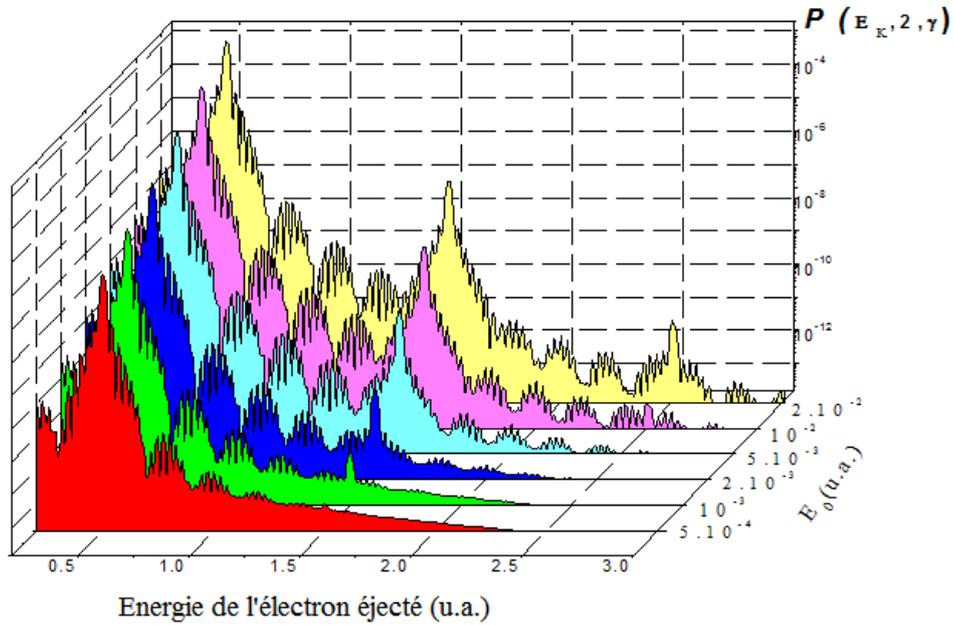


Figure II.11 – Spectres en énergie de photoionisation de l'hydrogène soumis à un rayonnement laser de fréquence  $\omega_0 = 1 \text{ u.a.}$  et pour différents éclaircements.

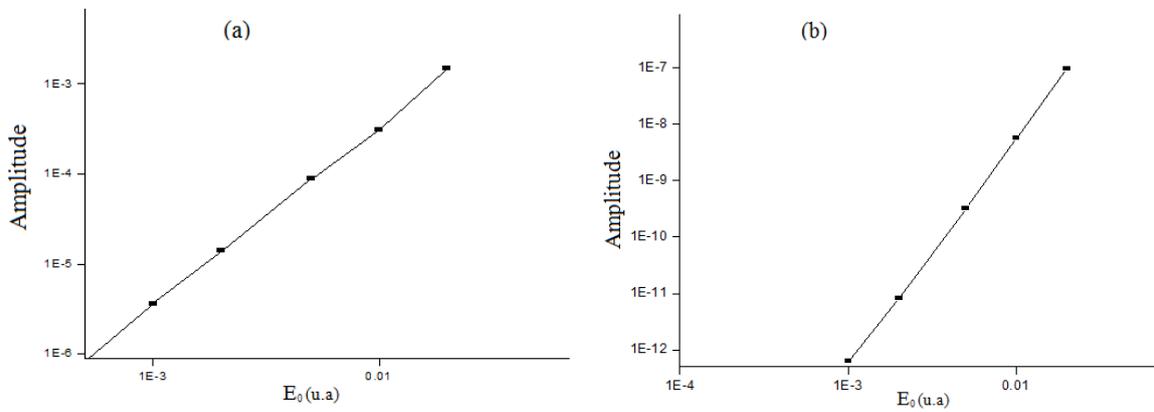


Figure II.12 – L'amplitude maximale des pics du spectre de la photoionisation de l'hydrogène présenté dans la figure (II.11) : (a) les pics correspondant à l'absorption d'un seul photon. (b) les pics correspondant à l'absorption d'un photon supplémentaire.

### II.3.2 Probabilité d'ionisation

Considérons qu'un électron effectue une transition de l'état initial  $|u_{n\ell}(t_0)\rangle$  à un état final  $|u_\ell(t)\rangle$  du continuum en absorbant  $N$  photons. La probabilité de trouver le système dans l'état  $|u_{n\ell}(t_0)\rangle$  à l'instant  $t$  est donnée par

$$P_{n\ell}(t) = \left| \langle u_{n\ell}(t_0) | u_\ell(t) \rangle \right|^2. \quad (\text{II.18})$$

La probabilité d'ionisation totale du système à l'instant  $t$  peut s'écrire comme suit

$$P_{ion}(t) = 1 - \sum_{n\ell} P_{n\ell}(t) \quad (\text{II.19})$$

En utilisant la figure (II.8), on peut extraire la valeur de probabilité de l'état initial : le résultat pour  $n = 1$  est en bon accord avec celui calculé par une simple projection de la fonction d'onde finale  $|u_\ell(t_{max})\rangle$  sur l'état initial du système  $|u_{1s}(t_0)\rangle$  tel que  $P_{1s}(t_{max}) = 0.98603$ , tandis que les contributions trouvées pour  $n \geq 2$  sont de l'ordre de  $10^{-7}$ , ce qui nous permet de les négliger dans le cadre de notre étude. La probabilité d'ionisation  $P_{ion}(t_{max})$  peut alors être approximé par  $P_{ion}(t_{max}) \approx 1 - P_{1s}(t_{max})$ . On voit d'après la figure(II.13), qu'à la fin de l'interaction sa valeur vaut 0.01397, ce résultat est donc en accord avec ce qui est attendu.

La figure (II.13) montre aussi que la probabilité d'ionisation commence à augmenter de manière significative après les 5 premiers cycles optiques du champ laser. Ensuite, nous observons une augmentation forte de la probabilité d'ionisation lorsque le champ électrique est maximum dans les 30 cycles optiques du plateau. Enfin, la probabilité d'ionisation reste constante lorsque l'amplitude du champ est à la baisse.

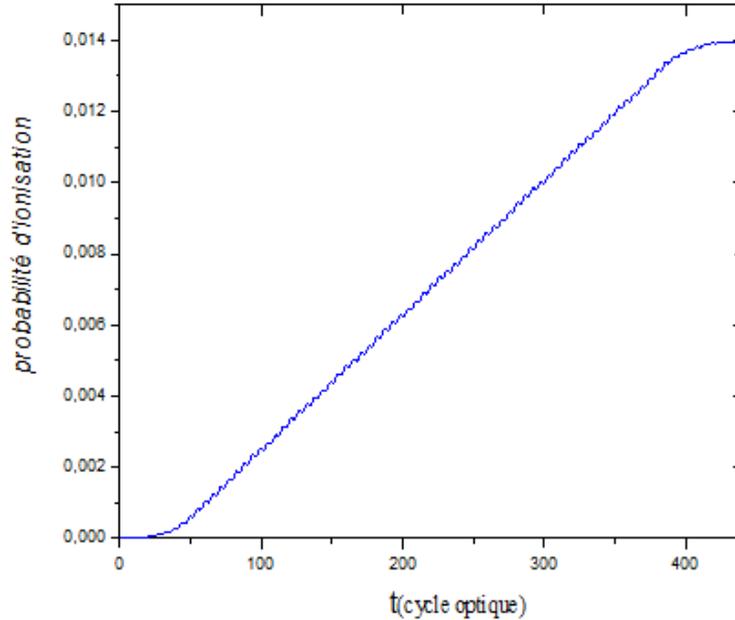


Figure II.13 – Probabilité d'ionisation  $p_{ion}$  en fonction du temps.

## II.4 résultats de simulation-Ionisation simple à plusieurs photons infrarouges

Nous nous intéressons ici au processus d'ionisation multiphotonique, toujours dans le cas d'un atome d'hydrogène de potentiel d'ionisation  $I_p = 0.5 u.a.$ , mais cette fois-ci en interaction avec une impulsion laser IR trapézoïdale de fréquence  $\omega_0 = 0.057 u.a.$  (correspond à une longueur d'onde  $\lambda = 800 nm$ ). C'est un processus dans lequel l'atome peut s'ioniser en absorbant plusieurs photons d'énergie  $\omega_0$ , où cette énergie attribuée à un seul photon est bien inférieure au potentiel d'ionisation de l'atome d'hydrogène  $\omega_0 < I_p$ .

On peut séparer les régimes d'ionisation multiphotonique et tunnel à l'aide du paramètre de Keldysh  $\gamma$  [28] défini comme le quotient du temps que l'électron met à

traverser la barrière de potentiel par effet tunnel  $t_{tun}$  par rapport à la période optique du laser  $T_0$ , soit :

$$\gamma = \frac{t_{tun}}{T_0} \quad (\text{II.20})$$

Ce paramètre dépend aussi du potentiel d'ionisation  $I_p$  et du potentiel pondéromoteur du laser  $U_P$  tel que :

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_P}{2U_P}} \quad (\text{II.21})$$

L'énergie pondéromotrice  $U_P$  peut être interprétée comme l'énergie moyenne de vibration de l'électron dans le champ électrique. Elle s'écrit sous la forme suivante

$$U_P(\text{u.a.}) = \frac{E_0^2}{4\omega_0^2}. \quad (\text{II.22})$$

Cette expression est démontrée en annexe B.

Si  $\gamma \ll 1$ , alors on peut considérer que l'on est dans le régime d'ionisation tunnel : le champ est suffisamment important pour abaisser fortement la barrière de potentiel et la probabilité d'ionisation tunnel est importante.

Si  $\gamma \gg 1$ , on est dans le régime multiphotonique.

En tenant compte des paramètres du champ laser considéré, l'intensité du champ correspondant à la limite entre le régime tunnel et le régime multiphoton vaut environ

$$I \simeq 10^{14} \text{ W/cm}^2. \quad (\text{II.23})$$

Nous effectuons la même simulation numérique que celle de la photoionisation, à savoir la résolution de l'ESDT suivi d'une analyse spectrale de la fonction d'onde finale que nous avons obtenue.

Chapitre II. Réponse de l'atome d'hydrogène soumis à un champ laser intense  
(Haute fréquences ou Infrarouge)

Rappelons que la durée totale de l'impulsion laser est liée au nombre de cycles optiques et à la fréquence du champ laser (voir éq. (II.5)), tel que la diminution de cette dernière correspondait à une augmentation de la durée de l'impulsion, nous pouvons ainsi choisir un petit nombre de cycles optiques comparé au cas précédent de la photoionisation. Nous allons prendre une impulsion de durée  $t_{max} \simeq 1102 \text{ u.a.}$  (soit  $26.68 \text{ fs}$ ) correspondant à 10 cycles optiques.

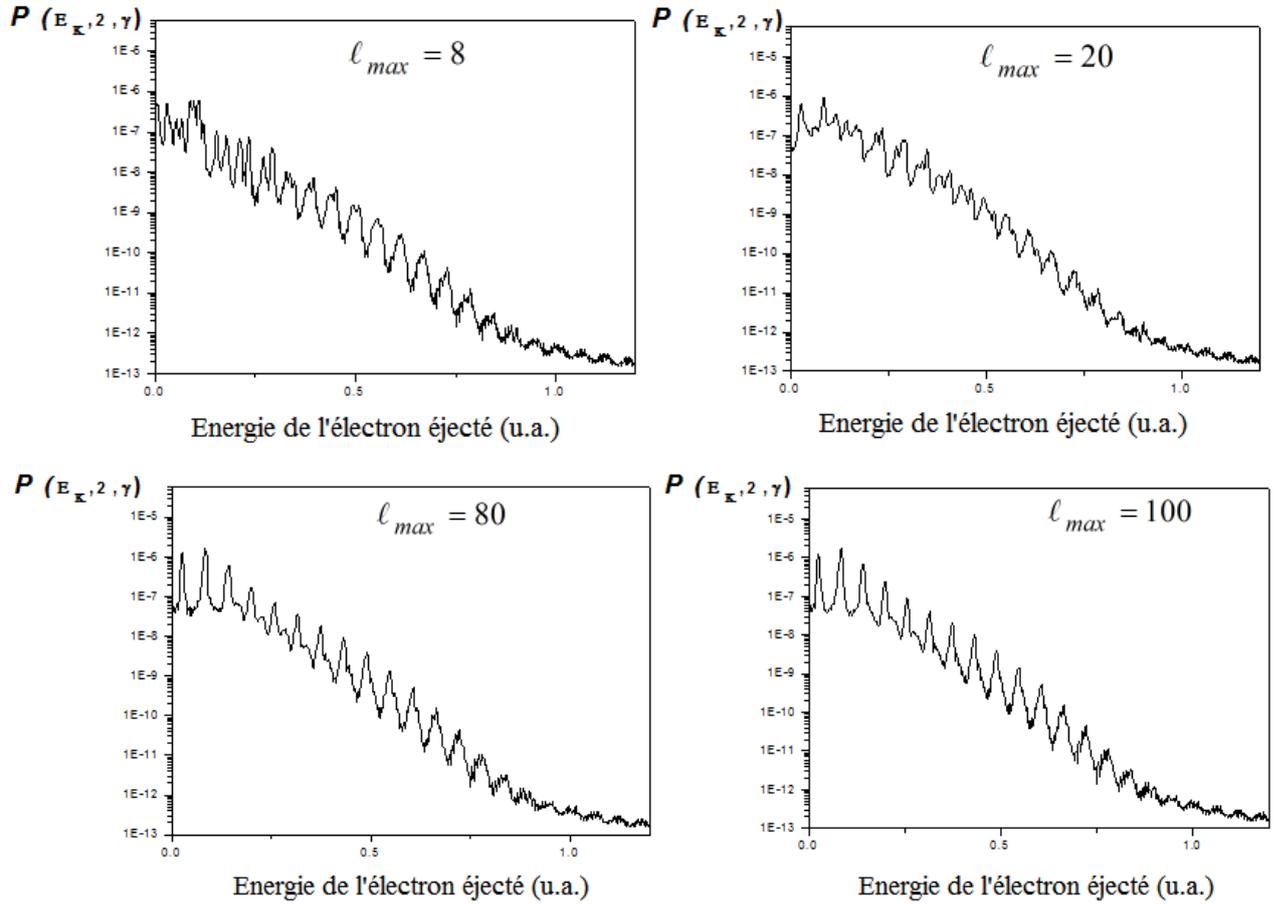


Figure II.14 – Spectres en énergie des photoélectrons obtenus par l'ionisation de l'hydrogène en absorbant des photons IR d'énergie  $\omega_0 = 0.057$  pour différents moments angulaires  $\ell_{max}$ .

Nous avons noté ci-dessus que l'estimation de la valeur de  $\ell_{max}$  doit dépendre de l'intensité du champ d'interaction et aussi de la jauge, tel que le choix de la jauge de

#### II.4. résultats de simulation-Ionisation simple à plusieurs photons infrarouges

longueur  $E.r$  exige d'utiliser une valeur élevée du moment angulaire. Pour une intensité de  $I = 2.10^{13} \text{ W/cm}^2$ , la convergence des résultats de la résolution de l'ESDT en jauge de longueur nécessite que  $\ell_{max} = 100$  moments angulaires. C'est ce que l'on observe en figure (II.14) qui présente le spectre en énergie de l'électron libéré pour différentes valeurs de  $\ell_{max}$ .

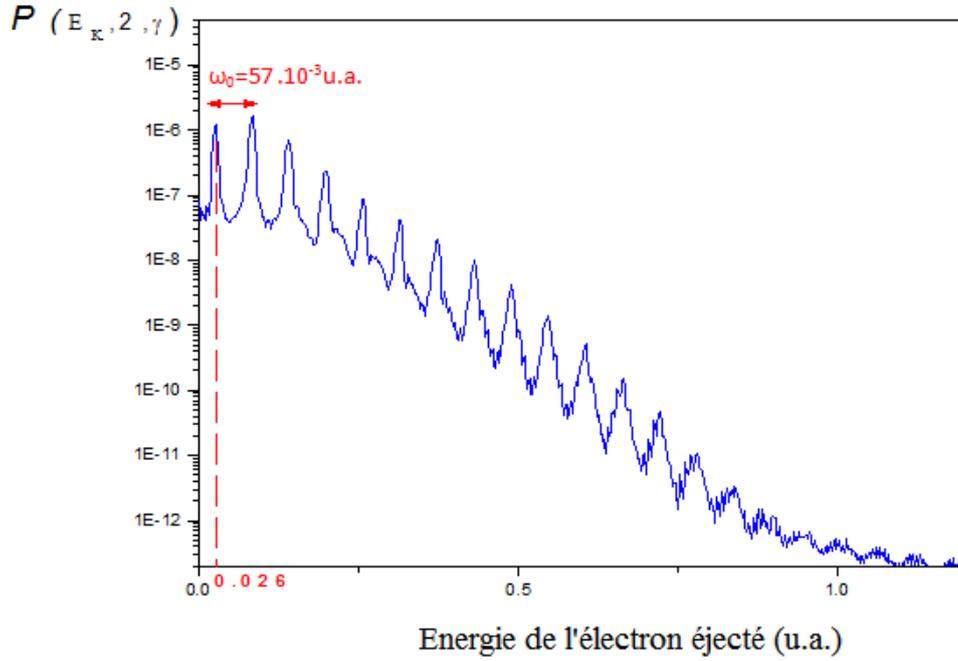


Figure II.15 – Spectres en énergie des photoélectrons obtenus par l'ionisation de l'hydrogène en absorbant des photons IR d'énergie  $\omega_0 = 0.057 \text{ u.a.}$

Dans le présent cas, il est clair qu'un seul photon infrarouge d'énergie ( $\omega_0 = 0.057 \text{ u.a.}$ ) ne peut pas photoioniser l'atome d'hydrogène de potentiel d'ionisation  $I_P = 0.5 \text{ u.a.}$ . En effet, à faible intensité du laser IR il nous faut 9 photons<sup>1</sup> pour ioniser l'atome d'hydrogène.

Pour un laser IR générant une intensité de  $2.10^{13} \text{ W/cm}^2$ , l'électron libéré acquiert une énergie cinétique  $E_C^{num} = 0.026 \text{ u.a.}$ , ce qui se voit clairement sur le premier pic de la figure (II.15) qui représente le spectre en énergie de l'électron éjecté. Avec la loi de conservation de l'énergie, l'électron, ainsi libéré, acquiert une énergie cinétique égale à la différence entre l'énergie des photons absorbés et l'énergie seuil d'ionisation de l'hydrogène  $E_C = (N + S)\omega_0 - I_P$  (cf. expression II.17) avec  $N$  le nombre de photons absorbés par l'électron pour parvenir dans le continuum et  $S$  le nombre de photons supplémentaire absorbés au-delà de  $N$ , dans notre cas la valeur de  $E_C$  vaut  $0.07 \text{ u.a.}$ . Si on compare cette valeur avec celle trouvée numériquement on trouve  $E_C - E_C^{num} = 0.044 \text{ u.a.}$ . Il y a donc un décalage de la position de pic de  $U_p$  vers les basses énergies, en raison d'un déplacement des niveaux atomiques par effet Stark induit par la force pondéromotrice du champ laser  $U_p$  [29, 30], ce qui a pour conséquence de déplacer le seuil d'ionisation de l'atome d'hydrogène de l'ordre  $0.044 \text{ u.a.}$  (voir figure II.16). Cela signifie qu'il faut plus de 9 photons infrarouges pour franchir le seuil d'ionisation de l'atome d'hydrogène pour l'intensité laser considérée, l'ionisation se fait alors par l'absorption de 10 photons infrarouges, et l'énergie cinétique de l'électron ionisé peut se réécrire comme suit

$$E_C = (N + N' + S)\omega_0 - (E_I + U_p), \quad (\text{II.24})$$

avec  $N'$  le nombre de photons supplémentaires pour l'ionisation, par rapport à la

---

1. rappelons que le nombre de photons nécessaire à l'ionisation est la partie entière du nombre  $(\frac{I_P(u.a.)}{\omega_0}(u.a.) + 1)$

situation de champ faible, et  $U_p$  l'énergie pondéromotrice définie à l'équation (II.22).

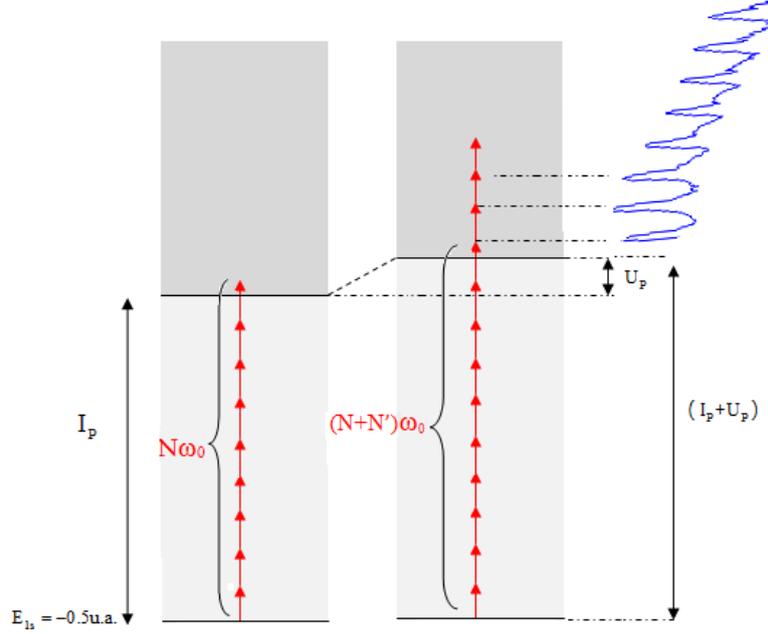


Figure II.16 – Décalage des pics d'ATI par l'effet pondéromoteur provoque l'augmentation du potentiel d'ionisation.

Dans le continuum le champ laser doit fournir à l'électron une énergie supplémentaire à l'énergie d'ionisation pour le libérer de l'atome. Ceci explique bien l'apparition d'une succession des pics d'ATI dans le spectre de la figure (II.15) séparés par l'énergie du photon infrarouge ( $\omega_0 = 0.057 u.a.$ ), ces pics correspondent donc à l'absorption de  $S$  photons au-delà de 10 photons nécessaires à l'ionisation de l'atome d'hydrogène, ce nombre peut atteindre dans notre cas 14 photons comme le montre la figure, de tel sorte que la position de chaque pic ATI correspond à l'énergie acquise dans le continuum  $E_C = (N + N' + S)\omega_0 - (I_P + U_P)$ .

## Chapitre III

# Photoionisation à deux couleurs de l'atome d'hydrogène

La découverte du phénomène de la génération d'harmoniques d'ordre élevé a ouvert la voie à l'utilisation des sources IR primaires pour l'obtention de sources intenses de rayonnements cohérents dans un domaine de fréquences allant de l'ultraviolet à l'extrême ultraviolet (abréviation XUV ou EUV). La découverte de ces rayonnements permet de pousser une autre étude en faisant intervenir au moins deux impulsions au lieu d'une seule : ionisation par un photon harmonique en présence du champ laser générateur. Comme nous l'avons déjà noté dans l'introduction, de nombreux résultats théoriques et expérimentaux [12, 13] ont été publiés sur l'étude de ce processus en analysant les spectres d'énergie des photoélectrons obtenus qui font apparaître des pics satellites ( $BL_{\pm n}$ ) autour du pic harmonique. Ces pics satellites correspondent en fait à l'échange de  $n$  photons infrarouges (avec  $n \geq 1$ ) par l'absorption ou l'émission stimulée (voir la figure (III.1)).

L'objectif de cette partie est d'étudier les principales caractéristiques de ce type de processus d'ionisation, en analysant le spectre de photoionisation de l'atome d'hydro-

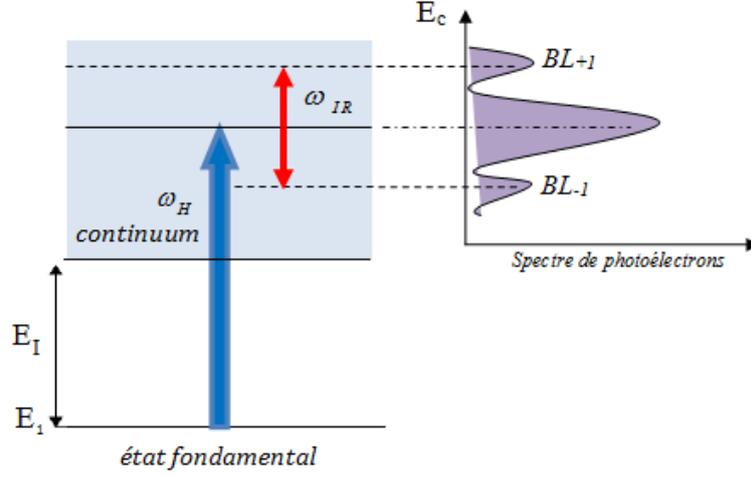


Figure III.1 – Schématisation du spectre de photoélectrons obtenu lors de la photoionisation à deux couleurs. L'atome ionisé par un photon harmonique (flèche bleue) absorbe ou émet des photons IR au dessus du seuil (flèches rouges).

gène par l'absorption simultanée de photons IR et un de ses harmoniques. La fréquence du photon harmonique qu'on a choisi sera suffisamment élevée pour provoquer l'ionisation par un seul photon. Les résultats de simulation effectuée en résolvant l'ESDT peuvent être comparés à ceux obtenus par d'autres approches, telles que les approches de Kroll et Watson afin de vérifier la fiabilité de ce type d'approximation courante.

### III.1 Champ résultant

Le champ d'interaction que nous avons utilisé résulte de la combinaison d'un champ laser infrarouge délivré par un laser Ti : Saphir de fréquence  $\omega_{IR} = 0.057 \text{ u.a.} \equiv 1.55 \text{ eV}$  (correspond à une période de  $T_L = \frac{2\pi}{\omega_0} \simeq 110.23 \text{ u.a.}$ ) avec une enveloppe trapézoïdale et l'un de ses harmoniques de fréquence  $\omega_{H_q} = q \times \omega_{IR}$  avec  $q = 2a + 1$  ( $a$  étant un entier). La valeur de  $q$  doit être assez grande pour que l'atome puisse être ionisé par un seul photon. Les deux champs ont la même polarisation linéaire et la même durée totale, qui est choisie de  $10T_L$ , où  $T_L$  est la période laser IR.

La représentation du champ électrique résultant peut se mettre sous la forme suivante

$$\vec{E}_T(\vec{r}, t) = \vec{E}_{H_q}(\vec{r}, t) + \vec{E}_{IR}(\vec{r}, t) \quad (\text{III.1})$$

avec

$$\vec{E}_{H_q}(\vec{r}, t) = E_{0H_q} f(t, \omega_{IR}) \sin(\omega_{H_q} t) \vec{e}_z \quad (\text{III.2})$$

et

$$\vec{E}_{IR}(\vec{r}, t) = E_{0IR} f(t, \omega_{IR}) \sin(\omega_{IR} t) \vec{e}_z \quad (\text{III.3})$$

où  $E_{0H_q}$  et  $E_{0IR}$  sont les amplitudes maximales respectives du champ harmonique et du champ infrarouge.

## III.2 Résultats et discussion

### III.2.1 Spectres caractéristiques

Le système que nous avons choisi pour la simulation numérique du processus de photoionisation à deux couleurs est celui d'un atome d'hydrogène soumis à des impulsions combinant des photons infrarouges issus du laser Ti : Saphir de fréquence  $\omega_{IR} = 0.057 \text{ u.a.}$  et sa quinzième harmonique  $H_{15}$  de fréquence  $\omega_{H_{15}} = 15 \times \omega_{IR} = 0.855 \text{ u.a.} \equiv 23.256 \text{ eV}$ , se trouve bien dans la gamme de longueur d'onde UV.

Lorsqu'un atome d'hydrogène est soumis uniquement au champ harmonique  $H_{15}$  de fréquence  $\omega_{H_{15}}$  et pour une intensité faible que celle du laser générateur, il peut s'ioniser et libérer un électron dont l'énergie cinétique est la différence entre l'énergie du photon ionisant et le potentiel d'ionisation

$$E_c(H_{15}) = 15\omega_{IR} - I_P. \quad (\text{III.4})$$

Si on superpose la 15<sup>ème</sup> impulsion harmonique du laser IR à l'impulsion du laser fondamental ("d'habillage"), comme le début de ce chapitre le montre, il est possible d'obtenir des nouvelles transitions de photoionisation non linéaires à deux photons et deux couleurs : absorption simultanée d'un photon harmonique de haute fréquence et d'un photon IR, ou absorption simultanée d'un photon harmonique et émission stimulée d'un photon IR. Des nouveaux pics vont apparaître dans le spectre de photoionisation autour du pic harmonique  $H_{15}$  sous la forme de pics satellites nommés  $BL_{\pm n}$ <sup>1</sup>. Naturellement, la position des pics de photoélectrons est fixée par la loi de conservation de l'énergie, en sachant, comme nous l'avons expliqué précédemment, qu'elle va se déplacer vers la gauche d'une quantité  $U_p$

$$E_c(H) = \omega_{H_{15}} - (I_P + U_P), \quad (\text{pic harmonique}) \quad (\text{III.5})$$

ou bien

$$E_c(\pm n) = \omega_{H_{15}} \pm n\omega_{IR} - (I_P + U_P), \quad (\text{pics satellites}). \quad (\text{III.6})$$

où  $U_p$  est l'énergie pondéromotrice définie précédemment<sup>2</sup> et qui dépend de l'intensité et de la fréquence du champ d'habillage.

Afin de réaliser la simulation numérique du processus de photoionisation à deux couleurs de notre système, il faut tout d'abord choisir la valeur de l'intensité harmonique et celle de l'intensité du rayonnement laser fondamental. La figure (III.2) présente le spectre en énergie de photoélectrons acquis en l'absence du laser IR et pour une intensité harmonique fixé à la valeur  $I_{H_{15}} = 10^9 \text{ W/cm}^2$  (courbe (a))<sup>3</sup>, puis pour la même intensité harmonique et une intensité laser  $I_{IR} = 5.10^{11} \text{ W/cm}^2$  (courbe

---

1. Rappelons que  $n$  est le nombre de photons échangés avec  $n \geq 1$ .  
 2. Rappelons que  $U_p$  correspond à l'énergie moyenne d'un électron libre acquise au cours de son oscillation dans le champ laser  
 3. A cette intensité l'absorption de photons harmoniques au dessus du seuil d'ionisation est complètement négligeable.

(b)). D'après la courbe (a) de la figure, le maximum du pic harmonique lié à la photoionisation de l'hydrogène par l'absorption d'un seul photon harmonique est localisé à l'énergie  $E_c(H_{15}) \simeq 0.355 \text{ u.a.}$ , cette valeur est correctement située à la position résultant de la relation de conservation d'énergie (III.4). Lorsque l'on ajoute au champ harmonique une impulsion laser IR, d'une intensité de  $5.10^{11} \text{ W/cm}^2$ , on obtient le spectre de photoélectrons présenté sur la figure (III.2)(b), il est constitué d'un pic harmonique positionné à l'énergie  $E_c(H_{15}) \simeq 0.3539 \text{ u.a.}$ , et entouré de deux pics satellites  $BL_{+1}$  et  $BL_{-1}$ , placés symétriquement de chaque côté, apparaissent respectivement à l'énergie  $E_c(+1) \simeq 0.4109 \text{ u.a.}$  et  $E_c(-1) \simeq 0.2969 \text{ u.a.}$  et séparés d'une même quantité d'énergie  $\omega_{IR}$ , ils sont associés respectivement à l'absorption et à l'émission stimulée d'un photon infrarouge.

A l'intensité laser que nous utilisons dans la figure (III.2)(b), l'énergie pondératrice, qui provoque le déplacement du seuil d'ionisation, vaut  $U_p \simeq 0.0011 \text{ u.a.}$ . En tenant compte de la précision numérique imposé par la largeur de la fenêtre  $\gamma$  ( $10^{-3} \text{ u.a.}$ ) de notre analyse, les valeurs numériques ainsi obtenues sont en très bon accord avec celles calculées par les équations (III.5) et (III.6).

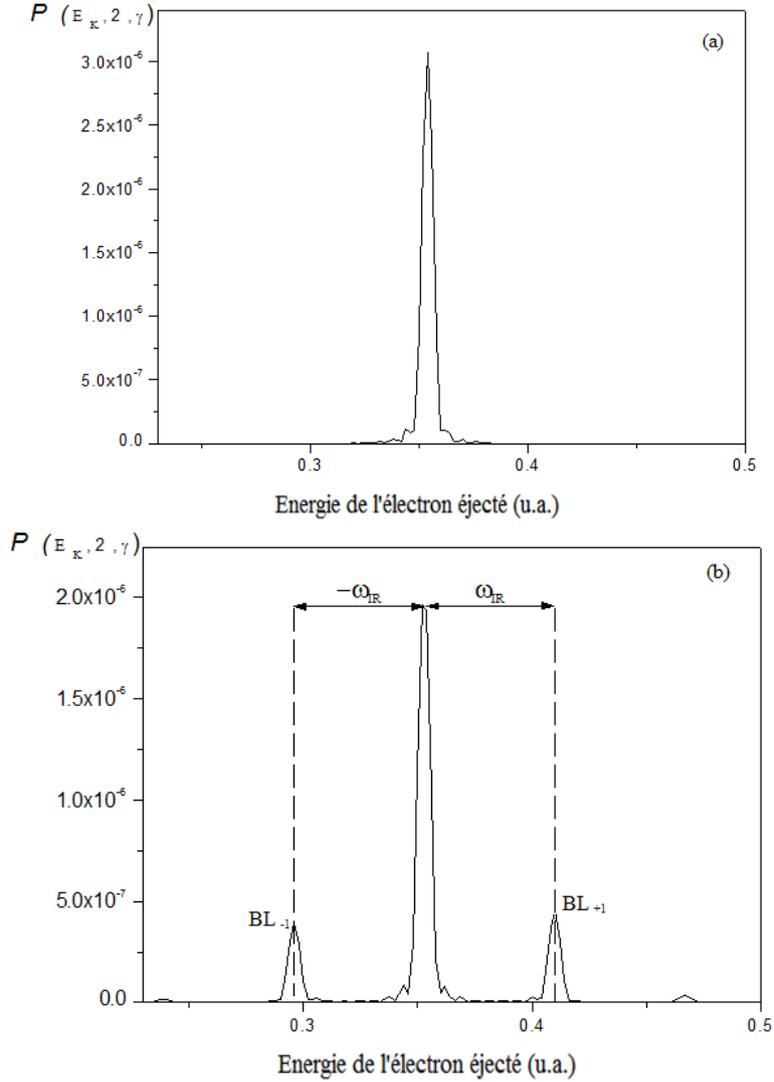


Figure III.2 – Spectres en énergie des photoélectrons obtenus par photoionisation de l'atome d'hydrogène par l'absorption simultanée d'un photon IR de fréquence  $\omega_{IR} = 0.057$  u.a. et sa quinzième harmonique  $H_{15}$  de fréquence  $\omega_{H_{15}} = 15 \times \omega_{IR}$ , avec une intensité harmonique  $I_{H_{15}} = 10^9$  W/cm<sup>2</sup> et pour différentes intensités laser IR : (a)  $I_{IR} = 0$  W/cm<sup>2</sup> (ionisation à un seul photon), (b)  $I_{IR} = 5.10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>

### III.2.2 Effet de l'intensité laser sur la photoionisation

Pour étudier l'influence de l'intensité du rayonnement laser fondamental (IR) sur la structure générale du spectre photoélectronique, nous avons toujours gardé le processus de la photoionisation de l'atome d'hydrogène à deux couleurs avec les mêmes paramètres du champ harmonique et en faisant varier l'intensité du champ infrarouge. Comme le montre la figure (III.3), les deux premiers pics satellites commencent à apparaître plus clairement à partir de l'intensité  $I_{IR} = 5.10^{11} \text{ W/cm}^2$ , on voit aussi qu'au-delà de cette valeur le nombre et l'amplitude de pics satellites augmentent de manière très significative avec l'intensité du laser IR, alors que l'amplitude du pic harmonique diminue. De ces remarques nous pouvons dire que tout se passe comme si le pic harmonique était en partie transformé en pics satellites. Nous avons vérifié que l'aire totale était conservée pour toutes les valeurs de l'intensité IR.

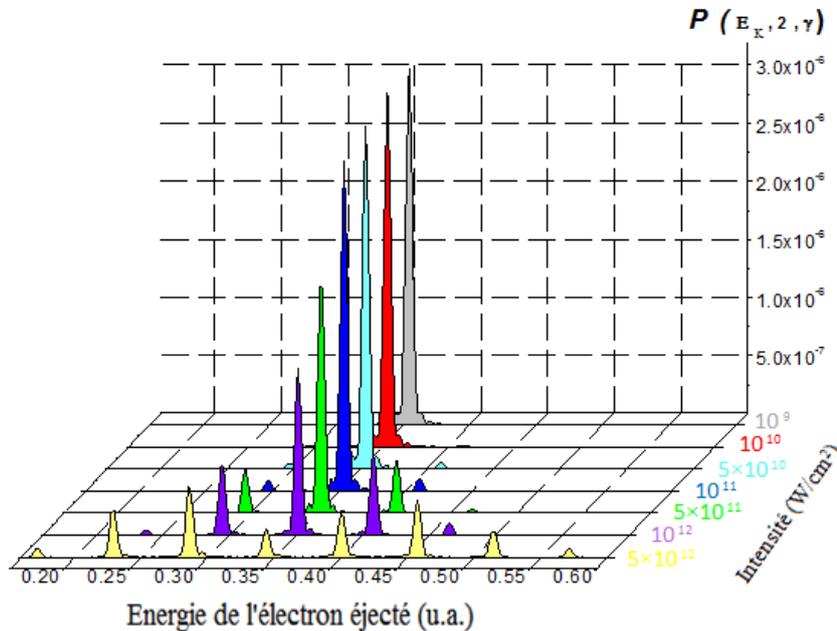


Figure III.3 – Effet de l'intensité du champ laser IR sur le spectre d'électrons pour les mêmes paramètres de l'impulsion harmonique que la figure (III.2) et différentes intensités de l'impulsion IR.

### III.2.2.1 Commentaire sur le décalage numérique de la position des pics

Nous pouvons remarquer de plus que les spectres de la figure (III.3) montrent un déplacement du maximum des pics vers les énergies plus faible d'une quantité  $U_p$  qui augmente au fur et à mesure que l'intensité du laser augmente. Pour évaluer cette quantité de décalage pondérateur, nous allons extraire pour chaque spectre de la figure (III.3) le maximum de l'énergie du pic, soit satellite ( $BL_{+1}$  ou  $BL_{-1}$ ), soit harmonique. Pour ce faire, on a choisi le pic satellite  $BL_{+1}$  de chaque spectre (voir figure (III.4)). Les résultats numériques sont présentés et comparés avec ceux calculés par la relation  $U_p^{cal} = \frac{E_{0IR}^2}{4\omega_{IR}^2}$  (voir tableau (III.1)), cela nécessite de calculer la valeur numérique de  $U_p^{num}$  que l'on peut obtenir à l'aide de la relation suivante :  $U_p^{num} = E_c^{num}(BL_{+1}) - E_{c(U_p=0)}(BL_{+1}) = 0.412 - E_c^{num}(BL_{+1})$ . Nous pouvons déduire alors que la différence entre  $U_p^{cal}$  et  $U_p^{num}$  est de l'ordre de  $\gamma = 10^{-3} u.a.$ , la précision numérique que nous avons dans les spectres de photoélectrons.

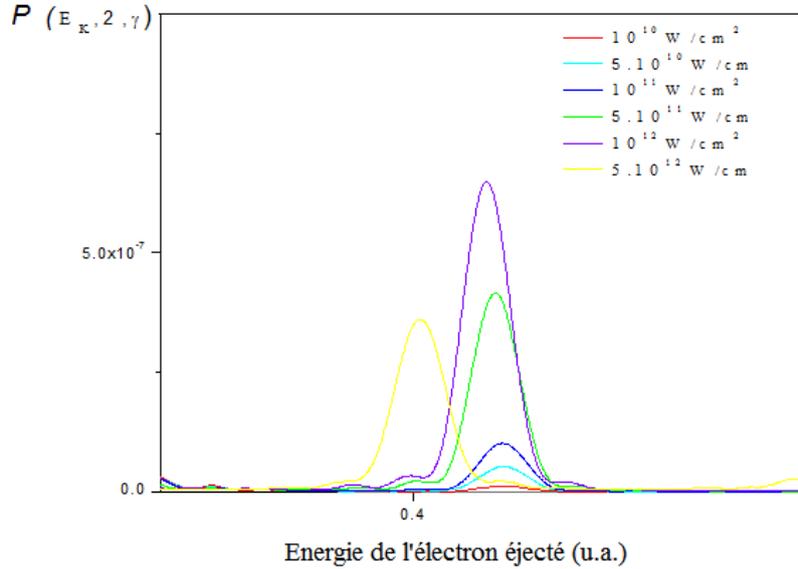


Figure III.4 – Spectres en énergie des pics satellites  $BL_{+1}$  extraite de la figure (III.3)

$I_0(W/cm^2)$	$E_0(\mathbf{u.a.})$	$E_c^{num}(BL_{+1})$	$U_p^{cal}(\mathbf{u.a.})$	$U_p^{num}(\mathbf{u.a.})$
$10^{10}$	$5.34 \times 10^{-4}$	$\sim 0.412$	<i>négligeable</i>	<i>négligeable</i>
$5 \times 10^{10}$	$1.19 \times 10^{-3}$	$\sim 0.41199$	<i>négligeable</i>	<i>négligeable</i>
$10^{11}$	$1.688 \times 10^{-3}$	$\sim 0.4107$	$2.19 \times 10^{-4}$	$1.3 \times 10^{-3}$
$5 \times 10^{11}$	$3.77 \times 10^{-3}$	0.4095	$1.1 \times 10^{-3}$	$2.5 \times 10^{-3}$
$10^{12}$	$5.33 \times 10^{-3}$	0.4085	$2.19 \times 10^{-3}$	$3.5 \times 10^{-3}$
$5 \times 10^{12}$	$1.19 \times 10^{-2}$	0.4002	$1.1 \times 10^{-2}$	$1.18 \times 10^{-2}$

 Table III.1 – Comparaison entre  $U_p^{cal}$  et  $U_p^{num}$ .

### III.3 Comparaison entre les résultats numériques et l'approximation Kroll-Watson (AKW)

Grâce à nos calculs, nous pouvons tester la précision des calculs approchés les plus couramment utilisés. Pour ce faire, nous proposons de comparer nos résultats obtenus par l'analyse spectrale de la fonction d'onde, calculée numériquement par la résolution de l'ESDT, avec ceux obtenus par un traitement semi-classique théorique fourni par Kroll et Watson (1973) [31] pour le calcul de la section efficace différentielle du processus de diffusion des électrons en présence d'un champ laser. L'un des avantages de cette approximation est la simplicité extraordinaire des formules pour les sections efficaces différentielles.

La section efficace différentielle pour la diffusion non-relativiste d'un électron par

un potentiel, accompagnée par le transfert de  $n$  photons, est donnée par

$$\frac{d\sigma^n}{d\Omega} = \frac{k_n}{k_0} |f_{k_n k_0}^n|^2 \quad (\text{III.7})$$

avec  $f_{k_n k_0}^n$  est l'amplitude de diffusion,  $\frac{k_0^2}{2} = \omega_0 - I_p$  le vecteur d'onde de l'électron éjecté en l'absence du champ laser et  $\frac{k_n^2}{2} = \omega_0 \pm n\omega - I_p$  désigne le vecteur d'onde de l'électron éjecté.

Dans la limite des champs basse fréquence (LFA pour low-frequency approximation), tel que  $\omega \ll E_{k_0}$ , Kroll et Watson ont obtenu le résultat simple

$$f_{k_n, k_0}^{n, LFA} = J_n(\Delta \cdot \alpha_0) f_{k_n^*, k_0^*}^{n, LFA}(E^*, \Delta) \quad (\text{III.8})$$

$f_{k_n, k_0}^{n, LFA}$  est l'amplitude de diffusion exacte sans champ pour la diffusion élastique à partir du vecteur d'onde initial  $k_0^*$  et le vecteur d'onde  $k_n^*$ , et  $\Delta = k_0 - k_n = k_0^* - k_n^*$  est le vecteur de transfert.

En utilisant les équations (III.7) et (III.8), Kroll et Watson ont montré que la section efficace différentielle pour un processus de collision accompagné de l'échange de  $n$  photons est liée à la section efficace différentielle en l'absence du champ laser  $\left(\frac{d\sigma^{(0)}}{d\theta}\right)_{E_k}$  par la formule :

$$\left(\frac{d\sigma^{(n)}}{d\theta}\right)_{E_k} = \frac{k_n}{k_0} J_n^2(\alpha_0 \cdot k_n) \left(\frac{d\sigma^{(0)}}{d\theta}\right)_{E_k} \quad (\text{III.9})$$

avec  $\alpha_0 = \frac{E_{0IR}}{\omega_{IR}^2}$  est l'amplitude d'oscillation classique de l'électron libre dans le champ laser IR et  $J_n$  la fonction de Bessel ordinaire d'ordre  $n$ .

Pour calculer dans notre cas la section efficace différentielle d'ionisation par un photon harmonique, c'est-à-dire en l'absence du champ laser, il suffit de calculer l'amplitude de transition de l'élément de matrice de photoionisation, entre l'état initial

d'hydrogène  $|\psi_{1s}\rangle$  et son état final du continuum  $|\psi_{ck_0}^{(-)}\rangle$  indicé par son énergie cinétique  $\frac{k_0^2}{2}$

$$\left(\frac{d\sigma^{(0)}}{d\theta}\right)_{E_k} = \left|\langle\psi_{ck_0}^{(-)}|\vec{\varepsilon}_H \cdot \vec{r}|\psi_{1s}\rangle\right|^2, \quad (\text{III.10})$$

$\vec{\varepsilon}_H$  est le vecteur de polarisation du photon harmonique.

**Calcul de l'élément de matrice**  $\langle\psi_{ck_0}^{(-)}|\vec{\varepsilon}_H \cdot \vec{r}|\psi_{1s}\rangle$  :

$$\langle\psi_{ck_0}^{(-)}|\vec{\varepsilon}_H \cdot \vec{r}|\psi_{1s}\rangle = \int d^3\vec{r} \psi_{ck_0}^{(-)*}(\hat{r}) \vec{\varepsilon}_H \cdot \vec{r} \psi_{1s}(\hat{r}), \quad (\text{III.11})$$

où  $\psi_{1s}$  représente la fonction d'onde de l'état fondamental de l'hydrogène atomique définie par  $\psi_{1s}(r) = \varphi_{1s}(r)Y_{00}$  et  $\psi_{ck_0}^{(-)}$  est la fonction d'onde pour les états du spectre continu d'énergie  $E_{k_0} = \frac{k_0^2}{2}$ , cette dernière fonction est donnée par [32, 33]

$$\psi_{ck_0}^{(-)}(\hat{r}) = \sum_{L=0}^{\infty} \sum_{M=-L}^L Y_{L,M}^*(\hat{k}) Y_{L,M}(\hat{r}) (i)^L e^{-i(\sigma_L + \delta_L)} R_{k_0,L}(r), \quad (\text{III.12})$$

avec  $\sigma_L = \text{Arg}\left(\Gamma\left(\ell + 1 - \frac{i}{k}\right)\right)$  est la phase coulombienne,  $\delta_L$  est la phase non-coulombienne ( $\delta_L = 0$  pour l'hydrogène)  $Y_{L,M}$  l'harmonique sphérique et  $R_{k_0,L}$  est la fonction coulombienne radiale donnée par

$$R_{k_0,L}(r) = C_{k_0L} r^L e^{ik_0r} {}_1F_1\left(L + 1 - \frac{i}{k_0}, 2L + 2; -2ik_0r\right), \quad (\text{III.13})$$

${}_1F_1(a, b; z)$  est la fonction hypergéométrique conflente. Le facteur  $C_{k_0L}$  est défini de manière à normaliser les fonctions coulombiennes

$$C_{k_0L} = \frac{(2k_0)^L e^{\pi/2k_0}}{(2L + 1)!} \left| \Gamma\left(L + 1 - \frac{i}{k_0}\right) \right|. \quad (\text{III.14})$$

On peut écrire les composantes de  $\vec{r}$  à l'aide de  $Y_{10}$  tel que  $z = r \sqrt{\frac{4\pi}{3}} Y_{10}$ . L'élément de matrice (III.11) devient

$$\langle \psi_{ck_0}^{(-)} | \vec{\varepsilon}_H \cdot \vec{r} | \psi_{1s} \rangle = \sqrt{\frac{4\pi}{3}} \sum_{L=0}^{L_{max}} (-i)^L e^{i\sigma_L} Y_{L0}(\hat{k}) \langle Y_{L0} | Y_{10} | Y_{00} \rangle \int_0^{+\infty} dr r^3 e^{-r} R_{k_0,L}^*(r) \quad (\text{III.15})$$

avec  $\langle Y_{L0} | Y_{10} | Y_{00} \rangle = \sqrt{\frac{1}{4\pi}} \delta_{L1}$ , où  $\delta_{L1}$  est la fonction delta de Dirac, et  $Y_{10}(\hat{k}) = \sqrt{\frac{3}{4\pi}} \cos\theta_k$ .

Nous devons donc calculer l'intégrale

$$I(k_0) = \int_0^{+\infty} dr r^3 e^{-r} R_{k_0,L}^*(r). \quad (\text{III.16})$$

Remplaçons la fonction d'onde coulombienne par son expression (III.13), nous obtenons

$$I(k_0) = C_{k_0 1}^* \int_0^{+\infty} dr r^4 e^{-(ik_0+1)r} {}_1F_1\left(2 + \frac{i}{k_0}, 4; 2ik_0 r\right). \quad (\text{III.17})$$

La solution de cette intégrale est de la forme suivante [38]

$$I(k_0) = C_{k_0 1}^* \frac{\Gamma(5)}{(1 + ik_0)^5} {}_2F_1\left(5, 2 + \frac{i}{k_0}, 4, \frac{2ik_0}{1 + ik_0}\right), \quad (\text{III.18})$$

avec  $F_{21}\left(5, 2 + \frac{i}{k_0}, 4; \frac{2ik_0}{1+ik_0}\right) = \frac{1}{2(1+ik_0)} \left(\frac{1-ik_0}{1+ik_0}\right)^{-3-\frac{i}{k_0}}$ .

L'expression de l'élément de matrice (III.11) peut donc être simplifiée sous la forme

suivante :

$$|\langle \psi_{k_0} | \vec{\varepsilon} \cdot \vec{r} | \psi_{1s} \rangle| = \frac{2\sqrt{2}}{\sqrt{k_0(1 - e^{-2\pi/k_0})}} \frac{e^{-\frac{2}{k_0} \arctan(k_0)}}{(1 + k_0^2)^{5/2}} \cos\theta_k \quad (\text{III.19})$$

$$= S(k_0) \cos\theta_k, \quad (\text{III.20})$$

avec

$$S(k_0) = \frac{\sqrt{2}}{\pi} \frac{1}{\sqrt{k_0(1 - e^{-2\pi/k_0})}} \frac{e^{-\frac{2}{k_0} \arctan(k_0)}}{(1 + k_0^2)^{5/2}}. \quad (\text{III.21})$$

Finalement, la section efficace différentielle d'ionisation en l'absence du champ laser est donnée par

$$\left( \frac{d\sigma^{(0)}}{d\theta} \right)_{E_k} = |S(k_0)|^2 \cos^2\theta_k. \quad (\text{III.22})$$

En remplaçant  $\left( \frac{d\sigma^{(0)}}{d\theta} \right)_{E_k}$  dans la section efficace différentielle (équation III.9) et en réalisant l'intégration par rapport à l'angle  $\theta$ , la section efficace totale peut s'écrire sous la forme

$$\sigma^{(n)} = \frac{k_n}{k_0} |S(k_0)|^2 \int_0^\pi \sin\theta d\theta J_n^2(\alpha_0 \cdot k_n) \cos^2\theta. \quad (\text{III.23})$$

### III.4 Résultats numériques

Comme nous l'avons déjà exposé, en plus du pic associé à l'ionisation de l'hydrogène par l'absorption d'un photon harmonique de fréquence  $\omega_{H_{15}} = 15\omega_{IR}$ , deux pics satellites nommés  $SB_{+1}$  et  $SB_{-1}$  et séparés par  $2\omega_{IR}$  apparaissent sur le spectre de la figure (III.5) (courbe noire) pour une intensité laser de  $5 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ . Ces deux pics correspondent respectivement à l'absorption et à l'émission d'un seul photon infrarouge. Comme on le voit sur la figure (III.5), il existe un bon accord entre nos résultats

(courbe noire), corroborés par l'ensemble des simulations numériques que nous avons effectuées pour résoudre l'ESDT, et ceux obtenus en utilisant l'AKW (courbe rouge).

Afin de ne pas être limité par le seuil d'ionisation, il faut augmenter l'énergie de photon harmonique responsable de l'ionisation de l'hydrogène en présence du champ laser infrarouge, ce qui permet d'avoir plus de pics satellites sur le spectre, c'est-à-dire d'avoir un échange de photons infrarouges plus important. Nous choisissons de prendre, par exemple, la 41<sup>ème</sup> harmonique du Titane-Saphir. Mais ceci peut poser un problème de réflexion aux bords de la boîte de simulation, car l'électron éjecté sera beaucoup plus rapide en emportant une grande valeur de l'énergie cinétique, et le risque serait donc d'avoir un problème dans la convergence des résultats numériques. Par conséquent il est nécessaire d'augmenter la taille de la boîte de simulation afin d'éviter ce problème de réflexion.

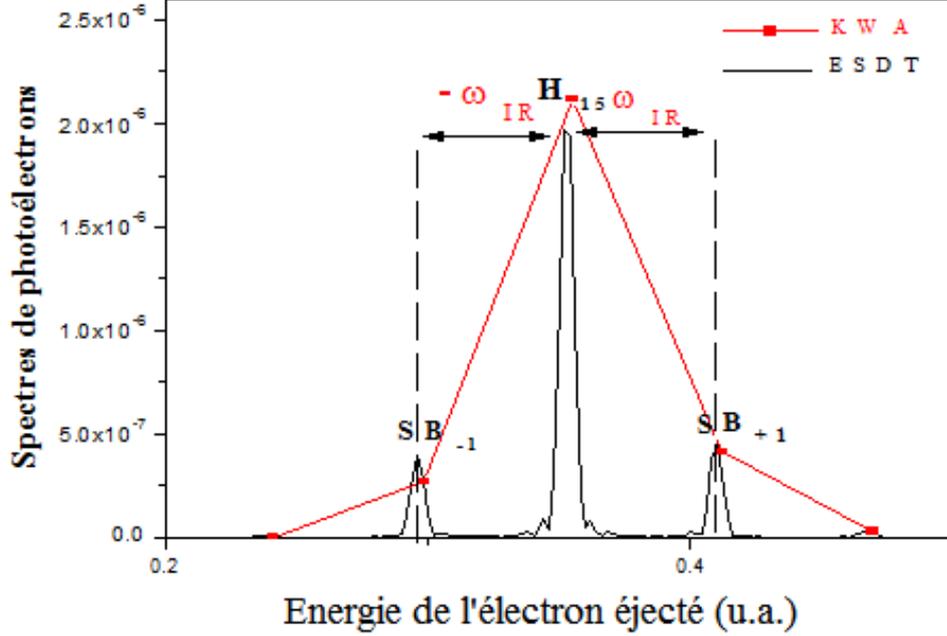


Figure III.5 – Spectres en énergie de photoionisation de l'hydrogène par un rayonnement infrarouge d'intensité  $I_{IR} = 5.10^{11} \text{ W/cm}^2$  combiné avec son 15ème harmonique avec une intensité  $I_{H_{15}} = 10^9 \text{ W/cm}^2$ , comparaison entre les résultats obtenus par la résolution de l'ESDT et ceux obtenus par les approches de Kroll et Watson.

### III.4.1 Convergence des résultats

En fait, plusieurs critères sont possibles pour vérifier la convergence des résultats. Parmi ceux-ci, nous retenons l'évolution de la norme de la fonction d'onde au cours du temps  $N_{L_{max}}(t) = \sum_{r=0}^{R_{max}} |\psi_{L_{max}}(r, t)|^2 \Delta r$  pour quelques valeurs maximale du moment angulaire de l'électron libre  $L_{max}$ . Le critère de convergence est vérifié pour une diminution de la norme  $N_{L_{max}}(t)$  lorsque la valeur du moment angulaire maximale  $L_{max}$  augmente, c'est ce qui apparaît clairement dans la figure (III.6). Par exemple, si on prend le cas de la plus grande valeur de  $L_{max}$ , une diminution de l'ordre de  $\sim 10^{-10}$  se voit sur la figure (III.6), c'est-à-dire que  $N_{90} \ll \frac{N_0}{10^{10}}$ , cela nous a permis d'assurer la convergence de notre simulation et des résultats obtenus.

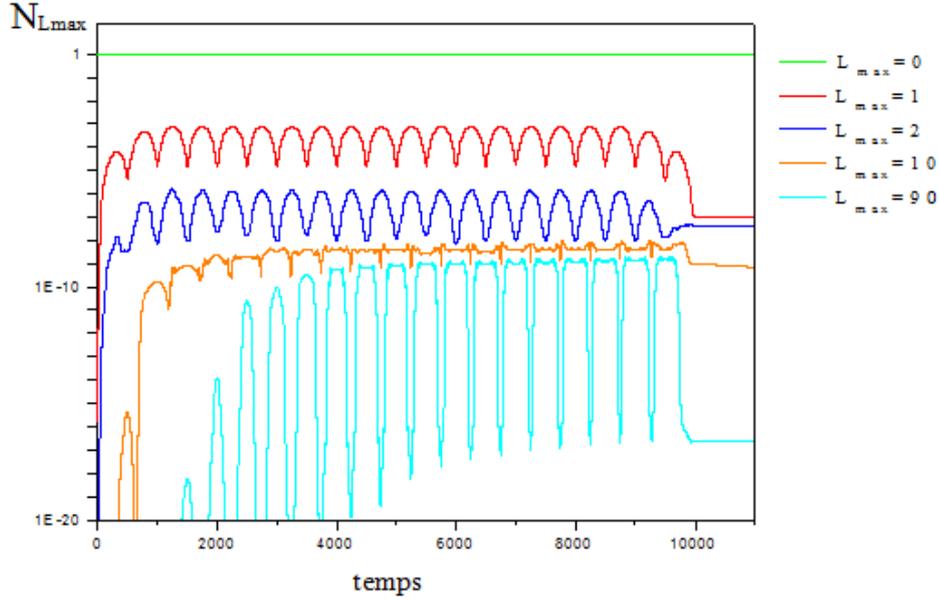


Figure III.6 – Evolution de la norme  $N_{L_{max}}$  en fonction du temps pour les différentes valeurs du moment angulaire maximale  $L_{max}$ .

Après avoir confirmé la convergence des résultats, nous allons comparer le spectre en énergie de l'électron éjecté obtenu par le calcul de la probabilité  $P(E_k, n, \gamma)$  à partir de la résolution numérique de l'ESDT avec le spectre obtenu par le calcul de la section efficace différentielle à l'aide de l'AKW. Les deux spectres sont présentés sur la figure (III.7), pour une intensité laser de  $5 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$  et pour une intensité d'ordre élevé  $5 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$  afin d'augmenter autant que possible le nombre de pics satellites. D'après cette figure on peut dire que qualitativement il y a un bon accord entre les deux spectres, mais ils sont un peu différents quantitativement. En effet, le nombre de pics satellites est bien identique ainsi que leurs intensités, même si certaines variations de l'ordre de 10% est observée entre l'approximation et le calcul exact.

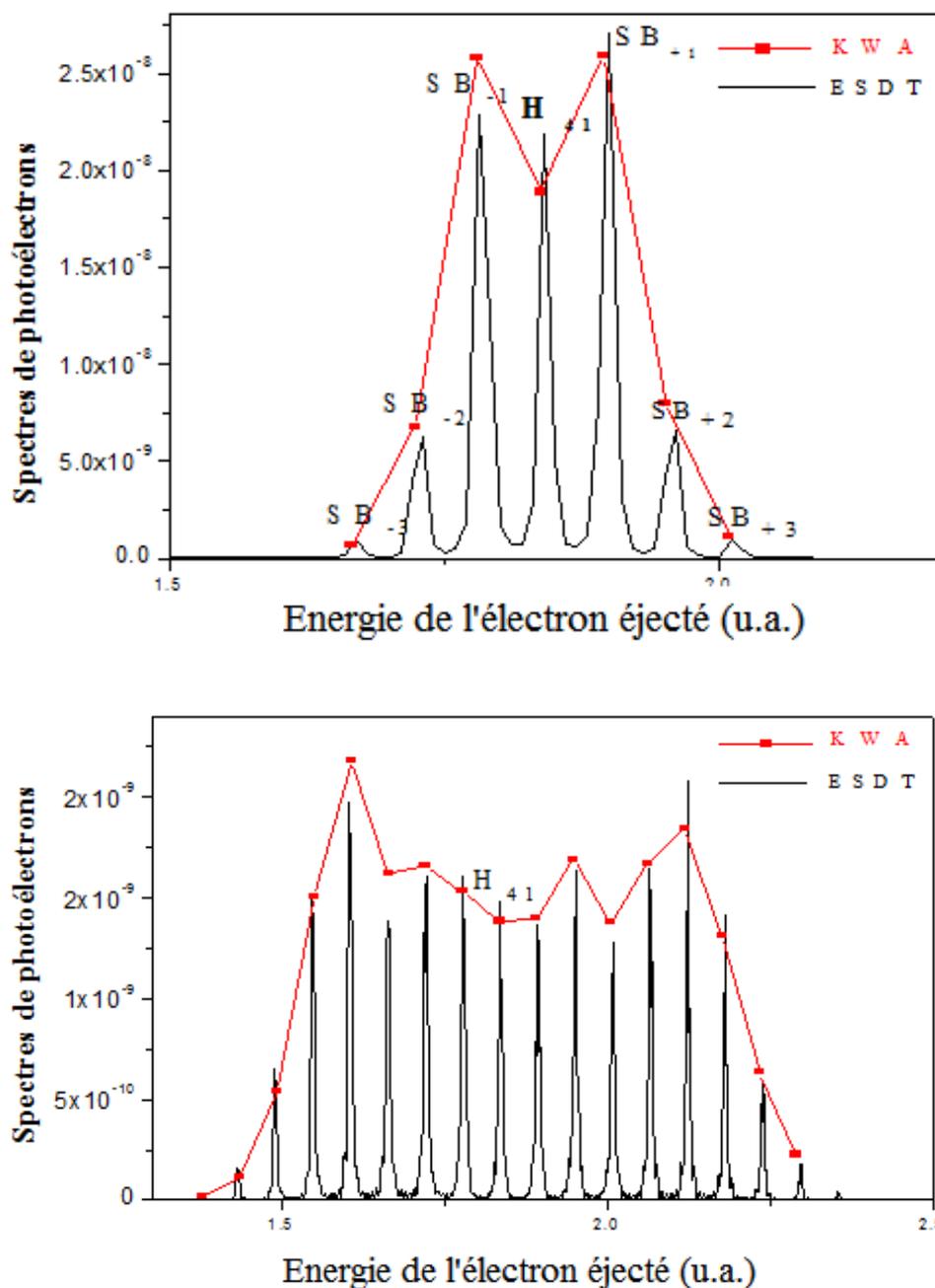


Figure III.7 – Spectres en énergie de photoionisation de l'hydrogène par un rayonnement infrarouge d'intensité : a)  $I_{IR} = 5.10^{11} \text{ W/cm}^2$  et b)  $I_{IR} = 5.10^{12} \text{ W/cm}^2$  combiné avec son 41<sup>ème</sup> harmonique avec une intensité  $I_{H_{41}} = 10^9 \text{ W/cm}^2$ , comparaison entre les résultats obtenus par la résolution de l'ESDT et ceux obtenus par les approches de Kroll et Watson.



# Chapitre IV

## Distributions angulaires

Après avoir présenté le spectre en énergie de l'électron éjecté pour la photoionisation de l'hydrogène à 2 couleurs démontrant l'échange de photons IR après absorption d'un photon XUV, il serait intéressant d'examiner la distribution angulaire des différents pics qui va nous renseigner sur les mécanismes mis en jeu. Les distributions angulaires ont un intérêt beaucoup plus large et fondamental. Elles constituent en fait un test rigoureux de la fiabilité des différentes approches théoriques, numériques ou analytiques, qui traitent de la réponse d'un atome à des champs électriques intenses.

### IV.1 Adaptation de la forme de l'impulsion laser

La forme de l'enveloppe temporelle  $f(t)$  de l'impulsion laser doit être choisie de telle sorte que les quantités physiques déduites des calculs n'en soient pas affectées. Si on s'intéresse à l'étude de la distribution angulaire, l'enveloppe la plus adaptée à cette étude est celle de la forme sinusoïdale définie précédemment (expression II.4). Le champ électrique du laser est illustré par

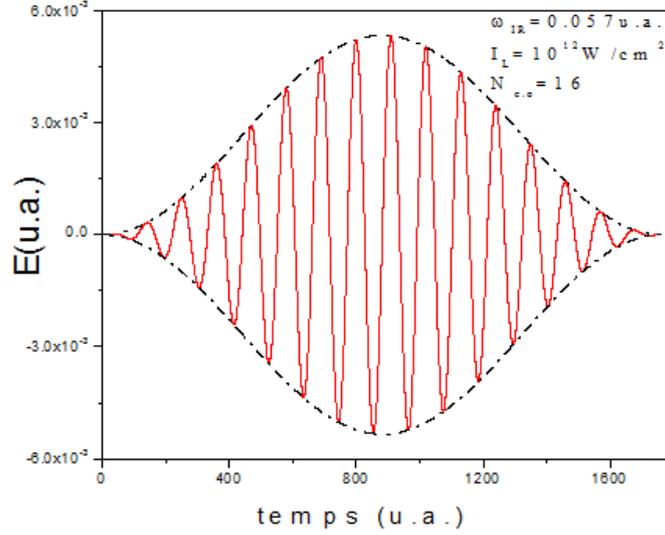


Figure IV.1 – Profil temporel d'une impulsion laser avec une enveloppe en Sinus-Carré

## IV.2 Méthode de calcul

Différentes méthodes existent pour calculer les distributions angulaires de photoélectrons produits lors de la photoionisation à deux couleurs, comme par exemple celle reposant sur le calcul du flux de photoélectrons dans une fenêtre d'énergie donnée [34]. La méthode choisie est très simple et repose sur la projection de la fonction d'onde finale  $\psi((\hat{r}, t_{max}))$ , qui représente le système atomique à la fin de l'interaction, sur des états propres du continuum discrétisés  $\psi_{ck}$  associés à l'énergie  $E_k = \frac{k^2}{2}$  de telle sorte que la section efficace différentielle d'éjection d'un photoélectron avec l'énergie  $E_k$  dans l'angle solide  $d\Omega$  est

$$\left. \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{E_k} = \left. \frac{d\sigma}{d\theta} \right)_{E_k} \propto \left| \langle \psi_{ck}((\hat{r})) | \psi((\hat{r}, t_{max})) \rangle \right|^2, \quad (\text{IV.1})$$

Dans notre cas, compte tenu de la symétrie cylindrique du problème, cet angle solide ce ramène à l'angle theta entre entre la direction de polarisation des champs choisie

parallèle à l'axe Oz et le vecteur d'onde  $\vec{k}$  du photoélectron.

En utilisant le développement de la fonction d'onde sur les moments angulaires donné précédemment par l'expression (I.53) et la forme de la fonction d'onde de Coulomb  $\psi_{ck}^{(-)}(\hat{r})$  définie par l'équation (III.12), la section efficace différentielle (équation IV.1) devient

$$\left. \frac{d\sigma}{d\theta} \right)_{E_k} \propto \left| \sum_{\ell, \ell'} (-i)^\ell e^{i(\sigma_\ell)} \langle Y_{\ell,0} | Y_{\ell',0} \rangle \langle R_{k,\ell} | u_{\ell'} \rangle Y_{\ell,0}(\hat{k}) \right|^2. \quad (\text{IV.2})$$

Sachant que  $\langle Y_{\ell,0} | Y_{\ell',0} \rangle = \delta_{\ell\ell'}$  et en posant  $S_\ell = \langle R_{k,\ell} | u_\ell \rangle$ , la quantité ci-dessus peut se mettre plus simplement sous la forme

$$\left. \frac{d\sigma}{d\theta} \right)_{E_k} \propto \left| \sum_{\ell} (-i)^\ell e^{i(\sigma_\ell)} S_\ell Y_{\ell,0}(\hat{k}) \right|^2. \quad (\text{IV.3})$$

La distribution angulaire d'un pic, que ce soit harmonique ou satellite, est juste la somme des distributions angulaires sur des énergies correspondent à des points de ce pic

$$\left. \frac{d\sigma}{d\theta} \right)_{Pic} = \sum_{E_k} \left. \frac{d\sigma}{d\theta} \right)_{E_k}. \quad (\text{IV.4})$$

La résolution numérique du problème nécessite d'abord la détermination des fonctions du continuum  $R_{k,\ell}$ . Pour ce faire, nous pouvons résoudre numériquement l'équation de Schrödinger stationnaire (ESS) par la méthode de Runge-Kutta d'ordre 4.

### IV.3 Génération des états propres du continuum

D'après ce qui précède, il apparaît clairement qu'il n'y a pas de partie continue et tout est entièrement discret. L'ensemble des états propres du continuum  $R_{k,\ell}(r)$  d'énergie positive sont obtenus numériquement en résolvant l'ESS :  $H_0 R_{k,\ell}(r) = E_k R_{k,\ell}(r)$ .

A l'aide de la méthode de Shooting on peut trouver facilement l'énergie propre du continuum, que l'on utilise ensuite pour calculer l'état propre discrétisé correspondant. Nous avons choisi, pour la second étape, d'exploiter un programme numérique d'intégration d'équation différentielle : il s'agit de l'algorithme de la méthode de Runge-Kutta d'ordre 4.

### IV.3.1 Energie du niveau du continuum-Méthode de "Shooting"

La technique employée pour trouver une énergie propre du continuum est appelée la méthode de "Shooting ". L'idée de base est de tirer un point lié à une énergie bien précise  $E_k = \frac{k^2}{2}$  de la courbe du spectre de photoélectron, à partir de ce point on va chercher à trouver l'état correspondant en résolvant l'équation radiale suivante :

$$\frac{d^2}{dr^2} R_{k,\ell}(r) = \left[ -2 \left( E_k + \frac{1}{r} \right) + \frac{\ell(\ell+1)}{r^2} \right] R_{k,\ell}(r) \quad (\text{IV.5})$$

### IV.3.2 Runge-Kutta d'ordre 4-RK4

La méthode de Runge-Kutta est une méthode itérative, c'est à dire qu'une estimation est utilisée pour déterminer une nouvelle estimation et ainsi de suite, c'est l'une des méthodes les plus utilisées pour la résolution numérique des problèmes des équations différentielles ordinaires à valeurs initiales [35].

L'équation (IV.5) est équivalente à un système de deux équations couplées de la forme :

$$\begin{cases} \frac{d}{dr} R_{k,\ell}(r) = \vartheta_{k,\ell}(r) \\ \frac{d}{dr} \vartheta_{k,\ell}(r) = \left[ -2 \left( E_k + \frac{1}{r} \right) + \frac{\ell(\ell+1)}{r^2} \right] R_{k,\ell}(r) \end{cases} \quad (\text{IV.6})$$

avec la condition initiale  $R_{k,\ell}(r=0) \sim r^{\ell+1}$

Que l'on peut résoudre par l'application de la méthode de Runge-Kutta pour un

système de deux équations couplées

$$\left\{ \begin{array}{l} y_0, z_0 \text{ donnés} \\ \frac{dy}{dx} = f(x, y, z) \\ \frac{dz}{dx} = g(x, y, z) \end{array} \right. \quad (\text{IV.7})$$

L'algorithme, noté RK4, s'écrit

$$\left\{ \begin{array}{l} y_0, z_0 \text{ donnés, puis pour } n > 0 \\ \\ k_1 = f(x_n, y_n, z_n) \qquad l_1 = g(x_n, y_n, z_n) \\ \\ k_2 = f\left(x_n + \frac{h}{2}, y_n + \frac{h}{2}k_1, z_n + \frac{h}{2}l_1\right) \qquad l_2 = g\left(x_n + \frac{h}{2}, y_n + \frac{h}{2}k_1, z_n + \frac{h}{2}l_1\right) \\ \\ k_3 = f\left(x_n + \frac{h}{2}, y_n + \frac{h}{2}k_2, z_n + \frac{h}{2}l_2\right) \qquad l_3 = g\left(x_n + \frac{h}{2}, y_n + \frac{h}{2}k_2, z_n + \frac{h}{2}l_2\right) \\ \\ k_4 = f(x_n + h, y_n + hk_3, z_n + hl_3) \qquad l_4 = g(x_n + h, y_n + hk_3, z_n + hl_3) \\ \\ y_{n+1} = y_n + \frac{h}{6}(k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4) \\ \\ z_{n+1} = z_n + \frac{h}{6}(l_1 + 2l_2 + 2l_3 + l_4) \\ \\ x_{n+1} = x_n + h \end{array} \right. \quad (\text{IV.8})$$

Nous devons donc écrire un programme de RK4 en définissant les fonctions  $f$  et  $g$  par analogie avec le système (IV.8) pour pouvoir calculer la fonction  $R_{k,\ell}(x_n)$  dont les

valeurs de l'énergie  $E_k$  et du moment angulaire  $\ell$  sont connues.

### IV.3.3 Comparaison avec les ondes coulombiennes

Afin de tester notre programme construit sur la méthode de Shooting, nous avons comparé nos résultats obtenus avec ceux trouvés en calculant les ondes coulombiennes à partir de son expression analytique (voir équation (III.13) chapitre III) (routine "coul.f" extraite du site <http://www.feresco.org.uk>, 2009 [36]).

Nous faisons Shooting pour une valeur fixe de  $E_k$  et différentes valeurs de  $\ell$ . D'après les résultats de la comparaison montrés dans la figure (IV.2), nous constatons qu'il y a compatibilité des formes entre les deux fonctions, mais que les états du continuum générés par la méthode de RK4 sont de normes arbitraires. Il faut alors les normaliser avant de les utiliser dans le calcul de la distribution angulaire.

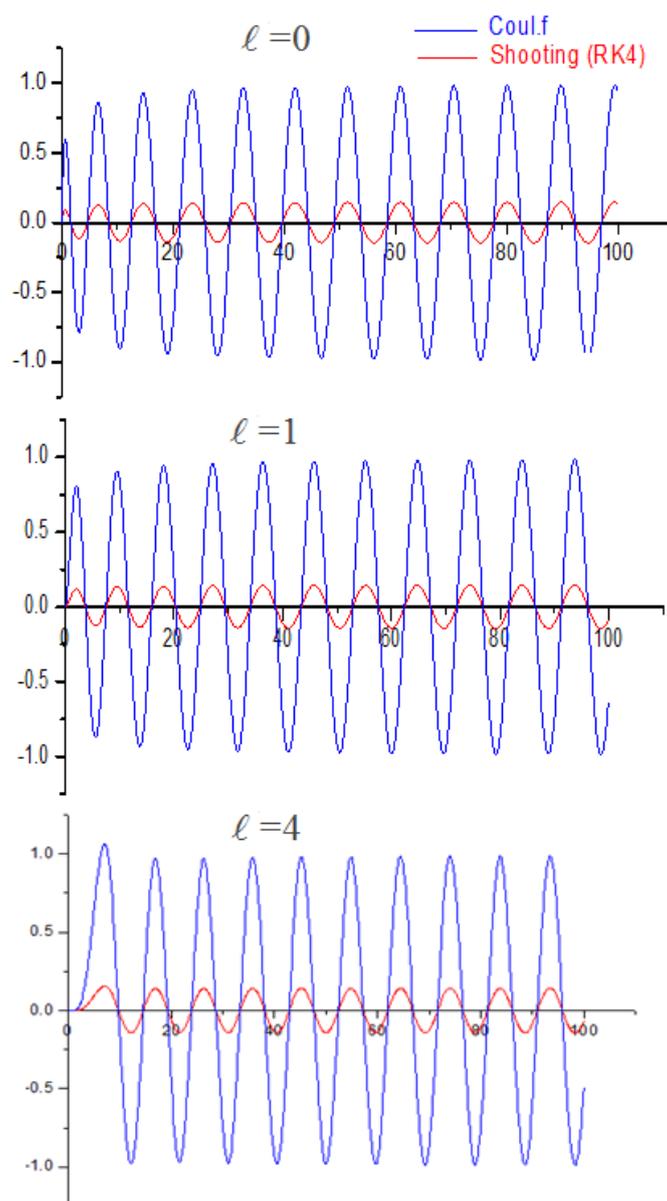


Figure IV.2 – Comparaison entre Shooting et coul.f pour une énergie  $E_k = 0.2u.a.$

#### IV.3.4 Normalisation des fonctions du continuum obtenues

**Numériquement :** pour normaliser la fonction d'onde du continuum, on peut prendre un maximum de la fonction obtenue par coul.f pour une valeur de  $r$  assez grande et

prendre le même point de la Shooting et on divise la fonction Shooting par cette valeur puis on la multiplie par la valeur de coul.f. On obtient le résultat de la figure (IV.3) qui montre que la normalisation marche bien numériquement.

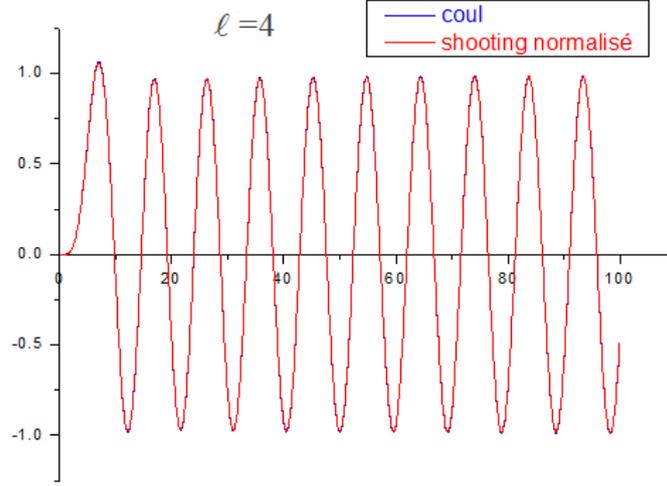


Figure IV.3 – Comparaison entre Shooting normalisé numériquement et coul.f pour une énergie  $E_k = 0.2$  u.a.

**Automatiquement :** Pour que notre programme soit utile, il faut normer d'une façon automatique les fonctions du continuum (d'énergie  $E_k > 0$ ), qui sont ensuite inclus dans notre programme. Comme précédemment, nous avons vérifié le fonctionnement du programme de la normalisation automatique par comparaison avec les résultats du calcul des ondes coulombiennes à partir de son expression analytique. Nous donnons dans l'annexe D, les détails concernant la normalisation automatique des fonctions du continuum, basée sur la méthode de Strömngren [37].

## IV.4 Résultats et discussion

Grâce au calcul de la section efficace (équation (IV.4)) que nous avons effectué avec nos méthodes numériques, nous avons pu étudier les distributions angulaires des pics

du spectre de l'électron éjecté, dans le cas de la photoionisation à deux couleurs de l'atome d'hydrogène, pour les pics satellites et pour le pic harmonique habillé par l'IR.

Comme le montre la figure (III.2(a)) du chapitre précédent, en l'absence du champ infrarouge, le spectre en énergie présente un seul pic lié à la photoionisation de l'hydrogène par l'absorption d'un seul photon harmonique. Sur la figure (IV.4), on remarque que la distribution angulaire du pic harmonique donnée en fonction de l'angle  $\theta = (\vec{z}, \vec{k})$ , est très semblable à la fonction  $\cos^2\theta$  attendue pour un photoélectron éjecté depuis son état fondamental ( $1s$ ). La valeur maximale de la distribution angulaire est normalisée à l'unité pour nous permettre une comparaison plus facile.

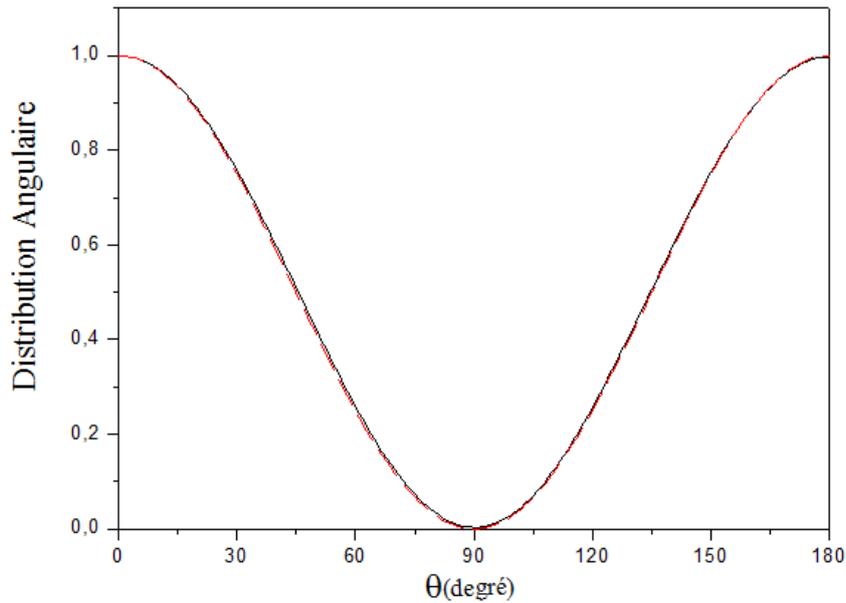


Figure IV.4 – Distribution angulaire du pic harmonique du spectre de la figure (III.2 (a)) en fonction de l'angle  $\theta$ . La courbe en pointillé montre une distribution en  $\cos^2\theta$ .

Comme nous l'avons déjà expliqué, lorsqu'on superpose l'infrarouge à son quinzième harmonique, des nouveaux pics satellites (bandes latérales) nommés  $BL_{\pm n}$  apparaissent autour du pic harmonique. Ces pics correspondent à l'absorption ou à l'émission stimulée de  $n$  photons IR, dont l'énergie cinétique est  $E_{BL_{\pm n}} = E_{H_{15}} \pm n\omega_{IR}$ , avec

$$E_{H_{15}} = \omega_{H_{15}} - I_P.$$

Pour une intensité infrarouge relativement faible ( $10^{11} \text{ W/cm}^2$ ), nous présentons sur la figure (IV.5) la distribution angulaire des photoélectrons en fonction de l'angle  $\theta = (\vec{z}, \vec{k})$  entre la direction de polarisation des champs laser et harmonique (même polarisation) et le vecteur d'onde du photoélectron. Le pic harmonique (figure(a)) présente une distribution angulaire reste proche de la forme de la fonction  $\cos^2\theta$ . Tandis que les distribution des pics satellites  $BL_{+1}$  et  $BL_{-1}$  (figure(b)) sont au contraire plus large que la fonction  $\cos^2\theta$ , il semble qu'elles sont en accord avec le comportement en  $\cos^4\theta$ .

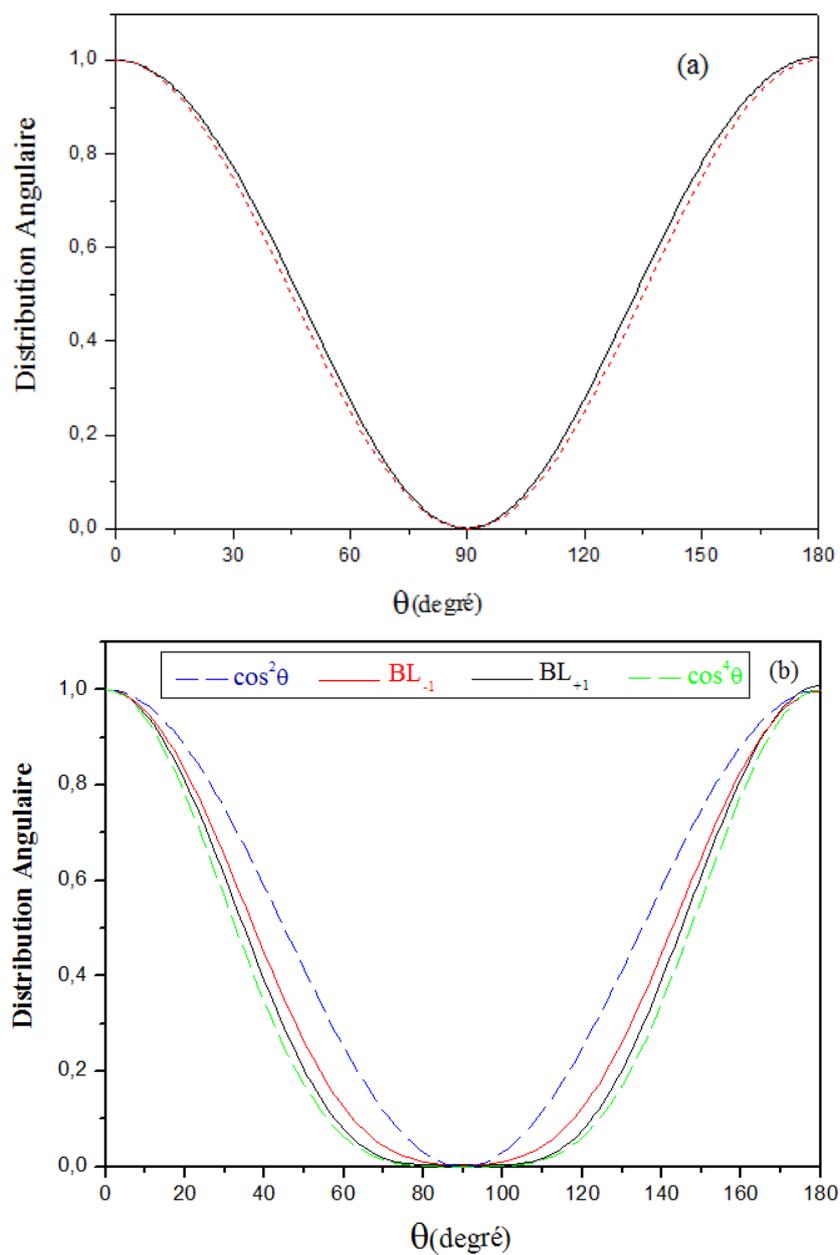


Figure IV.5 – Distribution angulaire en fonction de l'angle  $\theta$  : (a) du pic harmonique et (b) des pic satellites  $BL_{+1}$  et  $BL_{-1}$ . Les courbes en pointillés montrent la distribution en  $\cos^2 \theta$  et  $\cos^4 \theta$ .

## IV.5 Effet de l'intensité laser sur la distribution angulaire

Dans ce paragraphe, nous discuterons l'influence de l'intensité du champ laser IR sur la forme de la distribution angulaire de chaque pic du spectre de photoelectron. A cet effet, nous avons gardé le 15<sup>ème</sup> harmonique du laser IR avec une intensité faible fixé à la valeur  $I_{IR} = 10^9 \text{ W/cm}^2$ , et varié l'intensité du laser fondamental entre  $I_{IR} = 10^{11} \text{ W/cm}^2$  et  $I_{IR} = 5.10^{12} \text{ W/cm}^2$ .

### IV.5.1 Pics harmoniques

La figure (IV.6) résume les résultats du calcul numérique de la distribution angulaire du pic harmonique  $H_{15}$  pour différentes intensités du champ IR. Comme nous l'avons déjà remarqué sur la figure (IV.5), lorsqu'un champ infrarouge est superposé au champ harmonique, la distribution angulaire du pic harmonique est un peu plus piquée que  $\cos^2\theta$  et est donc un peu étroite par rapport au cas où il n'y a pas d'infrarouge. Lorsqu'on augmente l'intensité du champ infrarouge, la forme de la distribution angulaire devient de plus en plus piquée jusqu'à présenter des oscillations. Ceci peut s'expliquer, de point de vue mathématique, par le fait que l'argument de la fonction de Bessel est proportionnel au champ électrique et donc comme les Bessel oscillent plus quand l'argument augmente la distribution angulaire fait de même.

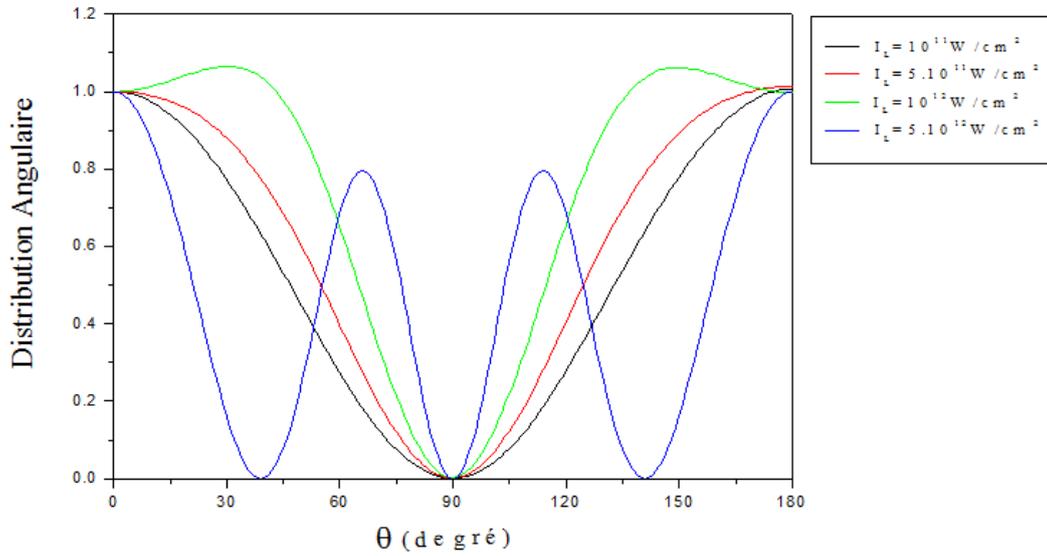


Figure IV.6 – Effet de l'intensité laser sur la distribution angulaire du pic harmonique.

#### IV.5.2 Pics satellites

Pour les pics satellites  $BL_{+1}$ , l'allure de la distribution angulaire en fonction de l'angle  $\theta$  calculées à différentes intensité IR (figure (IV.7)), montre que sa forme devient plus large que  $\cos^2(\theta)$ . Quand l'intensité laser augmente la forme de la distribution angulaire devient de plus en plus étroite jusqu'à présenter des concavités en leurs sommets au-delà de l'intensité  $10^{12} \text{ W/cm}^2$ . Cela est nécessairement dû à l'échange d'un grand nombre de photons infrarouges au-dessus du seuil d'ionisation.

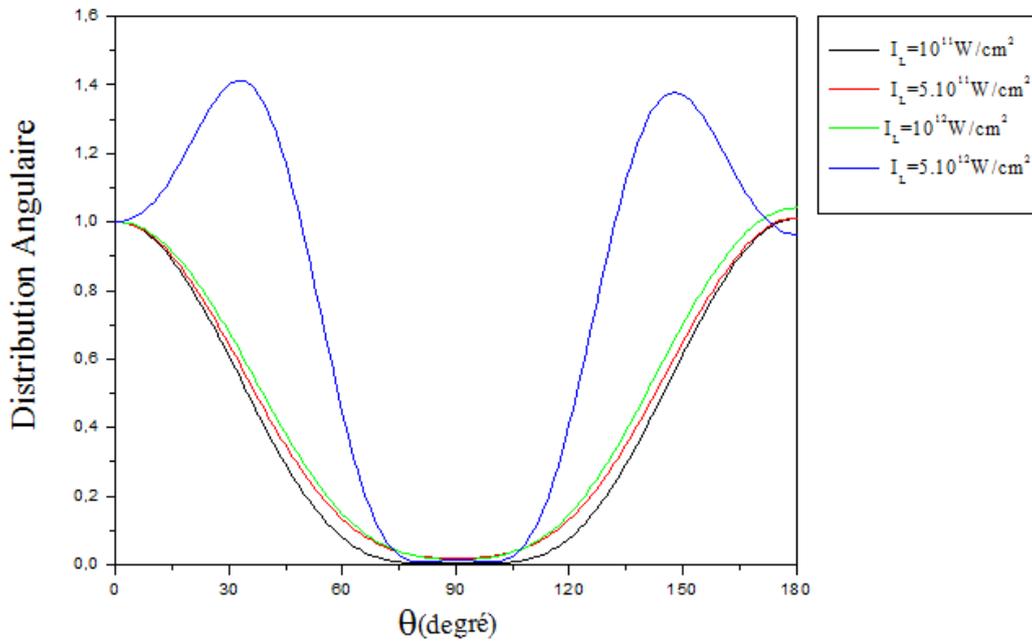


Figure IV.7 – *Effet de l'intensité laser sur la distribution angulaire du pic latéral  $BL_{+1}$ .*

## IV.6 Conclusion

Dans ce travail nous avons présenté les résultats obtenus de la distribution angulaire des pics du spectre en énergie de l'électron éjecté obtenu lors de la photoionisation de l'hydrogène par le 15<sup>ème</sup> harmonique du laser IR, puis par deux photons de deux couleurs différentes : un photon infrarouge et sa quinzième harmonique. Ces résultats sont obtenus grâce au calcul de la section efficace différentielle d'éjection d'un photoélectron en utilisant différentes méthodes numériques. Nous avons montré que la distribution angulaire, en l'absence du champ d'habillage, d'un pic harmonique est juste la fonction  $\cos^2\theta$ . Lorsqu'on superpose le champ harmonique à une intensité fixe au champ IR à différentes intensités, la forme de la distribution angulaire du pic satellite devient de plus en plus étalée dans la direction de polarisation, et celle du pic harmonique habillé par l'IR devient au contraire plus en plus piquée jusqu'à l'apparition des oscillations.

Nous pouvons donc conclure que l'intensité du champ d'habillage est un paramètre déterminant dans la forme des distributions angulaires.



# Conclusion générale

Grâce au développement récent des outils informatiques tels que l'accroissement de la puissance des ordinateurs et les progrès rapides des codes et des logiciels informatiques, nous pouvons effectuer facilement des simulations numériques pour une description plus précise des phénomènes physiques, c'est-à-dire que les programmes informatiques nécessaires deviennent rapidement exécutable sur des ordinateurs. Il est donc nécessaire d'avoir recours à des méthodes numériques convenables de la simulation, qui sont en fait la traduction des formulations mathématiques des phénomènes physiques étudiés.

L'objectif de ce travail était d'étudier les processus de l'interaction d'un champ laser avec un système à un seul électron actif tel que l'atome d'hydrogène. Notre approche consiste à résoudre numériquement l'ESDT pour un système à un électron actif, suivie d'une analyse spectrale de la fonction d'onde pour la représentation du spectre de photoélectron du système étudié. Nous avons dans un premier temps abordé le cas de l'ESDT à une dimension d'espace pour un atome sans champ extérieur, qui se présente de façon plus simple, pour développer les méthodes fiables et efficaces de la résolution. Grâce à cette étude, nous avons amélioré les méthodes numériques pour résoudre le problème à trois dimensions afin d'étudier les processus de l'interaction entre un système à un seul électron actif et un champ laser. L'application de ces méthodes à notre système nous a permis de développer un algorithme pour l'évaluation pratique de

l'interaction. Suite au développement d'un code numérique stable, nous avons choisi de l'appliquer dans la description des processus de l'ionisation de l'hydrogène dans les cas suivants : par un champ laser intense et haute fréquence, par un champ laser intense et basse fréquence (Infrarouge) puis par des impulsions combinant des photons infrarouges et harmonique.

Dans le chapitre consacré à l'ionisation de l'hydrogène par un champ laser haute fréquence, le spectre de photoélectron correspondant, montre qu'au-delà d'une certaine intensité laser, l'interaction conduit à l'observation des autres pics séparés par l'énergie du photon incident et qui sont liés à l'absorption des photons supplémentaires au-dessus du seuil d'ionisation, on parle alors d'ionisation au dessus du seuil ou ATI. L'analyse du spectre de photoélectron de l'ionisation multiphotonique de l'hydrogène par un champ laser IR d'intensité  $2.10^{13} \text{ W/cm}^2$ , nous permet d'observer le même phénomène d'ATI. L'apparition des pics d'ATI dépend en fait des paramètres de l'interaction tels que l'intensité et la fréquence du champ laser considéré. En effet, l'amplitude des pics décroît lorsqu'on augmente l'énergie du photon absorbé, tandis qu'avec une énergie de photon fixe l'amplitude augmente avec l'augmentation de l'intensité laser, nous avons déduit ensuite que  $P(E_k, q, \gamma) \propto I^{(s+N)}$  cela est alors vérifiée comme dans le cas de la théorie des perturbations.

Dans le troisième chapitre nous avons abordé la photoionisation à "deux couleurs" d'un atome d'hydrogène soumis à des impulsions combinant des photons infrarouges issus du laser Ti :Saphir et sa quinzième harmonique. En l'absence du champ laser (d'habillage), c'est-à-dire lorsque l'atome d'hydrogène soumis uniquement au champ harmonique de fréquence  $\omega_{H_{15}} = 15 \times \omega_{IR}$  (choisie suffisamment élevée pour que l'atome puisse être ionisé par un seul photon) et pour une intensité plus faible que celle du laser générateur, le spectre de photoélectrons montre un seul pic lié à l'absorption d'un photon harmonique. En présence du champ laser, le spectre de photoionisation présente des nouveaux pics autour du pic harmonique sous la forme de pics satellites

$BL_{\pm n}$  associés à l'échange de  $n$  photons infrarouges par l'absorption ou l'émission stimulée. Quand l'intensité infrarouge augmente l'amplitude de ces pics augmente alors que celle du pic harmonique diminue. Comme nous l'avons montré, il est possible de faire apparaître des autres pics satellites d'ordre supérieur si l'intensité est encore plus importante.

Les résultats de nos calculs nous ont permis en fait comparer à d'autres approches théoriques dans l'étude des processus d'ionisation. Pour ce faire, nous avons pris l'approche de Kroll et Watson qui calcule la section efficace différentielle pour un processus de collision accompagné de l'échange de  $n$  photons que nous avons comparé aux résultats de nos simulations numériques. Pour différentes intensités laser on a montré qu'il y a un bon accord entre l'approche théorique de Kroll et Watson et nos calculs obtenus par la résolution numérique de l'ESDT.

Finalement, un calcul de la distribution angulaire des spectres obtenus pour la photoionisation à deux couleurs a été effectué numériquement afin d'étudier l'effet de l'éclairement de l'impulsion IR sur la distribution angulaire de chaque pic du spectre de photoélectron. Nous avons vu que l'intensité du champ IR a une influence très importante sur la forme de la distribution angulaire des pics du spectre soit le pic harmonique soit les pics satellites. Ceci est dû au fait que l'augmentation du champ électrique nous permet de voir des processus où le système échange 2, 4 ou 6 photons IR en plus de l'harmonique et donc d'avoir dans la distribution angulaire des harmoniques d'ordres plus élevés (1,3,5...).



# Annexe A

## Système d'unités atomiques

Le système d'unités internationales (S.I.) est bien adapté aux grandeurs physiques décrivant des systèmes macroscopiques, et exprime les quantités en mètres, kilogrammes, secondes, etc. alors que les phénomènes agissant à l'échelle atomique nécessitent un système de mesure adapté à la description de systèmes microscopiques tels que les atomes et les molécules : ce sont les unités atomiques (u.a.). Il est basé sur le choix d'associer à l'unité les principales grandeurs fondamentales de la physique atomique, telles que la charge de l'électron  $e$ , sa masse  $m_e$ , le rayon atomique de Bohr  $a_0$ , ou encore la constante réduite de Planck  $\hbar$ . L'idée fondamentale a été d'associer ces grandeurs fondamentales à l'unité :

$$e = m_e = a_0 = \hbar = 1 \tag{A.1}$$

auxquelles s'associe l'expression en u.a. des constantes fondamentales suivantes :

$$c = \frac{1}{\alpha}, \quad \varepsilon_0 = \frac{1}{4\pi}, \quad \mu_0 = \frac{4\pi}{c^2} \tag{A.2}$$

---

où  $\alpha$  est la constante de structure fine définie par :

$$\alpha = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\hbar c} = \frac{1}{137.06} \quad (\text{A.3})$$

Nous définissons dans le tableau (A.1) la correspondance entre les unités atomiques et les unités du système international des grandeurs physiques intéressantes :

<b>Quantité en unités atomiques</b>	<b>Notation et expression</b>	<b>Signification physique</b>	<b>Valeur en unité S.I.</b>
1 u.a. de masse	$m_e$	Masse d'un électron	$9.10953 \times 10^{-31} \text{ kg}$
1 u.a. de charge	$e$	Valeur absolue de la charge d'un électron	$1.60219 \times 10^{19} \text{ C}$
1 u.a. de moment angulaire	$\hbar$	Constante de Planck divisée par $2\pi$	$1.0546 \times 10^{-34} \text{ J}$
1 u.a. de longueur	$a_0 = \frac{4\pi\hbar^2 \epsilon_0}{e^2 m_e}$	Rayon de Bohr	$0.5292 \times 10^{-10} \text{ m}$
1 u.a. de vitesse	$v_0 = \alpha c$	Vitesse d'un électron sur la 1 <sup>ère</sup> orbite de Bohr	$2.18769 \times 10^6 \text{ m.s}^{-1}$
1 u.a. de temps	$\tau_0 = \frac{a_0}{v_0}$	Temps mis par l'électron pour parcourir un rayon de Bohr	$2.4189 \times 10^{-17} \text{ s} = 0.024 \text{ fs}$
1 u.a. d'énergie	$\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 a_0}$	Deux fois le potentiel d'ionisation de H	$27.2116 \text{ eV}$
1 u.a. de champ électrique (Amplitude)	$E_0 = \frac{e}{4\pi\epsilon_0 a_0^2}$	Champ ressenti par l'électron sur la 1 <sup>ère</sup> orbite de Bohr de H	$5.14224 \times 10^{11} \text{ V.m}^{-1}$
1 u.a. d'intensité	$I_0 = \frac{\hbar}{\tau_0^2 a_0^2 8\pi\alpha}$		$3.5095 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$

Table A.1 – Conversion entre les unités atomiques et les unités du système international pour les différentes grandeurs physiques.

Une formule utile dont on aura besoin pour convertir l'amplitude maximale du champ  $E_0$  en *u.a.* à une intensité  $I$  en  $\text{W.cm}^{-2}$  est :

$$I_{0(\text{W/cm}^2)} = 3.509338.10^{16} \times (E_{0(\text{u.a.})})^2 \quad (\text{A.4})$$

c'est-à-dire

$$E_{0(u.a.)} = 5.33802710 \times 10^{-9} \sqrt{I_{0(W/cm^2)}} \quad (\text{A.5})$$

Le tableau (A.2) donne les valeurs, que nous avons utilisées dans notre travail, de l'amplitude  $E_0$  converties en  $u.a.$  à partir de l'intensité  $I_0$  en  $W.cm^{-2}$

<b>Intensité <math>I_{0(W/cm^2)}</math></b>	<b>Amplitude maximale <math>E_{0(u.a.)}</math></b>
$10^9$	$1.688 \times 10^{-4}$
$10^{10}$	$5.34 \times 10^{-4}$
$3.51 \times 10^{10}$	$10^{-3}$
$5 \times 10^{10}$	$1.19 \times 10^{-3}$
$10^{11}$	$1.688 \times 10^{-3}$
$5 \times 10^{11}$	$3.77 \times 10^{-3}$
$8.77 \times 10^{11}$	$5 \times 10^{-3}$
$10^{12}$	$5.34 \times 10^{-3}$
$2 \times 10^{12}$	$7.53 \times 10^{-3}$
$5 \times 10^{12}$	$1.19 \times 10^{-2}$
$10^{13}$	$1.688 \times 10^{-2}$
$5 \times 10^{13}$	$3.77 \times 10^{-2}$

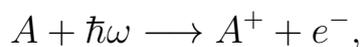
Table A.2 – Conversion entre l'intensité en  $W.cm^{-2}$  et l'amplitude de champ électrique en  $u.a.$

# Annexe B

## Différents processus d'ionisation

### Photoionisation

La photoionisation est le premier processus d'ionisation par photon découvert après l'observation de l'effet photoélectrique en 1887 par Heinrich Hertz [39]. Le phénomène observé a été expliqué en 1905 par Albert Einstein par le fait qu'un rayonnement monochromatique de pulsation  $\omega$  contient des "grains de lumière" [40], appelés photons aujourd'hui. L'électron lié d'un atome  $A$ , d'énergie négative peut être libéré dans le continuum par un photon incident d'énergie  $\hbar\omega$  supérieure à l'énergie de liaison de l'électron dans l'atome.



où  $\hbar$  est la constante de Planck réduite.

La figure B.1 montre un schéma significatif de ce processus, où  $E_1 = -E_I$  est l'énergie de liaison d'un électron dans l'état fondamental,  $E_I$  est l'énergie d'ionisation de l'atome,  $\hbar\omega$  est l'énergie du photon et  $E_c$  est l'énergie cinétique de l'électron éjecté

dans le continuum donnée par la loi de conservation de l'énergie tel que :  $E_c = \hbar\omega - E_I$ .

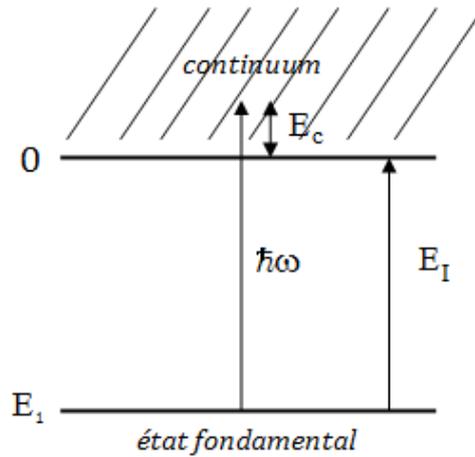


Figure B.1 – Schéma décrivant le processus d'ionisation par un seul photon.

Le processus dominant lors de l'interaction laser-atome est le résultat de la compétition entre plusieurs mécanismes comme la photionisation, l'ionisation multiphotonique, l'ionisation tunnel..., le processus dépend de l'intensité et de la fréquence du laser considéré.

## Ionisation multiphotonique

Les processus multiphotoniques furent observés en 1965 pour la première fois par Hall, Robinson et Branscomb [41] en photo-détachant un électron, par deux photons, d'ions  $I^-$ , puis, l'année suivante, par Voronov et Delone [42] en ionisant par 8 photons des atomes de krypton et par 9 photons des atomes d'argon. Quand l'énergie  $N\hbar\omega$  des  $N$  photons absorbés est supérieure à l'énergie d'ionisation  $E_I$  de l'électron, celui-ci est ionisé (voir figure B.2) dont le nombre  $N$  de photons nécessaires à l'ionisation correspond à la partie entière du nombre  $(\frac{E_I}{\hbar\omega} + 1)$ .

Suivant l'intensité du champ les électrons vont osciller dans ce champ jusqu'à pou-

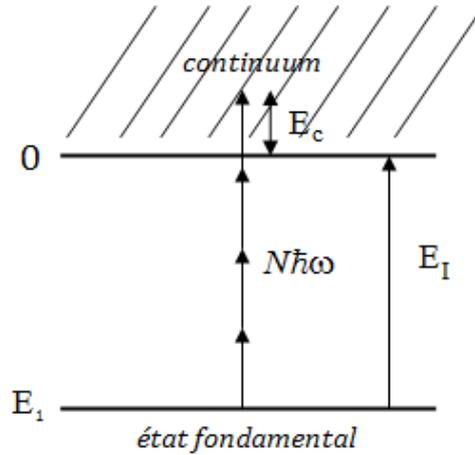


Figure B.2 – Schéma décrivant le processus d'ionisation multiphotonique.

voir être arrachés de l'atome pour atteindre le continuum avec une énergie faible. L'effet de l'ion parent sur l'électron peut être considéré comme négligeable devant celui du champ oscillant, c'est-à-dire que la dynamique de l'électron est dominée par le champ laser. Le processus d'ionisation par effet de champ est observé à partir d'un éclairement de  $10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Lorsque l'éclairement augmente (mais en restant dans une gamme inférieure à l'unité atomique d'intensité  $I_0 = 3.510^{16} \text{ W/cm}^2$ ), on peut se faire une image de la barrière de potentiel effective (potentiel coulombien plus potentiel dû au laser) qui s'abaisse pendant un certain temps. Pendant cet abaissement, un électron peut s'échapper du puits de potentiel en traversant la barrière par effet tunnel. La probabilité de ce passage dépend de la hauteur et de l'épaisseur de la barrière. Lorsque le champ électrique est un champ oscillant de période  $T_0 = \frac{2\pi}{\omega_0}$  la barrière de potentiel s'abaisse et monte périodiquement.

Pour évaluer l'efficacité du processus, Keldysh a introduit un paramètre d'adiabaticité  $\gamma$  [28] qui rend compte du moment où le régime tunnel de l'interaction est atteint (c'est-à-dire la limite entre l'ionisation multiphotonique et l'ionisation par effet tunnel), il défini comme le quotient du temps nécessaire à l'électron pour traverser la

---

barrière de potentiel par effet tunnel  $t_{tun}$  par rapport à la période optique du laser  $T_0$ , soit :

$$\gamma = \frac{t_{tun}}{T_0} \quad (\text{B.1})$$

Ce paramètre dépend aussi du potentiel d'ionisation  $I_p$  et du potentiel pondérateur du laser  $U_P$  tel que :

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_P}{2U_P}} \quad (\text{B.2})$$

Le potentiel pondérateur  $U_P$  correspond à l'énergie cinétique moyenne d'un électron oscillant dans un champ électromagnétique.

En effet, lorsqu'un atome est ionisé par un champ laser intense, l'électron libéré ne se trouve pas dans l'espace libre mais il est sous l'influence du champ laser. Dans une image classique, l'électron va se déplacer dans un champ électrique oscillant de fréquence  $\omega_0$ , polarisé linéairement suivant l'axe des abscisses ( $ox$ ) :  $E(t) = E_0 \sin(\omega_0 t) e_x$ . Par conséquent, sa vitesse et sa position à une dimension peuvent être obtenues à partir de l'équation de Newton

$$\begin{aligned} m_e a(t) &= m_e \frac{dx^2}{dt^2} = qE(t) = -eE_0 \sin(\omega_0 t) \\ v(t) &= \frac{dx}{dt} = \frac{eE_0}{m_e \omega_0} \cos(\omega_0 t) - v_0 \\ x(t) &= \frac{eE_0}{m_e \omega_0} \sin(\omega_0 t) - v_0 t + x_0 \end{aligned}$$

Les constantes d'intégration de  $v_0$  et  $x_0$  sont déterminées par l'état initial. En moyennant sur un cycle du champ électrique l'énergie cinétique, on trouve

$$\frac{1}{2} m_e \langle v^2(t) \rangle = \frac{1}{T_0} \int_{T_0} \frac{m_e v^2(t)}{2} dt = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega_0^2} + \frac{m_e v_0^2}{2}$$

où  $T_0$  est la période d'oscillation. Le premier terme est l'énergie ponderomotrice

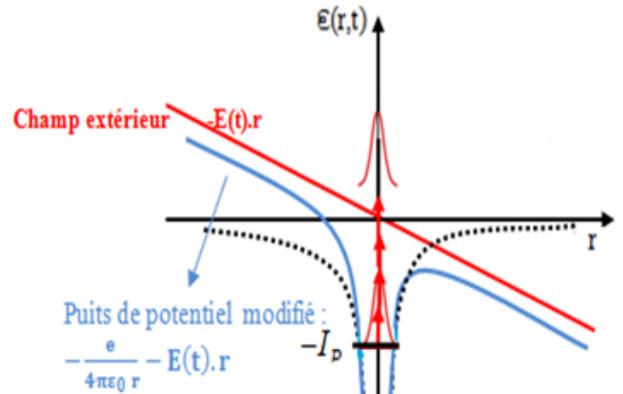
$$U_P = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega_0^2} \quad (\text{B.3})$$

où  $m_e$  et  $e$  sont respectivement la masse et la charge de l'électron.

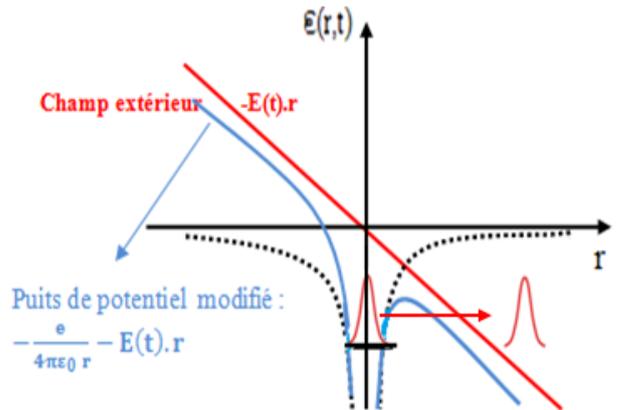
En unités atomiques ( $m_e = 1$ ,  $\hbar = 1$  et  $e = 1$ )  $U_P$  s'écrit

$$U_P = \frac{E_0^2}{4\omega_0^2} \quad (\text{B.4})$$

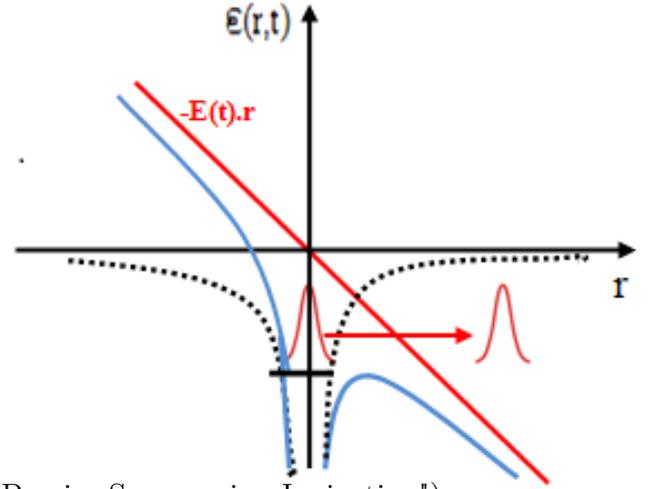
Si  $\gamma \gg 1$ , le champ laser possède une faible amplitude et une fréquence élevée. L'électron n'a pas le temps de traverser la barrière de potentiel avant que celle-ci ne soit modifiée. L'ionisation ne se fait pas par effet tunnel mais par un autre mécanisme (ionisation multiphotonique). L'ionisation multiphotonique est produite à faible intensité  $I$  du champ extérieur ( $I \sim 10^{10}$  à  $10^{14}$   $W/cm^2$ ).



Si  $\gamma \ll 1$ , le champ laser possède une grande amplitude et une fréquence peu élevée. La barrière de potentiel est fortement abaissée par le champ laser, et l'électron dispose alors de suffisamment de temps pour la traverser. Ceci correspond au régime d'ionisation par effet tunnel.



Si l'on augmente encore l'intensité, il arrive un moment où la barrière s'abaisse à un niveau plus bas que le niveau correspondant à l'énergie de l'atome dans son état fondamental. L'électron peut alors passer directement par ce chemin ouvert et l'on dit qu'on a atteint un régime d'ionisation au-dessus de la barrière. Ce processus est appelé ionisation par suppression de barrière (ionisation BSI pour "Barrier Suppression Ionization").



La limite où le champ devient suffisamment élevé pour compenser la barrière coulombienne peut être évaluée classiquement. Si l'on considère un potentiel unidimensionnel, le potentiel total ressenti par l'électron, somme du potentiel coulombien et du potentiel électrique, est de la forme suivante (en unités atomiques (voir annexe A)) :

$$V(x) = \frac{-Z}{|x|} - qEx \quad (\text{B.5})$$

où  $Z$  est la charge de l'atome (ou ion) parent. À partir de cette expression, on peut donc déterminer la valeur  $x_{max}$  où le potentiel sera maximal. Cette valeur est  $x_{max} = \sqrt{\frac{Z}{E}}$  et le potentiel en ce point est  $V(x_{max}) = -2\sqrt{ZE}$ . Ceci nous permet de définir un champ seuil  $E_{seuil}$ , champ minimum pour que l'électron puisse être libéré du champ coulombien. Ce champ est tel que le potentiel en  $x_{max}$  soit égal à l'énergie d'ionisation  $-I_P$  de l'électron, soit :

$$E_{seuil} = \frac{I_P^2}{4Z} \quad (\text{B.6})$$

Ainsi, si le champ est inférieur à cette valeur seuil, l'ionisation se fait par effet tunnel et s'il est supérieur ou égal, l'électron est libéré par suppression de barrière.

# Annexe C

## Génération d'harmoniques

Nous expliquons brièvement le principe du processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé, car ce travail est une application des harmoniques et pour plus de détails voir la thèse de Willem Boutu [45].

Ces dernières années, la génération d'harmoniques d'ordre élevé est devenue l'un des principaux sujets de physique. La première observation expérimentale d'un spectre d'harmoniques a eu lieu dans deux laboratoires à la fin des années 80, par A. McPherson et al. à Chicago [5] et par M. Ferray et al. à Saclay [6]. Quand un laser à impulsions courtes intense ( $10^{13} - 10^{15} \text{ W/cm}^2$ ) interagit avec un gaz atomique ou moléculaire, les atomes réagissent de manière non linéaire et émettent un rayonnement cohérent s'étendant de l'ultra-violet jusqu'aux rayons x mous (domaine XUV) de fréquences impaires de la fréquence fondamentale du laser générateur.



Figure C.1 – *Spectre électromagnétique.*

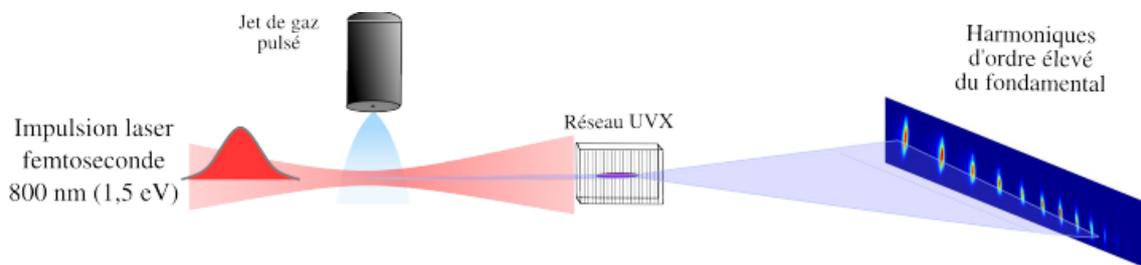


Figure C.2 – *Principe schématique de la génération d'harmoniques d'ordres élevés (Découverte en 1987 à Saclay-Chicago).*

### Spectre caractéristique

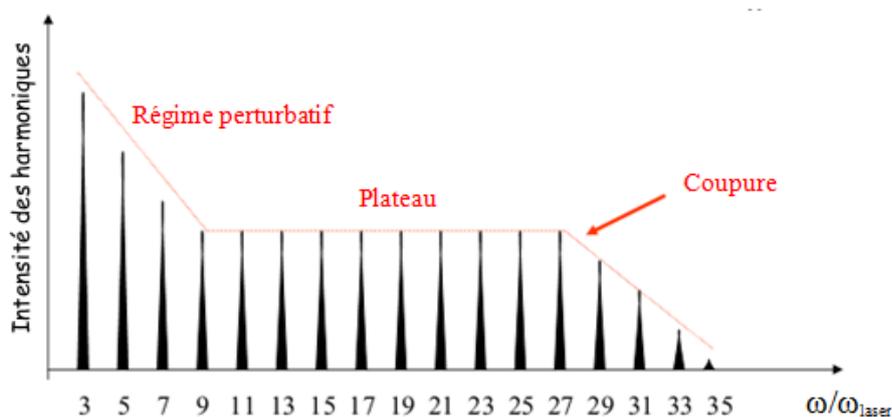


Figure C.3 – *Allure caractéristique d'un spectre harmonique.*

La figure (C.3) montre le spectre typique d'harmoniques qui se présente sous la forme d'une série impaire du fondamental d'harmoniques séparées par deux fois la fréquence laser, soit  $2\omega_0$ . Le spectre ainsi obtenu a une forme très caractéristique que l'on peut schématiquement diviser en trois zones : une décroissance rapide pendant quelques harmoniques expliquée par la théorie des perturbations en optique non linéaire, puis présente une zone d'amplitude quasiment constante forme le plateau qui se termine par une brusque coupure. La fréquence, à partir de laquelle l'intensité spec-

trale décroît rapidement est appelée la fréquence de coupure définie par

$$\hbar\omega_q[eV] = I_P[eV] + 3.17 U_P[eV] \quad (\text{C.1})$$

où  $I_P$  est le potentiel d'ionisation atomique et  $U_P$  est l'énergie pondéromotrice.

La zone du plateau peut s'étendre sur plusieurs centaines d'eV (région de l'ultraviolet extrême UVX), et peut même atteindre des énergies de photons dépassant le keV [46]. Différentes études ont montré que le rayonnement extrait constitue une source cohérente spatialement et temporellement [47] et se présente sous la forme d'un train d'impulsions attosecondes ( $1as = 10^{-18} s$ ) séparés d'une demi-période optique [48].

Afin de comprendre ces différents aspects de l'émission harmonique, une description théorique de la génération d'harmonique comprend l'aspect microscopique (réponse de l'atome unique) et également l'aspect macroscopique à travers la description des conditions d'accord de phase.

## Modèle semi-classique : Aspect microscopique

### Description du modèle

Les travaux de Krause et al. [49] ont démontré de façon numérique la loi de coupure. Un modèle semi-classique, aussi appelé modèle en 3 étapes, a par la suite été proposé par Corkum et Kulander et al en 1993 [50, 51], il explique pourquoi les spectres de la génération d'harmoniques d'un atome tombent à une énergie approximativement égale à l'énergie d'ionisation plus environ trois fois l'énergie d'oscillation d'un électron libre dans le domaine.

Le modèle semi-classique de Corkum et Kulander et al est formulé comme une séquence de trois étapes distinctes (voir figure (C.4)) : au départ l'atome est dans l'état fondamental, il est représenté par un électron piégé dans un puits de potentiel

coulombien.

1. L'électron est tout d'abord ionisé par effet tunnel (voir annexe B) sous l'influence d'un champ laser intense
2. L'électron libéré est accéléré par le champ laser et gagne une certaine énergie cinétique  $E_c = 3.17 U_P$
3. Lorsque l'électron passe à proximité de l'ion parent, il peut se recombiner radiativement et permettre l'émission de photons harmoniques d'énergie  $E_q = I_P + E_c$ .

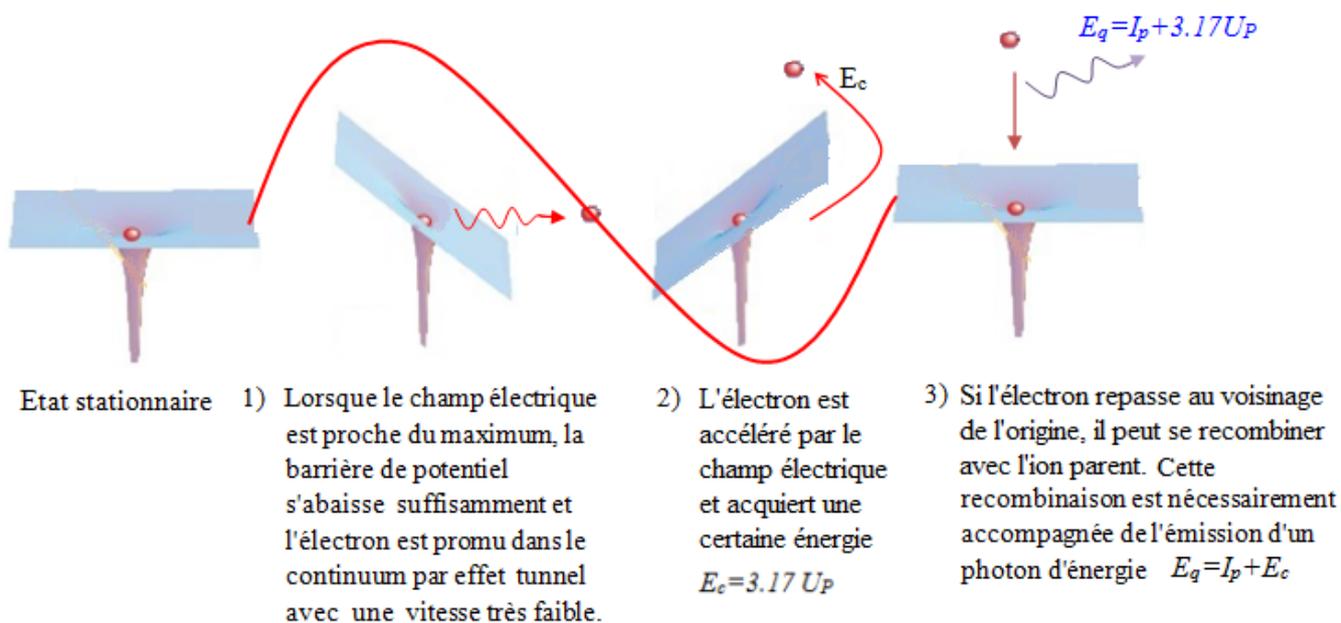


Figure C.4 – Schématisation des étapes décrivant le processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé.

Le photon le plus énergétique sera généré par l'électron le plus rapide qui reviendra sur le noyau poussé par le champ électrique. Un calcul classique permet d'évaluer que l'énergie maximale avec laquelle revient un électron sur le noyau est  $3.17 U_p$ . Au delà, la force du champ électrique est insuffisante pour lui faire rebrousser chemin et l'envoyer sur le noyau. On retrouve ainsi la loi de la coupure. Lors de la recombinaison, l'énergie cinétique sera restituée sous forme d'un photon harmonique d'énergie  $E_q = I_P + 3.17 U_P$ .

Le modèle de Corkum, qui est traité dans un formalisme semi-classique au moyen de trajectoires classiques, a par la suite été étendu par Lewenstein et al [52] où l'émission des photons est le résultat de la contribution de plusieurs trajectoires quantiques correspondant aux électrons. Afin de produire des harmoniques d'ordre élevé et par conséquent de générer des photons de haute énergie, on peut utiliser soit les hautes fréquences (par exemple, KrF) lasers ou les basses fréquences (lasers Nd : verre, Ti : saphir) de telle sorte que le laser à la fréquence  $\omega$  est beaucoup plus petit que le potentiel d'ionisation. Dans ce dernier cas, le spectre harmonique a une forme très caractéristique et universelle : elle décroît pendant les quelques harmoniques, puis présente un plateau où toutes les harmoniques ont le même poids, et se termine avec une coupure nette.

---

## Annexe D

# Représentation numérique des fonctions du continuum

Considérons une particule de masse  $m$ , dans un espace 1D, soumise à un potentiel  $V(x)$ . Les fonctions d'onde stationnaires de ce système sont solutions de l'équation de Schrödinger stationnaire (ESS) suivante (en u.a.) :

$$\left[ -\frac{1}{2} \frac{d^2}{dx^2} + V(x) - E \right] \psi_E(x) = 0. \quad (\text{D.1})$$

En reprenant le formalisme développé ci-dessus, on écrit le développement de  $\psi_E(x)$  en ondes partielles,

$$\psi_E(x) = \sum_{\ell=-1}^{+1} \phi_{E,\ell}(r) Y_\ell(\varphi). \quad (\text{D.2})$$

En projetant l'ESS (D.1) sur la base des fonctions angulaires  $Y_\ell$ , et en utilisant les relations suivantes :

\* La relation d'orthogonalité des fonctions de base  $Y_\ell$

$$\langle Y_\ell | Y_{\ell'} \rangle = \delta_{\ell,\ell'}, \quad (\text{D.3})$$

---

\* La loi de composition

$$\langle Y_\ell | Y_{\ell'} \rangle = \sqrt{2} [\delta_{\ell, \ell'} \times Y_{+1} + (1 - \delta_{\ell, \ell'}) \times Y_{-1}], \quad (\text{D.4})$$

et

$$\langle Y_\ell | \frac{d^2}{dx^2} | Y_{\ell'} \rangle = \frac{d^2}{dr^2} \delta_{\ell, \ell'}, \quad (\text{D.5})$$

Pour les fonctions radiales, on obtient le système d'équations couplées suivantes

$$\left[ -\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} + v_{+1}(r) - E \right] \phi_{E,+1}(r) + v_{-1}(r) \phi_{E,-1}(r) = 0. \quad (\text{D.6})$$

$$\left[ -\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} + v_{+1}(r) - E \right] \phi_{E,-1}(r) + v_{-1}(r) \phi_{E,+1}(r) = 0, \quad (\text{D.7})$$

où les  $v_\ell$  sont les composantes radiales du potentiel,

$$V(x) = \sum_{\ell=-1}^{+1} v_\ell(r) Y_\ell(\varphi) \quad (\text{D.8})$$

La composante antisymétrique du potentiel,  $v_{-1}(r)$ , est responsable du couplage entre les deux ondes partielles. Dans le cas d'un potentiel symétrique ( $v_{-1}(r) = 0 \forall r$ ), on retrouve bien que  $\phi_{E,+1}$  et  $\phi_{E,-1}$  sont directement solutions de l'équation de Schrödinger. Les conditions aux limites imposent que les fonctions ne soient pas dégénérées pour les états liés, alors que les deux parités sont permises pour chaque énergie du continuum.

## D.1 Normalisation numérique des fonctions du continuum

La résolution numérique de l'équation de Schrödinger radiale

$$\frac{d^2}{dr^2}\phi(r) + 2 \times [E - V(r)]\phi(r) = 0 \quad (\text{D.9})$$

Avec une méthode de propagation de type Runge-Kutta (propagation à partir de conditions initiales sur la fonction et sa dérivée première) procure a priori des fonctions d'onde de normes arbitraires. La méthode de Strömngren [37] présentée ici consiste à normer les fonctions du continuum (énergie  $E > 0$ ) ainsi obtenues en les ajustant sur un comportement asymptotique universel connu analytiquement.

### Comportement asymptotique

On considère qu'une distance  $r_a$  appartienne à la "région asymptotique" si  $E - V(r) > 0 \quad \forall r \in [r_a, \infty[$ .

Les fonctions d'onde du continuum normées sur l'échelle des énergies se comportent asymptotiquement comme

$$\phi_a(r) = \frac{1}{\sqrt{\pi \times k(r)}} \sin\theta(r) \quad (\text{D.10})$$

où le "nombre d'onde local"

$$k(r) = \frac{d\theta}{dr} \quad (\text{D.11})$$

converge vers  $\sqrt{2E}$  lorsque  $|r| \rightarrow \infty$ .

## Ajustement des solutions numériques

Les solutions numériques non normées peuvent s'écrire, dans la région asymptotique

$$\phi(r) = \frac{1}{c} \times \phi_a(r) \quad (\text{D.12})$$

la constante  $c$  est a priori inconnue et dépend des conditions initiales pour la résolution de l'équation de Schrödinger.

La procédure de normalisation décrite ici consiste à ajuster la solution numérique à la forme asymptotique via la détermination des fonctions  $\theta(r)$  et  $k(r)$ . Puisque l'une est la dérivée première de l'autre (équation (D.11)), la procédure requiert de passer par une intégration sur un intervalle fini  $[r_0, r_1]$  dans la région asymptotique.

Nous notons  $\phi_i = \phi(r_i)$ ,  $k_i = k(r_i)$  et  $\theta_i = \theta(r_i)$  ( $i = 0, 1$ ).

Pour montrer comment  $c$  peut-être déterminé, on définit les quantités suivantes

$$a_0 = \sqrt{\pi k_0} \times \phi_0 \quad (\text{D.13})$$

$$a_1 = \sqrt{\pi k_1} \times \phi_1 \quad (\text{D.14})$$

$$\alpha = \int_{r_0}^{r_1} k(r) dr \quad (\text{D.15})$$

Ces intermédiaires de calcul sont connus dès lors que  $k(r)$  et  $\phi(r)$  sont connus dans l'intervalle  $[r_0, r_1]$ . Les équations (D.10) et (D.12) permettent de réexprimer ces quantités comme

$$a_0 = \frac{1}{c} \times \sin\theta_0 \quad (\text{D.16})$$

$$a_1 = \frac{1}{c} \times \sin\theta_1 \quad (\text{D.17})$$

$$\alpha = \theta_1 - \theta_0 \quad (\text{D.18})$$

La détermination de  $c$  peut se faire via le système d'équation suivant

$$\begin{cases} a_0 = \frac{1}{c} \times \sin\theta_0 \\ a_1 = \frac{1}{c} \times \sin\theta_1 \\ \sin\alpha = \sin\theta_1 \cos\theta_0 - \sin\theta_0 \cos\theta_1 \\ \cos\alpha = \cos\theta_0 \cos\theta_1 + \sin\theta_0 \sin\theta_1 \end{cases} \quad (\text{D.19})$$

ce qui donne

$$\begin{cases} a_0 = \frac{1}{c} \times \sin\theta_0 \\ a_1 = \frac{1}{c} \times \sin\theta_1 \\ \sin^2\alpha = c^2 \times [a_1^2(1 - c^2 \times a_0^2) + a_0^2(1 - c^2 \times a_1^2) - 2a_0a_1\sqrt{1 - c^2 \times a_0^2}\sqrt{1 - c^2 \times a_1^2}] \\ \sqrt{1 - c^2 \times a_0^2}\sqrt{1 - c^2 \times a_1^2} = \cos\alpha - c^2 \times a_0a_1 \end{cases} \quad (\text{D.20})$$

les deux dernières lignes donnent

$$\sin^2\alpha = c^2 \times [a_0^2 + a_1^2 - 2a_0a_1\cos\alpha] + c^4 \times [2a_0^2a_1^2 - a_0^2a_1^2 - a_0^2a_1^2] \quad (\text{D.21})$$

$$= c^2 \times [a_0^2 + a_1^2 - 2a_0a_1\cos\alpha] \quad (\text{D.22})$$

ce qui nous amène à l'expression recherchée

$$c = \sqrt{\frac{\sin^2\alpha}{a_0^2 + a_1^2 - 2a_0a_1\cos\alpha}} \quad (\text{D.23})$$

## Détermination de $k$

La méthode exposée ci-dessus suppose de connaître numériquement  $\phi$  et  $k$  sur un intervalle fini dans la région asymptotique.

Afin de déterminer  $k$  à chaque position de cet intervalle, insérons l'expression analytique de  $\phi_a$  (équation (D.10)) dans l'équation de Schrödinger (D.9). L'expression

analytique de sa dérivée seconde est alors de la forme

$$\frac{d^2\phi_a}{dr^2} = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \left[ \frac{d^2k^{-1/2}}{dr^2} \sin\theta - k^{3/2} \sin\theta \right] \quad (\text{D.24})$$

$$= \left[ \frac{d^2k^{-1/2}}{dr^2} k^{1/2} - k^2 \right] \phi_a. \quad (\text{D.25})$$

L'équation de Schrödinger se réécrit ainsi sous la forme d'une équation pour  $k$

$$\frac{d^2k^{-1/2}}{dr^2} k^{1/2} - k^2 + A = 0, \quad (\text{D.26})$$

avec  $A = 2 \times [E - V(r)]$  et  $V(r) = \frac{\ell(\ell+1)}{2r^2} - \frac{1}{r}$ . Cette dernière peut être résolue approximativement par itération et on a

$$k^2 = \frac{d^2k^{-1/2}}{dr^2} k^{1/2} + A. \quad (\text{D.27})$$

En notant  $\kappa = A^{1/2}$  on introduit

$$\tilde{k}^2 = \frac{d^2\kappa^{-1/2}}{dr^2} \kappa^{1/2} + A. \quad (\text{D.28})$$

qui donne une bonne approximation de  $k$

$$k \simeq \tilde{k}, \quad (\text{D.29})$$

Lorsque celui-ci varie lentement, c'est-à-dire que  $r$  est suffisant grand. Les dérivées

$$\frac{d\kappa^{-1/2}}{dr} = \frac{-1}{4} \frac{dA}{dr} A^{-5/4} \quad (\text{D.30})$$

$$\frac{d^2\kappa^{-1/2}}{dr^2} = \frac{-1}{4} \frac{d^2A}{dr^2} A^{-5/4} + \frac{5}{16} \left( \frac{dA}{dr} \right)^2 A^{-9/4} \quad (\text{D.31})$$

permettent alors d'évaluer  $k$  uniquement à partir du potentiel et de ses dérivées, comme

$$k = \sqrt{A - \frac{1}{A} \frac{d^2 A}{dr^2} + \frac{5}{16} \left( \frac{1}{A} \frac{dV}{dr} \right)^2} \quad (\text{D.32})$$

Le problème revient à trouver une valeur approchée de l'intégrale radiale (D.15). Pour ce faire, nous devons chercher la méthode la plus appropriée de l'intégration numérique.

### Calcul de l'intégrale radiale $\alpha = \int_{r_0}^{r_1} k(r) dr$ - Méthode de Simpson

Nous voulons donner une approximation numérique de l'intégrale suivante

$$\int_{r_0}^{r_1} k(r) dr, \quad (\text{D.33})$$

où  $k(r)$  est une fonction continue suffisamment régulière sur le domaine d'intégration considéré.

Plusieurs techniques ont été établies dans le but d'estimer la valeur numérique de l'intégrale d'une fonction sur un intervalle particulier. On peut citer par exemple la méthode des rectangles, des trapèzes et de Simpson.... Il apparaît clairement que plus l'intervalle d'intégration est petit, plus l'erreur d'approximation est faible et plus l'estimation numérique de l'intégrale est bonne. A partir de ce point, la plupart de ces méthodes consistent à découper l'intervalle  $[r_0, r_1]$  en  $n$  sous-intervalles de même longueur  $h = \frac{r_1 - r_0}{n}$ , puis faire une intégration approchée de la fonction sur chaque sous-intervalle (calculer l'aire sur  $[r_0, r_1]$ ). L'intégrale recherchée s'obtient alors en sommant toutes les aires élémentaires ainsi obtenues. La méthode est d'autant meilleure que l'erreur d'approximation est plus petite.

Soit  $(x_i)_{i \in [0, n]}$  une subdivisions de l'intervalle  $[r_0, r_1]$  telle que

$$r_0 = x_0 < x_1 < \dots < x_i = a + ih < \dots < x_n = r_n, \quad (\text{D.34})$$

avec  $h = \frac{r_1 - r_0}{n} = x_{i+1} - x_i$  le pas de l'intégration. Si  $h$  est modérément petit, il y a un avantage à utiliser la méthode de Simpson.

Sur l'intervalle  $[r_0, r_1]$ , en choisissant un nombre de points pair,  $n + 1$ , c'est-à-dire  $n$  impair, la formule de Simpson donne une estimation de l'intégrale (D.33)

$$\int_{r_0}^{r_1} k(r) dr = \frac{h}{3} \left[ k_0 + k_n + 2 \sum_{i=1}^{\frac{n-1}{2}} (2k_{2i-1} + k_{2i}) \right] + O\left(\frac{1}{n^4}\right). \quad (\text{D.35})$$

où  $k_i = k(x_i)$ .

L'erreur décroît comme  $\frac{1}{n^4}$ , la méthode de Simpson est une méthode d'ordre 4.

Vous remarquerez l'alternance des sommes en facteur de 2 et de 4. On se sert de cette caractéristique pour simplifier la programmation.

En insérant la valeur approchée de  $\alpha$  ainsi obtenue dans l'expression (D.23) de la constante de normalisation  $c$ , nous pouvons trouver aisément la fonction numérique du continuum normalisée.

# Table des figures

1	<i>Domaines de l'IR dans le spectre électromagnétique.</i> . . . . .	4
II.1	<i>forme de la fonction absorbeur utilisée dans notre calcul.</i> . . . . .	35
II.2	<i>Enveloppe en sinus carré.</i> . . . . .	37
II.3	<i>Evolution temporelle du champ électrique laser avec une enveloppe en sinus carré de 40 cycles optiques, d'énergie de photon <math>\omega_0 = 0.57</math> u.a. <math>\equiv 15.5</math> eV et d'amplitude maximale <math>E_0 = 5.10^{-3}</math> u.a. (correspond à un éclairement crête de <math>8.77 \times 10^{11}</math> W/cm<sup>2</sup>)</i> . . . . .	37
II.4	<i>Enveloppe trapézoïdale de 40 cycles optiques de 5 cycles en montée 30 dans le plateau (constants) et 5 en descente.</i> . . . . .	38
II.5	<i>Evolution temporelle du champ électrique laser d'enveloppe trapézoïdale avec les mêmes paramètres (<math>E_0, \omega_0, n_{c.o}</math>) que la figure(II.3).</i> . . . . .	38
II.6	<i>Atome d'hydrogène d'énergie d'ionisation <math>E_I = 0.5</math> u.a. est ionisé par un photon d'énergie <math>\omega_0</math>. Ensuite, l'électron libéré peut absorber un photon supplémentaire, il s'agit de l'ATI.</i> . . . . .	40
II.7	<i>Deux fonctions fenêtres successives séparées par l'énergie <math>2\gamma</math>.</i> . . . . .	42
II.8	<i>Spectre de probabilité <math>P(E_k, n, \gamma)</math> en échelle logarithmique pour <math>n=2</math>, <math>\gamma = 10^{-3}</math> et un moment angulaire <math>L_{max} = 16</math> pour une impulsion laser de 40 cycles d'énergie de photon <math>\omega_0 = 0.57</math> u.a. et d'amplitude maximale : (a) <math>E_0 = 0</math> u.a (b) <math>E_0 = 5.10^{-3}</math> u.a..</i> . . . . .	45

II.9	<i>Les pics du spectre de probabilité de la figure (II.8) liés à l'ATI. . . . .</i>	46
II.10	<i>Spectres en énergie de photoionisation de l'hydrogène soumis à un rayonnement de fréquence <math>\omega_0</math> varie de <math>\omega_1 = 0.6</math> u.a. à <math>\omega_{15} = 2</math> u.a. avec un pas de 0.1 u.a. et d'amplitude maximale <math>E_0 = 5.10^{-3}</math> u.a. (correspond à un éclairement crête de <math>8.77 \times 10^{11}</math> W/cm<sup>2</sup>). . . . .</i>	47
II.11	<i>Spectres en énergie de photoionisation de l'hydrogène soumis à un rayonnement laser de fréquence <math>\omega_0 = 1</math> u.a. et pour différents éclairagements. . . . .</i>	49
II.12	<i>L'amplitude maximale des pics du spectre de la photoionisation de l'hydrogène présenté dans la figure (II.11) : (a) les pics correspondant à l'absorption d'un seul photon. (b) les pics correspondant à l'absorption d'un photon supplémentaire. . . . .</i>	49
II.13	<i>Probabilité d'ionisation <math>p_{ion}</math> en fonction du temps. . . . .</i>	51
II.14	<i>Spectres en énergie des photoélectrons obtenus par l'ionisation de l'hydrogène en absorbant des photons IR d'énergie <math>\omega_0 = 0.057</math> pour différents moments angulaires <math>\ell_{max}</math>. . . . .</i>	53
II.15	<i>Spectres en énergie des photoélectrons obtenus par l'ionisation de l'hydrogène en absorbant des photons IR d'énergie <math>\omega_0 = 0.057</math> u.a. . . . .</i>	54
II.16	<i>Décalage des pics d'ATI par l'effet pondéromoteur provoque l'augmentation du potentiel d'ionisation. . . . .</i>	56
III.1	<i>Schématisation du spectre de photoélectrons obtenu lors de la photoionisation à deux couleurs. L'atome ionisé par un photon harmonique (flèche bleue) absorbe ou émet des photons IR au dessus du seuil (flèches rouges). . . . .</i>	58

TABLE DES FIGURES

---

III.2	<i>Spectres en énergie des photoélectrons obtenus par photoionisation de l'atome d'hydrogène par l'absorption simultanée d'un photon IR de fréquence <math>\omega_{IR} = 0.057</math> u.a. et sa quinzième harmonique <math>H_{15}</math> de fréquence <math>\omega_{H_{15}} = 15 \times \omega_{IR}</math>, avec une intensité harmonique <math>I_{H_{15}} = 10^9</math> W/cm<sup>2</sup> et pour différentes intensités laser IR : (a) <math>I_{IR} = 0</math> W/cm<sup>2</sup> (ionisation à un seul photon), (b) <math>I_{IR} = 5.10^{11}</math> W/cm<sup>2</sup> . . . . .</i>	62
III.3	<i>Effet de l'intensité du champ laser IR sur le spectre d'électrons pour les mêmes paramètres de l'impulsion harmonique que la figure (III.2) et différentes intensités de l'impulsion IR. . . . .</i>	63
III.4	<i>Spectres en énergie des pics satellites <math>BL_{+1}</math> extraite de la figure (III.3) . . .</i>	64
III.5	<i>Spectres en énergie de photoionisation de l'hydrogène par un rayonnement infrarouge d'intensité <math>I_{IR} = 5.10^{11}</math> W/cm<sup>2</sup> combiné avec son 15ème harmonique avec une intensité <math>I_{H_{15}} = 10^9</math> W/cm<sup>2</sup>, comparaison entre les résultats obtenus par la résolution de l'ESDT et ceux obtenus par les approches de Kroll et Watson. . . . .</i>	71
III.6	<i>Evolution de la norme <math>N_{L_{max}}</math> en fonction du temps pour les différentes valeurs du moment angulaire maximale <math>L_{max}</math>. . . . .</i>	72
III.7	<i>Spectres en énergie de photoionisation de l'hydrogène par un rayonnement infrarouge d'intensité : a) <math>I_{IR} = 5.10^{11}</math> W/cm<sup>2</sup> et b) <math>I_{IR} = 5.10^{12}</math> W/cm<sup>2</sup> combiné avec son 41<sup>ème</sup> harmonique avec une intensité <math>I_{H_{41}} = 10^9</math> W/cm<sup>2</sup>, comparaison entre les résultats obtenus par la résolution de l'ESDT et ceux obtenus par les approches de Kroll et Watson. . . . .</i>	73
IV.1	<i>Profil temporel d'une impulsion laser avec une enveloppe en Sinus-Carré . .</i>	76
IV.2	<i>Comparaison entre Shooting et coul.f pour une énergie <math>E_k = 0.2</math> u.a. . . . .</i>	81
IV.3	<i>Comparaison entre Shooting normalisé numériquement et coul.f pour une énergie <math>E_k = 0.2</math> u.a. . . . .</i>	82

IV.4	<i>Distribution angulaire du pic harmonique du spectre de la figure (III.2 (a)) en fonction de l'angle <math>\theta</math>. La courbe en pointillé montre une distribution en <math>\cos^2 \theta</math>.</i>	83
IV.5	<i>Distribution angulaire en fonction de l'angle <math>\theta</math> : (a) du pic harmonique et (b) des pic satellites <math>BL_{+1}</math> et <math>BL_{-1}</math>. Les courbes en pointillés montrent la distribution en <math>\cos^2 \theta</math> et <math>\cos^4 \theta</math>.</i>	85
IV.6	<i>Effet de l'intensité laser sur la distribution angulaire du pic harmonique.</i>	87
IV.7	<i>Effet de l'intensité laser sur la distribution angulaire du pic latéral <math>BL_{+1}</math>.</i>	88
B.1	<i>Schéma décrivant le processus d'ionisation par un seul photon.</i>	100
B.2	<i>Schéma décrivant le processus d'ionisation multiphotonique.</i>	101
C.1	<i>Spectre électromagnétique.</i>	105
C.2	<i>Principe schématique de la génération d'harmoniques d'ordres élevés (Découverte en 1987 à Saclay-Chicago).</i>	106
C.3	<i>Allure caractéristique d'un spectre harmonique.</i>	106
C.4	<i>Schématisation des étapes décrivant le processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé.</i>	108

# Bibliographie

- [1] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, and G. Petite, *Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms*. Physical Review Letters, 42 :1127, 1979.
- [2] Freeman R R, Bucksbaum P H, Cooke W, Gibson G, McIlrath T and Woerkem L V 1992, *Atoms in intense radiation fields*. Academic Press New York.
- [3] P. Agostini, E. Mevel, P. Breger, A. Migus and L. DiMauro 1993 in B Piraux, A L'Huillier and K Rzazewski, eds, *Super Intense Laser Physics*. Plenum Press New York p. 155.
- [4] R.R. Freeman, P.H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher, and M.E. Geusic, *Above-threshold ionization with subpicosecond laser pulses*. Phys. Rev. Lett., 59(10) :1092-1095, Sep 1987.
- [5] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T.S. Luk, I.A. McIntyre, K. Boyer, and C.K. Rhodes, *Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases*. Journal of the Optical Society of America B, 4 :595, 1987.
- [6] M. Ferray, A. L'Huillier, X.F. Li, L.A. Lompré, G. Mainfray, and C. Manus, *Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases*. Journal of Physics B, 21 :L31, 1988.
- [7] B. Piraux and R. Shakeshaft , *Norm of the wave function on a complex basis*. Phys. Rev. A. 49 (1994), 3903.

- 
- [8] P. Lambropoulos, P. Maragakis and E. Cormier, *Atoms in short, intense laser pulses : a review of recent progress in ab initio approaches*. Laser- Physics 8(1998), 625
- [9] J. Parker, K.T. Taylor, C.W. Clark, and S. Blodgett-Ford, *Intense-field multiphoton ionization of a two-electron atom*. Journal of Physics B, 29 :L33, 1996.
- [10] J. Colgan and M. S. Pindzola, *Core-excited resonance enhancement in the two-photon complete fragmentation of helium*. Phys. Rev. Lett., 88 :173002, (2002)
- [11] S. Laulan and H. Bachau, *Correlation effects in two-photon single and double ionization of helium*. Phys. Rev. A, 68 :013409, (2003).
- [12] E. P. Benis, D. Charalambidis, T. N. Kitsopoulos, G. D. Tsakiris, and P. Tzallas, *Two-photon double ionization of rare gases by a superposition of harmonics*, Physical Review A, 74 :051402, (2006).
- [13] M. Böttcher, H. Rottke, N. Zhavoronkov, W. Sandner, P. Agostini, M. Gisselbrecht, and A. Huetz, *Routes to multiphoton double ionization in combined extreme ultraviolet and infrared laser pulses*, Physical Review A, 75 :033408, (2007)
- [14] M. Meyer, D. Cubaynes, D. Glijer, J. Dardis, P. Hayden, P. Hough, *Polarization Control in Two-Color Above - Threshold Ionization of Atomic Helium*, Physical Review Letters , 101( 19) :1 93002, 2008.
- [15] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky, and W. T. Vetterling, *Numerical Recipes*(Cambridge U. Press, Cambridge, 1986).
- [16] K. C. Kulander, K. J. Schafer, and J. L. Krause, *Time-dependent theory of multiphoton processes*. in Atoms in Intense Radiation Fields, (Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics, Academic Press, New York, 1992).
- [17] H. Flocard, S. E. Koonin and M. S. Weiss, Phys. Rev. C17, 1682 (1978).
- [18] Varga R S 1962, *Matrix Iterative Analysis* (Englewood Cliffs, NJ : Prentice-Hall).

## BIBLIOGRAPHIE

---

- [19] S. E. Koonin : Computational Physics, Benjamin/Cummings (Menlo Park, CA) 1986.
- [20] M. Göppert-Mayer, *Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen*. Ann. Phys., 9(401) :273, 1931.
- [21] J.G. Muga, J.P. Palao, B.Navarroet I.L.Egusquiza, *Complex absorbing potentials*. Phys. Rep., 395 :357, 2004.
- [22] A. Vibók et G. G. Balint-Kurti, *Reflection and transmission of wave by a complex potential - A semiclassical Jeffreys-Wentzel-Kramers-Brillouin treatment*. J. Chem. Phys, 96, 7615 (1992b).
- [23] C. W. McCurdy, C. K. Stroud, M. K. Wisinski, *Solving the time-dependent Schrödinger equation using complex-coordinate contours*. Phys. Rev. A 43 :5980-5990, 1991.
- [24] E. Cormier et P. Lambropoulos, *Optimal gauge and gauge invariance in non-perturbative time-dependent calculation of above-threshold ionization*. J. Phys. B 29, 1667-1680. (1996)
- [25] J. Crank et P.Nicolson, *A practical method for numerical evaluation of solutions of partial differential equations of the heat-conduction type*. Proc. Camb. Phil. Soc., 43 :50, 1947.
- [26] Z. Chen, Toru Morishita, A. T. Le, M. Wickenhauser, X. M. Tong and C. D. Lin, *Analysis of two-dimensional photoelectron momentum spectra and the effect of long-range Coulomb potential in single ionization of atoms by intense lasers*. Phys. Rev. A 74, 053405 (2006)
- [27] K. Schafer, Comput. *The energy analysis of time-dependent numerical wave functions*. Phys. Commun.63, 427 (1991).
- [28] Keldysh L.V., *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*. J.Exp. Theor. Phys. 20(1965),1307

- 
- [29] H.G. Muller, A. Tip, and M.J. van der Viel. Ponderomotive force and ac stark shift in multiphoton ionisation. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 16 :L679-L685, 1983.
- [30] L. Pan, L. Jr. Armstrong, and J.H. Eberly. Comments on the effect of the ponderomotive potential in the above-threshold ionization processes. *J. Opt. Soc. Am. B*, 3 :1319-1322, 1986
- [31] N. M. Kroll and K. M. Watson, *Charged-particle scattering in the presence of a strong electromagnetic wave*, *Phys. Rev. A*, 8 :804-809, (1973).
- [32] Antoine, Jean-Pierre, *Etude de la dégénérescence orbitale du potentiel coulombien en théorie des groupes*, Société Scientifique de Bruxelles, Vol. 80, II, 169 (1966)
- [33] M. Bander and C. Itzykson, *Group theory and the hydrogen atom*, (II). *Rev. Mod. Phys.* 38, 346-358 (1966).
- [34] O. Guyétand. *Photoionisation simple et double à deux couleurs d'atomes de gaz rares*. Thèse de doctorat, Université Paris XI Orsay, (2008).
- [35] A. Fortin, *Analyse numérique*, Ecole Polytechnique Montreal (2001)
- [36] I. J. Thompson, *Fresco-reaction channels calculations*, <http://www.fersco.org.uk>, 2009
- [37] M. J. Seaton and G. Peach, *Prc. Phys. Soc.* 79, 1296 (1965).
- [38] Landau L. et Lifchitz E, *Physique théorique III, Mécanique Quantique 2<sup>e</sup> édition*, Mir (1967) 157.
- [39] H. Hertz, *Über einen Einfluss des Ultravioletten Lichtes auf die Electriche Entladung*. *Annalen der Physik*, 31( 8) :983-1000, 1887.
- [40] A. Einstein, *Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt*. *Annalen der Physik*, 17, 891, 1905

## BIBLIOGRAPHIE

---

- [41] J.L. Hall, E.J. Robinson and L.M. Branscomb, *Laser Double-Quantum Photodetachment of I-*, Physical Review Letters, 14 :1013-1016 (June 1965).
- [42] G.S. Voronov and N.B. Delone, *Many-photon Ionization of the Xenon Atom by Ruby Laser Radiation*, Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics, (1966).
- [43] T. H. Maiman, *Stimulated optical emission in fluorescent solids. I.theoretical considerations*. Phys. Rev., vol. 123, no. 4, p. 1145, (1961).
- [44] T. H. Maiman, R. H. Hoskins, I. J. D'Haenens, C. K. Asawa, and V. Evtuhov, *Stimulated optical emission in fluorescent solids. II. spectroscopy and stimulated emission in ruby*. Phys. Rev., vol. 123, no. 4, p. 1151, (1961).
- [45] W. Boutu. *Dynamique de la génération d'harmoniques dans les atomes et les molécules*. Thèse de doctorat, SPAM, CEA-Saclay, (2007).
- [46] J. Seres, E. Seres, A. J. Verhoef, G. Tempea, C. Strelt, P. Wobrowschek, V. Yakovlev, A. Scrinzi, C. Spielmann et F. Krausz. *Source of coherent kiloelectronvolt X-rays*. Nature, vol. 433, no. 7026, pages 596-596, 2005
- [47] P. Salières, A. L'Huillier, Ph. Antoine et M. Lewenstein, *Study of the spatial and temporal coherence of high-order harmonics*. Adv. At. Mol. Opt. Phys., vol.41, page 83, 1999.
- [48] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, Ph. Balcou, H. G. Muller et P. Agostini, *Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation*. Science, vol. 292, page 1689, 2001.
- [49] J. Krause, K. Schafer and K. Kulander. *Calculation of photoemission from atoms subject to intense laser fields*. Phys. Rev. Lett., 68 :3535, (1992).
- [50] P. B. Corkum. *Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization*. Phys. Rev. Lett., 71 :1994-1997, (1993).

- [51] K. C. Kulander, K. J. Schafer, and J. L. Krause. *Super Intense Laser Physics*. Plenum Press New York p. 95.
- [52] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu Ivanov, Anne L'Huilier and P.B. Corkum. *Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields*. Phys. Rev. A, 49 :2117, (1994).

**Résumé :** L'interaction entre un rayonnement laser et un système atomique, peut conduire à différents processus physiques comme la photoionisation, l'ionisation multiphotonique, l'ionisation tunnel... L'importance de chacun de ces processus dépend de l'intensité et de la fréquence du champ laser considéré. Ce travail de thèse a porté sur la description de l'interaction d'un champ laser (Infrarouge et/ou Haute fréquence) avec un atome d'hydrogène (archétype d'un système à un électron actif). Nous avons tout d'abord développé les méthodes numériques pour la résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps décrivant le système laser-atome d'hydrogène. Ces méthodes nous ont permis d'écrire un code numérique pour la simulation des solutions de cette équation. Nous les avons ensuite utilisées, après la vérification de la convergence de notre programme numérique pour présenter les résultats sur la photoionisation à un seul photon, sur l'ionisation multiphotonique et aussi sur un autre phénomène résultant du processus d'ionisation issu de l'absorption de photons au dessus du seuil d'ionisation, nommé processus ATI (Above Threshold Ionization). Ensuite, nous avons appliqué ce code numérique à la photoionisation de l'atome d'hydrogène combinant deux photons, infrarouge (basse fréquence) et l'une de ses harmoniques (haute fréquence). Finalement, un calcul de la distribution angulaire des spectres obtenus a été effectué numériquement.

**MOTS-CLÉS :** Interaction laser-atome d'hydrogène, rayonnement (Infrarouge et/ou Haute fréquences), l'équation de Schrödinger dépendante du temps, ionisation au dessus du seuil, photoionisation à deux couleurs, distribution angulaire.

---

**Abstract** The interaction between laser radiation and atomic system, can lead to various physical processes such as photoionization, multiphoton ionization, the tunneling ionization ... The importance of each of these processes is in fact dependent on the

intensity and frequency of the respective laser field. In this thesis, we describe the interaction of a laser field (Infrared and / or high frequencies) with hydrogen (archetype of a system with an active electron). We first developed numerical methods for solving the time-dependent Schrödinger equation describing the hydrogen atom laser system. These methods allowed us to write a numerical code for the simulation of solutions of this equation. We then used, after the verification of the numerical convergence of our program, to present the results on the single-photon photoionization, on multiphoton ionization and also on another phenomenon of the ionization process resulting from the absorption of photons above the ionization threshold, named process ATI (above threshold ionization). Then, we applied this numerical code to the combined two photons photoionization of hydrogen (i.e. infrared (low frequency) and one of its harmonics (high frequency)). Finally, a calculation of the angular distribution of the obtained spectra was carried out numerically.

**Keywords :** Laser interaction hydrogen atom, Radiation (IR and/or high frequencies), time dependent schrodinger equation, above threshold ionization, Photoionization of two colors, angular distribution.