



"Interaction laser-atome : nouvelles approches théoriques dépendantes du temps"

Hamido, Aliou

Abstract

Ce travail porte sur le développement de nouvelles méthodes dépendantes du temps pour l'étude de l'interaction laser-atome; il vise deux objectifs. Le premier fait suite au désaccord significatif existant entre les résultats de différents calculs de section efficace de double ionisation par absorption de deux photons de l'atome d'hélium. Il s'agit de déterminer si ce désaccord est lié à la prise en compte ou non de la corrélation électronique dans la voie de sortie. Pour répondre à cette question, nous développons une méthode hybride combinant la résolution numérique de l'équation de Schrödinger (ES) avec une méthode de type R-matrice. L'analyse des résultats pour l'ionisation de l'hélium par un et deux photons montre que le désaccord n'est pas lié à la corrélation dans la voie de sortie. Le second objectif, lié à l'inexistence de fonctions d'onde analytiques décrivant les continua multiples, est de développer une méthode permettant d'éviter la ...

Document type : *Thèse (Dissertation)*

Référence bibliographique

Hamido, Aliou. *Interaction laser-atome : nouvelles approches théoriques dépendantes du temps*.
Prom. : Piraux, Bernard



UNIVERSITE CATHOLIQUE DE LOUVAIN
FACULTE DES SCIENCES
INSTITUT DE LA MATIERE CONDENSEE ET DES
NANOSCIENCES
ECOLE DOCTORALE METAMORPHOSE

THESE

présentée en vue de l'obtention du grade de

Docteur en Sciences

de l'Université Catholique de Louvain

**Interaction laser-atome : nouvelles approches
théoriques dépendantes du temps**

Par :

Aliou Hamido

Composition du Jury :

Pr. Daniel PEETERS, UCL (Président)

Pr. Bernard PIRAUX, UCL (Promoteur)

Pr. Xavier GONZE, UCL

Pr. Xavier URBAIN, UCL

Pr. Laurence MALEGAT, LAC, Orsay

Pr. Patrick O'MAHONY, Royal Holloway, Londres

Dr. Fabrice CATOIRE, CELIA, Bordeaux

Dédicace

A

*Mon épouse Pauline pour son soutien et sa patience incommensurable durant
ces années de thèse.*

*Ma fille Angela dont la naissance a été une source de motivation
supplémentaire dans la réalisation de ce travail.*

Mes parents dont les sacrifices m'ont permis d'arriver à ce stade.

Remerciements

Un grand pas a été effectué, une haute marche a été gravie. C'est en ces termes que je décrirais ce que représente l'aboutissement de cette thèse, fruit du travail réalisé au cours de ces années. Mais cela n'a été possible que grâce au concours de plusieurs personnes à qui je ne saurais oublier de témoigner ma reconnaissance avant de clôturer la rédaction de ce manuscrit.

Je voudrais avant tout témoigner ma profonde reconnaissance au Prof. Piraux pour m'avoir accueilli dans son laboratoire, pour avoir encadré cette thèse et pour m'avoir enseigné la rigueur dans le travail. Merci de n'avoir cessé de m'encourager lorsque les "codes" produisaient des résultats erronés. Merci aussi parcequ'au-delà d'être le promoteur de thèse que j'ai eu la chance d'avoir, en aîné, tu n'as cessé de me prodiguer des conseils de vie.

Une partie de ce travail a été réalisée en collaboration avec le Pr. Malegat. Je voudrais t'exprimer ma reconnaissance pour m'avoir accueilli à maintes reprises au Laboratoire Aimé-Cotton, pour avoir facilité mes séjours à Orsay et surtout pour toute l'aide apportée lorsque j'étais à mes débuts dans le développement de la méthode ESDT/HRM-SOW. Merci encore pour le colis destiné à la petite (maintenant grande) Angela que j'ai été surpris de recevoir un de ces matins.

Mon chemin a croisé celui du Pr. Piraux par l'intermédiaire du Pr. Kwato. Je voudrais lui témoigner ma reconnaissance pour m'avoir fait confiance et pour m'avoir recommandé auprès du Pr. Piraux. Merci également au Pr. Ndjaka qui a guidé mes premiers pas dans la recherche.

Les programmes qui ont permis d'obtenir les résultats présentés dans ce travail ont été exécutés sur les machines du CISM. Je voudrais exprimer ma gratitude à toute l'équipe en charge de la gestion de ces machines, particulièrement à Bernard Van Renterghem et Thomas Keutgen pour leur support technique.

Mes remerciements vont également à l'endroit des membres du jury qui ont accepté d'évaluer ce travail. Merci pour la discussion scientifique, les corrections, les critiques et les suggestions qui ont permis de rehausser la qualité

et la pertinence de ce travail.

Durant toutes ces années, ma formation scientifique s'est construite à travers des discussions et échanges avec de nombreux collaborateurs que je voudrais remercier en les citant nommément dans l'ordre qui me vient à l'esprit. Merci Javier, Johannes, Anna, Patrick, Francisca, Laurence, Yuri, Fabrice, Sébastien. Merci pour la collaboration scientifique ; collaboration qui s'est ensuite mû en amitiés. Dans le même ordre d'idée, je voudrais remercier les aînés et compatriotes qui m'ont accueilli et aidé dans mes premiers pas au laboratoire. Je pense ici à Emmanuel, Hugues, Marcel, Valery et Marius. Merci également aux "cadets" Abdouraman, Cladisse, Alexander et Noël à qui j'espère avoir apporté le même accueil dans le laboratoire que celui qui m'a été réservé par mes prédécesseurs.

A toutes les personnes que j'ai rencontrées au quotidien dans l'unité et sur le chemin menant à la cafétéria, merci pour les moments de convivialité. Je pense particulièrement à Nicole pour tous les services rendus, à Roseline et à Zemrije dont les "bonjours" chaleureux et les pas dans le couloir ont permis à me sortir de l'état d'hypnose dans lequel me plongeait les "codes".

A tous les collègues assistants, aux secrétaires et aux étudiants de Woluwé que j'ai eu la chance de rencontrer durant ces années et dont la collaboration a contribué à faciliter mes activités d'enseignement et à consacrer quelques minutes de plus à la recherche, je vous dis merci.

Il faudrait sans doute des dizaines de pages pour citer les ami(e)s et les familles qui ont contribué de près ou de loin, de quelque façon que ce soit, au bon déroulement et à l'aboutissement de ce travail ; j'en oublierai certainement quelques uns en vous citant. Simplement, je voudrais vous dire merci à tous.

Table des matières

Dédicace	i
Remerciements	iii
Liste des acronymes	xi
1 Introduction	1
1.1 Contexte et motivations	1
1.2 Structure de la thèse	8
1.3 Publications	10
2 Propagateurs dépendants du temps	13
2.1 Introduction	13
2.2 Considérations générales	15
2.2.1 Formulation générale du problème	15
2.2.2 Description de l'approche spectrale	16
2.2.3 Définition de la fonction de stabilité	17
2.3 Méthode Implicite-Explicite de type Runge-Kutta	19
2.3.1 Généralités sur les méthodes de type RK	19
2.3.2 Présentation de la méthode IMEX de type RK	21
2.4 Méthode explicite de Fatunla	23
2.4.1 Présentation de la méthode	23
2.4.2 Résultats et discussion	25
2.5 Méthode d'Arnoldi	30
2.5.1 Présentation de la méthode	30
2.5.2 Résultats et discussion	34
2.6 Méthode Predictor-corrector	39
2.6.1 Présentation de la méthode	39
2.6.2 Résultats et discussion	42
2.7 Conclusion	44

I	Méthode de la coordonnée dépendante (MCDT) du temps	45
3	Description de la MCDT et application à un modèle atomique 1D	47
3.1	Introduction	47
3.2	Description du modèle atomique 1D et de la MCDT	50
3.2.1	Description du modèle atomique 1D	50
3.2.2	Description de la MCDT	52
3.3	Résolution numérique de l'ESDT	53
3.3.1	Présentation de la méthode spectrale	53
3.3.2	Formulation matricielle de l'ESDT/MCDT	56
3.4	Calcul des observables physiques	58
3.5	Résultats et discussion	60
3.5.1	MCDT branchée à la fin de l'interaction	60
3.5.2	MCDT branchée durant l'interaction	76
3.5.3	MCDT branchée au début de l'interaction	76
3.6	Conclusion	82
4	Application de la MCDT à l'étude de l'ionisation de l'hydrogène atomique	85
4.1	Introduction	85
4.2	Formulation du problème et présentation de la méthode de résolution numérique	87
4.2.1	Présentation de l'ESDT décrivant la dynamique du système	87
4.2.2	Formulation de l'ESDT dans la MCDT	90
4.2.3	Résolution numérique de l'ESDT	90
4.3	Evaluation de la distribution en énergie dans la MCDT	96
4.4	Présentation des résultats et discussion	98
4.4.1	Résultats en régime haute fréquence	98
4.4.2	Résultats en régime basse fréquence	104
4.4.3	Discussion sur l'extraction des états liés et le choix des paramètres de la méthode	112
4.5	Conclusion	117

II Etude théorique de l'ionisation de l'hydrogène atomique en régime basse fréquence	121
5 Ionisation en régime basse fréquence : Mécanismes d'ionisation - Approche théorique	123
5.1 Introduction	124
5.2 Aspects théoriques en régime basse fréquence et mécanismes d'ionisation	127
5.2.1 Quelques notions importantes : le <i>quiver motion</i> , le potentiel pondérateur et le déplacement Stark	127
5.2.2 Les approximations et le paramètre de Keldysh	129
5.2.3 Mécanismes d'ionisation en régime basse fréquence à partir du paramètre de Keldysh	130
5.3 Approche théorique	136
5.3.1 Résolution numérique de l'ESDT	136
5.3.2 Calcul des observables	137
5.4 Résultats : validation et conclusions préliminaires	141
5.4.1 Ionisation de l'hydrogène atomique par un champ de fréquence $\omega = 0.375$ u.a.	141
5.4.2 Ionisation de l'atome d'hydrogène par le laser Ti : Saphir	146
5.5 Conclusion	152
6 Etude de l'ionisation de l'hydrogène atomique par un champ de longueur d'onde $\lambda = 2000$ nm	155
6.1 Introduction	156
6.2 Quelques remarques préliminaires	156
6.3 Présentation et analyse des résultats pour un champ de 2 cycles optiques	157
6.3.1 Présentation des distributions intégrées sur les angles et des distributions dans la direction de polarisation	157
6.3.2 Analyse des contributions des différents moments angulaires à l'ionisation totale	161
6.3.3 Analyse de l'évolution des populations dans des sphères de rayons donnés	163

6.3.4	Analyse de l'évolution de la structure à basse énergie en fonction de l'intensité et de l'effet de la prise en compte du profil spatial du champ	167
6.4	Présentation et analyse des résultats pour un champ de 4 cycles optiques	169
6.4.1	Résultats à 10^{14} W/cm ²	170
6.4.2	Résultats à 2.5×10^{14} W/cm ²	174
6.4.3	Effet de la prise en compte du profil spatial sur la distribution en énergie	175
6.5	Conclusion	178
III	Méthode hybride ESDT/HRM-SOW pour l'étude de la double ionisation de l'hélium par absorption de photons	181
7	Présentation de la méthode hybride ESDT/HRM-SOW	183
7.1	Introduction	183
7.2	Présentation de la méthode de résolution numérique de l'ESDT	185
7.2.1	Expression du hamiltonien du système	185
7.2.2	Approche spectrale	187
7.2.3	Résolution numérique de l'ESDT par l'approche matricielle	190
7.2.4	Calcul des observables physiques	192
7.3	Présentation de la méthode HRM-SOW	194
7.3.1	Equation de base, fonction d'onde de photoabsorption .	194
7.3.2	Système de coordonnées hypersphériques	195
7.3.3	Calcul des observables physiques : sections efficaces . . .	197
7.3.4	Principe de la méthode HRM-SOW	198
7.4	Méthode ESDT/HRM-SOW	207
7.4.1	Principe de la méthode ESDT/HRM-SOW	207
7.4.2	Evaluation de la transformée de Fourier locale	208
7.4.3	Principe de raccordement de l'ESDT à la méthode HRM-SOW	210
7.5	Conclusion	211

8	Application de la ESDT/HRM-SOW à la DI de l'He par absorption d'un et deux photons	213
8.1	Introduction	213
8.2	Etude de la double photo-ionisation de l'He	214
8.2.1	Choix de l'hypersphère	216
8.2.2	Résultats et discussions	217
8.3	DI de l'He par absorption de deux photons : résultats à 45 eV et discussions	231
8.4	Conclusion	237
9	Conclusion et perspectives	239
A	Système d'unités atomiques	243
A.1	Les unités atomiques	244
A.1.1	Unités de base	244
A.1.2	Autres dimensions en unités atomiques	244
A.2	Quelques relations utiles	245
B	Méthode d'intégration explicite de Fatunla	247
C	Dérivation de l'ESDT dans la MCDT en 1D	251
D	$\langle \xi \rangle_t$ et $\Delta\xi$ dans la MCDT	253
D.1	Evaluation de $\langle \xi \rangle_t$	254
D.2	Evaluation de $\Delta\xi$	254
E	Formulation matricielle de l'ESDT du modèle atomique 1D	257
F	Relation de récurrence pour le calcul du spectre par projection sur l'onde plane	261
G	Evaluation de la distribution en énergie dans la MCDT : cas du modèle atomique 1D	265
H	Evaluation des éléments de matrice du potentiel harmonique dans le cas de l'atome d'hydrogène 3D	271

I	Evaluation de la distribution en énergie dans la MCDT : cas de l'hydrogène atomique	275
J	Développement de la fonction coulombienne dans la base sturmienne	281
K	Calcul du flux dans la méthode ESDT/HRM-SOW	285
L	Evaluation de la dérivée de la fonction sturmienne	289
	Bibliographie	293

Liste des acronymes

DC	Double Continuum
DI	Double Ionisation
DIRK	Diagonally Implicit Runge-Kutta
EDP	Equation Différentielle Partielle
ERK	Explicit Runge-Kutta
ESDT	Equation de Schrödinger Dépendante du Temps
ESS	Equation de Schrödinger Stationnaire
FO	Fonction d'Onde
HRM-SOW	Hyperspherical R-Matrix with Semiclassical Outgoing Wave
IMEX	IMplicit EXplicit
IRK	Implicit Runge-Kutta
LES	Low Energy Structure
MCDT	Méthode de la coordonnée dépendante du temps
MMJ	Méthode de la Matrice-J
PC	Predictor-Corrector
PO	Paquet d'Onde
POS	Paquet d'Onde Stationnaire
RK	Runge-Kutta
SC	Simple Continuum
SFA	Strong Field Approximation
SI	Simple Ionisation
TF	Transformée de Fourier

Introduction

Sommaire

1.1	Contexte et motivations	1
1.2	Structure de la thèse	8
1.3	Publications	10

1.1 Contexte et motivations

Au moment où nous débutons nos travaux de thèse, il régnait au sein de la communauté scientifique des physiciens atomistes un débat houleux généré par le désaccord entre les résultats théoriques des sections efficaces de double ionisation (DI) de l'atome d'hélium par absorption de deux photons (DIDP) dans le régime direct. La très célèbre figure 1.1 [1] illustre assez bien ces propos. En effet, l'étude théorique et expérimentale de l'atome d'hélium a été durant ces dernières années, le centre d'intérêt de plusieurs groupes de recherche.

Sur le plan expérimental, le développement de nouvelles sources VUV-XUV de haute intensité et courte durée, les harmoniques d'ordre élevés (HOHG) [2, 3] et les lasers à électrons libres (FEL) [4, 5], ont permis l'étude de nouveaux processus non linéaires (ionisation multiphotonique, processus ATI, génération d'harmoniques) et l'exploration de la dynamique des électrons à l'échelle de ses temps caractéristiques (attoseconde).

Sur le plan théorique, cet intérêt se justifie par le fait que la résolution et la compréhension de la dynamique en présence d'un champ électromagnétique de l'atome d'hélium, système coulombien à trois corps (constitué d'un noyau et de deux électrons) le plus simple, sont essentielles à l'établissement d'un pont entre la dynamique des systèmes constitués de deux particules (hydrogénoïdes) et celle des systèmes constitués de plus de trois particules. Cependant,

bien qu'en apparence simple, l'équation de Schrödinger stationnaire associée à ce système n'est pas soluble analytiquement, à cause de la répulsion coulombienne entre les deux électrons, qui est singulière à l'origine, de portée infinie et responsable de la complexité du spectre de l'hélium. D'où l'intérêt du développement d'approches numériques pour déterminer la solution de l'équation de Schrödinger dans l'espace des configurations ou des moments. En présence d'un champ électromagnétique extérieur intense, le problème à trois corps se complexifie davantage. En effet, la dimension effective de l'espace de phase ainsi que celle de l'espace de Hilbert augmentent lorsqu'on souhaite explorer de nouveaux phénomènes [6], notamment les continua simple et double de l'hélium. Dans ce contexte, les méthodes numériques dites *dépendantes du temps* se sont naturellement imposées pour l'étude théorique de la dynamique des systèmes atomiques en interaction avec les nouvelles sources laser. Notons par ailleurs que la dynamique classique de ce système est également non intégrable et donne lieu à une structure dans l'espace des phases, composée de zones régulières et chaotiques [7].

Alors que les résultats théoriques de l'ionisation simple et double de l'hélium par absorption d'un photon font l'objet d'un consensus et s'accordent bien avec les résultats expérimentaux, les désaccords entre les résultats de sections efficaces de double ionisation (DIDP) par absorption de deux photons de l'hélium présentés sur la figure 1.1 [1], obtenus par différents groupes et différentes approches théoriques restent inexpliqués. Sans être exhaustif, nous précisons que six des résultats théoriques ont été obtenus par diverses approches *dépendantes du temps*. On retrouve notamment les résultats obtenus par Hu *et al.* [8] qui utilisent l'approche "Close Coupling" (CC) dans laquelle l'équation de Schrödinger dépendante du temps (ESDT) est résolue sur une grille de points. Les résultats physiques sont obtenus en projetant le paquet d'onde (PO) sur un produit de deux fonctions coulombiennes non corrélées - supposé représenter le double continuum (DC) - quelques cycles après la fin de l'interaction. Dans le même ordre d'idée, Ivanov *et al.* [9] et Feist *et al.* [10] utilisent l'approche "Convergent Close Coupling" (CCC) qui est une forme améliorée de l'approche CC [11]. Les autres approches dépendantes du temps (Laulan *et al.* [12], Piraux *et al.* [13] (TDSE-NC) et Fomouo *et al.* [14] (TDSE-FC)) sont dites spectrales. Elles consistent à développer le paquet d'onde sur une base de fonctions de carré sommable et à résoudre l'ESDT dans cette base. Des fonctions B-splines sont utilisées par Laulan *et al.* [12],

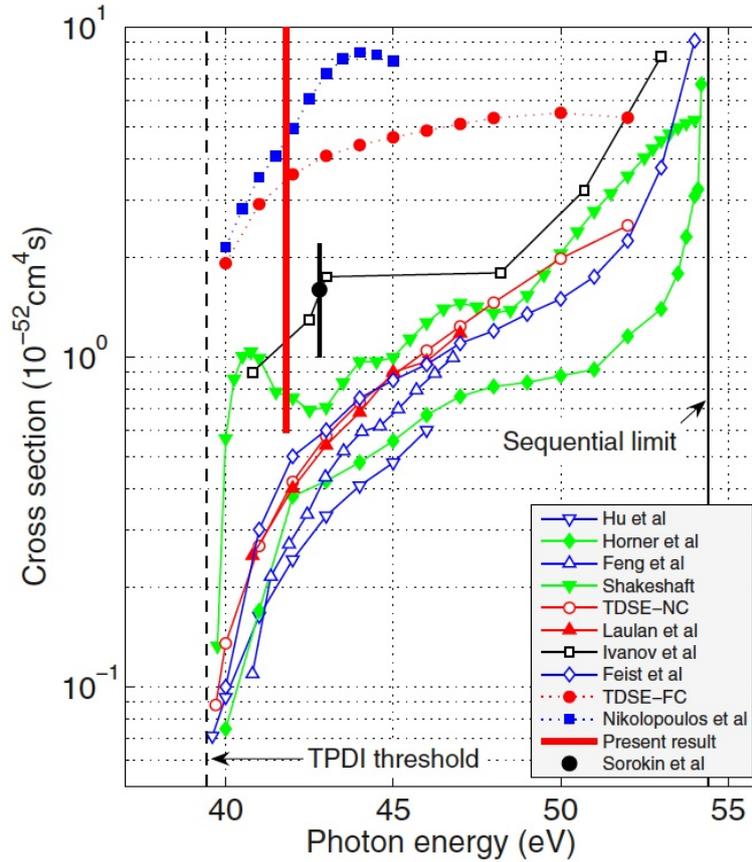


FIGURE 1.1 – Illustration du désaccord dans les résultats des sections efficaces de DIDP obtenus par différentes méthodes [1]. Les résultats de Laulan et al. [12], Piraux et al. [13] (TDSE-NC), Hu et al. [8], Ivanov et al. [9], Feist et al. [10], Fomouuo et al. [14] (TDSE-FC) et Nikolopoulos et al. [15] ont été obtenus par des approches dépendantes du temps. Ceux de Feng et al. [18], Hörner et al. [19] et Shakeshaft [20] sont des prédictions théoriques des approches indépendantes du temps. Les résultats expérimentaux sont ceux de Sorokin et al. [21] et Antoine et al. (Present result) [1]. L'intensité du champ $I = 10^{13} \text{ W/cm}^2$.

et des sturmiennes coulombiennes par Piraux *et al.* [13] (TDSE-NC) et Fomouo *et al.* [14] (TDSE-FC). Dans les deux premiers cas, les sections efficaces de DIDP sont obtenues en projetant le PO (obtenu à la fin de l'interaction) sur un produit de deux fonctions coulombiennes¹. Dans le but de prendre en compte le rôle de la corrélation dans la description du double continuum (DC), Fomouo a utilisé une technique qui consiste à obtenir la contribution du double continuum en extrayant de l'amplitude d'ionisation totale, celle de la simple obtenue en projetant le PO sur des fonctions d'onde corrélées du simple continuum, obtenue à partir de la méthode de la matrice-J (MMJ) [16, 17]. L'écart entre les résultats "corrélés" et "non corrélés" a été attribué à la prise en compte de la corrélation dans la description du DC. Trois résultats théoriques ont été obtenus par des méthodes indépendantes du temps. Il s'agit notamment des résultats de Feng *et al.* [18] qui ont été obtenus par la méthode de la matrice-R Floquet, de Hörner *et al.* [19] sont obtenus par la méthode "exterior complex scaling" (ECS) dans laquelle une approche stationnaire basée sur la théorie des perturbations est utilisée pour obtenir le PO de double continuum et où l'amplitude de transition de double continuum est obtenue en utilisant les méthodes standard de la théorie des collisions, et enfin les résultats de Shakeshaft [20]. Ces résultats théoriques sont comparés aux sections efficaces expérimentales de DIDP de Sorokin *et al.* [21] à 42.8 eV et de Antoine *et al.* (Present result) [1] à 41.8 eV.

En ce qui concerne les différentes approches dépendantes du temps, les désaccords entre les différentes théories présentées sur la figure 1.1 seraient, de l'avis de certains auteurs [22, 23], non pas liés à la méthode choisie pour représenter le PO et encore moins aux méthodes d'intégration de l'ESDT, mais plutôt liés aux techniques utilisées pour extraire les informations physiques de DI du PO. En dehors de la méthode de matrice-J développée par Fomouo [29], la méthode communément utilisée dans les approches dépendantes du temps pour extraire les informations physiques, consiste à projeter le PO obtenu, à la fin ou juste quelques cycles après la fin de l'interaction, sur un produit de deux fonctions coulombiennes de charge effective $Z = 2$. Mais cette technique souffre de plusieurs critiques. En effet, il se dit qu'utiliser un pro-

1. Représenter le double continuum par un produit de deux fonctions coulombiennes revient à supposer que la corrélation entre les deux électrons dans la voie de sortie est nulle, car la fonction coulombienne représente la fonction d'onde d'un électron libre en présence du potentiel coulombien.

duit de deux fonctions coulombiennes pour représenter le double continuum, c'est-à-dire négliger l'interaction entre les deux électrons dans la voie de sortie serait incorrect compte tenu de la portée infinie de l'interaction coulombienne. Cette projection ne serait raisonnablement valable que dans la zone asymptotique, ce qui suppose qu'il faudrait attendre que le PO atteigne des distances où la corrélation électronique dans la voie finale puisse être négligée [22]. Ceci implique qu'il faille laisser évoluer librement le PO pendant un temps suffisamment long après l'interaction. Cette solution n'est malheureusement pas envisageable pour deux raisons. L'expansion spatiale du PO liée à cette solution impliquerait l'utilisation d'un plus grand nombre de fonctions de base pour éviter la réflexion du PO aux frontières artificielles imposées par la base, avec pour conséquence directe de rendre les calculs extrêmement coûteux, tant en temps de calcul qu'en taille de mémoire nécessaire. Par ailleurs, l'ESDT est une équation différentielle connue comme étant *raide* et dont la raideur augmente avec le nombre de fonctions de base, rendant les temps de calcul souvent extrêmement longs. Dans le même ordre d'idée, ces deux problèmes sont ceux qui imposent aux théoriciens, notamment dans le cas des systèmes complexes, à se limiter à des durées d'interaction relativement courtes.

Dans ce contexte, notre travail s'inscrit dans le développement de nouvelles approches dépendantes du temps visant un double objectif. Le *premier objectif* visé par ce travail est celui d'expliquer les divergences entre les résultats théoriques dans les sections efficaces de double ionisation par absorption de deux photons. Plus précisément, il s'agit de savoir si les résultats obtenus par la méthode de la matrice-J constituent réellement une signature de l'effet de la prise en compte de la corrélation inter-électronique dans la description des électrons dans la voie de sortie, ou si ces différences sont liées à l'utilisation de la méthode. Au-delà de cet objectif ponctuel, il s'agit (comme *deuxième objectif*) de développer des méthodes alternatives d'extraction des informations physiques (sans projection sur des fonctions du continuum) pour l'étude des systèmes complexes dont les continua multiples ne sont en général pas analytiquement connus. A cet effet, deux méthodes ont été développées.

La *première approche*, qui fait l'objet de la troisième partie de ce travail, est une méthode qui combine astucieusement la méthode spectrale dépendante du temps utilisée depuis plusieurs années dans notre groupe, avec la méthode stationnaire HRM-SOW (hyperspherical R-matrix with semiclassical outgoing wave), développée par l'équipe du Pr L. Malegat (Paris-Sud). La

méthode HRM-SOW a le mérite d'avoir fourni les résultats les plus en accord avec les résultats expérimentaux dans l'étude des processus $(e, 2e)$ et $(\gamma, 2e)$ [25, 26, 27, 28], notamment près du seuil de DI. Le point fort de cette technique réside dans le fait qu'elle permet d'obtenir, à partir d'une fonction d'onde stationnaire initiale et grâce à son propagateur hyperradial, une fonction d'onde de DI dans la zone asymptotique (de dizaines de milliers d'unités atomiques) où les informations physiques sont obtenues aisément. Cette technique souffre malheureusement du fait que la fonction d'onde initiale est obtenue à l'aide d'une méthode basée sur la théorie des perturbations. Par ailleurs, l'approche n'a été développée, dans le cas de l'interaction avec un champ électromagnétique, que pour les processus à un photon. Pour pallier ces inconvénients, nous exploitons l'idée d'utiliser notre méthode spectrale pour générer la fonction d'onde stationnaire de photoabsorption. Cette méthode a été implémentée et appliquée à l'étude de la DI de l'atome d'hélium par absorption d'un photon, dont les résultats bien connus ont permis de valider l'approche. La méthode a ensuite été appliquée à l'étude de la DI de l'hélium par absorption de deux photons à 45 eV pour répondre à la question relative à la surestimation des sections efficaces de DIDP de l'hélium sus-évoquée.

La *deuxième approche* que nous convenons d'appeler méthode des coordonnées dépendantes du temps (MCDT), qui fait l'objet de la première partie de ce travail et qui avait déjà été proposée par Foumouo [29] comme perspective et solution aux difficultés dues aux réflexions du PO rencontrées avec les méthodes dépendantes du temps. La MCDT est une approche qui s'inspire de la méthode adiabatique de Solov'ev-Vinitsky [30], déjà utilisée dans la littérature sous diverses formes et dans différents domaines de la physique, [31, 32, 33, 34, 35, 36, 37, 38, 39, 40]. Mais à notre connaissance, elle n'a jamais été appliquée à l'étude de l'interaction d'un système atomique 3D avec un champ électromagnétique de plus ou moins longue durée. Elle consiste à multiplier la coordonnée radiale par une fonction d'échelle dépendante du temps et à appliquer une transformation de phase à la fonction d'onde. Dans la nouvelle représentation, le hamiltonien contient un potentiel harmonique qui a pour effet de confiner le PO ionisé durant la propagation. De ce fait, la taille de la base utilisée pour décrire la dynamique du système peut être significativement réduite, tout en permettant de propager la solution sur de très longues périodes de temps après l'interaction du système avec le champ électromagnétique. En d'autres termes, on peut atteindre les "conditions asymptotiques"

où il est relativement aisé d'extraire les observables physiques des différents processus. On montre en particulier que le spectre en énergie des électrons est directement obtenu à partir du module au carré du PO asymptotique. Cette méthode a été appliquée à un modèle unidimensionnel d'un électron dans un puits de potentiel gaussien dans diverses situations physiques. Elle a ensuite été appliquée à l'étude de l'interaction de l'atome d'hydrogène tridimensionnel.

Sur le plan numérique, le développement de ces deux approches a nécessité l'implémentation de nouvelles techniques d'intégration numérique de l'ESDT dans la base initiale. Les méthodes précédemment utilisées dans notre groupe (résolution de l'ESDT dans la base atomique pour l'étude de l'atome d'hélium et avec une méthode predictor-corrector de type Runge-Kutta pour l'hydrogène atomique) ne pouvaient être utilisées. Dans la MCDT en particulier, la résolution de l'ESDT dans la base atomique aurait nécessité une opération de diagonalisation à chaque pas d'intégration, le hamiltonien atomique devenant dépendant du temps dans cette approche de la coordonnée dépendante du temps. Par ailleurs, la méthode predictor-corrector existante nécessite beaucoup de temps de calcul du fait du nombre élevé d'opérations à effectuer. Bien qu'il soit connu que la résolution de l'ESDT, notamment *dans la base initiale* des fonctions, est un problème difficile à cause de sa raideur, nous avons dans le cadre de ce travail implémenté trois propagateurs numériquement stables, peu coûteux en termes d'opérations à effectuer et adaptés aux équations différentielles raides, à savoir la méthode explicite de Fatunla, la méthode d'Arnoldi et une méthode predictor-corrector différente de la précédente. Nous présentons ces méthodes dans le chapitre suivant en insistant sur les avantages et les inconvénients de ces différentes techniques.

Le succès de ces précieux outils d'intégration numérique (il convient de mentionner que l'un de ces outils a été utilisé par le centre de calcul intensif et de stockage de masse comme *benchmark* pour l'acquisition de la machine GREEN) nous a permis dans la deuxième partie de ce travail, d'appliquer les techniques développées dans un cas particulièrement difficile : l'étude de l'atome d'hydrogène à *basse fréquence* ($\omega = 0.0228$ u.a.), régime auquel les théoriciens s'intéressent particulièrement ces cinq dernières années et qui continue de faire couler beaucoup d'encre. L'intérêt pour l'étude de l'ionisation des systèmes atomiques et moléculaires à basse fréquence se trouve dans la récente "*découverte*" [41, 42] publiée dans la prestigieuse revue *Nature* qui est venue semer le trouble dans l'esprit des physiciens atomistes. L'"*ionization surprise*"

[43] est en effet la présence dans les spectres expérimentaux des électrons émis par photoionisation des atomes et des molécules, d'un pic inattendu à basse énergie qu'on convient d'appeler *Low Energy Structure* (LES) (ou encore à très basse énergie : la *Very Low Energy Structure* (VLES) [44]). L'origine de cette surprise réside dans le fait que le paramètre γ de Keldysh associé aux longueurs d'onde ($\lambda = 800 - 2000$ nm) et aux intensités ($I = 10^{13} - 10^{15}$ W.cm⁻² u.a.) considérées [41] est tel que l'on s'attend, si l'on s'en tient à ce qui est jusqu'ici communément accepté, à ce que l'ionisation ait lieu *essentiellement* par *effet tunnel*. Dans ce cas, la théorie du champ fort ou SFA (Strong Field Approximation), généralement utilisée pour décrire le processus d'ionisation en régime haute intensité et basse fréquence, devrait reproduire la LES. Ce qui n'est malheureusement pas le cas. Bien plus, l'étude théorique de l'Ar à $\lambda = 2000$ nm et $I = 1.5 \times 10^{15}$ W.cm⁻² u.a., basée sur la résolution numérique de l'ESDT dans la jauge vitesse et dans l'*approximation à un électron actif* (SAE : single-active-electron) confirme la présence de la LES à basse énergie [41]. Tous ces résultats laissent penser que le mécanisme d'ionisation donnant lieu à l'émission d'électrons de faible énergie ne serait pas associé à l'effet tunnel. En dépit des nombreuses investigations qui ont déjà été faites, aucun mécanisme définitif n'a été proposé pour expliquer la LES ou la VLES. Nous nous sommes proposés d'entrer dans la débat en étudiant, grâce aux outils développés, l'atome d'hydrogène en champ intense et à basse fréquence. L'objectif de cette étude (*troisième objectif de ce travail*) étant d'une part de confirmer l'*universalité* de la structure à basse énergie dans le cadre d'un calcul exact et sans approximation (résolution numérique de ESDT) avec l'atome d'hydrogène, et d'autre part d'apporter une contribution à la compréhension du mécanisme responsable de la LES.

1.2 Structure de la thèse

Cette thèse est structurée comme suit.

Le chapitre 2 est consacré à la description et à la présentation des différentes méthodes d'intégration numérique de l'ESDT utilisées tout au long dans ce travail, et qui est commune à toutes les parties suivantes de cette thèse. **Des résultats présentés dans ce chapitre sont inclus dans une publication dans Physical Review A [65].**

Les chapitres 3 et 4 (*première partie*) sont consacrés à la présentation de la méthode des facteurs d'échelle dépendants du temps, à son application au modèle unidimensionnel d'un électron dans un puits de potentiel gaussien et à l'hydrogène atomique tridimensionnel. **Des résultats présentés dans cette partie sont inclus dans une publication dans Physical Review A [78].**

Les chapitres 5 et 6 (*deuxième partie*) sont consacrés à la description de l'approche méthodologique et à la présentation des résultats relatifs à l'étude de l'hydrogène atomique en régime basse fréquence et haute intensité. **Des résultats présentés dans cette partie sont inclus dans une publication dans Physical Review A [160]**

Dans les chapitres 7 et 8 (*troisième partie*), nous présentons et appliquons la méthode ESDT/HRM-SOW à l'étude de la double ionisation de l'atome de d'hélium par absorption de un et deux photons. **Des résultats présentés dans cette partie sont inclus dans une publication dans Physical Review A [189]**

Nous terminons cette thèse par une conclusion et les perspectives qu'ouvre ce travail.

1.3 Publications

Ce travail a fait l'objet de 5 publications

1. E. Foumouo, **A. Hamido**, Ph. Antoine, B. Piraux, H. Bachau et R. Shakeshaft, *Time-dependent analysis of the mechanism for two-photon double-escape in helium : from very long to attosecond time scales*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **43**, 091001 (2010) .
2. L. Malegat, H. Bachau, **A. Hamido** and B. Piraux, *Analysing a two-electron wavepacket by semiclassically propagating its Fourier components in space*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **43**, 245601 (2010) .
3. **A. Hamido**, J. Eiglsperger, J. Madroñero, F. Mota-Furtado, P. O'Mahony, A. L. Frapiccini and B. Piraux, *Time scaling with efficient time propagation techniques for atoms and molecules in pulsed radiation fields*, Phys. Rev. A **84**, 013422 (2011).
4. H. M. Tetchou Nganso, **A. Hamido**, M. G. Kwato Njock, Y. V. Popov and B. Piraux, *Interaction of a model atom exposed to strong laser pulses : Role of the Coulomb potential*, Phys. Rev. A **87**, 013420 (2013).
5. A. L. Frapiccini , **A. Hamido**, S. Schröter, D. Pyke, F. Mota-Furtado, P. O'Mahony, J. Madroñero, J. Eiglsperger and B. Piraux, *Explicit schemes for time propagating many-body wavefunctions*, Phys. Rev. A **89**, 023418 (2014).

Publications en cours de rédaction

1. A. L. Frapiccini , **A. Hamido**, F. Mota-Furtado, P. O'Mahony and B. Piraux, *Multi-resolution schemes for time scaled propagation of wavepackets*. (To be submitted)
2. **A. Hamido**, F. Mota-Furtado, P. O'Mahony, F. Catoire and B. Piraux, *On the origin of the LES in the ATI spectrum*. (To be submitted)

3. N. Janssens, **A. Hamido**, A. Galstyan , F. Mota-Furtado, P. O'Mahony, Y. V. Popov and B. Piraux, *Analysis through a model calculation of the long wavelength limit in atom-field interaction.* (To be submitted)

Propagateurs dépendants du temps

Sommaire

2.1	Introduction	13
2.2	Considérations générales	15
2.2.1	Formulation générale du problème	15
2.2.2	Description de l'approche spectrale	16
2.2.3	Définition de la fonction de stabilité	17
2.3	Méthode Implicite-Explicite de type Runge-Kutta	19
2.3.1	Généralités sur les méthodes de type RK	19
2.3.2	Présentation de la méthode IMEX de type RK	21
2.4	Méthode explicite de Fatunla	23
2.4.1	Présentation de la méthode	23
2.4.2	Résultats et discussion	25
2.5	Méthode d'Arnoldi	30
2.5.1	Présentation de la méthode	30
2.5.2	Résultats et discussion	34
2.6	Méthode Predictor-corrector	39
2.6.1	Présentation de la méthode	39
2.6.2	Résultats et discussion	42
2.7	Conclusion	44

2.1 Introduction

L'étude de la dynamique des systèmes atomiques en interaction avec des champs laser de plus en plus brefs et intenses suscite depuis quelques années,

l'intérêt des physiciens aussi bien théoriciens qu'expérimentateurs [45, 46]. Au centre de cet intérêt, se trouve l'exploration des nouveaux processus tels que l'ionisation multiphotonique [47], l'ionisation par effet tunnel [48], les processus ATI (Above Threshold Ionization) [49, 50] et la génération d'harmoniques d'ordre élevé [51, 52] aujourd'hui exploitée dans la mise au point des nouvelles sources de rayonnement cohérent. Sur le plan expérimental, la mise en évidence de ces processus - non-linéaires - a été rendue possible grâce aux nouvelles sources lasers caractérisées par des durées de plus en plus courtes - de l'ordre du temps caractéristique de la dynamique des électrons -, et des puissances de crête de plus en plus élevées. Sur le plan théorique cependant, ces prouesses technologiques impliquent le développement de nouvelles approches.

En effet, les méthodes basées sur la théorie des perturbations longtemps utilisées deviennent inadéquates pour décrire de tels phénomènes [45]. De même, les méthodes indépendantes du temps telles que les méthodes basées sur la théorie de Floquet [53, 54, 55], valables pour des temps d'interaction longs et des intensités relativement faibles, deviennent inadéquates pour des champs lasers brefs et intenses.

Dans ce contexte, la résolution numérique de l'équation de Schrödinger dépendante du temps (ESDT) s'impose de plus en plus comme l'outil théorique adapté pour l'étude quantitative de l'interaction laser-matière en champ fort. Les méthodes basées sur la résolution de l'ESDT sont connues sous le vocable *méthodes dépendantes du temps*. Pour résoudre l'ESDT, deux techniques sont généralement utilisées pour déterminer la solution : les méthodes de grille et les méthodes spectrales. Dans les méthodes de grille qui regroupent la méthode des différences finies [56, 57, 58, 59], la méthode des éléments finis [60] et la représentation par variable discrète [61] (Discrete variable representation (DVR)), on discrétise une région finie (boîte) de l'espace sur une grille finie de points. On détermine à chaque instant les valeurs prises par la solution aux points de grille ou dans le domaine défini par la grille. Dans les méthodes spectrales, la solution décrivant la dynamique du système est développée sur une base appropriée de fonctions de carré sommable [62, 63, 14]. Il en résulte un système d'équations différentielles couplées dont la résolution permet de déterminer les coefficients de la décomposition de la solution sur la base. Indépendamment de la technique utilisée, il est possible d'utiliser un schéma explicite [64] - qui ne nécessite que des produits matrices-vecteurs -, ou un schéma implicite [67] - qui nécessite la résolution d'un système d'équations -

pour déterminer la solution à tout instant. Mais pour des raisons numériques, il est important de développer des méthodes de grande précision, mais surtout peu coûteuses en termes de temps de calcul.

Dans le cas de l'ESDT, la difficulté principale à laquelle on fait face est celle de la raideur [67] du système à résoudre. En effet, les fréquences d'oscillation des coefficients de la solution de l'ESDT sont liées aux valeurs propres de l'hamiltonien du système. Le pas de propagation est de l'ordre de l'inverse de la plus grande valeur propre du hamiltonien. En fonction de la complexité du système atomique, la taille des matrices peut être très grande et le pas de propagation peut devenir de ce fait très petit. Pour contourner cette difficulté, on peut utiliser un schéma implicite. Mais d'un point de vue numérique, cette solution n'est pas toujours envisageable. Le défi consiste donc à développer des méthodes qui ne soient pas affectées par la raideur du système, qui soient numériquement stables, précises et acceptables en termes de temps de calcul.

Dans ce chapitre, nous présentons les méthodes numériques que nous avons développées, implémentées et utilisées tout au long de ce travail. Dans la section 2, nous faisons un bref rappel de la forme générale de l'équation différentielle à résoudre. Nous présentons dans la section 3 une méthode implicite-explicite de type Runge-Kutta (IMEX) qui s'est avérée être instable et peu précise. Dans les sections 4, 5 et 6 nous présentons successivement la méthode explicite de Fatunla, la méthode explicite d'Arnoldi et une méthode Predictor-Corrector (PC). Les avantages et les inconvénients liés à chaque méthode sont déduits des résultats.

2.2 Considérations générales

2.2.1 Formulation générale du problème

Nous nous intéressons tout au long de ce travail à l'interaction de systèmes atomiques avec un champ électromagnétique dépendant du temps. Le paquet d'onde (PO) spatial $\Psi(\vec{r}_n, t)$ décrivant la dynamique d'un système atomique de n particules en interaction avec un champ électromagnétique est solution de l'ESDT

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{r}_n, t) = H(\vec{r}_n, t) \Psi(\vec{r}_n, t) \quad (2.1)$$

où $H(\vec{r}_n, t)$ représente le hamiltonien du système et \vec{r}_n l'ensemble des n coordonnées spatiales. De façon générale, le hamiltonien $H(\vec{r}_n, t)$ sera une somme du hamiltonien atomique $H_0(\vec{r}_n, t)$ ¹ et du hamiltonien d'interaction $H_{int}(\vec{r}, t)$.

2.2.2 Description de l'approche spectrale

Pour résoudre numériquement l'équation (2.1) nous utilisons une approche spectrale. Les méthodes spectrales sont basées sur le développement de la solution $\Psi(\vec{r}_n, t)$ en série tronquée de fonctions de base de carré sommable $\{f_j\}_{j=1}^N$ dans un espace de Hilbert, en imposant qu'une quantité, en général le résidu, soit nulle dans un certain sens. La solution s'écrit

$$\Psi(\vec{r}_n, t) = \sum_{j=1}^N y_j(t) f_j(\vec{r}_n) \quad (2.2)$$

où N désigne le nombre de fonctions de base f_j . Soit $R_N(\vec{r}_n)$ le résidu défini à partir de l'équation de Schrödinger stationnaire (ESS) ou équation aux valeurs propres

$$H_0(\vec{r}_n, t=0)\Psi(\vec{r}_n, t=0) = E\Psi(\vec{r}_n, t=0) \quad (2.3)$$

par

$$R_N(\vec{r}_n) = (H_0 - E)\Psi(\vec{r}_n, t=0). \quad (2.4)$$

Pour calculer les coefficients $c_j(t)$ du développement (2.2), on annule le résidu $R_N(\vec{r}_n)$. Cette opération consiste à écrire que le produit scalaire de ce résidu avec des fonctions d'essai $\varphi_\alpha(\vec{r}_n)$ est nul [70]; soit

$$\langle R_N | \varphi_\alpha(\vec{r}_n) \rangle = \int \omega(\vec{r}_n) R_N^*(\vec{r}_n) \varphi_\alpha(\vec{r}_n) d\vec{r}_n = 0, \quad \alpha = 1, 2, \dots, N \quad (2.5)$$

où $\omega(\vec{r}_n)$ est le poids associé aux fonctions d'essai. Le choix des fonctions d'essai et du poids définit le type de méthode spectrale. Ainsi, si les fonctions d'essai sont des produits de fonctions delta $\prod_{i=1}^n \delta(\vec{r}_i - \vec{r})$ et $\omega = 1$, la méthode est de type *collocation*. Dans cette dernière variante, on force le résidu R_N à s'annuler uniquement en certains points \vec{r}_i appelés *points de collocation*. Cette méthode est similaire à la méthode de grille sauf que dans ce cas, le choix des points

1. Le hamiltonien atomique est en principe indépendant du temps. Mais nous faisons ici le libre choix de supposer qu'il dépend du temps pour la simple raison que dans l'une des méthodes que nous présenterons, une dépendance temporelle apparaîtra dans ses termes.

de collocation n'est pas arbitraire ; ces points sont directement liés au choix des fonctions d'essai. Dans la plupart des cas, les N points de collocation sont des abscisses d'une quadrature de Gauss ; très souvent, cette propriété conduit à une convergence très rapide (exponentielle) en terme du nombre de points [71]. Lorsque les fonctions d'essai sont les mêmes que les fonctions de base, on dit que la méthode spectrale est de type *Galerkin* dans laquelle le résidu est en moyenne nul. La méthode de *Galerkin* ne s'applique que lorsque les fonctions de base $\phi_\alpha(\vec{r}) \equiv \varphi_\alpha(\vec{r})$ satisfont les conditions aux frontières qui peuvent être de type Dirichlet, Neumann ou Cauchy-Robin. Si les fonctions de base ne satisfont pas les conditions aux frontières, nous avons alors la méthode spectrale de type *Tau* [72] qui a été introduite par Lanczos.

Dans le cadre de ce travail, nous utilisons une méthode spectrale de type Galerkin. Le nombre N de fonctions de base est choisi suffisamment grand pour décrire proprement le PO. A l'aide de la méthode spectrale, l'ESDT est transformée sous la forme d'une équation différentielle matricielle d'inconnue $\mathbf{y}(t) = \{y_i(t)\}_N$

$$i\mathbf{S} \frac{d}{dt} \mathbf{y}(t) = \mathbf{H}(t) \mathbf{y}(t), \quad (2.6)$$

où \mathbf{S} et $\mathbf{H}(t)$ représentent respectivement la matrice de recouvrement des fonctions de base (lorsque les fonctions ne sont pas orthogonales) et la matrice associée au hamiltonien atome+champ dont les éléments sont donnés par :

$$[\mathbf{S}]_{ij} = \langle f_i | f_j \rangle \quad (2.7)$$

$$[\mathbf{H}]_{ij} = \langle f_i | H(\vec{r}_n, t) | f_j \rangle \quad (2.8)$$

La condition initiale à l'instant $t = 0$ s'obtient associée à l'ESDT à intégrer (2.1) s'obtient en résolvant le problème aux valeurs propres généralisé $\mathbf{H}\mathbf{y} = E\mathbf{S}\mathbf{y}$ déduite de (2.3). \mathbf{y} est un vecteur dont les composantes y_j sont les coefficients du développement de $\Psi(\vec{r}_n, t = 0)$ sur la base.

2.2.3 Définition de la fonction de stabilité

L'étude de la stabilité d'un schéma numérique de résolution d'équations différentielles se fait généralement en résolvant l'équation test de Dahlquist suivante :

$$y' = \lambda y, \quad (2.9)$$

où λ est une constante. Si on suppose que $y(0) = \eta$, la solution de l'équation (2.9) est donnée par

$$y = \eta e^{\lambda t}. \quad (2.10)$$

L'équation à intégrer est en général dite *raide* lorsque la partie réelle de λ est négative et élevée. Dans ce cas, la solution de l'équation (2.9) donnée par (2.10) tend alors rapidement vers zéro. Pour reproduire ce comportement, le schéma numérique doit être tel que la solution $y_n = y(n\delta t) \rightarrow 0$ lorsque $n \rightarrow \infty$, δt étant le pas d'intégration. En utilisant un schéma à une étape, la solution de l'équation (2.9) s'écrit

$$y_{n+1} = R(\lambda\delta t)y_n = (R(\lambda\delta t))^{n+1} y_0, \quad (2.11)$$

où $R(z)$ représente la *fonction de stabilité*. Pour que la solution $y_n \rightarrow 0$ lorsque $n \rightarrow \infty$, il faudrait nécessairement que $R(\lambda\delta t) < 1$. L'ensemble S des valeurs $z = \lambda\delta t$ assurant cette condition et défini par

$$S = \{z = \lambda\delta t \in \mathbb{C}; |R(z)| \leq 1\}$$

est appelé *domaine de stabilité* du schéma numérique. Le schéma est dit *A-stable* si son domaine de stabilité appartient à $\mathbb{C}^- = \{z; \operatorname{Re}(z) \leq 0\}$. Le schéma est dit *L-stable* lorsqu'en plus d'être *A-stable*, sa fonction de stabilité est telle que $\lim_{\operatorname{Re}(\lambda\delta t) \rightarrow -\infty} |R(\lambda\delta t)| = 0$. Les schémas *L-stable* sont les plus stables numériquement parlant [73].

Dans le cas qui nous intéresse, le Jacobien du système d'équations possède des grandes valeurs propres imaginaires. Ce type de problème est également considéré comme *raide*, mais l'analyse de la stabilité d'un schéma numérique dans ces conditions est plus subtile. Supposons par exemple que le schéma soit *L-stable*, mais que son domaine couvre aussi bien \mathbb{C}^- que \mathbb{C}^+ . Le schéma numérique doit pouvoir reproduire les oscillations de la solution de l'équation liées aux grandes valeurs propres imaginaires. D'autre part, la norme de la solution n'est pas nécessairement conservée puisque $|R(z)| \leq 1$. On doit imposer, pour que cette dernière exigence (conservation de la norme) soit satisfaite, la condition $|R(z)| = 1$. Ceci implique que si la valeur propre λ est purement imaginaire, alors la fonction de stabilité $R(\lambda\delta t) = e^{\lambda\delta t}$ [65].

2.3 Méthode Implicite-Explicite de type Runge-Kutta

2.3.1 Généralités sur les méthodes de type RK

Soit à déterminer au temps $t_{n+1} = t_n + h$, la solution $\mathbf{y}(t_{n+1}) = \mathbf{y}_{n+1}$ de l'équation différentielle du premier ordre

$$\mathbf{y}' = \mathbf{H}(t, \mathbf{y}), \quad \mathbf{y} = (y_1, y_2, \dots, y_m) \quad (2.12)$$

à partir de la solution $\mathbf{y}(t_n) = \mathbf{y}_n$ au temps t_n . La solution donnée par une méthode de type Runge-Kutta [67] à s étapes s'écrit

$$\mathbf{y}_{n+1} = \mathbf{y}_n + h \sum_{i=1}^s b_i \mathbf{H}(t_n + c_i h, \mathbf{Y}_i), \quad (2.13)$$

où

$$\mathbf{Y}_i = \mathbf{y}_n + h \sum_{j=1}^s a_{ij} \mathbf{H}(t_n + c_j h, \mathbf{Y}_j). \quad (2.14)$$

Dans le cas qui nous intéresse (équation de Schrödinger), la fonction $\mathbf{H}(t, \mathbf{y})$ dans l'équation (2.12) peut encore s'écrire

$$\mathbf{H}(t, \mathbf{y}) = \mathbf{H}(t)\mathbf{y}. \quad (2.15)$$

De ce fait, l'équation (2.14) peut s'écrire sous la forme matricielle suivante

$$\begin{pmatrix} \mathbf{Y}_1 \\ \vdots \\ \mathbf{Y}_s \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathbf{y}_n \\ \vdots \\ \mathbf{y}_n \end{pmatrix} + h \begin{pmatrix} a_{11}\mathbf{H}(t_n + c_1 h) & \cdots & a_{1s}\mathbf{H}(t_n + c_s h) \\ \vdots & & \vdots \\ a_{s1}\mathbf{H}(t_n + c_1 h) & \cdots & a_{ss}\mathbf{H}(t_n + c_s h) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{Y}_1 \\ \vdots \\ \mathbf{Y}_s \end{pmatrix} \quad (2.16)$$

En général, la précision de la solution estimée (et donc la minimisation des erreurs lors de la propagation dans le temps) augmentent avec l'ordre s . Il est important qu'il soit donc suffisamment élevé. Les coefficients a_{ij} , b_i et c_i apparaissant dans l'équation (2.16) sont généralement présentés sous la forme matricielle suivante appelée *tableau de Butcher*

$$\begin{array}{c|cccc}
c_1 & a_{11} & a_{12} & \cdots & a_{1s} \\
c_2 & a_{21} & a_{22} & & \vdots \\
\vdots & \vdots & & \ddots & \\
c_s & a_{s1} & \cdots & & a_{ss} \\
\hline
& b_1 & b_2 & \cdots & b_s
\end{array}$$

Ces coefficients doivent vérifier les deux conditions suivantes :

$$c_i = \sum_{j=1}^s a_{ij}, \quad \sum_{i=1}^s b_i = 1. \quad (2.17)$$

En fonction des valeurs des coefficients de la matrice de Butcher on distingue trois classes de méthodes RK. Les *méthodes RK explicites* (ERK) pour lesquelles les coefficients a_{ij} de la matrice de Butcher sont tels que $a_{ij} = 0$ pour $j \geq i$ (la matrice de Butcher est strictement triangulaire inférieure). Dans ces conditions, les éléments \mathbf{Y}_i se calculent explicitement à partir des \mathbf{Y}_j précédents, suivant la relation

$$\mathbf{Y}_i = \mathbf{y}_n + h \sum_{j=1}^{i-1} a_{ij} \mathbf{H}(t_n + c_j h) \mathbf{Y}_j. \quad (2.18)$$

Pratiquement, il ne s'agit que d'effectuer des produits matrices-vecteurs.

Les *méthodes implicites* RK (IRK) sont celles pour lesquelles les coefficients a_{ij} sont non nuls. Dans ces conditions, les éléments \mathbf{Y}_i se calculent en résolvant un système de $m \times s$ équations linéaires. Ce type de schéma est généralement utilisé pour la résolution d'équations différentielles partielles dites raides, c'est-à-dire celles dont la solution oscille fortement dans le temps, nécessitant un pas d'intégration très petit lorsqu'il s'agit d'utiliser une méthode de type ERK.

Enfin, Les *méthodes semi-implicites* ou *diagonalement implicites* (DIRK) sont celles pour lesquelles les coefficients a_{ij} de la matrice de Butcher sont tels que $a_{ij} = 0$ pour $j > i$. Dans ce cas les éléments \mathbf{Y}_i sont obtenus en résolvant un système de m équations linéaires de la forme

$$[1 - ha_{ii} \mathbf{H}(t_n + c_i h)] \mathbf{Y}_i = \mathbf{y}_n + h \sum_{j=1}^{i-1} a_{ij} \mathbf{H}(t_n + c_j h) \mathbf{Y}_j. \quad (2.19)$$

2.3.2 Présentation de la méthode IMEX de type RK

Lorsque la fonction $\mathbf{H}(t, \mathbf{y})$ de l'équation (2.12) peut être scindée et mise sous la forme

$$\mathbf{H}(t, \mathbf{y}) = \mathbf{F}(t, \mathbf{y}) + \mathbf{G}(t, \mathbf{y}), \quad (2.20)$$

où $\mathbf{F}(t, \mathbf{y})$ et $\mathbf{G}(t, \mathbf{y})$ représentent respectivement les parties *non-raide* et *raide* de $\mathbf{H}(t, \mathbf{y})$, on peut utiliser une méthode hybride qui combine une IRK ou une DIRK, avec une ERK pour obtenir la solution [68, 69].

L'ESDT décrivant l'interaction d'un système atomique avec un champ électromagnétique qui nous intéresse tout au long de ce travail, correspond à ce type de problème. En effet, l'opérateur énergie cinétique, principale source de raideur de l'ESDT², peut être séparé des autres termes (les termes coulombiens et l'interaction dipolaire) de l'hamiltonien dépendant du temps. Par ailleurs, la matrice associée à l'opérateur énergie cinétique est creuse. On peut lui appliquer un schéma IRK ou DIRK sans difficulté numérique. Ainsi, dans l'équation (2.20), $\mathbf{G}(t, \mathbf{y})$ représente l'opérateur énergie cinétique qui est la principale source de raideur de l'ESDT. $\mathbf{F}(t, \mathbf{y})$ regroupe les termes coulombiens et le terme d'interaction dipolaire (atome+champ). Pour des raisons numériques, on utilise en général un schéma DIRK pour le traitement de $\mathbf{G}(t, \mathbf{y})$. Les tableaux de Butcher associées aux méthodes DIRK et ERK sont respectivement donnés par

$$\begin{array}{c|cccc} c_1 & 0 & & & \\ c_2 & \varepsilon_{21} & 0 & & \\ \vdots & \vdots & & \ddots & \\ c_s & \varepsilon_{s1} & \cdots & \varepsilon_{ss-1} & 0 \\ \hline & \tilde{b}_1 & \tilde{b}_2 & \cdots & \tilde{b}_s \end{array}, \quad (2.21)$$

$$\begin{array}{c|cccc} c_1 & a_{11} & & & \\ c_2 & a_{21} & a_{22} & & \\ \vdots & \vdots & & \ddots & \\ c_s & a_{s1} & \cdots & & a_{ss} \\ \hline & b_1 & b_2 & \cdots & b_s \end{array}; \quad (2.22)$$

2. L'opérateur énergie cinétique est responsable des valeurs propres positives élevées du hamiltonien atomique lorsqu'on diagonalise la matrice correspondante.

La solution de l'ESDT $\mathbf{y}(t_{n+1}) = \mathbf{y}_{n+1}$ est donnée par :

$$\mathbf{y}_{n+1} = \mathbf{y}_n + h \sum_{i=1}^{s-1} b_i \mathbf{K}_i + h \sum_{i=1}^s \tilde{b}_i \mathbf{K}_i, \quad (2.23)$$

avec

$$\tilde{\mathbf{K}}_i = \mathbf{G} \left(t_n + c_i h, \mathbf{y}_n + h \sum_{j=1}^{i-1} a_{ij} \mathbf{K}_j + h \sum_{j=1}^i \varepsilon_{ij} \tilde{\mathbf{K}}_j \right) \quad (2.24)$$

et

$$\mathbf{K}_i = \mathbf{F} \left(t_n + c_i h, \mathbf{y}_n + h \sum_{j=1}^{i-1} a_{ij} \mathbf{K}_j + h \sum_{j=1}^i \varepsilon_{ij} \tilde{\mathbf{K}}_j \right). \quad (2.25)$$

L'algorithme permettant de déterminer la solution \mathbf{y}_{n+1} est structuré comme suit :

Algorithme 1 Algorithme de la méthode RK IMEX

- 1: résoudre $\tilde{\mathbf{K}}_1 = \mathbf{G} \left(t_n + c_1 h, \mathbf{y}_n + h \varepsilon_{11} \tilde{\mathbf{K}}_1 \right)$
 - 2: **pour** $i = 1, s - 1$ **faire**
 - 3: résoudre $\tilde{\mathbf{K}}_{i+1} = \mathbf{G} \left(t_n + c_i h, \mathbf{y}_n + h \sum_{j=1}^{i-1} a_{ij} \mathbf{K}_j + h \sum_{j=1}^i \varepsilon_{ij} \tilde{\mathbf{K}}_j \right)$
 - 4: évaluer $\mathbf{K}_i = \mathbf{F} \left(t_n + c_i h, \mathbf{y}_n + h \sum_{j=1}^{i-1} a_{ij} \mathbf{K}_j + h \sum_{j=1}^i \varepsilon_{ij} \tilde{\mathbf{K}}_j \right)$
 - 5: **fin pour**
 - 6: $\mathbf{y}_{n+1} = \mathbf{y}_n + h \sum_{i=1}^{s-1} b_i \mathbf{K}_i + h \sum_{i=1}^s \tilde{b}_i \mathbf{K}_i$.
-

Bien qu'a priori adaptée à l'ESDT, cette méthode s'est malheureusement avérée peu précise. A titre d'exemple, nous avons étudié l'interaction de l'He avec un champ électromagnétique d'intensité $I = 10^{13}$ W.cm⁻², de fréquence $\omega = 0.7$ u.a. et de durée totale égale à 20 cycles optiques. La norme obtenue à la fin de l'interaction avec une méthode IMEX dont les éléments de la matrice de Butcher sont ceux proposés par Pierarchini *et al.* [75] vaut 1.00674741159181 alors qu'on obtient 0.999999989639600 avec une méthode explicite d'ordre 6 dans la base atomique et 1.00001040419763 avec la méthode explicite de Fatunla que nous présentons dans la suite. Nous avons vérifié que les résultats ne sont guère meilleurs en utilisant le set de coefficients proposé par Ascher *et al.* [69]. Nous pensons que cette perte de précision (qui est progressive) est liée à l'amplification des erreurs qui viendraient de la partie explicite de l'équation que nous résolvons. En plus de cette mauvaise conservation de la norme,

le temps de calcul est relativement élevé comparativement à la méthode de Fatunla par exemple.

2.4 Méthode explicite de Fatunla

2.4.1 Présentation de la méthode

La méthode de Fatunla [76, 77] est un schéma explicite d'ordre 4, L-stable et adapté à la résolution d'EDP "raides" de premier ordre. L'idée de base de cette méthode consiste à approximer la solution par une fonction qui prend en compte les fréquences propres du système, desquelles dépend la raideur de l'EDP [79, 80]. Nous ne présentons ici que les principales articulations de la méthode. Une description plus détaillée est faite dans l'annexe B.

Soit un système d'EDP de premier ordre de dimension m donné par l'équation (2.12). La méthode explicite de Fatunla consiste, dans un intervalle (t_n, t_{n+1}) avec $t_{n+1} = t_n + h$ - h étant le pas de propagation choisi suffisamment petit -, à approximer la solution $\mathbf{y}(t)$ par la fonction

$$\mathbf{F}(t) = (\mathbf{I} - e^{\Omega_1 t})\mathbf{a} - (\mathbf{I} - e^{-\Omega_2 t})\mathbf{b} + \mathbf{c}. \quad (2.26)$$

Dans l'équation (2.26), \mathbf{I} désigne la matrice identité, $\Omega_i = \text{diag}(\omega_{1i}, \omega_{2i}, \dots, \omega_{mi})$ est une matrice diagonale et \mathbf{a} , \mathbf{b} , et \mathbf{c} des vecteurs de dimension m . Les nombres complexes $\omega_{1i}, \omega_{2i}, \dots, \omega_{mi}$ représentant les fréquences propres du système d'EDP sont appelés *paramètres de raideur*. Puisqu'on souhaite faire coïncider $\mathbf{F}(t)$ avec $\mathbf{y}(t)$ en t_n et t_{n+1} , $\mathbf{y}(t_n)$ et $\mathbf{y}(t_{n+1})$ s'écrivent :

$$\mathbf{y}_n = \mathbf{y}(t_n) = (\mathbf{I} - e^{\Omega_1 t_n})\mathbf{a} - (\mathbf{I} - e^{-\Omega_2 t_n})\mathbf{b} + \mathbf{c}, \quad (2.27)$$

$$\mathbf{y}_{n+1} = \mathbf{y}(t_{n+1}) = (\mathbf{I} - e^{\Omega_1 t_{n+1}})\mathbf{a} - (\mathbf{I} - e^{-\Omega_2 t_{n+1}})\mathbf{b} + \mathbf{c}. \quad (2.28)$$

De même on fait coïncider $\mathbf{F}^{(1)}(t)$ avec $\mathbf{y}'(t)$ (soit avec $\mathbf{H}(t, \mathbf{y})$) et, $\mathbf{F}^{(2)}(t)$ -on adopte la notation $\mathbf{F}^{(n)}(t) = \frac{d^n}{dt^n} \mathbf{F}(t)$ - avec $\mathbf{H}^{(1)}(t, \mathbf{y})$; ce qui permet d'obtenir les relations suivantes

$$\mathbf{H}_n = -\Omega_1 e^{\Omega_1 t_n} \mathbf{a} - \Omega_2 e^{-\Omega_2 t_n} \mathbf{b}, \quad (2.29)$$

$$\mathbf{H}_n^{(1)} = -\Omega_1^2 e^{\Omega_1 t_n} \mathbf{a} + \Omega_2^2 e^{-\Omega_2 t_n} \mathbf{b}. \quad (2.30)$$

Les relations (2.29) et (2.30) permettent de déduire les deux égalités suivantes :

$$e^{\Omega_1 t_n} \mathbf{a} = -\frac{\mathbf{H}_n^{(1)} + \Omega_2 \mathbf{H}_n}{\Omega_1(\Omega_1 + \Omega_2)}, \quad (2.31)$$

$$e^{-\Omega_2 t_n} \mathbf{b} = \frac{\mathbf{H}_n^{(1)} - \Omega_1 \mathbf{H}_n}{\Omega_2(\Omega_1 + \Omega_2)}. \quad (2.32)$$

En utilisant ces deux dernières équations dans (2.27) et (2.28), on montre que la solution $\mathbf{y}(t_{n+1})$ s'obtient à partir de $\mathbf{y}(t_n)$ par la relation de récurrence suivante :

$$\mathbf{y}_{n+1} = \mathbf{y}_n + \mathbf{R}\mathbf{H}_n + \mathbf{S}\mathbf{H}_n^{(1)}. \quad (2.33)$$

où \mathbf{R} et \mathbf{S} sont des matrices diagonales qui s'écrivent en fonction des paramètres de raideurs comme

$$\mathbf{R} = \Omega_2 \mathbf{\Theta} - \Omega_1 \mathbf{\Xi}, \quad \mathbf{S} = \mathbf{\Theta} + \mathbf{\Xi}, \quad (2.34)$$

avec $\mathbf{\Theta}$ et $\mathbf{\Xi}$ des matrices diagonales dont les éléments diagonaux sont donnés par

$$\Theta_i = \frac{e^{\omega_{1i} h} - 1}{\omega_{1i} (\omega_{1i} + \omega_{2i})}, \quad (2.35)$$

$$\Xi_i = \frac{e^{-\omega_{2i} h} - 1}{\omega_{2i} (\omega_{1i} + \omega_{2i})}. \quad (2.36)$$

On montre que les paramètres de raideur ω_{1i} et ω_{2i} sont obtenus grâce aux relations

$$\omega_{1i} = \frac{1}{2} \left(-D_i + \sqrt{D_i^2 + 4E_i} \right), \quad (2.37)$$

$$\omega_{2i} = \omega_{1i} + D_i, \quad (2.38)$$

avec

$$D_i = \frac{H_{ni} H_{ni}^{(3)} - H_{ni}^{(1)} H_{ni}^{(2)}}{H_{ni}^{(1)} H_{ni}^{(1)} - H_{ni} H_{ni}^{(2)}}, \quad i = 1, \dots, m; \quad (2.39)$$

$$E_i = \frac{H_{ni}^{(1)} H_{ni}^{(3)} - H_{ni}^{(2)} H_{ni}^{(2)}}{H_{ni}^{(1)} H_{ni}^{(1)} - H_{ni} H_{ni}^{(2)}}, \quad i = 1, \dots, m. \quad (2.40)$$

L'erreur de troncature locale en $t = t_{n+1}$ est définie comme la différence entre la solution exacte en t_{n+1} et la solution numérique obtenue par la relation

de récurrence. En supposant que la solution en $t = t_n$ est exacte, c'est-à-dire que $y(t_n) = y_n$, l'erreur de troncature en $t = t_{n+1}$ est donnée par :

$$\begin{aligned} \mathbf{T}_{n+1} = & \frac{h^5}{5} [\mathbf{H}_n^{(4)} + (\Omega_2^3 - \Omega^2 \Omega_1 + \Omega_2 \Omega_1^2 - \Omega_1^3) \mathbf{H}_n^{(1)} \\ & - \Omega_1 \Omega_2 (\Omega_1^2 - \Omega_1 \Omega_2 + \Omega_2^2) \mathbf{H}_n^{(0)}] + \mathcal{O}(h^6). \end{aligned} \quad (2.41)$$

L'évaluation de \mathbf{T}_{n+1} permet de contrôler le pas de propagation. En ce qui nous concerne, le pas est auto-ajusté dans le programme en imposant la condition $10^{-16} \leq |T_n| \leq 10^{-12}$. Concrètement, le pas de propagation est multiplié par 1.25 lorsque $10^{-16} \geq |T_n|$, et pour $|T_n| \geq 10^{-12}$, le pas est divisé par 1.25.

Lorsque l'EDP à intégrer est sous la forme (2.12), la solution donnée par l'équation (2.33) ne requiert que des produits matrices-vecteurs à chaque pas d'intégration. C'est pourquoi la méthode de Fatunla est dite explicite. En ce qui concerne la stabilité de la méthode, Fatunla [77] montre que la méthode est L-stable. Le schéma est donc aussi stable qu'une méthode implicite.

2.4.2 Résultats et discussion

Nous présentons ici quelques résultats qui nous ont permis d'une part de valider l'approche et d'autre part d'étudier l'ordre de précision de la méthode de Fatunla.

Sur la figure 2.1, nous présentons l'évolution de la population dans l'état initial, pour un modèle atomique 1D d'un électron dans un puits de potentiel gaussien, en interaction avec un champ électromagnétique. Le modèle est présenté plus en détail dans le chapitre suivant. Nous précisons juste que nous utilisons une méthode spectrale avec une base de fonctions d'Hermite. Il convient également de préciser que l'amplitude du champ électromagnétique que nous définissons dans la suite, est de la forme $A_0 f(t) \sin(\omega t + \phi)$ où l'enveloppe $f(t)$ justifie les valeurs négatives du temps sur la figure 2.1. Nous comparons les résultats obtenus d'une part en résolvant l'ESDT directement dans la base des fonctions d'Hermite avec la méthode explicite de Fatunla, et d'autre part en résolvant l'ESDT dans la base atomique (où on peut rendre le problème moins raide en éliminant les coefficients associés aux valeurs propres élevées) à l'aide d'une méthode ERK d'ordre 6 à pas variable. Notons que cette dernière approche a été utilisée par Lagmago [166] et Fomouo [29] dans le cadre

de l'étude de l'interaction de l'atome d'hélium avec un champ électromagnétique. Dans ce cas, les représentations de Schrödinger et d'interaction ont été testées. Il est important de mentionner que travailler dans la base atomique nécessite au préalable la diagonalisation de la matrice associée à l'hamiltonien atomique avant d'initier la propagation. Cette opération peut s'avérer numériquement coûteuse lorsque les matrices à manipuler sont de très grandes tailles. La jauge vitesse - nous y reviendrons dans les prochains chapitres - est utilisée

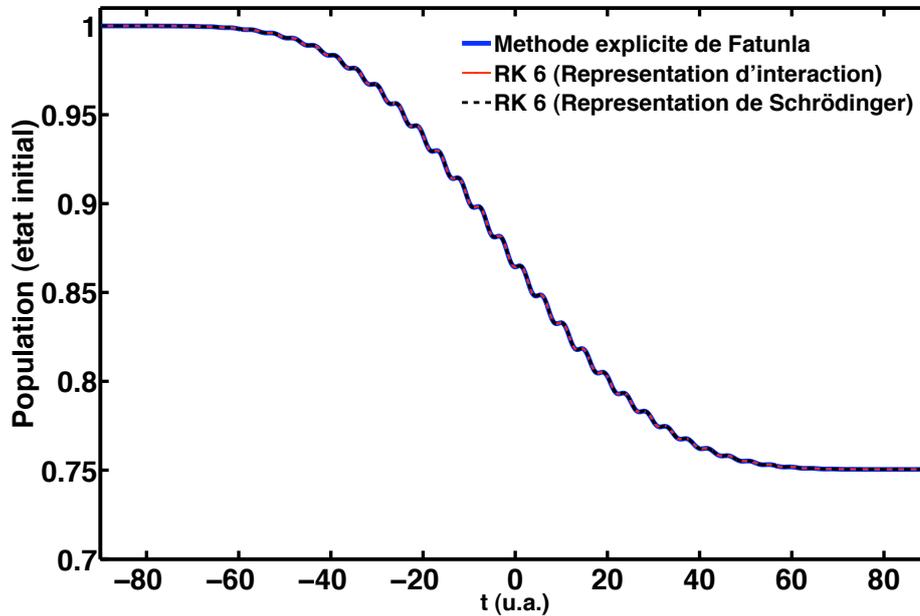


FIGURE 2.1 – Evolution de la population dans l'état initial obtenue avec la méthode explicite de Fatunla dans la base des polynômes d'Hermite d'une part et avec une méthode ERK d'ordre 6 à pas variables dans la base atomique, en représentations d'interaction et de Schrödinger d'autre part. Nous simulons l'interaction d'un système atomique à un électron dans un puits de potentiel gaussien unidimensionnel de forme $-V_0 e^{-\beta x^2}$. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{13}$ W/cm², de fréquence $\omega = 0.7$ u.a et de durée totale égale à 20 cycles optiques.

pour décrire l'interaction du système avec le champ. Nous utilisons une base

de 500 fonctions d'Hermite de paramètre $\alpha = 0.01$. Les paramètres du puits de potentiel gaussien de forme $-V_0 e^{-\beta x^2}$ sont $V_0 = 1$ u.a. et $\beta = 1$ u.a.. Dans ces conditions, le système possède un seul état lié d'énergie $E_0 = -0.477$ u.a. dans lequel l'électron se trouve initialement. Nous utilisons un champ d'intensité $I = 10^{13}$ W.cm⁻², de fréquence $\omega = 0.7$ u.a. et de durée totale égale à 20 cycles optiques. L'accord entre les trois méthodes permet de valider l'approche de Fatunla.

Sur la figure 2.2, nous présentons la probabilité d'ionisation totale du système en fonction de l'intensité du champ pour une fréquence $\omega = 0.7$ u.a. et une durée totale d'interaction égale à 20 cycles optiques. Nous utilisons une base de 500 fonctions d'Hermite de paramètre $\alpha = 0.01$. Les paramètres du puits de potentiel gaussien sont $V_0 = 1$ u.a. et $\beta = 1$ u.a. Nous faisons varier l'intensité de $I = 5 \times 10^{13}$ W.cm⁻² à $I = 1 \times 10^{16}$ W.cm⁻². Nous comparons comme dans le cas précédent les résultats obtenus avec la méthode explicite de Fatunla dans la base atomique et la méthode ERK d'ordre 6 dans la base atomique (représentation de Schrödinger et représentation d'interaction). L'accord entre les résultats pour différentes valeurs d'intensité permet de valider la précision de l'approche. Aux basses intensités $I \lesssim 5 \times 10^{13}$ W.cm⁻², domaine où la théorie des perturbations à l'ordre le plus bas est valable, le système est ionisé par absorption d'un photon. La probabilité d'ionisation est proportionnelle à l'intensité pic du champ comme on pourrait s'y attendre. Pour des valeurs d'intensités plus élevées, l'ionisation multiphotonique - processus non linéaire - devient important, puis s'en suit la zone de saturation où l'ionisation est quasi-totale.

Sur la figure 2.3, nous comparons l'évolution du pas d'intégration entre l'approche de Fatunla dans la base de fonctions d'Hermite et la méthode ERK d'ordre 6 dans la base atomique en représentation d'interaction. Les paramètres du champ sont $I = 10^{13}$ W.cm⁻², de fréquence $\omega = 0.7$ u.a. et la durée totale du champ est égale à 20 cycles optiques. Nous utilisons les mêmes paramètres pour le potentiel gaussien et pour la base que ceux pour la figure 2.1. Comme nous l'avons déjà mentionné, le pas d'intégration de Fatunla est auto-ajusté dans le programme en fonction de l'erreur de troncature donnée par l'équation (2.41) et la condition $10^{-16} \leq |T_n| \leq 10^{-12}$. Pour la méthode ERK d'ordre 6, le pas est ajusté suivant la méthode décrite dans la référence [166]. Dans ce dernier cas, le pas d'intégration reste pratiquement constant (de l'ordre de 0.02) tout au long de l'interaction. Alors qu'avec la méthode

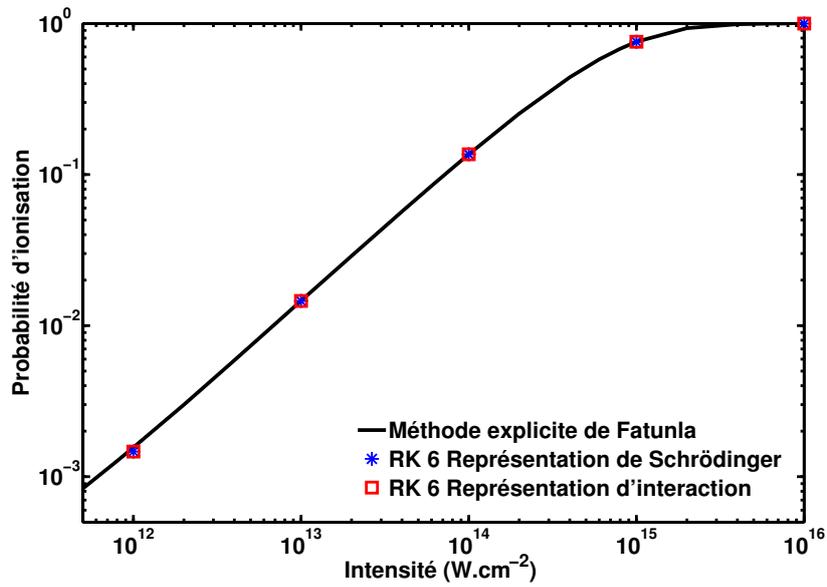


FIGURE 2.2 – Probabilité d'ionisation totale obtenue avec la méthode explicite de Fatunla dans la base des polynômes d'Hermite d'une part et une méthode ERK d'ordre 6 dans la base atomique, en représentations d'interaction et de Schrödinger d'autre part. Nous simulons l'interaction d'un modèle atomique unidimensionnel d'un système à un électron dans un puits de potentiel gaussien. Nous considérons un champ de fréquence $\omega = 0.7$ u.a. et de durée totale égale à 20 cycles optiques.

de Fatunla, le pas initialement fixé à 0.001, croît très vite pour se stabiliser à 0.3 après quelques cycles optiques. Le pas d'intégration de Fatunla est à chaque instant, au moins dix fois plus grand que le pas ERK tout au long de la propagation.

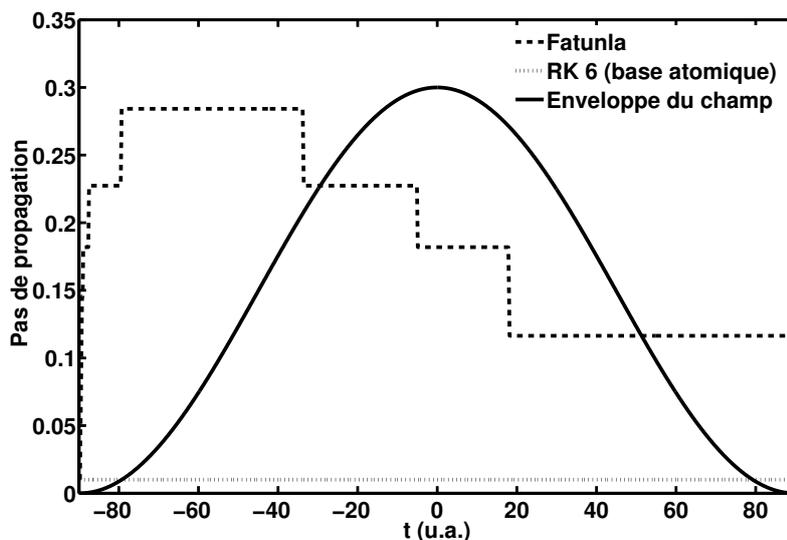


FIGURE 2.3 – Evolution du pas d'intégration obtenu en utilisant la méthode explicite de Fatunla et la méthode ERK d'ordre 6 dans la base atomique, en représentation d'interaction. Nous utilisons un champ d'intensité $I = 10^{13} \text{ W/cm}^2$, de fréquence $\omega = 0.7 \text{ a.u}$ et de durée totale égale à 20 cycles optiques.

Ces résultats montrent que l'utilisation de la méthode de Fatunla présente plusieurs avantages. Parce qu'elle est *L-stable*, on peut résoudre l'ESDT directement dans la base initiale avec une méthode qui ne requiert que des produits matrices-vecteurs, sans avoir à passer dans la base atomique. Cet atout sera notamment exploité pour la méthode de la coordonnée dépendant du temps (MCDT) que nous présentons dans la suite et pour laquelle il n'est pas envisageable de résoudre l'ESDT dans la base atomique. Il convient de souligner que la méthode RK6 que nous avons présentée est instable lorsqu'elle est utilisée pour résoudre l'ESDT dans la base initiale. Cependant, l'inconvénient majeur de la méthode explicite de Fatunla réside dans le fait qu'elle ne conserve pas

parfaitement la norme. Dans le cas précis présenté sur la figure 2.1, la norme est égale à 0.99999969904 à la fin de la propagation alors qu'elle est conservée avec 10 chiffres avec la méthode ERK d'ordre 6. De façon générale, la norme n'est conservée qu'avec 5 ou 6 chiffres après la virgule. Ce degré de précision est suffisant pour la plupart des cas que nous étudions. Mais lorsque la précision recherchée devient inférieure à 10^{-5} , il convient d'utiliser d'autres méthodes que nous présentons dans la suite. Il est important de noter que cette perte de précision est un artefact lié à l'utilisation de la méthode et survient quelques itérations après le début de la propagation. Pour l'illustrer, nous présentons sur la figure 2.4 la manifestation de cette perte de précision en fonction de différentes contraintes imposées sur l'ajustement du pas de propagation. Il convient de souligner que la perte de précision que nous souhaitons mettre en exergue sur la figure 2.4 ne se trouve pas dans les sauts observés après quelques unités atomiques et qui représentent des fluctuations autour de la valeur finale de la norme, mais qu'il s'agit bien de la sévère perte de précision (10^{-16} à 10^{-4}) au début de l'interaction. Par ailleurs, bien que la méthode soit adaptée aux EDP *raides*, le pas de propagation décroît néanmoins avec la dimension de la base, mais moins vite qu'avec un schéma explicite de RK par exemple.

2.5 Méthode d'Arnoldi

2.5.1 Présentation de la méthode

Dans cette partie, nous présentons la méthode d'Arnoldi qui utilise la technique de projection d'une matrice sur un sous-espace de Krylov [81]. Cette méthode a été initialement développée par Arnoldi [82] pour le calcul des valeurs propres des matrices de grande dimension. Elle a ensuite été généralisée [83, 84] pour la résolution de EDP de la forme (2.12).

Dans la suite, nous utilisons cette méthode essentiellement pour l'étude de l'ionisation de l'hydrogène atomique à basse fréquence et haute intensité. Les fonctions de base (les fonctions sturmiennes) sont non orthogonales. La matrice de recouvrement associée est définie positive. En utilisant la décomposition de Cholesky $\mathbf{S} = \mathbf{U}^\dagger \mathbf{U}$, on peut réécrire l'équation (2.12) dans une base orthogonale. Ainsi, en posant $\tilde{\mathbf{y}} = \mathbf{U}\mathbf{y}$, l'ESDT peut s'écrire

$$\tilde{\mathbf{y}}'(t) = -i\hat{\mathbf{H}}(t)\tilde{\mathbf{y}}(t), \quad (2.42)$$

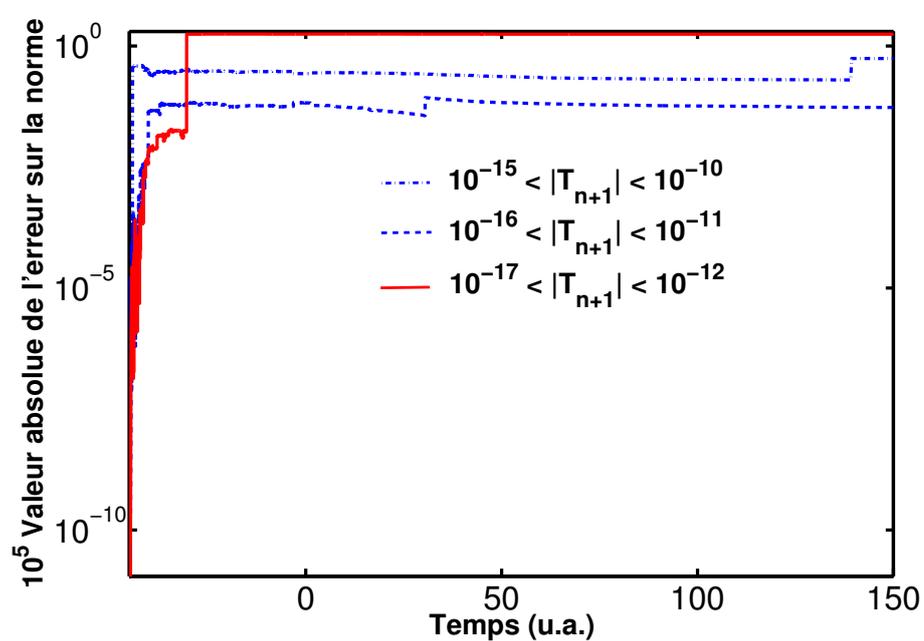


FIGURE 2.4 – Illustration de la perte de précision dans la conservation de la norme dans l'approche de Fatunla, en fonction de différentes contraintes imposées sur l'ajustement du pas de propagation.

où $\hat{\mathbf{H}} = (\mathbf{U}^\dagger)^{-1} \mathbf{H} \mathbf{U}^{-1}$.

Si on considère un intervalle de temps δt suffisamment petit, on peut supposer que l'hamiltonien varie peu sur cet intervalle. La solution de l'équation (2.42) est, dans ces conditions, donnée par

$$\tilde{\mathbf{y}}(t + \delta t) = e^{-i\hat{\mathbf{H}}(t)\delta t} \tilde{\mathbf{y}}(t). \quad (2.43)$$

Si $\hat{\mathbf{H}}$ est diagonalisable c'est-à-dire si on peut l'écrire $\hat{\mathbf{H}} = \mathbf{E} \mathbf{\Lambda} \mathbf{E}^{-1}$, où $\mathbf{\Lambda}$ est une matrice diagonale dont les éléments diagonaux sont les valeurs propres λ_i de $\hat{\mathbf{H}}$ et \mathbf{E} est la matrice dont les colonnes sont les vecteurs propres de $\hat{\mathbf{H}}$ correspondant aux valeurs propres λ_i , alors l'équation (2.43) s'écrit

$$\tilde{\mathbf{y}}(t + \delta t) = \mathbf{E} e^{-i\mathbf{\Lambda}(t)\delta t} \mathbf{E}^{-1} \tilde{\mathbf{y}}(t). \quad (2.44)$$

Cependant, la diagonalisation directe de $\hat{\mathbf{H}}$ peut être numériquement coûteuse lorsque la taille de la base devient grande.

Pour contourner cette difficulté, on utilise le développement de Taylor de l'exponentielle apparaissant dans l'équation (2.43). La solution s'écrit

$$\tilde{\mathbf{y}}(t + \delta t) = \left(\mathbf{I} - i\delta t \hat{\mathbf{H}}(t) + \dots + \frac{(-i\delta t)^k}{k!} \hat{\mathbf{H}}^k(t) + \dots \right) \tilde{\mathbf{y}} \quad (2.45)$$

Pour évaluer le produit $e^{-i\hat{\mathbf{H}}\delta t} \tilde{\mathbf{y}}$, nous construisons le sous-espace de Krylov suivant

$$K_{m+1} = \text{span}\{\tilde{\mathbf{y}}, \hat{\mathbf{H}}\tilde{\mathbf{y}}, \dots, \hat{\mathbf{H}}^m \tilde{\mathbf{y}}\}. \quad (2.46)$$

Le sous-espace de Krylov ainsi obtenu n'étant pas orthogonal, la procédure d'orthogonalisation de Gram-Schmidt des vecteurs $\{\tilde{\mathbf{y}}, \hat{\mathbf{H}}\tilde{\mathbf{y}}, \dots, \hat{\mathbf{H}}^m \tilde{\mathbf{y}}\}$ est utilisée pour construire la base orthonormale $\{\mathbf{q}_0, \mathbf{q}_1, \dots, \mathbf{q}_m\}$. Pour ce faire, on définit le vecteur initial orthogonal $\mathbf{q}_0 = \tilde{\mathbf{y}}/|\tilde{\mathbf{y}}|$, dont la norme est donnée par $|\tilde{\mathbf{y}}| = \sqrt{\tilde{\mathbf{y}}^\dagger \cdot \tilde{\mathbf{y}}}$. Les vecteurs \mathbf{q}_k sont obtenus en calculant $\hat{\mathbf{H}}\mathbf{q}_{k-1}$ et en procédant à son orthonormalisation par rapport aux vecteurs $\mathbf{q}_0, \dots, \mathbf{q}_{k-1}$. Si nous notons \mathbf{Q} la matrice formée des $m+1$ vecteurs colonnes $(\mathbf{q}_0, \dots, \mathbf{q}_m)$, l'opération précédente peut s'écrire comme

$$\hat{\mathbf{H}}\mathbf{Q} = \mathbf{Q}\mathbf{h} \quad \Rightarrow \quad \mathbf{h} = \mathbf{Q}^\dagger \hat{\mathbf{H}}\mathbf{Q} \quad \text{ou} \quad \hat{\mathbf{H}} = \mathbf{Q}\mathbf{h}\mathbf{Q}^\dagger. \quad (2.47)$$

La méthode permet ainsi de construire une matrice réduite \mathbf{h} , représentation de l'hamiltonien total $\hat{\mathbf{H}}$ dans le sous-espace de Krylov, et d'obtenir simultanément les vecteurs de Krylov $\mathbf{q}_0, \dots, \mathbf{q}_m$. De façon générale, la méthode permet

de transformer une matrice pleine non hermitienne en une matrice de Hessenberg supérieure réduite. Dans le cas particulier de matrices hermitiennes, on obtient une matrice réduite tridiagonale et symétrique.

En intégrant l'équation (2.47) dans l'équation (2.44), on obtient

$$\tilde{\mathbf{y}}(t + \delta t) = \mathbf{Q} \left(\mathbf{I} - \imath \delta t \mathbf{h}(t) + \dots + \frac{(-\imath \delta t)^k}{k!} \mathbf{h}^k(t) + \dots \right) \mathbf{Q}^\dagger \tilde{\mathbf{y}}, \quad (2.48)$$

soit

$$\mathbf{d}(t + \delta t) = \mathbf{Q} e^{-\imath \mathbf{h} \delta t} \mathbf{Q}^\dagger \mathbf{d}(t). \quad (2.49)$$

La matrice \mathbf{h} est tridiagonale et de dimension inférieure à 100×100 pour les cas que nous étudions. Le calcul de l'exponentielle de l'équation (2.49) par diagonalisation directe est, pour cette dimension, numériquement facile grâce aux routines LAPACK [88]. La méthode ainsi décrite ne nécessite que des produits matrices-vecteurs pour construire le sous-espace de Krylov. Par ailleurs, elle conserve la norme par construction, au vu de l'équation (2.43). Dans ces conditions, la notion d'erreur de troncature locale est difficile à définir. Ceci nous impose l'utilisation d'un pas de propagation dans le temps fixe pour la résolution de l'ESDT. De l'équation (2.43) ou de l'équation 2.49, on déduit que la fonction de stabilité est de la forme $R(\lambda \delta t) = e^{\lambda \delta t}$ et $|R| = 1$. La méthode d'Arnoldi est donc *L-stable*.

La procédure d'orthogonalisation de Gram-Schmidt [81] est décrite par l'algorithme suivant :

Algorithme 2 Procédure standard d'orthogonalisation de Gram-Schmidt

- 1: $\tilde{\mathbf{y}}_0 = \tilde{\mathbf{y}}(t) / \sqrt{\tilde{\mathbf{y}}(t)^\dagger \cdot \tilde{\mathbf{y}}(t)}$
 - 2: **pour** $j = 0, m$ **faire**
 - 3: **pour** $i = 0, j$ **faire**
 - 4: $h_{ij} = \mathbf{q}_i^\dagger \cdot (\widehat{\mathbf{H}} \cdot \mathbf{q}_j)$
 - 5: **fin pour**
 - 6: $\mathbf{v}_j = (\widehat{\mathbf{H}} \cdot \mathbf{q}_j) - \sum_{i=0}^j h_{ij} \mathbf{q}_i$
 - 7: $h_{j+1,j} = \sqrt{\mathbf{v}_j^\dagger \cdot \mathbf{v}_j}$
 - 8: **si** $h_{j+1,j} = 0$ **alors** Stop
 - 9: $\mathbf{q}_{j+1} = \mathbf{v}_j / h_{j+1,j}$
 - 10: **fin pour.**
-

Dans notre cas, quelques modifications ont été apportées à la procédure d'orthogonalisation de Gram-Schmidt. Après l'évaluation du vecteur de Krylov \mathbf{q}_{j+1} (ligne 9), nous nous assurons que la norme est unitaire en vérifiant l'orthogonalité de ce vecteur avec ceux déjà calculés $\mathbf{q}_i, i = 1, 2, \dots, j$. Si tel n'est pas le cas, nous procédons à une nouvelle orthogonalisation de Gram-Schmidt. La non-orthogonalité de \mathbf{q}_{j+1} avec un ou plusieurs des vecteurs $\mathbf{q}_i, i = 1, 2, \dots, j$ se traduit par la condition $h_{j+1,j} = 0$. Une difficulté liée à l'orthogonalisation des vecteurs de Krylov vient du fait que l'état initial du système est en effet un état propre du hamiltonien atomique. Les vecteurs du sous-espace de Krylov K_{m+1} obtenues par application successive du hamiltonien, ne peuvent pas être linéairement indépendants. Pour contourner cette difficulté, le vecteur $\tilde{\mathbf{y}}(t)$ est modifié en $\tilde{\mathbf{y}}(t) + \boldsymbol{\rho}$, où $\boldsymbol{\rho}$ est un vecteur aléatoire d'éléments $\rho_i < 10^{-10}$. Une deuxième difficulté est la détermination de la dimension minimale du sous-espace de Krylov à utiliser pour la propagation. Nous verrons dans la suite que les résultats physiques peuvent être totalement erronés si la dimension du sous-espace est insuffisante.

2.5.2 Résultats et discussion

Nous présentons quelques résultats qui valident l'approche et la précision de la méthode d'Arnoldi. Nous présentons également des tests qui montrent que, contrairement à ce qu'on a souvent laissé croire à propos de la méthode d'Arnoldi, celle-ci doit être utilisée avec quelques précautions. Tous les résultats présentés dans cette sous-section sont issus des simulations de l'interaction de l'hydrogène atomique avec un champ électromagnétique.

Nous présentons deux graphes sur la figure 2.5. Sur le premier, nous comparons les distributions en énergie du PO ionisé obtenues par la méthode explicite de Fatunla, et par la méthode d'Arnoldi avec un sous-espace de Krylov de dimension $N_{Krylov} = 5$. Nous considérons l'interaction de l'hydrogène atomique avec un champ laser d'intensité $I = 10^{14}$ W/cm², de fréquence $\omega = 0.7$ u.a. et de durée 10 cycles optiques. Une base de 100 fonctions sturmiennes (nous présentons ces fonctions dans la suite) de paramètre $\kappa = 0.3$ par moment angulaire et 10 moments angulaires sont utilisés pour décrire la dynamique du système. Le spectre obtenu par la méthode d'Arnoldi est en parfait accord avec celui obtenu grâce à l'approche explicite de Fatunla. Cependant sur le second graphe, force est de constater que pour une dimension $N_{Krylov} = 4$,

le spectre est totalement erroné et quasi-nul. La dimension $N_{Krylov} = 5$ est pour ce cas, la dimension critique du sous-espace de Krylov nécessaire pour reproduire intégralement le spectre.

Pour analyser ce fait dont il n'est fait écho, à notre connaissance, nulle part dans la littérature, nous avons étudié l'évolution des valeurs propres du hamiltonien réduit. Nous représentons pour $N_{Krylov} = 5$, sur la figure 2.6 l'évolution dans le temps des 3 premières valeurs propres et de la dernière valeur propre du hamiltonien réduit h défini par l'équation (2.47). De façon générale, les première et dernière valeurs propres de h coïncident respectivement avec la première et la dernière des valeurs propres du hamiltonien total H à $t = 0$. Dans le cas présenté sur la figure 2.6, les 3 autres valeurs propres sont comprises entre ces 2 valeurs extrêmes. Hormis la première valeur propre qui demeure pratiquement égale à -0.5 u.a., les autres valeurs propres sont modifiées. L'une d'elles, dont la valeur initiale est de l'ordre de 6 u.a., converge rapidement vers 0.2 u.a. qui correspond à la conservation d'énergie. Mais, en utilisant un sous-espace de Krylov de dimension $N_{Krylov} = 4$, aucune des valeurs propres intermédiaires ne converge vers 0.2 u.a.. On obtient, comme le montre la figure 2.5, un spectre erroné et quasi-nul. Ce cas simple permet de conclure que pour reproduire la distribution en énergie du paquet d'onde ionisé, il faut que la dimension N_{Krylov} du sous-espace de Krylov soit telle que le spectre de la matrice réduite contienne des valeurs propres qui convergent vers les positions de pics dans le spectre. Ce qui suggère que la méthode d'Arnoldi doit être utilisée avec beaucoup de précautions, d'autant plus qu'il n'existe pas de méthode qui permette de déterminer a priori la dimension minimale du sous-espace de Krylov.

Pour compléter cette analyse, nous montrons sur les graphes de la figure 2.7 l'influence du choix du paramètre non linéaire des sturmiennes sur la dimension critique du sous-espace de Krylov à utiliser. Hormis le paramètre κ , les paramètres restent identiques à ceux utilisés pour la figure 2.7. Nous montrons sur le premier graphe, qu'en utilisant $\kappa = 0.4$ au lieu de $\kappa = 0.3$, nous perdons le spectre pour $N_{Krylov} = 5$. La deuxième figure montre qu'une dimension minimale $N_{Krylov} = 8$ est nécessaire pour reproduire le spectre lorsque $\kappa = 0.4$. En effet, comme nous le montrerons par la suite, augmenter le paramètre non-linéaire κ des sturmiennes, revient à contracter celles-ci et à augmenter de ce fait leur fréquence d'oscillation. Ce qui a pour conséquence de générer dans le spectre des valeurs propres plus élevées, même si le nombre de

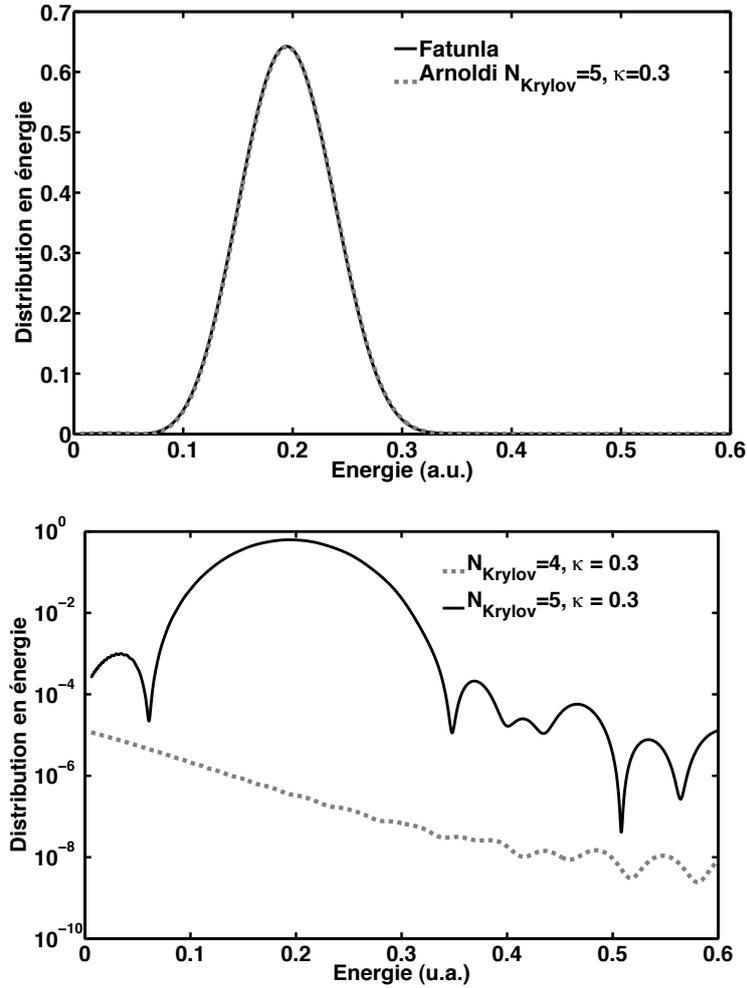


FIGURE 2.5 – Distributions en énergie obtenues avec la méthode explicite de Fatunla et la méthode d’Arnoldi. Nous considérons $I = 10^{14}$ W/cm², de fréquence $\omega = 0.7$ u.a. et de durée 10 cycles optiques. 100 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ par moment angulaire sont utilisées pour un nombre total de 10 moments angulaires. Sur la première figure, nous montrons que nous obtenons la même distribution en énergie avec les deux méthodes pour $N_{Krylov} = 5$. Sur la deuxième figure, nous montrons que spectre devient erroné pour $N_{Krylov} = 4$.

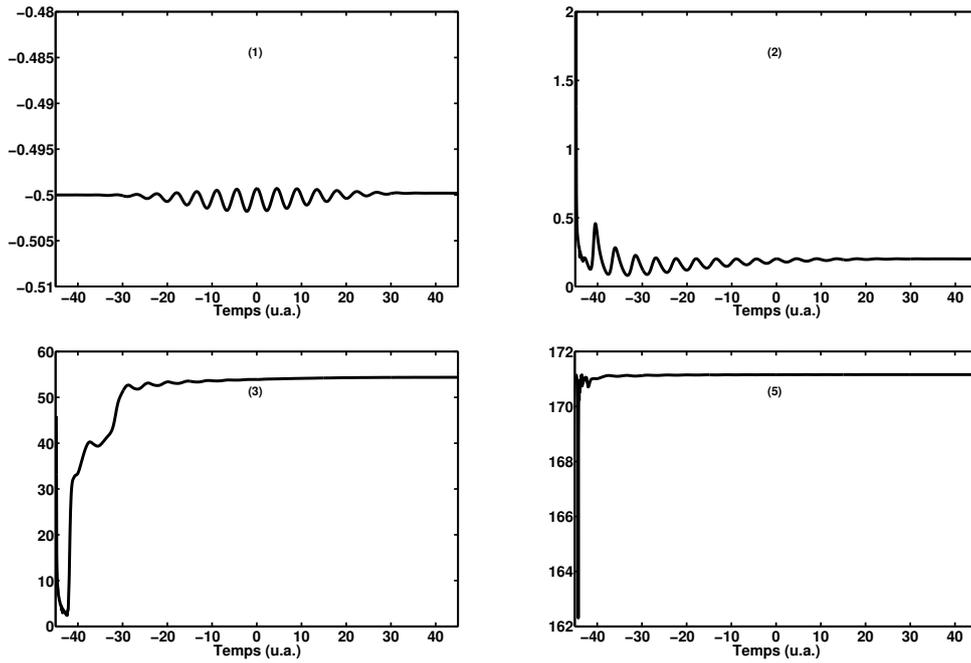


FIGURE 2.6 – Evolution dans le temps des 3 premières valeurs propres du hamiltonien réduit h et de la dernière, lorsque $N_{Krylov} = 5$. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{14}$ W/cm², de fréquence $\omega = 0.7$ u.a. et de durée 10 cycles optiques. Pour la base spectrale, nous utilisons 100 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ par moment angulaire pour 10 moments angulaires. La deuxième valeur propre converge vers 0.2 qui correspond à la valeur d'énergie la plus probable dans la conservation d'énergie.

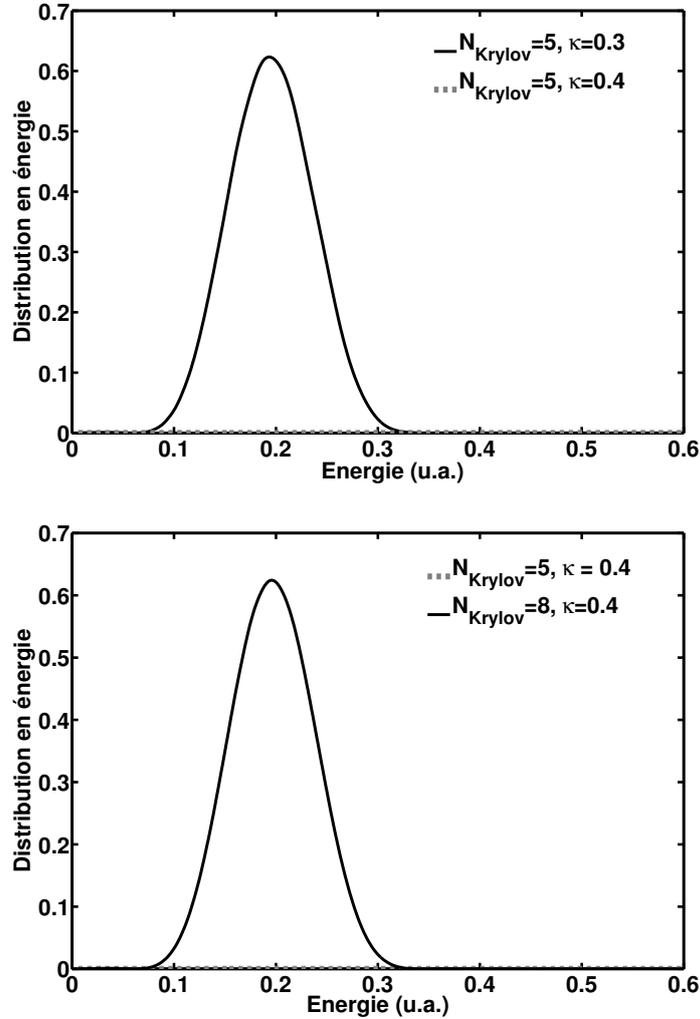


FIGURE 2.7 – Influence du paramètre κ sur la dimension critique du sous-espace de Krylov. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$, de fréquence $\omega = 0.7 \text{ u.a.}$ et de durée 10 cycles optiques. Pour la base nous utilisons 100 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ par moment angulaire et 10 moments angulaires. Sur la première figure, on reproduit le spectre pour $N_{Krylov} = 5$ et $\kappa = 0.3$, alors que le spectre est erroné $\kappa = 0.4$. Nous montrons sur la deuxième figure, qu'il faut au minimum $N_{Krylov} = 8$ pour reproduire le spectre avec $\kappa = 0.4$.

fonctions de base reste inchangé. Etant donné que le spectre de l'hamiltonien réduit contient nécessairement la plus petite valeur propre de l'hamiltonien total - qui est constante - et la plus haute valeur propre du spectre, toute la distribution du spectre de h est déplacée vers le haut, de sorte qu'aucune valeur ne converge plus vers 0.2. Il devient important dans ce cas, d'augmenter la dimension du sous-espace de Krylov afin d'avoir une densité suffisante de valeurs propres dans le spectre de sorte que l'une d'entre elles soit assez proche de 0.2 afin d'y converger.

Cette interprétation est confirmée sur les graphes de la figure 2.8 sur lesquels nous montrons qu'en augmentant le nombre de fonctions de base, il est nécessaire d'augmenter la dimension du sous-espace de Krylov pour les mêmes raisons que nous venons d'évoquer. Dans le cas particulier du deuxième graphe où nous reproduisons les résultats *benchmark* de Grum-Grzhimailo et al. [120] (fréquence $\omega = 0.114$ u.a.), il est nécessaire d'utiliser un sous-espace de Krylov de dimension plus grande pour deux raisons. La longue durée d'interaction impose d'utiliser une base plus grande pour éviter les problèmes de réflexions du PO aux frontières. Augmenter la taille de la base implique malheureusement des valeurs propres plus élevées et par corollaire un sous-espace de Krylov de dimension plus grande comme nous l'avons déjà souligné. D'autre part, en régime basse fréquence, le spectre est généralement plus structuré qu'à haute fréquence. Il devient alors nécessaire d'avoir un nombre suffisant de valeurs propres de h pour que tous les pics du spectre soient reproduits, et donc un sous-espace de Krylov de plus grande dimension. En effet, certains pics de la distribution en énergie disparaissent lorsque la dimension du sous-espace de Krylov utilisée n'est pas suffisante pour reproduire entièrement le spectre alors que la norme reste parfaitement conservée.

2.6 Méthode Predictor-corrector

2.6.1 Présentation de la méthode

La méthode predictor-corrector (PC) est une combinaison d'une méthode explicite ou d'une méthode diagonalement implicite avec une méthode implicite ou diagonalement implicite selon les cas. Le principe général consiste à utiliser la première approche avec un pas d'intégration h relativement grand pour prédire la solution au temps $t+h$, et ensuite à utiliser une méthode plus

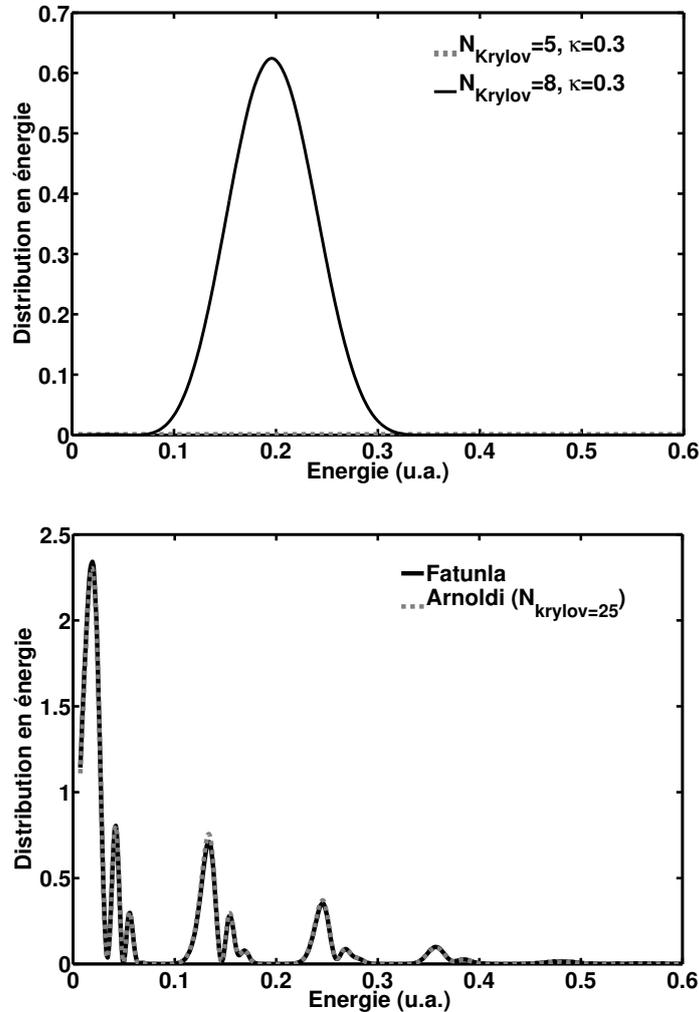


FIGURE 2.8 – Evolution de la dimension critique du sous-espace de Krylov avec la taille de la base. Sur la premier graphe, $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$, la fréquence $\omega = 0.7 \text{ u.a.}$ pour une durée égale à 10 cycles optiques. Pour la base, 150 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ par moment angulaire sont utilisées pour 10 moments angulaires : $N_{Krylov} = 8$ est nécessaire pour reproduire le spectre. Sur le deuxième graphe, $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$, la fréquence $\omega = 0.114 \text{ u.a.}$ et une durée égale à 20 cycles optiques. 600 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ par moment angulaire sont utilisées pour 10 moments angulaires : $N_{Krylov} = 25$ est nécessaire pour reproduire le spectre obtenu avec la méthode explicite de Fatunla.

précise pour corriger la solution prédite.

La méthode PC que nous utilisons dans ce travail s'inspire des travaux de Sommeijer et Van der Houwen [85, 86]. Cette méthode combine un schéma DIRK à deux étapes (predictor) et un schéma IRK de type Radau IIA à 4 étapes d'ordre 7 (corrector) [85]. Dans notre cas, nous utilisons la méthode explicite de Fatunla comme predictor. Rappelons que la forme générale de la solution d'un schéma de type RK est donnée par

$$\mathbf{y}_{\mathbf{n}+1} = \mathbf{y}_{\mathbf{n}} + h \sum_{i=1}^s b_i \mathbf{H}(t_n + c_i h, \mathbf{Y}_i), \quad (2.50)$$

avec

$$\mathbf{Y}_i = \mathbf{y}_{\mathbf{n}} + h \sum_{j=1}^s a_{ij} \mathbf{H}(t_n + c_j h, \mathbf{Y}_j), \quad (2.51)$$

où s représente le nombre d'étapes. Utiliser une méthode IRK pour déterminer les vecteurs \mathbf{Y}_i intermédiaires revient à résoudre à chaque itération le système d'équations donné par l'équation (2.16) de dimension $m \times s$, où m est la dimension du vecteur \mathbf{y} . Pour éviter de résoudre ce système d'équations, Sommeijer et Van der Houwen [85] utilisent un processus itératif pour le calcul des vecteurs \mathbf{Y}_i . Ce processus consiste à transformer l'équation (2.16) sous la forme (en tenant compte de la forme particulière de l'équation que nous résolvons et qui est donnée par l'équation (2.15))

$$\begin{aligned} & \begin{pmatrix} \mathbf{Y}_1^{(j)} \\ \vdots \\ \mathbf{Y}_s^{(j)} \end{pmatrix} - h \begin{pmatrix} d_{11} \mathbf{H}(t_n + c_1 h) & & 0 \\ & \ddots & \\ 0 & & d_{ss} \mathbf{H}(t_n + c_s h) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{Y}_1^{(j)} \\ \vdots \\ \mathbf{Y}_s^{(j)} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathbf{y}_{\mathbf{n}} \\ \vdots \\ \mathbf{y}_{\mathbf{n}} \end{pmatrix} \\ & + h \begin{pmatrix} (a_{11} - d_{11}) \mathbf{H}(t_n + c_1 h) & \cdots & a_{1s} \mathbf{H}(t_n + c_s h) \\ \vdots & & \vdots \\ a_{s1} \mathbf{H}(t_n + c_1 h) & \cdots & (a_{ss} - d_{ss}) \mathbf{H}(t_n + c_s h) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{Y}_1^{(j-1)} \\ \vdots \\ \mathbf{Y}_s^{(j-1)} \end{pmatrix}, \end{aligned} \quad (2.52)$$

où $\mathbf{d} = \text{diag}(d_{11}, \dots, d_{ss})$ est une matrice diagonale $s \times s$ choisie de façon à assurer une convergence rapide. Le processus permet de calculer par itération les $\mathbf{Y}_k^{(j)}$, $k = 1, \dots, s$ à partir des $\mathbf{Y}_k^{(j-1)}$, $k = 1, \dots, s$, en résolvant un système de la forme :

$$[1 - h d_{ii} \mathbf{H}(t_n + c_i h)] \mathbf{Y}_k^{(j)} = \gamma, \quad (2.53)$$

où γ représente l'expression de droite de l'équation (2.52). On se ramène ainsi à s systèmes d'équations de dimension m que nous résolvons grâce à l'algorithme du gradient biconjugué (BICGSTAB) [87] avec préconditionnement du système à résoudre. En guise de rappel, l'algorithme du gradient biconjugué est un algorithme itératif qui permet de résoudre des systèmes d'équations linéaires dont la matrice est symétrique et définie positive. L'intérêt pratique du conditionnement est celui de réduire significativement le nombre d'itérations nécessaires pour atteindre la convergence. Par ailleurs, l'algorithme BIGCSTAB permet de transformer le système à résoudre en une série de produits matrices-vecteurs à effectuer.

2.6.2 Résultats et discussion

Nous avons mentionné dans la sous-section 2.4.2 que la méthode explicite de Fatunla ne conserve la norme qu'à 6 chiffres au plus après la virgule, quel que soit le pas d'intégration. Ce qui limite dès lors le niveau de précision des grandeurs physiques évaluée numériquement. La méthode predictor-corrector peut être utilisée pour améliorer la précision souhaitée.

A titre d'illustration, nous présentons sur la figure 2.9 les spectres ATI obtenus par la méthode explicite de Fatunla et par la méthode predictor-corrector. Nous considérons l'interaction du modèle 1D d'un électron dans un puits de potentiel gaussien avec un champ électromagnétique d'intensité $I = 1 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$, de fréquence $\omega = 0.5 \text{ u.a.}$ et une durée totale égale à 8 cycles optiques. Les résultats présentés ont été obtenus à l'aide de la méthode de la coordonnée dépendante du temps que nous présentons en détail dans le chapitre suivant. Nous considérons un puits de potentiel gaussien de paramètres $V_0 = 4 \text{ u.a.}$ et $\beta = 0.1 \text{ u.a.}$ Nous utilisons une base de 1500 fonctions d'Hermite de paramètre $\alpha = 0.03$. On peut observer que le spectre obtenu par la méthode de Fatunla devient bruité en dessous de 10^{-5} u.a. à cause, comme nous l'avons souligné, de la précision limitée à 6 chiffres dans la conservation de la norme. L'utilisation du PC permet d'atteindre une précision de l'ordre 10^{-12} u.a. . Il convient de mentionner que la méthode d'Arnoldi peut également être utilisée comme predictor. Mais étant donné qu'elle conserve par construction la norme et que les résultats sont précis tant que la dimension du sous-espace de Krylov est suffisante, corriger la solution devient sans intérêt.

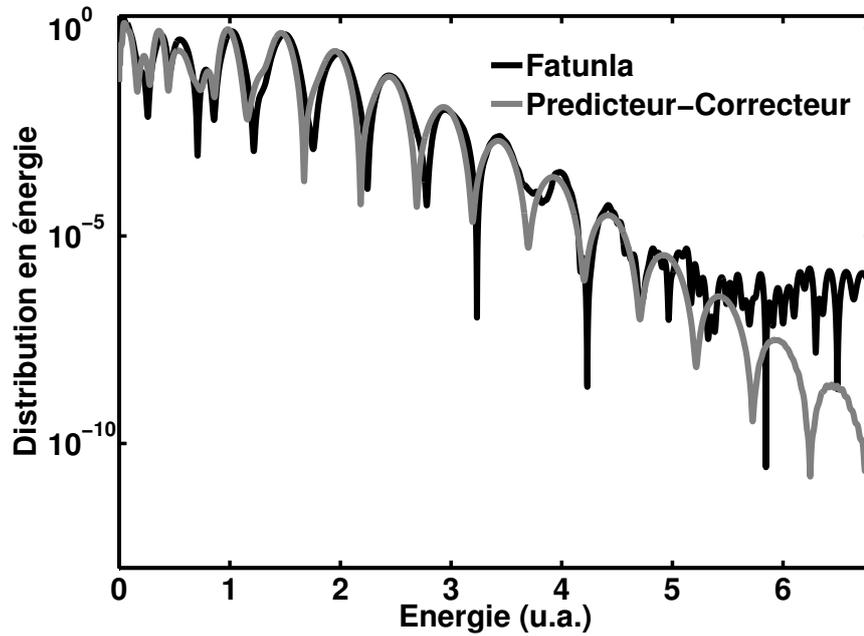


FIGURE 2.9 – Spectres ATI obtenus par la méthode explicite de Fatunla et par la méthode predictor-corrector. Nous considérons l'interaction du modèle 1D d'un électron dans un puits de potentiel gaussien avec un champ électromagnétique d'intensité $I = 1 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$, de fréquence $\omega = 0.5 \text{ u.a.}$ et une durée totale égale à 8 cycles optiques. Les paramètres du potentiel gaussien sont $V_0 = 4 \text{ u.a.}$ et $\beta = 0.1 \text{ u.a.}$. Nous utilisons une base de 1500 fonctions d'Hermite de paramètre $\alpha = 0.03$.

2.7 Conclusion

La résolution numérique de l'ESDT s'avère être la méthode théorique la plus appropriée pour étudier l'interaction laser-matière dans le contexte actuel où les sources laser sont de plus en plus intenses et brèves. Compte tenu de la raideur de l'ESDT, l'une des difficultés majeures reste cependant celle de trouver un algorithme de propagation numériquement stable, précis et surtout peu coûteux en termes de temps de calcul. La quête permanente de *la méthode idéale* nous a amené dans le cadre de ces travaux à tester plusieurs algorithmes. Dans ce chapitre, nous avons présenté ces différentes méthodes numériques de résolution de l'ESDT ainsi que quelques résultats qui ont permis d'apprécier la précision des différentes approches. Nous avons notamment présenté la méthode IMEX qui combine une méthode explicite et une méthode implicite de type RK. Cette méthode s'est avérée peu précise en terme de conservation de la norme. Pour cette raison, nous ne l'utiliserons pas dans la suite. Nous avons présenté la méthode explicite d'ordre 4 de Fatunla de résolution des EDP raides. Elle présente l'avantage d'être *L-stable*, mais son principal inconvénient est celui de ne pas conserver parfaitement la norme. Nous l'utilisons dans les cas où les résultats ne requièrent pas une précision inférieure à 10^{-5} . Nous avons présenté la méthode d'Arnoldi qui est une méthode explicite, *L-stable* et qui conserve la norme par construction. Son inconvénient majeur réside dans la détermination de la dimension du sous-espace de Krylov minimale nécessaire pour reproduire les résultats physiques. Nous avons enfin présenté une méthode PC pour lequel le prédicteur est la méthode explicite de Fatunla et le correcteur une méthode IRK de type Radau IIA à 4 étapes et d'ordre 7, qui est très précise mais nécessite beaucoup de calculs.

Première partie

Méthode de la coordonnée
dépendante (MCDT) du
temps

Description de la MCDT et application à un modèle atomique 1D

Sommaire

3.1	Introduction	47
3.2	Description du modèle atomique 1D et de la MCDT	50
3.2.1	Description du modèle atomique 1D	50
3.2.2	Description de la MCDT	52
3.3	Résolution numérique de l'ESDT	53
3.3.1	Présentation de la méthode spectrale	53
3.3.2	Formulation matricielle de l'ESDT/MCDT	56
3.4	Calcul des observables physiques	58
3.5	Résultats et discussion	60
3.5.1	MCDT branchée à la fin de l'interaction	60
3.5.2	MCDT branchée durant l'interaction	76
3.5.3	MCDT branchée au début de l'interaction	76
3.6	Conclusion	82

3.1 Introduction

Nous avons évoqué dans le chapitre précédent l'une des difficultés rencontrées lors de la résolution numérique de l'ESDT. Il s'agit notamment de la raideur de l'équation qui impose d'utiliser des méthodes d'intégration adaptées. Comme solution à ce problème, nous avons développé des schémas numériques stables qui ont été testés et validés. Cependant, les utilisateurs des méthodes

dépendantes du temps font face à deux autres problèmes majeurs de tout autre nature.

Le premier problème est la *réflexion de la solution aux frontières artificielles*. En effet, l'étendue spatiale de la zone proprement décrite est limitée par la taille de la boîte dans les méthodes de grille et par le nombre des fonctions de base dans les méthodes spectrales. Or dans les processus d'ionisation, ces limites peuvent très vite être atteintes du fait de l'expansion spatiale du PO ionisé en fonction du temps. Le PO est alors réfléchi aux frontières et revient dans la boîte. Ces réflexions qui sont sans signification physique *polluent* le PO. Dans le régime des basses fréquences, la réflexion peut également être liée à l'oscillation du PO sous l'effet du champ (*quiver motion*). En fonction de l'intensité, l'amplitude d'oscillation peut en effet être très élevée. La solution qui s'impose naturellement pour faire face à ce problème est l'utilisation d'un plus grand nombre de fonctions de base ou d'une boîte plus grande. Cette alternative engendre malheureusement deux types de problèmes. Il s'agit d'une part de la taille de la mémoire à allouer et du temps de calcul qui augmentent en général très vite avec la taille des matrices à manipuler. D'autre part, la raideur de l'ESDT augmente la taille des matrices. En effet, dans la base sturmienne que nous utilisons dans la suite pour décrire le PO, il est connu qu'augmenter la taille de base s'accompagne de la génération de valeurs propres positives de plus en plus grandes dans la matrice associée au hamiltonien atomique [62]. Le pas de propagation, qui est de l'ordre de l'inverse de la fréquence la plus élevée, devient très petit lorsqu'on utilise un schéma explicite [64] pour résoudre l'EDP. Utiliser un schéma implicite [67] permet d'avoir un pas relativement plus grand, mais l'obligation de résoudre un système d'équations à chaque itération rend le problème numériquement coûteux. Pour contourner ce problème, des techniques à l'instar de la rotation complexe [89], de l'utilisation des potentiels absorbeurs imaginaires ou fonctions masques [90, 91, 92, 93] et de la méthode *exterior complex scaling* (ECS) [94, 95] sont utilisées dans la littérature. Mais elles souffrent de la critique selon laquelle l'absorption des contributions "*utiles*" - cas de la réflexion liée au quiver motion par exemple - du PO aux limites n'est pas totalement contrôlée.

Le deuxième problème est celui de la représentation du continuum. En effet, dans les approches dépendantes du temps, les informations physiques sont en général obtenues en projetant le PO obtenu à la fin de la propagation sur des fonctions du continuum. Si dans le cas des systèmes à un électron comme

l'hydrogène atomique, les fonctions du continuum sont connues, les continua multiples des systèmes à plusieurs électrons ne sont pas connus. Dans le cas de l'atome d'hélium par exemple, on se contente d'utiliser le très controversé [23] produit de deux fonctions coulombiennes (dans lequel la corrélation entre les deux électrons dans la voie de sortie est négligée) pour décrire le double continuum.

Nous explorons ici une approche visant à apporter une solution aux deux problèmes évoqués ci-dessus. L'ingrédient de base de l'approche est la transformation adiabatique de Solov'ev-Vinitsky [30] qui consiste à représenter l'ESDT dans un système de coordonnées radiales dépendant du temps. Cette technique qui n'est pas nouvelle, a été adaptée et utilisée dans la littérature dans plusieurs domaines de la physique. A titre d'exemples, Manfredi et al. [31] et Mola et al. [32] l'utilisent en physique des plasmas pour étudier l'expansion des plasmas et des gaz d'électrons. Bouquet et al. [33] l'utilisent en hydrodynamique gravitationnelle pour la résolution de l'équation de Lane-Emden. Zrineh et al. [34] pour la diffusion non linéaire, et Besnard et al. [35] pour la résolution d'équations différentielles non linéaires. En physique atomique et moléculaire, Solov'ev et al. [30] proposent une formulation de l'approche pour l'étude des collisions ion-atome et ion-molécule dans les cas des systèmes à trois corps. Plus récemment, Sidky et al. [36] et Derbov et al. [37] utilisent la méthode pour l'étude d'un modèle atomique 1D en interaction avec une très brève impulsion ("*kick*"); Serov et al. [38, 39, 40] adaptent l'approche à l'étude des systèmes à un et deux électrons actifs par impact électronique.

Dans ce chapitre, nous présentons une étude détaillée de la méthode en l'appliquant à un modèle atomique d'un électron dans un puits de potentiel gaussien unidimensionnel en interaction avec un champ électromagnétique. Dans la section 2, nous présentons le modèle atomique utilisé et nous décrivons l'approche MCDT. Dans la section 3, nous décrivons sommairement la technique de résolution de l'ESDT. Dans la section 4, nous présentons les points essentiels de la technique utilisée pour évaluer la distribution en énergie à partir du PO dans la MCDT. Dans la dernière section nous présentons et analysons les résultats.

3.2 Description du modèle atomique 1D et de la MCDT

3.2.1 Description du modèle atomique 1D

Le modèle atomique unidimensionnel que nous considérons est constitué d'un électron dans un potentiel gaussien en interaction avec un champ électromagnétique. La dynamique du système est régie par l'ESDT suivante

$$i\frac{\partial}{\partial t}\Psi(x,t) = H(x,t)\Psi(x,t), \quad (3.1)$$

où le hamiltonien dépendant du temps $H(x,t)$ est donné en unités atomiques par

$$H(x,t) = \frac{P_x^2}{2} + V(x) + I(x,t) = -\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial x^2} - V_0e^{-\beta x^2} + I(x,t). \quad (3.2)$$

$I(x,t)$ représente l'hamiltonien d'interaction donné par :

$$I(x,t) = A(t)P_x = A_0f(t)\sin(\omega t + \varphi)P_x, \quad (3.3)$$

où

$$f(t) = \begin{cases} \cos^2\left(\frac{\pi}{\tau}t\right), & |t| \leq \frac{\tau}{2} \\ 0, & |t| \geq \frac{\tau}{2} \end{cases} \quad (3.4)$$

représente l'enveloppe du champ de durée totale $\tau = 2\pi n_c/\omega$, n_c étant le nombre de cycles optiques et A_0 est l'amplitude maximale. Nous représentons sur la figure 3.1 $A(t)$ pour $I = 10^{14}$ W.cm⁻², $\omega = 0.7$ u.a. et $n_c = 10$. Les paramètres V_0 et β du potentiel gaussien permettent d'ajuster respectivement la profondeur et la portée du potentiel gaussien, et de ce fait, de modifier le niveau d'énergie de l'état fondamental et le nombre d'états liés du système. A titre d'illustration, nous présentons dans le tableau 3.1, les états liés obtenus pour quelques valeurs des paramètres du potentiel gaussien.

On suppose que l'électron se trouve initialement dans l'état fondamental du système obtenu en résolvant l'équation de Schrödinger indépendante du temps suivante :

$$\left[-\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial x^2} - V_0e^{-\beta x^2}\right]\Psi_0(x) = E\Psi_0(x). \quad (3.5)$$

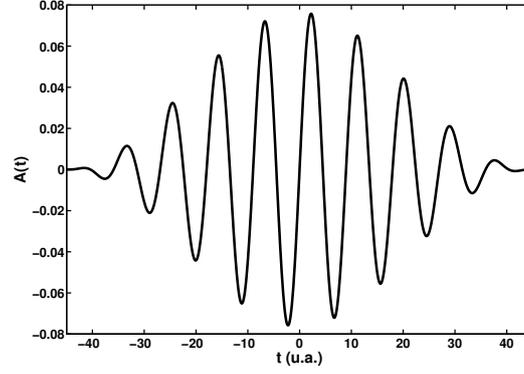


FIGURE 3.1 – Représentation de $A(t)$ pour $I = 10^{14}$ W.cm $^{-2}$, $\omega = 0.7$ u.a. et $n_c = 10$.

TABLE 3.1 – Niveaux d'énergie des états liés obtenus en fonction des paramètres du potentiel gaussien.

V_0 (profondeur)	β	E (u.a.)
1.0	1.0	-0.4773899773828144
		-0.79526702487439793
1.0	0.1	-0.42806021756209423
		-0.15419507232419039
		-0.00606807395921935
4.0	1.0	-2.7744947605788566
		-0.7839196725805436
4.0	0.1	-3.5716132995713665
		-2.7544712303409185
		-2.0193560537353119
		-1.3727672048768107
		-0.8238657568118924
		-0.3869373621565752
		-0.0889289021969690

La fonction d'onde décrivant l'état du système vérifie à tout instant t la condition de normalisation suivante :

$$\langle \Psi | \Psi \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} \Psi^*(x, t) \Psi(x, t) dx = 1. \quad (3.6)$$

3.2.2 Description de la MCDT

La MCDT inspirée de l'approche de Soloviev-Vinitsky [30], est basée sur l'introduction dans l'ESDT donnée par l'équation (3.1), des deux transformations suivantes :

$$x = R(t)\xi, \quad (3.7)$$

$$\Psi(x, t) = \frac{1}{\sqrt{R}} e^{\frac{i}{2} R \ddot{R} \xi^2} \Phi(\xi, t). \quad (3.8)$$

La relation (3.7) introduit un système de coordonnées dépendantes du temps suivant une *fonction d'échelle* $R(t)$. La *transformation de phase* (3.8) introduit une nouvelle fonction d'onde $\Phi(\xi, t)$; le facteur $1/\sqrt{R}$ assurant la normalisation de cette fonction d'onde dans la nouvelle représentation. Le facteur de phase $\exp(\frac{i}{2} R \ddot{R} \xi^2)$ permet, comme nous l'illustrerons dans la suite, d'extraire les oscillations dues aux gradients de phase du PO. En substituant dans l'équation (3.1) les transformations (3.7) et (3.8), l'ESDT (voir annexe C) devient :

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Phi(\xi, t) = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{R^2 \partial \xi^2} + V(R\xi) + I(R\xi, t) + \frac{1}{2} R \ddot{R} \xi^2 \right] \Phi(\xi, t). \quad (3.9)$$

Les transformations (3.7) et (3.8) introduisent dans l'ESDT un potentiel harmonique ($\frac{1}{2} R \ddot{R} \xi^2$) de confinement dépendant du temps. Comme nous le montrons dans la suite, ce potentiel limite l'étalement et le déplacement du PO dans l'espace, permettant de ce fait de décrire le PO avec une base relativement petite. Par ailleurs, les transformations sus-évoquées introduisent également dans les termes cinétique et gaussien une dépendance temporelle qui jouera un rôle déterminant dans la dynamique du PO. La fonction d'échelle $R(t)$ est choisie de sorte que le potentiel de confinement s'annule et que la fonction d'onde devienne stationnaire lorsque t devient grand. A cet effet, $R(t)$ est en général de la forme

$$R(t) = \begin{cases} (1 + (a_\infty(t - t_b))^n)^{\frac{1}{n}}, & t \geq t_b \\ 1 & \text{sinon} \end{cases}, \quad (3.10)$$

avec n un entier naturel non nul. Nous représentons sur la figure 3.2 l'évolution des fonctions $R(t)$, $\dot{R}(t)$ et $R\ddot{R}$ qui interviennent dans la définition du potentiel harmonique dans le temps, pour une fonction d'échelle de forme $(1 + (at^4)^{\frac{1}{4}})$ avec $a = 0.01$ et $a = 0.05$. Du fait de la forme de $R(t)$ donnée par (3.29), le potentiel harmonique s'annule lorsque t devient grand et que $R(t)$ devient linéaire. Dans la zone linéaire, le confinement continue d'être assuré par la dépendance temporelle dans le "hamiltonien atomique" dont les termes tendent progressivement vers 0 lorsque $t \rightarrow \infty$. Le facteur $\frac{1}{R^2}$ dans le terme cinétique peut être interprété comme un *accroissement de la masse effective de l'électron*. Du fait de ce terme, on peut imaginer que l'électron devient de plus en plus "lourd" dans le temps et donc de plus en plus "lent". Par ailleurs, le facteur d'échelle R diminue l'effet du potentiel ressenti par l'électron et de ce fait, celui-ci peut être considéré comme ayant atteint la zone asymptotique où il est considéré comme *libre*. Dans le cas du potentiel coulombien, nous montrons que l'effet de R peut être interprété comme une *diminution de la charge effective du noyau*. Le PO ionisé tend de ce fait, vers un état stationnaire. Une analyse en termes de vitesse de groupe et de dispersion du PO permet de montrer (voir annexe D) que dans la MCDT, la position moyenne de la particule et la largeur du PO, en d'autres termes sa dispersion, tendent vers des valeurs constantes aux grands temps.

3.3 Résolution numérique de l'ESDT

3.3.1 Présentation de la méthode spectrale

Pour résoudre l'équation (3.1), nous développons la solution sur une base de fonctions d'Hermite comme suit :

$$\Psi(x, t) = \sum_n a_n(t) \varphi_n(x), \quad (3.11)$$

où les $a_n(t)$ sont les coefficients de la décomposition sur la base à déterminer, et $\varphi_n(x)$ sont les fonctions d'Hermite de paramètre α définies par :

$$\varphi_n(x) = \left(2^n n! \sqrt{\frac{\pi}{\alpha}} \right)^{-\frac{1}{2}} e^{-\frac{\alpha}{2} x^2} H_n(\sqrt{\alpha} x), \quad (3.12)$$

où H_n représente le polynôme d'Hermite. Les fonctions $\varphi_n(x)$ sont solutions du problème de Sturm-Liouville de l'oscillateur harmonique en mécanique quan-

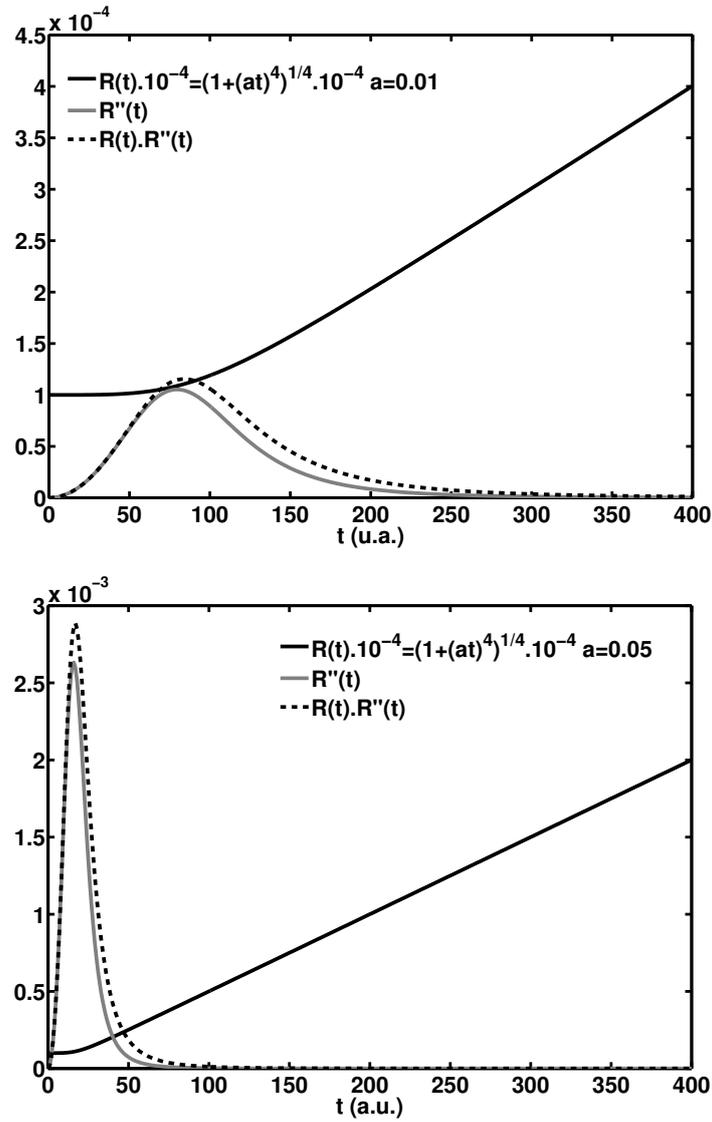


FIGURE 3.2 – Evolution du potentiel harmonique dans le temps pour une fonction d'échelle de forme $(1 + (a(t - t_b))^4)^{1/4}$ avec $a = 0.01$ et $a = 0.05$.

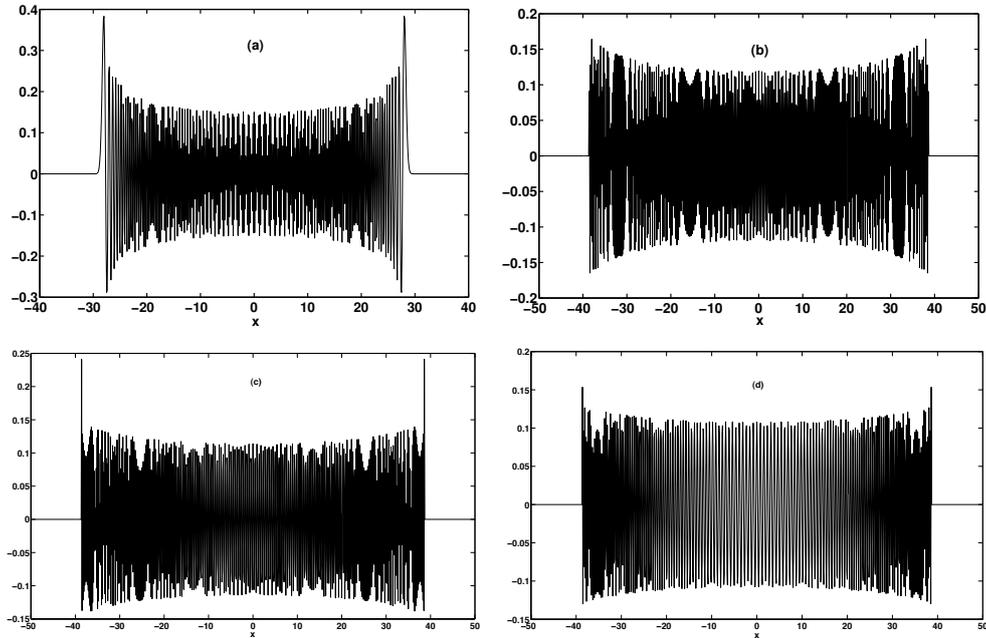


FIGURE 3.3 – *Fonctions d'Hermite de degré $n=400$ (a), $n=1000$ (b), $n=1200$ (c) et $n=1500$ (d) pour $\alpha = 1$.*

tique. Elles vérifient la condition d'orthonormalisation suivante :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \varphi_n(x) \varphi_{n'}(x) dx = \delta_{nn'} \quad (3.13)$$

Le paramètre α , que nous introduisons, permet de modifier l'extension spatiale de ces fonctions de base. En effet, les fonctions d'Hermite pour une valeur de α donnée ont un comportement particulier. Le paramètre α définit un domaine au-delà duquel la fonction devient nulle et ce quel que soit le degré du polynôme. Ce qui implique que l'augmentation du nombre de fonctions ne permet pas d'étendre significativement l'étendue spatiale du domaine couvert par la base comme nous le montrons sur la figure 3.3. Pour $\alpha=1$, le domaine couvert par la base se limite à l'intervalle $[-40,40]$. Par contre, modifier le paramètre α permet de dilater les fonctions de base et donc d'étendre le domaine comme

nous le montrons sur la figure 3.4. En effet, pour $n = 400$, le domaine passe de l'intervalle $[-30, 30]$ à $[-90, 90]$ pour $\alpha = 0.1$, et à $[-300, 300]$ pour $\alpha = 0.01$.

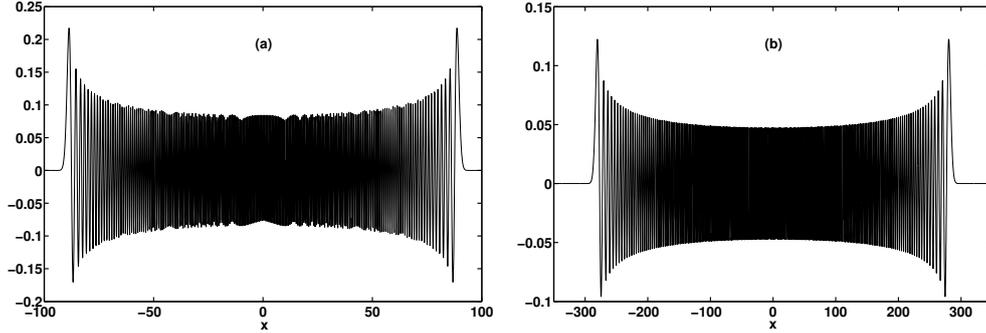


FIGURE 3.4 – Fonctions d’Hermite de degré $n=400$ pour $\alpha = 0.1$ (a) et $\alpha = 0.01$ (b).

3.3.2 Formulation matricielle de l’ESDT/MCDT

La formulation matricielle de l’ESDT s’obtient en substituant dans l’équation (3.1), le développement (3.11). En multipliant à gauche par les fonctions de base et en intégrant entre $-\infty$ et $+\infty$, on obtient un système d’EDP qui s’écrit sous la forme matricielle suivante :

$$\mathbf{H}(t)\Psi(t) = i\frac{\partial}{\partial t}\Psi(t), \quad (3.14)$$

où

$$\mathbf{H}(t) = \mathbf{H}_{cin} + \mathbf{H}_{pot} + A(t)\mathbf{H}_{int}$$

représente la matrice dépendante du temps, associée au hamiltonien décrivant l’interaction du système atomique avec le champ et $\Psi(t)$, le vecteur des coefficients de la décomposition de la fonction d’onde dans la base. Les éléments de matrice de l’opérateur énergie cinétique \mathbf{H}_{cin} et du terme d’interaction \mathbf{H}_{int} sont calculés analytiquement en exploitant les relations de récurrence vérifiées par les polynômes d’Hermite. Les éléments de la matrice associée au potentiel gaussien \mathbf{H}_{pot} sont quant à eux calculés par la quadrature de Gauss-Hermite.

Des tests de comparaison effectués avec les résultats obtenus par calcul analytique exact au moyen des relations 7.374(9), 8.956(6) et 8.956(7) de la référence [102] pour des petites bases (jusqu'à 50 fonctions) et par la méthode du prolongement analytique dans le plan complexe, ont montré une bonne précision des résultats obtenus par la quadrature. Au delà de cette taille, le calcul analytique fait intervenir la factorielle de grandes valeurs entières (> 50). Le calcul des éléments de matrice des différents termes du hamiltonien est détaillé dans l'annexe E. Au besoin, les états liés et les pseudo-états du continuum sont obtenus en résolvant l'équation stationnaire aux valeurs propres :

$$[\mathbf{H}_{cin} + \mathbf{H}_{pot}] \Psi = E \Psi. \quad (3.15)$$

La formulation matricielle de l'ESDT dans la MCDT s'obtient suivant la même procédure. L'équation à résoudre dans la MCDT est donnée par :

$$\tilde{\mathbf{H}}(t) \Phi(t) = i \frac{\partial}{\partial t} \Phi(t), \quad (3.16)$$

où la matrice $\tilde{\mathbf{H}}(t)$ s'écrit :

$$\tilde{\mathbf{H}}(t) = \frac{1}{R^2(t)} \mathbf{H}_{cin} + \tilde{\mathbf{H}}_{pot}(t) + \frac{1}{R(t)} A(t) \mathbf{H}_{int} + \frac{1}{2} R(t) \ddot{R}(t) \mathbf{H}_{harm}. \quad (3.17)$$

Les matrices \mathbf{H}_{cin} , \mathbf{H}_{int} sont identiques à celles évaluées précédemment. Leur dépendance temporelle apparaît comme un facteur. Les éléments de matrice du terme harmonique \mathbf{H}_{harm} sont calculés analytiquement en utilisant des relations de récurrence suivant la procédure décrite dans l'annexe E. Ces matrices ne sont donc évaluées qu'une seule fois. Cependant, la matrice associée au potentiel gaussien dépendant du temps $\tilde{\mathbf{H}}_{pot}(t)$ est calculée à chaque itération durant la propagation. Ceci est lié au fait que la dépendance temporelle qui se trouve dans l'exponentielle ne peut pas être factorisée. Mais, la construction de ladite matrice est rendue facile par le fait qu'elle est symétrique. Par ailleurs, on montre à l'aide des relations 8.956(6) et 8.956(7) de la référence [102], que les éléments dont la somme des indices de la ligne et de la colonne est impaire, sont nuls. Nous n'évaluons donc pratiquement qu'à peu près le quart du nombre total des éléments de $\tilde{\mathbf{H}}_{pot}(t)$.

3.4 Calcul des observables physiques

Nous nous intéressons essentiellement à la distribution en énergie du PO ionisé. Pour valider la nouvelle approche, nous comparons les spectres obtenues à partir de $\Psi(t)$ dans la représentation normale (RN) et de $\Phi(t)$ dans la MCDT.

Dans la RN, la distribution en énergie est calculée de deux façons différentes. La *première* méthode consiste à projeter le PO $\Psi(x, t)$ obtenu à la fin de la propagation sur les pseudo-états du continuum, c'est-à-dire les états propres $\Psi_{E_i}(x, 0)$ d'énergie positive obtenus par diagonalisation du hamiltonien atomique. La densité de probabilité $\frac{dP(E)}{dE}$ de trouver l'électron avec une énergie comprise entre les valeurs positives E_i et E_{i+1} du spectre lorsque l'ESDT est résolue dans la base des fonctions d'Hermite est donnée par :

$$\frac{dP(E_i)}{dE} = \frac{|\langle \Psi(x, t) | \Psi_{E_i}(x, 0) \rangle|^2}{E_{i+1} - E_i}. \quad (3.18)$$

Dans la base atomique, elle est simplement donnée par :

$$\frac{dP(E_i)}{dE} = \frac{|a_{E_i}|^2}{E_{i+1} - E_i}, E_i > 0, \quad (3.19)$$

où $a_{E_{i+1}}$ est le coefficient correspondant à l'état atomique d'énergie E_{i+1} positive du spectre. La *seconde* méthode consiste à projeter le PO $\Psi(x, t)$ sur l'onde plane. Nous rappelons que l'onde plane est solution de l'équation de Schrödinger d'une particule libre. La courte portée du potentiel gaussien justifie le choix de l'onde plane pour la représentation du continuum. L'onde plane que nous utilisons est définie par :

$$\psi_E^\pm(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \left(\frac{1}{2E}\right)^{\frac{1}{4}} e^{\pm ikx} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \left(\frac{1}{2E}\right)^{\frac{1}{4}} e^{\pm i\sqrt{2E}x}, k > 0. \quad (3.20)$$

Elle est normalisée dans l'espace des énergies et donc vérifie la condition suivante :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \psi_E^*(x) \psi_{E'}(x) dx = \delta(E - E'). \quad (3.21)$$

L'amplitude de probabilité de trouver l'électron dans le continuum avec une énergie positive E est donnée par :

$$C(E) = C^-(E) + C^+(E). \quad (3.22)$$

$C^-(E)$ et $C^+(E)$ représentent les contributions des fragments ionisés se propageant respectivement dans le sens des x négatifs et positifs. Ils sont donnés par :

$$C^-(E) = \int_{-\infty}^{+\infty} \psi_E^{-*}(x) \Psi(x, t) dx, \quad (3.23)$$

$$C^+(E) = \int_{-\infty}^{+\infty} \psi_E^{+*}(x) \Psi(x, t) dx. \quad (3.24)$$

Les intégrales (3.23) et (3.24) sont évaluées analytiquement grâce à la relation de récurrence sur les intégrants démontrée dans l'annexe F. Nous avons vérifié la stabilité de la récurrence en comparant les résultats à ceux obtenus par la quadrature de Simpson d'une part et à ceux obtenus en utilisant la technique du prolongement analytique dans le plan complexe associée à la quadrature de Gauss-Hermite d'autre part.

Pour calculer la distribution en énergie du PO ionisée dans la MCDT, nous utilisons une approche qui s'inspire de celle proposée par Derbov et al. [37]. Nous montrons dans l'annexe G que l'amplitude de probabilité dans l'espace des impulsions est obtenue dans les conditions asymptotiques à partir du PO stationnaire (POS) $\Phi(\xi \rightarrow \infty, t \rightarrow \infty)$ suivant la relation :

$$c(k) = \sqrt{\frac{i}{a_\infty}} \Phi(\xi, t \rightarrow \infty) = \sqrt{\frac{i}{a_\infty}} \Phi\left(\frac{k}{a_\infty}, t \rightarrow \infty\right). \quad (3.25)$$

Dans l'espace des énergies, l'amplitude d'ionisation est donnée par :

$$c(E) = 2(2E)^{\frac{1}{4}} \sqrt{\frac{i}{a_\infty}} \Phi\left(\frac{\sqrt{2E}}{a_\infty}, t \rightarrow \infty\right). \quad (3.26)$$

Pour établir les relations (3.25) et (3.26), on exploite le fait que la fonction d'échelle $R(t)$ devient linéaire lorsque $t \rightarrow \infty$ c'est à dire :

$$R(t \rightarrow \infty) = a_\infty t, \quad (3.27)$$

où a_∞ représente la "vitesse asymptotique". Pour obtenir cette forme asymptotique, Derbov et al. [37] utilisent une fonction d'échelle de la forme :

$$R(t) = \begin{cases} (1 + (a_\infty t)^4)^{\frac{1}{4}}, & t \geq 0 \\ 1 & \text{sinon.} \end{cases} \quad (3.28)$$

Dans le cas étudié par les auteurs, la durée d'interaction est ultra-courte (*kick*) et le changement de représentation s'opère à la fin de l'interaction. En ce qui nous concerne, les durées des impulsions sont plus longues. De plus, nous souhaitons étudier la possibilité de passer dans la représentation MCDT à n'importe quel instant. A cet effet, nous modifions l'équation (3.28) et la réécrivons sous la forme

$$R(t) = \begin{cases} (1 + (a_\infty(t - t_b))^n)^{\frac{1}{n}}, & t \geq, t_b \\ 1 & \text{sinon} \end{cases}. \quad (3.29)$$

où t_b désigne *l'instant de branchement* de la nouvelle représentation. Dans ces conditions, la forme asymptotique de la fonction d'échelle est donnée par

$$R(t \rightarrow \infty) = a_\infty(t - t_b). \quad (3.30)$$

En tenant compte de (3.30), les amplitudes de probabilité dans l'espace des impulsions et des énergies données respectivement par (3.25) et (3.26) deviennent :

$$c(k) = \sqrt{i\left(\frac{1}{a_\infty} + \frac{t_b}{R}\right)} \Phi\left(\frac{k}{a_\infty\left(1 - \frac{t_b}{t}\right)}, t\right), \quad (3.31)$$

$$c(E) = 2(2E)^{\frac{1}{4}} \sqrt{i\left(\frac{1}{a_\infty} + \frac{t_b}{R}\right)} \Phi\left(\frac{\sqrt{2E}}{a_\infty\left(1 - \frac{t_b}{t}\right)}, t\right). \quad (3.32)$$

Nous montrerons dans la suite que la prise en compte de cette correction est nécessaire pour obtenir un spectre correct en amplitude et en position (le spectre obtenu est décalé sans la prise en compte de la correction).

3.5 Résultats et discussion

3.5.1 MCDT branchée à la fin de l'interaction

Nous considérons dans cette sous-section la cas où la MCDT est branchée à la fin de l'interaction. Durant l'interaction, l'ESDT est résolue dans la RN. A la fin de l'interaction, les états liés sont extraits du PO. En effet à cause de la transformation d'échelle (3.7), les états liés sont comprimés et deviennent de plus en plus étroits avec le temps t . Lorsque t devient grand, ces états ne peuvent plus être correctement représentés par les fonctions de base. D'où

l'importance de les éliminer du PO à la fin de l'interaction. Pour extraire ces états liés, nous calculons l'amplitude de probabilité de rester dans chaque état lié à la fin de l'interaction et nous éliminons leur contribution du PO total suivant la relation :

$$\Psi_{ionisé} = \Psi - \sum_i c_i \psi_i \quad \forall i \text{ tel que } E_i < 0, \quad (3.33)$$

où les amplitudes c_i s'obtiennent par projection du PO sur les états liés, soit

$$c_i = \langle \psi_i | \Psi \rangle. \quad (3.34)$$

De la dynamique du PO dans la MCDT

En vue de comparer la dynamique du PO dans les deux représentations, nous présentons sur la figure 3.5 le PO dans la RN à différents instants durant et après l'interaction avec un champ d'intensité $I = 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$, de fréquence $\omega = 0.7 \text{ u.a.}$ et de durée totale égale à 6 cycles optiques. Nous utilisons une base de 400 fonctions d'Hermite de paramètre $\alpha = 0.01$. Les paramètres du puits de potentiel gaussien sont $V_0 = 1 \text{ u.a.}$ et $\beta = 1 \text{ u.a.}$. Le système possède dans ces conditions un seul état lié dans lequel le système se trouve initialement (figure 3.5 (a)). A la fin de l'interaction, une partie du PO est ionisée (figure 3.5 (b)); partie que l'extraction de l'état lié permet de mettre en évidence (figure 3.5 (c)). L'évolution libre du PO ionisé sous l'action du hamiltonien atomique (figure 3.5 (d) $t = 150 \text{ u.a.}$ et (e) $t = 300 \text{ u.a.}$) met en évidence d'une part le développement des oscillations dues aux gradients de phase avec le temps et d'autre part, la différence de fréquence de ces oscillations due à la distribution de vitesse dans le PO. La fréquence des oscillations, liée à l'énergie de l'électron dans le continuum, devient en effet de plus en plus grande au fur et à mesure que l'on s'éloigne de l'origine.

Pour montrer l'intérêt de la MCDT, nous analysons la dynamique du PO dans cette représentation. Les paramètres du champ restent inchangés. Nous utilisons une base de 300 fonctions d'Hermite de paramètre $\alpha = 0.01$. La fonction d'échelle est définie par :

$$R(t) = \begin{cases} 1 & t \leq T \\ (1 + (a_\infty(t - T))^n)^{\frac{1}{n}} & t > T, \end{cases} \quad (3.35)$$

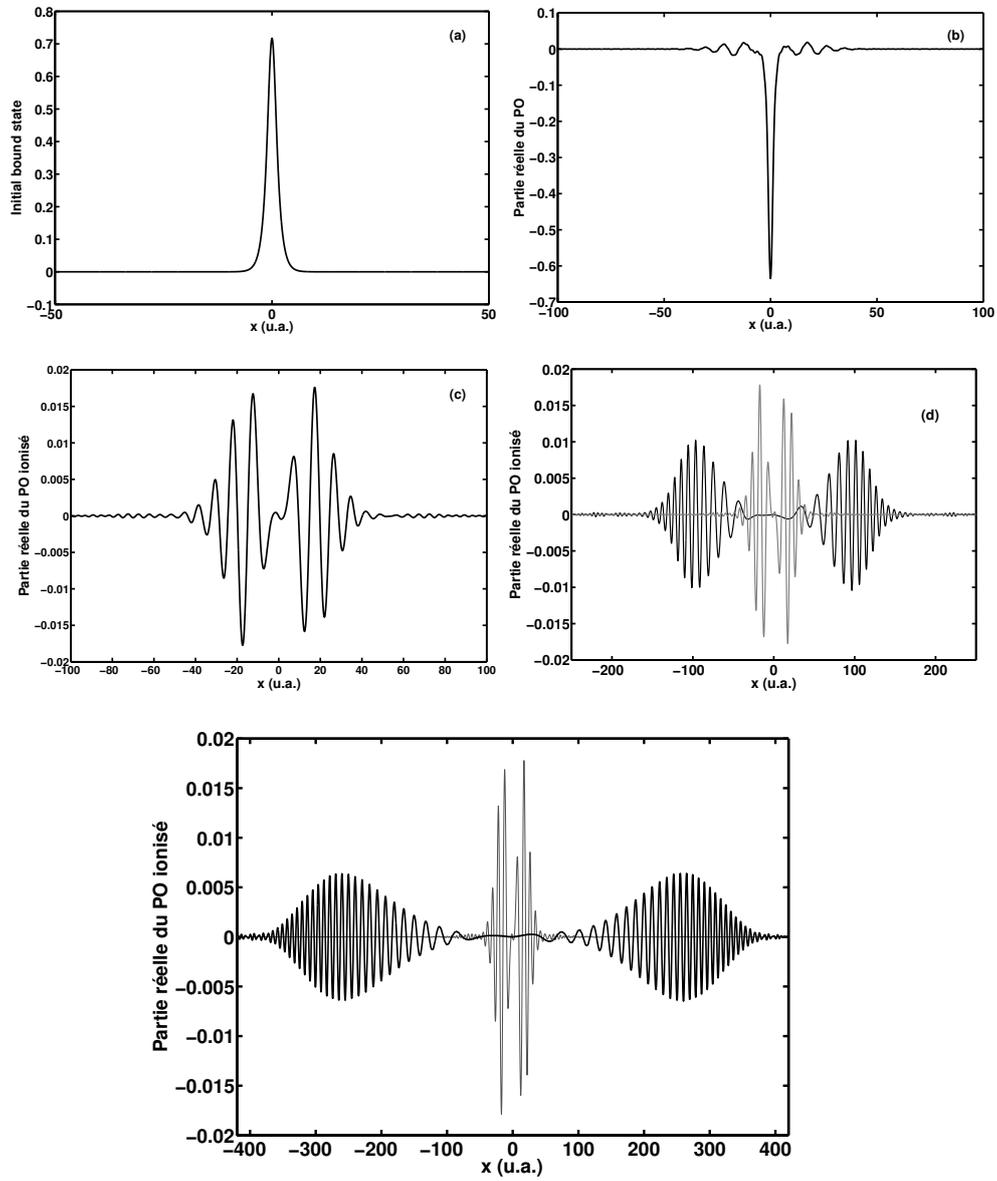


FIGURE 3.5 – Partie réelle de $\Psi(x)$ durant et après l'interaction avec un champ de paramètres $I = 10^{13}$ W.cm $^{-2}$, $\omega = 0.7$ u.a. et 6 cycles optiques : (a) Etat initial, (b) PO total à la fin de l'interaction, (c) PO ionisé, (d) comparaison entre PO à la fin de l'interaction (gris) et à $t = 150$ u.a. (noir) et (e) comparaison entre PO à la fin de l'interaction (gris) et à $t = 300$ u.a. (noir).

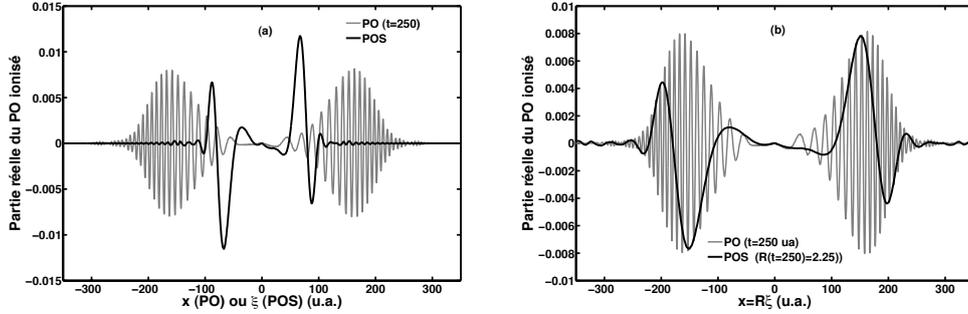


FIGURE 3.6 – Parties réelles de $\Psi(x, t)$ (gris) (PO) et de $\Phi(\xi, t)$ (noir) (POS) à $t=250$ u.a. sur la figure (a). Sur la figure (b), sont représentées les parties réelles du PO $Re(\Psi(x, t))$ (gris) et $Re(\Phi(\xi, t)/\sqrt{R(t=250)})$ (noir) avec en abscisse $R\xi = x$, où $R(t=250) = 2.25$. Les paramètres de l'impulsion laser sont $I = 10^{13}$ W.cm $^{-2}$, $\omega = 0.7$ u.a. et 6 cycles optiques.

où T est le temps correspondant à la fin de l'interaction et $a_\infty = 0.01$. Sur la figure 3.6 (a), nous comparons les parties réelles des PO ionisés $\Psi(x, t)$ dans la RN (PO) et $\Phi(\xi, t)$ dans la MCDT (POS) à $t = 250$ a.u. Il apparaît que l'utilisation de la MCDT permet non seulement de limiter l'expansion spatiale du PO ionisé, mais aussi d'éliminer les oscillations dans celui-ci. D'un point de vue numérique, on peut étudier la dynamique du système dans la MCDT en utilisant une base plus petite sans faire face aux problèmes de réflexion. Par ailleurs, la solution de l'ESDT devient moins raide du fait de l'élimination des oscillations du PO par la transformation de phase (3.8), ce qui autorise un pas d'intégration plus grand dans les schémas numériques. Sur la figure 3.6 (b), nous montrons, comme Derbov et al. [37], que le PO dans la MCDT peut être vu comme l'enveloppe du PO dans la RN. En effet, en représentant, $Re(\Phi(\xi, t)/\sqrt{R(t=250)})$ avec en abscisse $R(t=250).\xi = x$ et $Re(\Psi(x, t))$, on peut voir que $\Phi(\xi, t)$ varie lentement tout en épousant la forme globale des oscillations de $\Psi(x, t)$. Pour terminer cette analyse, nous montrons sur la figure 3.7 qu'on peut à partir de la relation (3.8), reconstruire le PO dans la RN à partir de celui dans la MCDT.

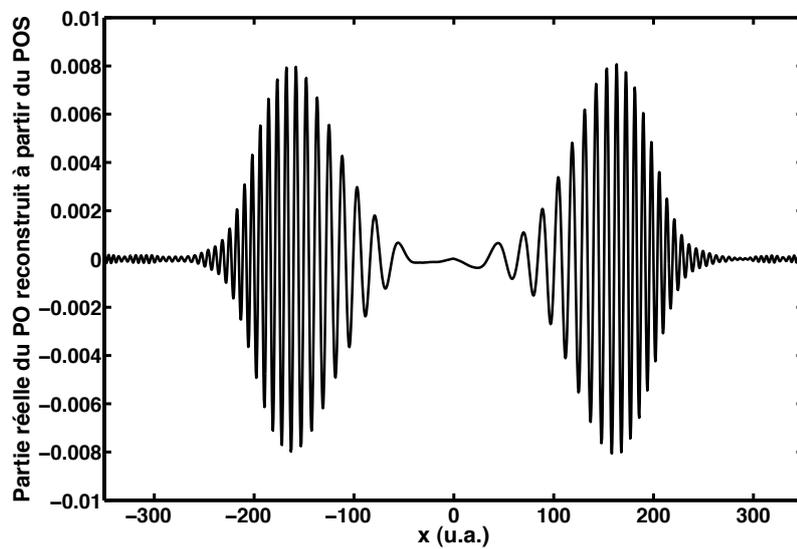


FIGURE 3.7 – *Reconstruction du PO à $t = 250$ u.a. à partir du POS pour le cas étudié sur la figure 3.6.*

Du spectre

Pour valider la représentation du continuum par l'onde plane, nous comparons sur la figure 3.8 les distributions en énergie du PO ionisé obtenues dans la RN, par les relations (3.18) et (3.22). Nous utilisons une base de 400 fonctions d'Hermite de paramètre $\alpha = 0.01$. Les paramètres du puits de potentiel gaussien sont $V_0 = 1$ u.a. et $\beta = 1$ u.a.. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{13}$ W.cm⁻² et de fréquence $\omega = 0.7$ u.a.. Deux durées d'interaction sont considérées : 6 cycles optiques pour le premier graphe et 20 cycles optiques pour le second. L'accord entre les deux méthodes dans les deux différentes situations permet de valider la description du continuum par l'onde plane. Sur le plan physique, la distribution en énergie devient plus étroite lorsqu'on augmente la durée de l'interaction comme on s'y attend en vertu du principe d'incertitude de Heisenberg. D'autre part, la distribution présente un maximum à environ 0.22 u.a. qui correspond à l'excès d'énergie au-dessus du seuil obtenu par la relation de conservation d'énergie entre la fréquence considérée et le niveau d'énergie de l'état lié donné dans le tableau 3.1. Nous avons en outre vérifié que les probabilités d'ionisation obtenues en intégrant les spectres obtenus avec les deux méthodes d'une part et d'autre part en utilisant la relation

$$P_{\text{ion}} = 1 - P_{\text{lié}}, \quad (3.36)$$

se recouvrent avec au moins 5 chiffres.

Dans la suite de cette section, les paramètres du champ seront, sauf mention contraire, $I = 10^{13}$ W.cm⁻², $\omega = 0.7$ u.a. et de 10 cycles optiques pour la durée. Dans la MCDT, nous utilisons 400 fonctions de base de paramètre $\alpha = 0.01$. Le spectre dans la MCDT est obtenu au moyen de la relation (3.32). La vitesse asymptotique pour la fonction d'échelle $a_\infty = 0.01$. Pour valider la relation (3.32), nous comparons sur la figure 3.9 les spectres obtenus dans la RN avec celui obtenu dans la MCDT à $t = 500$ u.a. avec $n = 4$ dans (3.35). L'accord entre les résultats permet de valider la méthode d'évaluation du spectre dans la MCDT. Afin de montrer que l'accord entre les spectres présentés sur la figure 3.9 n'est pas lié au paramètre dans l'exposant ($n = 4$) de la fonction d'échelle, nous présentons sur la figure 3.10, les résultats obtenus avec le paramètre $n = 2$. Nous montrons un spectre équivalent aux spectres RN dont la convergence est atteinte après $t = 1000$ u.a. Cependant, dans le

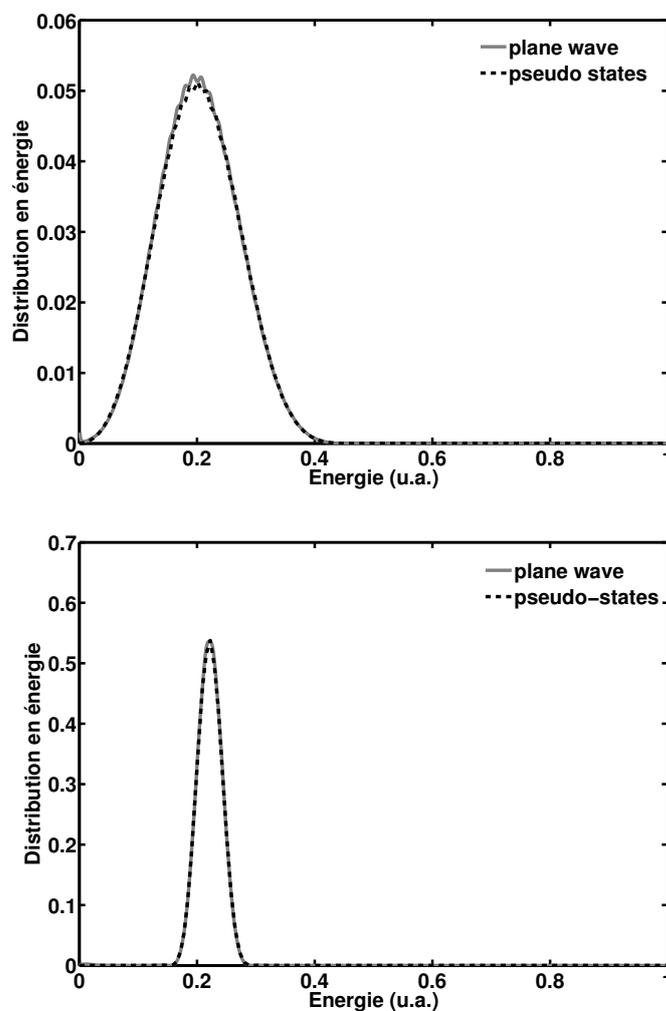


FIGURE 3.8 – Distributions en énergie du PO ionisé dans la RN pour deux durées d'interaction. Les paramètres du champ sont : $I = 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$, $\omega = 0.7 \text{ u.a.}$ 6 cycles optiques (premier graphe) et 20 cycles optiques (deuxième graphe). Le spectre est obtenu en projetant sur les pseudo-états du continuum obtenus en diagonalisant le hamiltonien (noir pointillé) d'une part et en projetant sur l'onde plane (gris) d'autre part.

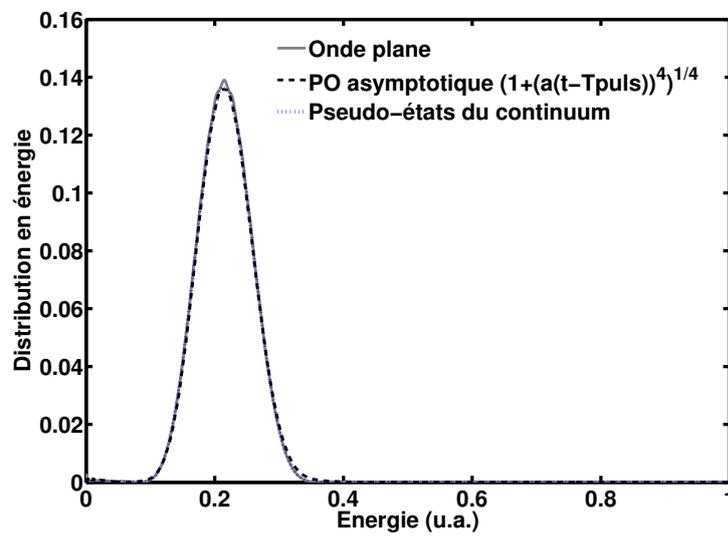


FIGURE 3.9 – Distributions en énergie dans la RN et dans la MCDT évaluées à $t = 500$ u.a.. Nous utilisons une fonction d'échelle de la forme $(1 + (a_\infty(t - T))^4)^{\frac{1}{4}}$.

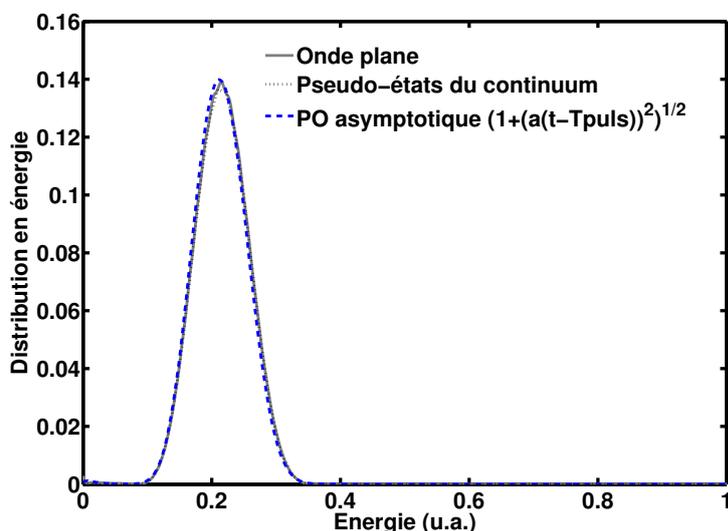


FIGURE 3.10 – Distributions en énergies dans la RN et dans la MCDT évaluées à $t = 1000$ u.a.. La fonction d'échelle est de la forme $(1 + (a_\infty(t - T))^2)^{\frac{1}{2}}$.

cas particulier d'un facteur d'échelle linéaire, c'est-à-dire pour $n = 1$, nous montrons sur la figure 3.11 que la distribution en énergie du PO ionisé ne converge pas vers le résultat attendu. Et il convient de souligner, car de nature déroutante, que malgré le fait que la distribution en énergie ne soit pas exacte, la probabilité d'ionisation totale obtenue en intégrant ce spectre est pratiquement la même que celle obtenue dans les deux cas précédents.

Pour comprendre le processus de construction du spectre dans la MCDT, justifier les différents instants d'évaluation du spectre dans les résultats précédents et expliquer la non convergence du spectre pour une fonction d'échelle linéaire, nous présentons sur les figures 3.12, 3.13 et 3.15 la formation du spectre dans le temps. On observe sur les figures 3.12 et 3.13 que le spectre converge vers celui attendu vers 400 u.a. lorsque $n = 4$ alors qu'il ne converge qu'après 1000 u.a. lorsque $n = 2$. Dans ce dernier cas, la courte durée du potentiel de confinement, suggéré par la forme des facteurs d'échelle pour $n = 2$ et $n = 4$ illustrées sur la figure 3.14, pourrait expliquer la lente convergence du spectre. Sur la figure 3.15, la non-convergence du spectre pourrait s'expli-

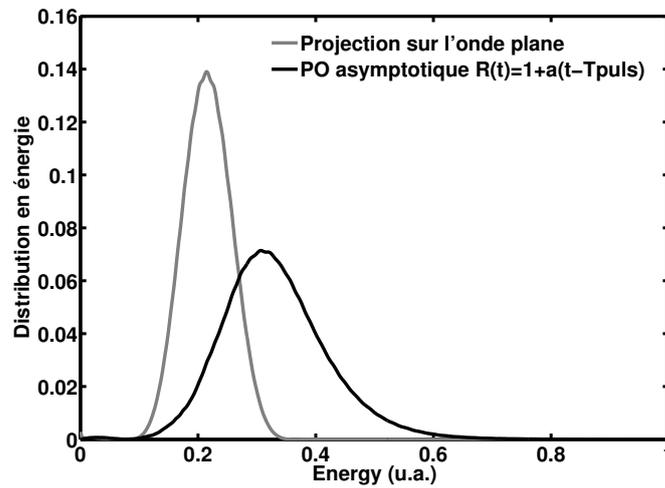


FIGURE 3.11 – Distributions en énergies dans la RN et dans la MCDT évaluées à $t = 700$ u.a.. La fonction d'échelle est linéaire $1 + a_{\infty}(t - T)$.

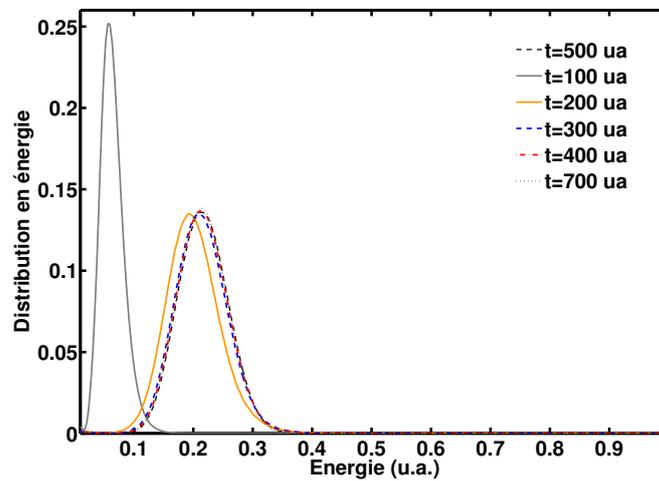


FIGURE 3.12 – Convergence du spectre dans la MCDT pour $n = 4$.

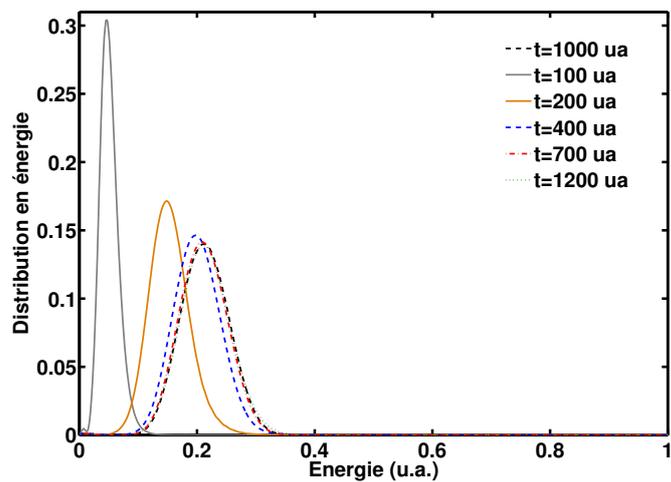


FIGURE 3.13 – Convergence du spectre dans la MCDT pour $n = 2$.

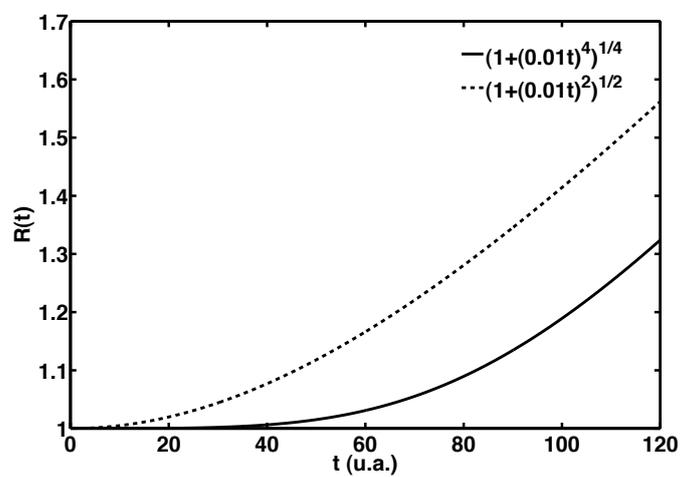


FIGURE 3.14 – Comparaison des fonctions d'échelle obtenues pour $n = 2$ et $n = 4$ avec $a=0.01$.

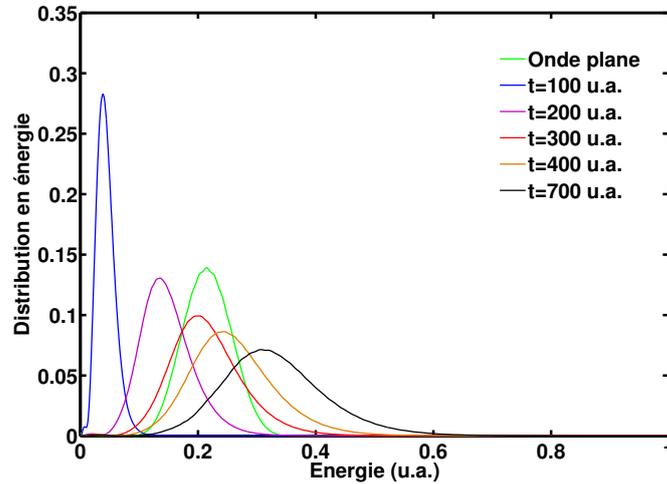


FIGURE 3.15 – Illustration de la non convergence du spectre dans la MCDT pour une fonction d'échelle linéaire.

quer par l'absence du potentiel lorsque la fonction d'échelle est linéaire. Cette fonction d'échelle introduit une discontinuité dans la dynamique au point de branchement. Cette discontinuité est corrigée dans les deux premiers cas par la transition progressive de la fonction d'échelle vers sa forme linéaire asymptotique.

De l'importance du terme correctif dans la formule analytique d'obtention du spectre

Nous avons introduit dans la formule asymptotique de calcul du spectre (3.32) un terme correctif pour tenir compte de la durée de l'interaction. Pour montrer l'importance de cette correction, nous présentons sur les figures 3.16 et 3.17 les spectres obtenus sans et avec cette correction respectivement dans les cas $n = 4$ et $n = 2$. Nous montrons que la non-prise en compte de cette correction conduit à un spectre décalé en position et d'amplitude erronée, indépendamment de la forme de la fonction d'échelle. Pour des impulsions plus courtes, ces différences diminuent. C'est ce qui explique pourquoi la relation (3.25) permet de reproduire le spectre dans le cas de Derbov et al. [37] pour

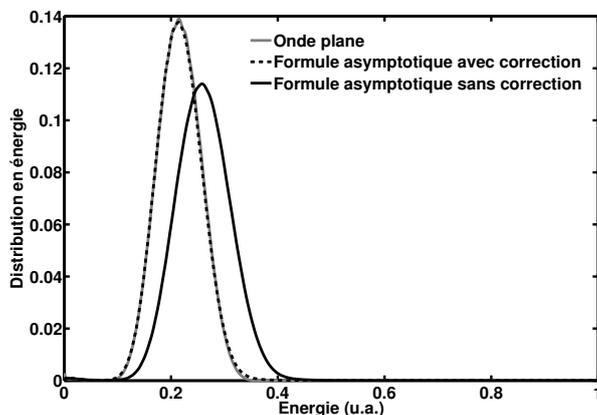


FIGURE 3.16 – Distributions en énergie sans et avec prise en compte de la correction dans la formule asymptotique du spectre. La fonction d'échelle utilisée est de la forme $(1 + (a(t - T))^4)^{\frac{1}{4}}$, avec $a=0.01$.

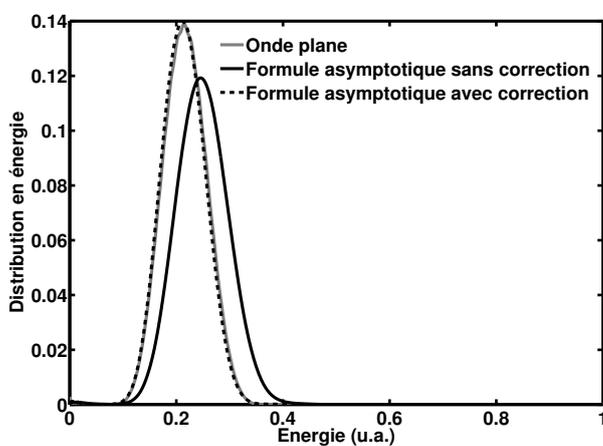


FIGURE 3.17 – Distributions en énergie sans et avec prise en compte de la correction dans le formule asymptotique du spectre. La fonction d'échelle utilisée est de la forme $(1 + (a(t - T))^2)^{\frac{1}{2}}$, avec $a=0.01$.

lequel une impulsion "kick" est utilisée.

De l'importance de l'extraction des états liés

Nous avons souligné l'importance de l'extraction des états liés du PO total à la fin de l'interaction, à cause de la compression de ces états dans la MCDT. Pour illustrer ce fait, nous comparons sur la figure 3.18 les spectres obtenus sans et avec état lié dans le PO durant la propagation libre. Nous utilisons une fonction d'échelle avec $n = 4$. On montre que l'état lié est comprimé autour de l'origine et que la mauvaise description qui en résulte se manifeste par des oscillations qui affectent globalement le spectre. Nous avons vérifié qu'en augmentant le nombre de fonctions de base, l'amplitude des oscillations diminue. Ceci est lié au fait qu'augmenter le nombre de fonctions de base revient à augmenter la densité autour de l'origine et donc à améliorer la description de l'état lié comprimé.

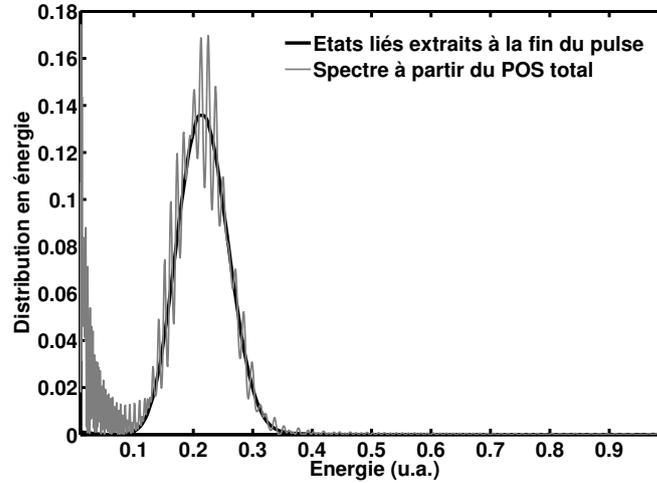


FIGURE 3.18 – Distributions en énergie obtenues dans la MCDT sans et avec l'état lié dans le PO durant la propagation libre. La fonction d'échelle utilisée est de la forme $(1 + (a(t - T))^2)^{\frac{1}{2}}$.

De l'effet de la vitesse asymptotique a_∞

Pour terminer cette sous-section, nous analysons l'effet de la vitesse asymptotique a_∞ sur la distribution en énergie. Nous avons jusqu'ici utilisé $a_\infty = 0.01$ dans la fonction d'échelle. Sur la figure 3.19, nous présentons le spectre pour $a_\infty = 0.1$. Nous montrons qu'en conservant la même base, la distribution en énergie se dégrade. On ne retrouve le spectre correct qu'en augmentant le paramètre de dilatation α des fonctions de base de 0.01 à 0.05. En effet, augmenter a_∞ revient à confiner d'avantage le PO au voisinage de l'origine. La densité des fonctions de base devient insuffisante pour décrire proprement le PO. En augmentant le paramètre des fonctions de base, on diminue le domaine et de ce fait on augmente la densité des fonctions de base dans le domaine, permettant ainsi d'améliorer la description du PO et donc de reproduire le spectre. Donc, le choix de la vitesse asymptotique doit être tel que les fonctions de base puissent bien décrire l'évolution du PO dans la MCDT, notamment la compression des états liés durant l'interaction.

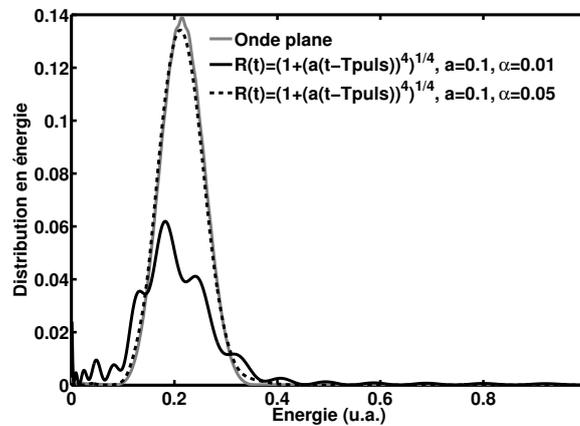


FIGURE 3.19 – Distributions en énergie obtenues dans la MCDT pour différentes valeurs du paramètres de dilatation α lorsque la vitesse asymptotique est élevée. La fonction d'échelle de forme $(1 + (a(t - T))^4)^{\frac{1}{4}}$ avec $a=0.1$.

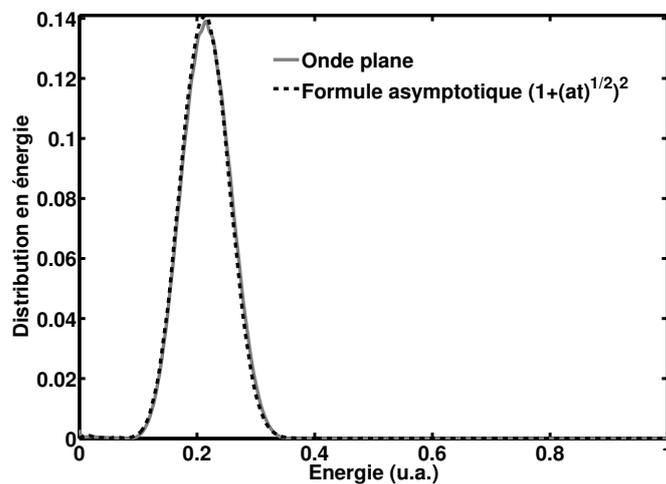


FIGURE 3.20 – Distributions en énergie dans la RN et dans la MCDT évaluées à $t = 1000$ u.a.. La fonction d'échelle utilisée est de la forme $(1 + (a(t))^2)^{\frac{1}{2}}$

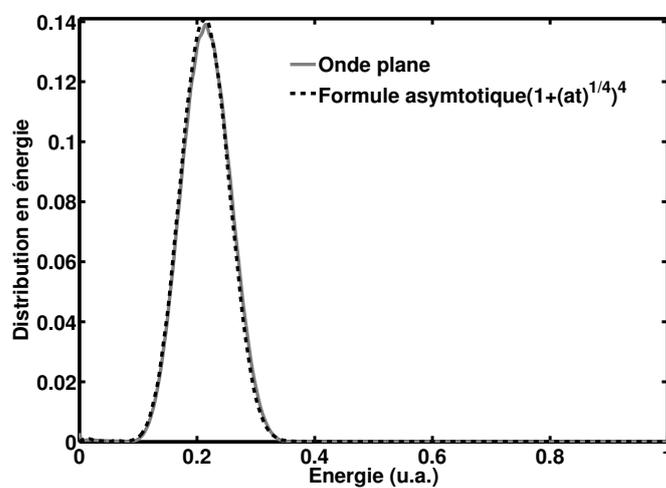


FIGURE 3.21 – Distributions en énergies dans la RN et dans la MCDT évaluées à $t = 500$ u.a.. La fonction d'échelle utilisée est de la forme $(1 + (a(t))^4)^{\frac{1}{4}}$

3.5.2 MCDT branchée durant l'interaction

Dans cette sous-section, nous montrons qu'il est possible d'initier la MCDT durant l'interaction. Nous considérons ici le cas où la MCDT est branchée au milieu de l'interaction. La fonction d'échelle est donnée dans ce cas par

$$R(t) = \begin{cases} 1 & t \leq 0 \\ (1 + (a_\infty t)^n)^{\frac{1}{n}} & t > 0. \end{cases} \quad (3.37)$$

A la fin de l'interaction, les états liés sont éliminés du PO suivant la relation

$$\Phi_{ionisé} = \Phi - \sum_i c_i \phi_i \quad \forall i \text{ tel que } E_i < 0, \quad (3.38)$$

où les amplitudes c_i s'obtiennent en projetant le PO total sur les états liés ϕ_i du hamiltonien dans la MCDT au temps t correspondant à la fin de l'interaction, soit

$$c_i = \langle \phi_i | \Phi \rangle. \quad (3.39)$$

Nous comparons sur les figures 3.20 et 3.21 le spectre obtenu dans la MCDT et le spectre obtenu en projetant le PO sur l'onde plane, respectivement pour $n = 2$ et $n = 4$. Les paramètres du champ et ceux du potentiel gaussien restent identiques à ceux utilisés dans la section précédente. En ce qui concerne la base, nous n'utilisons ici que 300 fonctions de paramètre $\alpha = 0.02$. Le nombre réduit de fonctions de base se justifie par le fait que l'expansion spatiale du PO est plus limitée que dans le cas précédent du fait que la MCDT est branchée plus tôt. La vitesse asymptotique $a_\infty = 0.01$.

3.5.3 MCDT branchée au début de l'interaction

Dans cette sous-section, nous étudions le cas où la MCDT est branchée au début de l'interaction. Autrement dit, l'évolution du système a entièrement lieu dans la MCDT. Nous définissons la fonction d'échelle comme

$$R(t) = (1 + (a_\infty(t + T))^n)^{\frac{1}{n}}. \quad (3.40)$$

T représente le temps correspondant à la fin de l'interaction de durée comprise entre $-T$ et T .

Sur les figures 3.22 et 3.23, nous comparons les distributions en énergie obtenues respectivement pour $n = 2$ et $n = 4$ dans la MCDT et celle obtenue

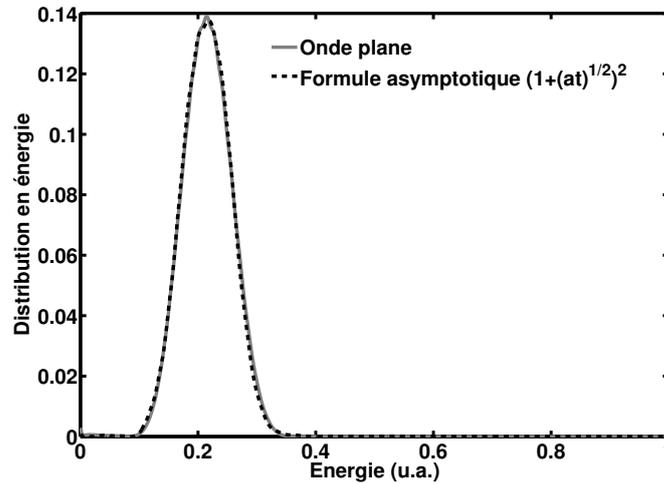


FIGURE 3.22 – Distributions en énergie dans la RN et dans la MCDT évaluées à $t = 1000$ u.a.. La fonction d'échelle utilisée est de la forme $(1+(a(t+T))^2)^{\frac{1}{2}}$.

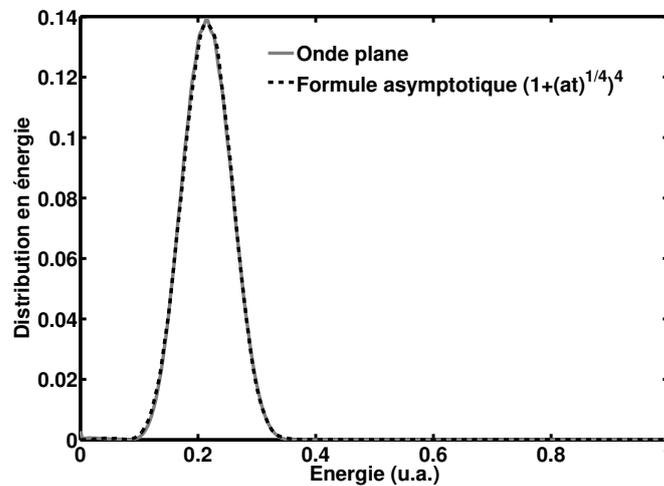


FIGURE 3.23 – Distributions en énergie dans la RN et dans la MCDT évaluées à $t = 500$ u.a.. La fonction d'échelle utilisée est de la forme $(1+(a(t+T))^4)^{\frac{1}{4}}$.

en projetant le PO à la fin de l'interaction sur l'onde plane dans la RN. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$, de fréquence $\omega = 0.7 \text{ u.a.}$ et de durée totale égale à 10 cycles optiques. Les paramètres du potentiel gaussien demeurent inchangés. Nous n'utilisons plus que 200 fonctions d'Hermite de paramètre $\alpha = 0.03$ dans la MCDT. La technique d'extraction des états liés à la fin de l'interaction est la même que celle définie par les relations (3.38) et (3.39). L'accord entre les résultats permet de montrer que toute la dynamique du PO peut être étudiée numériquement dans la MCDT, permettant ainsi de limiter davantage l'expansion du PO.

Nous avons jusqu'ici considéré des durées d'interaction relativement courtes. Nous comparons sur la figure 3.24 les spectres obtenus pour une durée égale à 40 cycles optiques ; l'intensité et la fréquence du champ étant inchangées. Les paramètres du potentiel gaussien sont $V_0 = 1 \text{ u.a.}$ et $\beta = 1 \text{ u.a.}$ Une base de 400 fonctions d'Hermite de paramètre $\alpha = 0.05$ est utilisée

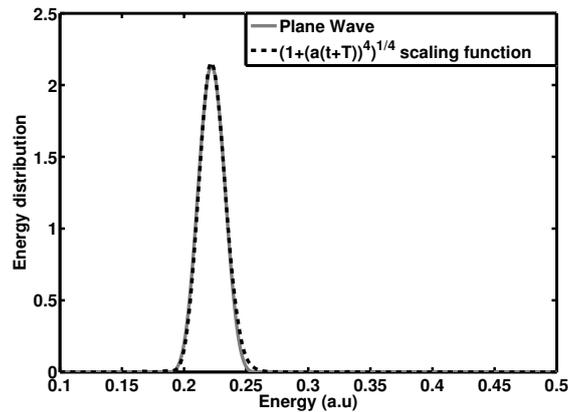


FIGURE 3.24 – Distributions en énergie dans la RN et dans la MCDT évaluées à $t = 4000 \text{ u.a.}$. La fonction d'échelle utilisée est de la forme $(1 + (a(t + T))^4)^{1/4}$, $a_\infty = 0.008$. Nous considérons un champ de durée égale à 40 cycles optiques.

dans la MCDT alors que dans la RN, 2000 fonctions d'Hermite de paramètre $\alpha = 0.008$ ont été nécessaires dans la RN. Le spectre dans la MCDT est évalué à $t = 4000 \text{ u.a.}$. Les résultats montrent un accord appréciable entre les distributions obtenues dans la RN et la MCDT. Mais ce qu'il est important de

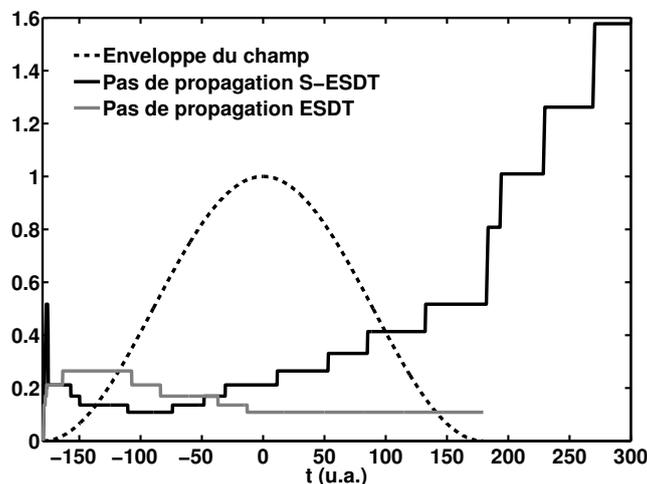


FIGURE 3.25 – Evolution du pas de propagation lorsque l'ESDT est résolue dans la MCDT (S-ESDT) et dans la RN (ESDT).

retenir ici est le gain en terme de nombre de fonctions de base utilisées pour décrire la dynamique du PO dans la MCDT qui permet de réduire le temps de calcul (du fait de la taille des matrices à manipuler) et qui vient en compensation du fait que le spectre est évalué à $t = 4000$ u.a.. Nous tirons également avantage du fait que l'ESDT dans la MCDT est moins "raide" comme nous l'avons déjà souligné. Pour illustrer ce dernier fait, nous montrons sur la figure 3.25 que le pas croît très rapidement dans la MCDT en fonction du temps [78] alors que le pas est quasi-constant dans la RN.

Pour terminer cette sous-section, nous montrons que la MCDT permet de reproduire les spectres des processus d'ionisation plus complexes. Nous simulons l'ionisation multiphotonique ou MPI (multiphoton ionization) et l'ionisation au dessus du seuil ou ATI (Above Treshold Ionization), en modifiant les paramètres du potentiel gaussien. Sur la figure 3.26, nous présentons les distributions en énergie dans la RN et dans la MCDT évaluées à $t = 1000$ u.a.. La fonction d'échelle utilisée est de la forme $(1 + (a_\infty(t + T))^4)^{\frac{1}{4}}$, $a_\infty = 0.05$. Nous considérons un champ d'intensité $I = 5 \times 10^{15}$ W.cm⁻², $\omega = 0.2$ u.a. et de durée égale à 8 cycles optiques. Les paramètres du potentiel gaussien sont $V_0 = 1$ u.a. et $\beta = 0.1$ u.a. Dans ces conditions, le système possède 4 états liés

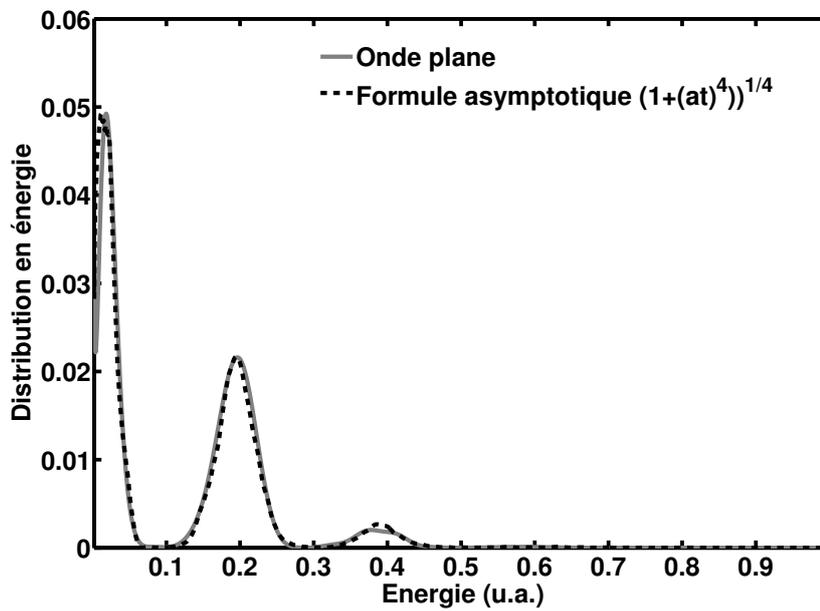


FIGURE 3.26 – Distributions en énergie dans la RN et dans la MCDT évaluées à $t = 1000$ u.a.. La fonction d'échelle utilisée est de la forme $(1 + (a(t + T))^4)^{\frac{1}{4}}$, $a_{\infty} = 0.05$. Nous considérons un champ d'intensité $I = 5 \times 10^{14}$ W.cm⁻², $\omega = 0.2$ u.a. et de durée égale à 8 cycles optiques. Les paramètres du potentiel gaussien sont $V_0 = 1$ u.a. et $\beta = 0.1$ u.a.

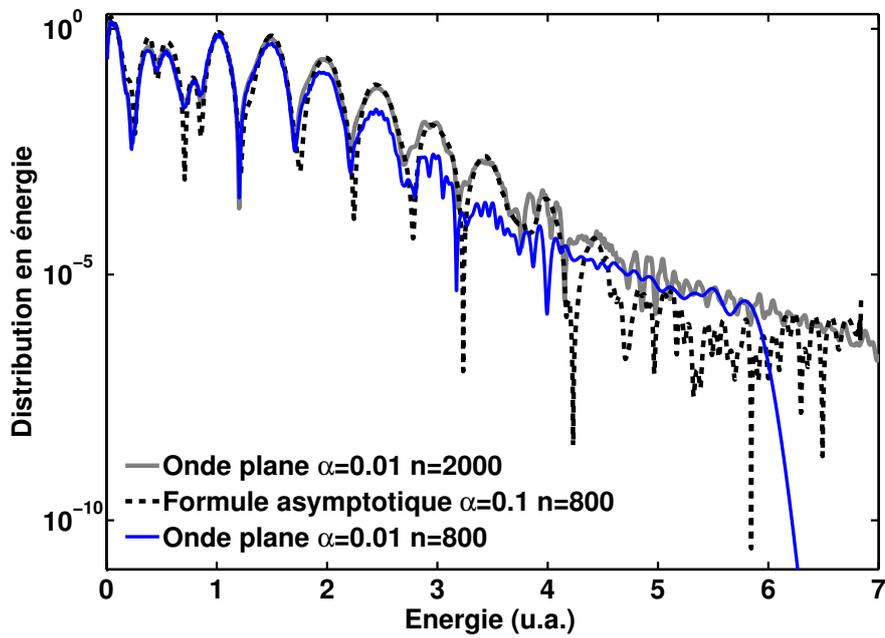


FIGURE 3.27 – Distributions en énergie dans la RN et dans la MCDT évaluées à $t = 4000$ u.a.. La fonction d'échelle utilisée est de la forme $(1 + (a(t + T))^4)^{\frac{1}{4}}$, $a_{\infty} = 0.03$. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{16}$ W.cm $^{-2}$, $\omega = 0.5$ u.a. et de durée égale à 8 cycles optiques. Les paramètres du potentiel gaussien sont $V_0 = 4$ u.a. et $\beta = 0.1$ u.a.

(voir tableau 3.1) et l'énergie du fondamental vaut -0.795 u.a. Dans la RN, nous utilisons une base de 1000 fonctions d'Hermite de paramètre $\alpha = 0.008$. Dans la MCDT par contre, nous utilisons une base de 400 fonctions de paramètre $\alpha = 0.05$. Les spectres obtenus dans les deux représentations sont en assez bon accord. Sur la figure 3.27 [78], les paramètres du puits gaussien sont $V_0 = 4$ u.a et $\beta = 0.1$ u.a. Le système possède dans ce cas 7 états liés. Les caractéristiques du champ laser sont $I = 10^{16}$ W.cm⁻², $\omega = 0.5$ u.a. et 8 cycles optiques de durée. Nous utilisons 800 fonctions de paramètre $\alpha = 0.1$ dans la MCDT. La fonction d'échelle est de type $n = 4$ avec $a_\infty = 0.03$. Nous obtenons des pics ATI, régulièrement espacés par une valeur correspondante à la fréquence du champ (énergie du photon) $\omega = 0.5$ u.a.. En utilisant le même nombre de fonctions de base dans la RN, on constate une dégradation dans le spectre à partir du troisième pic. Pour reproduire les 8 premiers pics obtenus dans la MCDT, une base de 2000 fonctions de paramètre $\alpha = 0.01$ est nécessaire. Il est à noter que même avec 2000 fonctions de base, on n'arrive pas à reproduire les deux derniers pics qui sont clairement reproduits dans la MCDT. On peut également noter une dégradation générale du spectre en deçà de 10^{-5} qui par le fait que pour ces calculs, la méthode de Fatunla a été utilisée pour la résolution numérique de l'ESDT. Nous avons en effet mentionné dans le chapitre précédent que la norme n'est conservée qu'avec au plus 6 chiffres avec la méthode de Fatunla. A ce propos, nous avons montré sur la figure 2.9 du chapitre précédent que l'utilisation du predictor-corrector, propagateur plus précis, dans le même cas permet d'améliorer la précision et d'obtenir les pics suivants.

3.6 Conclusion

Les méthodes dépendantes du temps de résolution de l'ESDT décrivant l'interaction des systèmes atomiques avec un champ électromagnétique sont généralement confrontées aux problèmes de réflexions du PO ionisé aux frontières et de l'extraction des informations physiques du fait que les fonctions asymptotiques du continuum ne sont pas toujours connues. Pour faire face à ces difficultés, il est important de développer des nouvelles approches dépendantes du temps.

Dans ce chapitre, nous avons présenté et étudié la MCDT qui est basée sur la transformation adiabatique de Solov'ev-Vinitsky [30]. Cette transformation

consiste à introduire un système de coordonnées dépendantes du temps en même temps qu'une transformation de phase. Nous avons montré que dans la nouvelle représentation, le PO est confiné dans l'espace et que l'ESDT est moins raide. Pour évaluer la distribution en énergie du paquet ionisé, nous avons utilisé l'approche de Derbov et al. [37] qui permet d'obtenir la distribution en énergie des électrons émis dans le continuum directement à partir du PO asymptotique. Nous avons appliqué la MCDT à l'étude d'un modèle unidimensionnel constitué d'un électron dans un puits de potentiel gaussien en interaction avec un champ laser. Le spectre des électrons émis a été évalué dans diverses situations physiques. Les résultats obtenus ont été comparés avec ceux obtenus dans la RN et ont permis de valider l'approche. Nous avons montré que le confinement du PO dans la MCDT permet d'étudier la dynamique du système avec des bases relativement petites comparativement à celles utilisées dans la RN. D'autre part nous avons montré qu'il est important d'extraire les états liés à la fin de l'interaction, afin d'éviter que les résultats physiques ne soient "pollués" du fait de la mauvaise description de ces états qui se contractent tout au long de l'évolution temporelle. Nous avons enfin montré que la MCDT pouvait être branchée à n'importe quel moment durant l'interaction.

Application de la MCDT à l'étude de l'ionisation de l'hydrogène atomique

Sommaire

4.1	Introduction	85
4.2	Formulation du problème et présentation de la méthode de résolution numérique	87
4.2.1	Présentation de l'ESDT décrivant la dynamique du système	87
4.2.2	Formulation de l'ESDT dans la MCDT	90
4.2.3	Résolution numérique de l'ESDT	90
4.3	Evaluation de la distribution en énergie dans la MCDT	96
4.4	Présentation des résultats et discussion	98
4.4.1	Résultats en régime haute fréquence	98
4.4.2	Résultats en régime basse fréquence	104
4.4.3	Discussion sur l'extraction des états liés et le choix des paramètres de la méthode	112
4.5	Conclusion	117

4.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, nous avons présenté la MCDT et nous l'avons appliqué à l'étude d'un modèle atomique constitué d'un électron dans un puits de potentiel gaussien unidimensionnel, en interaction avec un champ électromagnétique. Pour décrire l'évolution du système, nous avons résolu numériquement l'ESDT grâce à une méthode spectrale. Nous avons montré que la

MCDT permet de reproduire les spectres obtenus par projection du PO sur l'onde plane. Nous avons également montré que dans cette représentation, le PO ionisé reste confiné dans une région limitée de l'espace grâce d'une part au potentiel harmonique, et d'autre part au facteur d'échelle qui rend le PO stationnaire lorsque le temps devient suffisamment grand. Le PO ionisé asymptotique et stationnaire est, dans ces conditions, directement lié à la distribution en énergie des électrons. Nous avons également mis en évidence le fait que la transformation de phase introduite dans la nouvelle formulation du PO, permet d'extraire les oscillations spatio-temporelles du PO ionisé. Ce qui a pour effet de réduire la *raideur* du système et donc de permettre d'utiliser considérer des pas d'intégration élevés. Nous avons enfin montré que la MCDT pouvait être initiée à n'importe quel moment durant l'interaction, sous réserve d'un choix judicieux des paramètres des fonctions de base et de la vitesse asymptotique de la transformation d'échelle.

Dans ce chapitre, nous appliquons la MCDT à l'étude de l'interaction de l'hydrogène atomique tridimensionnel avec un champ laser. Il s'agit de vérifier que la méthode peut être utilisée dans le cas du potentiel coulombien de longue portée. Le but ultime étant de l'appliquer aux systèmes atomiques beaucoup plus complexes. Il convient de souligner que l'approche a fait l'objet d'une application à l'étude de l'ionisation par impact électronique des systèmes à deux électrons actifs par Serov et al. [39, 40]. Ces derniers utilisent un traitement perturbatif pour décrire la collision entre l'électron incident et l'atome cible. Mais à notre connaissance, elle n'a jamais été appliquée à l'étude de l'interaction d'un système atomique 3D avec un champ électromagnétique de plus ou moins longue durée. Le chapitre est structuré comme suit. Dans la section 2, nous formulons le problème à résoudre et présentons la méthode numérique de résolution de l'ESDT dans la MCDT. Dans la section 3, nous présentons la méthode d'évaluation des grandeurs physiques. Dans la section 4, nous présentons les résultats obtenus (distributions en énergie des électrons émis, distributions angulaires, distributions des moments) obtenues par MCDT et nous les comparons à ceux obtenus en projetant le PO sur des fonctions coulombiennes.

4.2 Formulation du problème et présentation de la méthode de résolution numérique

4.2.1 Présentation de l'ESDT décrivant la dynamique du système

L'ESDT *non-relativiste* et *semi-classique* dans la jauge de Coulomb décrivant l'interaction de l'hydrogène atomique avec un champ laser dans l'*approximation du noyau infiniment lourd* s'écrit en unités atomiques

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{r}, t) = \left[\frac{1}{2} (\hat{\mathbf{p}} + \mathbf{A}(\vec{r}, t))^2 - \frac{1}{r} \right] \Psi(\vec{r}, t). \quad (4.1)$$

L'*approximation du noyau de masse infinie* se justifie par le fait que le rapport de masse entre le noyau atomique et l'électron est faible. Elle permet de considérer le noyau atomique comme étant immobile au centre du système et de négliger l'opérateur énergie cinétique du noyau. Le *traitement non-relativiste* du Hamiltonien se justifie par le fait que les intensités des champs généralement considérées sont telles que les vitesses des particules émises sont très petites comparées à la vitesse de la lumière i.e $v \ll c$. L'*approche semi-classique* consiste à utiliser un traitement quantique pour les particules et à utiliser une approche classique pour la description du champ électromagnétique. L'approche classique que nous utilisons est celle proposée par Mollow [104, 105], qui consiste à négliger l'opérateur quantique du champ. L'approximation classique se justifie par le fait que le nombre de photons par unité de volume, pour les intensités que nous considérons tout au long de ce travail, est élevé. A titre d'exemple, pour une intensité $I = 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$, un volume V de 1 mm^3 et des photons d'énergie 1.17 eV (0.086 u.a.) (laser Nd-YAG), le nombre N de photons dans le volume est donné par

$$N = \frac{IV}{c\hbar\omega} \approx 10^{19} \text{ photons}. \quad (4.2)$$

L'équation (4.1) est traitée dans le cadre de l'*approximation dipolaire* qui consiste à négliger les variations spatiales du potentiel vecteur \mathbf{A} (ou du champ électrique) devant l'extension spatiale de l'atome (de l'ordre du rayon de Bohr) ; l'électron étant supposé rester au voisinage du noyau [106]. En effet, les longueurs d'onde que nous utilisons sont de l'ordre du $\mu\text{m}=10^{-6} \text{ m}$ qui est très grand devant l'extension spatiale de l'atome qui est de l'ordre de 10^{-10}

m. Cette approximation permet donc de considérer que \mathbf{A} ne dépend que du temps, soit

$$\mathbf{A}(\vec{r}, t) = \mathbf{A}(t). \quad (4.3)$$

En développant l'équation (4.1) et en tenant compte du fait que dans la jauge de Coulomb $\nabla \cdot \mathbf{A}(t) = 0$, l'équation devient

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{r}, t) = \left[\frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2} - \frac{1}{r} + \mathbf{A}(t) \cdot \hat{\mathbf{p}} + \frac{1}{2} \mathbf{A}^2(t) \right] \Psi(\vec{r}, t). \quad (4.4)$$

En utilisant des transformations unitaires de la forme $U = e^{-iJ}$, où la fonction J détermine la "jauge", on transforme l'équation (4.4) sous différentes formes "équivalentes". En particulier, pour les fonctions

$$J = - \int_{-\infty}^t \tilde{\mathbf{A}}^2(\tau) d\tau, \quad (4.5)$$

et

$$J = \vec{r} \cdot \tilde{\mathbf{A}}(t), \quad (4.6)$$

on obtient respectivement l'ESDT en jauge vitesse et en jauge longueur données par

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi_V(\vec{r}, t) = \left[\frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2} - \frac{1}{r} + \mathbf{A}(t) \cdot \hat{\mathbf{p}} \right] \Psi_V(\vec{r}, t), \quad (4.7)$$

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi_L(\vec{r}, t) = \left[\frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2} - \frac{1}{r} + \mathbf{E}(t) \cdot \vec{r} \right] \Psi_L(\vec{r}, t). \quad (4.8)$$

Nous utilisons dans ce chapitre des champs électromagnétiques polarisés linéairement suivant l'axe \vec{z} . Le potentiel vecteur $\mathbf{A}(t)$ est défini par

$$\mathbf{A}(t) = A_0 f(t) \sin(\omega t + \varphi) \vec{z} = g(t) \vec{z}, \quad (4.9)$$

où

$$f(t) = \begin{cases} \cos^2\left(\frac{\pi t}{\tau}\right), & |t| \leq \frac{\tau}{2} \\ 0, & |t| > \frac{\tau}{2} \end{cases}, \quad (4.10)$$

représente l'enveloppe du champ laser de durée totale $\tau = 2\pi n_c / \omega$; n_c étant le nombre de cycles optiques du champ. A_0 est l'amplitude maximale. Le champ électrique $\mathbf{E}(t)$ s'exprime en fonction du potentiel vecteur $\mathbf{A}(t)$ par la relation

$$\mathbf{E}(t) = - \frac{d}{dt} \mathbf{A}(t). \quad (4.11)$$

Il convient de noter que $A(\frac{\tau}{2}) = A(-\frac{\tau}{2}) = 0$, et de ce fait $\langle \mathbf{E} \rangle = 0$.

On trouve également dans la littérature d'autres transformations unitaires, notamment celle donnant lieu à la forme accélération de l'ESDT, obtenue par la transformation de Kramers [108, 109]. Elle est déduite de la transformation unitaire dont la fonction J est donnée par

$$J = \int_{-\infty}^t \mathbf{A}^2(\tau) d\tau + \int_{-\infty}^t \mathbf{A}(\tau) \cdot \hat{\mathbf{p}} d\tau. \quad (4.12)$$

Hormis en champ très intense, cette dernière jauge n'est pas très utilisée en pratique.

En principe, les résultats physiques obtenus *après* l'interaction devraient être indépendants de la jauge utilisée lorsque l'ESDT est résolue exactement [110]. Mais, lorsque des approximations sont faites, l'invariance des résultats par rapport à la jauge n'est plus garantie. Pour des raisons numériques d'une part et à cause du poids affecté aux différentes régions de l'espace par la forme analytique du terme d'interaction dans les différentes jauges [111, 112] d'autre part, nous choisissons de résoudre l'ESDT dans la jauge vitesse. En effet, dans la *jauge longueur*, le Hamiltonien d'interaction est proportionnel à r . Il est de ce fait important aux grandes distances et l'est moins près du noyau. Cette formulation n'est pas très adaptée aux problèmes que nous étudions dans la mesure où on souhaiterait avoir des interactions faibles à grande distance et plus intenses autour du noyau. Par ailleurs, pour des champs intenses, l'amplitude d'oscillation (quiver motion) des électrons sous l'influence du champ devient importante. Dans ces conditions, il a été montré que le nombre de moments angulaires requis pour décrire le mouvement de l'électron est élevé [103]. Dans la *jauge accélération*, le hamiltonien d'interaction tend vers 0 pour des r grands, et conviendrait donc bien à l'étude des électrons dans le continuum. Mais le calcul des éléments de matrice du hamiltonien d'interaction dans cette jauge est très laborieux. C'est la raison pour laquelle la jauge accélération n'est pas très utilisée en pratique. La *jauge vitesse* est un cas intermédiaire entre la jauge longueur et la jauge accélération. Le nombre de moments angulaires nécessaire pour décrire le système est moins élevé. C'est la raison pour laquelle elle est très utilisée en pratique et pour laquelle nous l'adoptons également.

4.2.2 Formulation de l'ESDT dans la MCDT

La forme analytique de l'ESDT décrivant l'interaction de l'hydrogène atomique avec un champ électromagnétique dans la MCDT est obtenue en introduisant dans l'équation (4.7) la transformation d'échelle donnée par

$$\vec{r} = R(t)\vec{\xi}, \quad (4.13)$$

et la transformation de phase donnée par

$$\Psi(\vec{r}, t) = R^{-\frac{3}{2}} e^{\frac{i}{2} R \dot{R} \xi^2} \Phi(\vec{\xi}, t), \quad (4.14)$$

où $R(t)$ représente la *fonction d'échelle*. On obtient, en suivant la même procédure que celle décrite dans l'annexe C, l'ESDT dans la MCDT donnée par

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Phi(\vec{\xi}, t) = \left[\frac{\hat{\mathbf{p}}_{\xi}^2}{2R^2} - \frac{1}{R\xi} + \frac{\mathbf{A}(t) \cdot \hat{\mathbf{p}}_{\xi}}{R} + \frac{1}{2} R \ddot{R} \xi^2 \right] \Phi(\vec{\xi}, t). \quad (4.15)$$

Comme dans le chapitre précédent, les transformations (4.13) et (4.14) introduisent un potentiel harmonique de confinement et une dépendance temporelle dans les différents termes du hamiltonien. La différence majeure dans ce cas précis se trouve dans le fait que la dépendance temporelle du potentiel coulombien est factorisable. Ce qui permet, sur le plan numérique, de n'évaluer la matrice associée au potentiel coulombien qu'une seule fois. Ceci est d'autant plus important dans la mesure où le potentiel coulombien de répulsion entre les électrons dans le cas des systèmes à plus d'un électron actif est en général numériquement difficile à évaluer. La fonction d'échelle $R(t)$ est choisie comme dans le chapitre précédent sous la forme

$$R(t) = \begin{cases} (1 + (R_{\infty}(t - t_b))^n)^{\frac{1}{n}}, & t \geq t_b \text{ avec } n = 2 \text{ ou } 4 \\ 1, & t < t_b \end{cases}, \quad (4.16)$$

de sorte que $R(t \rightarrow \infty) = R_{\infty} t$ et qu'à l'instant initial, $\Psi(\vec{r}, 0) = \Phi(\vec{\xi}, 0)$.

4.2.3 Résolution numérique de l'ESDT

4.2.3.1 Les fonctions sturmiennes

Pour résoudre numériquement l'ESDT, nous développons la solution de l'ESDT sur une base de fonctions sturmiennes $S_{n,l}^{\kappa}(r)$. Ces fonctions forment

4.2. Formulation du problème et présentation de la méthode de résolution numérique

91

une base purement discrète, complète et sont solutions d'un problème de type Sturm-Liouville [113, 114] donné par

$$\left[-\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} + \frac{l(l+1)}{2r^2} - \frac{\kappa n}{r} + \frac{\kappa^2}{2} \right] S_{n,l}^\kappa(r) = 0, \quad (4.17)$$

ou

$$\left[-\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} - \frac{1}{r} \frac{d}{dr} + \frac{l(l+1)}{2r^2} - \frac{\kappa n}{r} + \frac{\kappa^2}{2} \right] \frac{S_{n,l}^\kappa(r)}{r} = 0, \quad (4.18)$$

avec les conditions aux limites $S_{n,l}^\kappa(0) = 0$ et $S_{n,l}^\kappa(\infty) = 0$. κ est un paramètre réel et positif généralement appelé *paramètre non linéaire*, n et l sont des entiers positifs tels que $n > l$. En posant $E = -\kappa^2/2 = -Z^2/2n^2$ (autrement dit $Z = \kappa n$), on remarque que l'équation (4.18) est semblable à l'équation aux valeurs propres des fonctions radiales des hydrogénoïdes donnée par

$$\left[-\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} - \frac{1}{r} \frac{d}{dr} + \frac{l(l+1)}{2r^2} - \frac{Z}{r} - E \right] \frac{R_{E,l}(r)}{r} = 0. \quad (4.19)$$

Pour certains choix du paramètre κ , ces fonctions coïncident avec les états hydrogénoïdes. C'est ce qui explique la très grande précision obtenue dans l'évaluation des niveaux d'énergie de l'atome d'hydrogène comme l'illustrent les résultats du tableau 4.1 dans lequel nous présentons les premiers niveaux d'énergie de l'hydrogène atomique obtenus en résolvant l'équation de Schrödinger stationnaire avec une base de 100 sturmiennes et $\kappa = 0.3$. Ces fonctions sturmiennes forment donc une base particulièrement bien adaptée aux problèmes des hydrogénoïdes en particulier, et aux systèmes atomiques en général, exposés à un champ électromagnétique. Par ailleurs, le spectre du hamiltonien atomique possède une partie purement continue. L'utilisation des états propres de l'hydrogène comme fonctions de base donne lieu à des intégrales sur des fonctions du continuum qui sont numériquement difficiles à manipuler. L'utilisation d'une base de fonctions sturmiennes permet d'éviter ce problème en discrétisant le continuum à un électron. L'intérêt de choisir une base de fonctions sturmiennes réside également dans la forme extrêmement simple des éléments de matrice [17, 115] associées aux opérateurs $\hat{\mathbf{p}}^2$, $\hat{\mathbf{p}}$ et $1/r$. Les sturmiennes peuvent s'écrire en termes des polynômes de Laguerre [116] comme

$$S_{n,l}^\kappa(r) = N_{n,l}^\kappa r^{l+1} e^{-\kappa r} L_{n-l-1}^{2l+1}(2\kappa r) \quad (4.20)$$

TABLE 4.1 – Premiers niveaux d'énergie de l'atome d'hydrogène obtenus en résolvant l'équation de Schrödinger stationnaire avec une base de 100 sturmiennes et $\kappa = 0.3$.

$l = 0$	$l = 1$	$l = 2$
-0.499999999999999	-0.124999999999999	-0.055555555555555
-0.124999999999999	-0.055555555555555	-0.031250000000000
-0.055555555555555	-0.031250000000000	-0.019999999999999
-0.031250000000000	-0.020000000000000	-0.013888888888888
-0.019999999999999	-0.013888888888888	-0.0102040816326
-0.013888888888888	-0.0102040816326	-0.007812500000000
-0.0102040816326	-0.007812500000000	-0.0061728395061
-0.007812499999999	-0.0061728395061	-0.004999999999999
0.0061728395061	-0.004999999999999	-0.0041322314049
-0.004999999999999	-0.0041322314049	-0.003472222222222

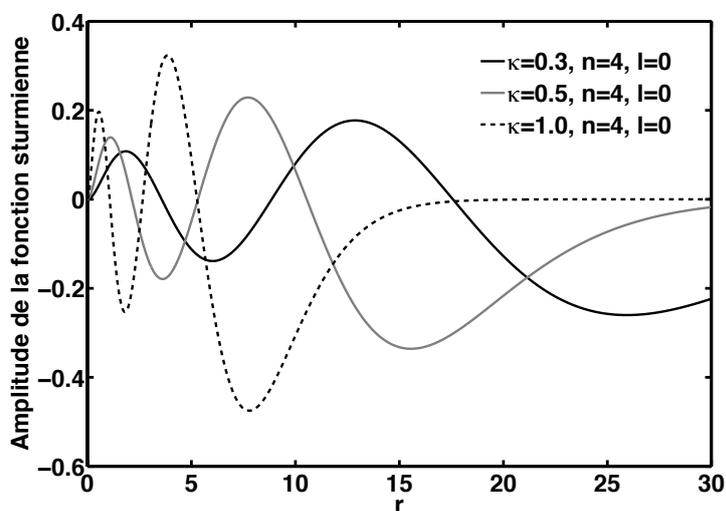


FIGURE 4.1 – Comportement des fonctions sturmiennes en fonction du paramètre κ pour n et l fixés.

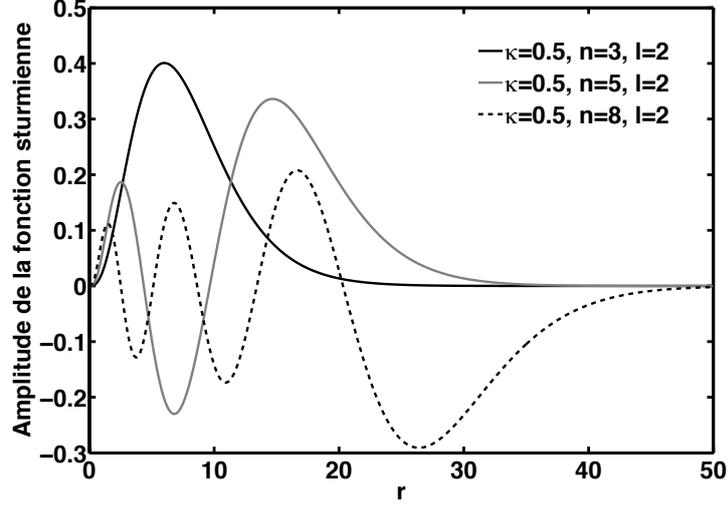


FIGURE 4.2 – Comportement des fonctions sturmiennes en fonction de n et l fixés, pour κ fixé.

avec

$$N_{n,l}^{\kappa} = \sqrt{\frac{\kappa}{n}} (2\kappa)^{l+1} \left[\frac{(n-l-1)!}{(n+l)!} \right]^{1/2}, \quad (4.21)$$

ou en termes des fonctions hypergéométriques suivant la relation

$$S_{n,l}^{\kappa}(r) = \tilde{N}_{n,l}^{\kappa} r^{l+1} e^{-\kappa r} {}_1F_1(-n+l+1; 2l+2; 2\kappa r) \quad (4.22)$$

avec

$$\tilde{N}_{n,l}^{\kappa} = \sqrt{\frac{\kappa}{n}} (2\kappa)^{l+1} \frac{1}{(2l+1)!} \left[\frac{(n+l)!}{(n-l-1)!} \right]^{1/2}. \quad (4.23)$$

Les coefficients de normalisation apparaissant dans les équations précédentes sont obtenus en utilisant la condition de normalisation des sturmiennes de Pont et Shakeshaft [181] (caractérisée par un comportement à l'origine en r^{l+1}) donnée par

$$\langle S_{n,l}^{\kappa} | S_{n,l}^{\kappa} \rangle \equiv \int_0^{\infty} S_{n,l}^{\kappa*}(r) S_{n,l}^{\kappa}(r) dr = 1. \quad (4.24)$$

Par ailleurs, elles vérifient les conditions d'orthogonalité suivantes :

$$\langle S_{n',l}^\kappa | \frac{1}{r} | S_{n,l}^\kappa \rangle \equiv \int_0^\infty S_{n',l}^{\kappa*}(r) \frac{1}{r} S_{n,l}^\kappa(r) dr = 0, \text{ si } n \neq n', \quad (4.25)$$

$$\langle S_{n,l}^\kappa | \frac{1}{r} | S_{n,l}^\kappa \rangle \equiv \int_0^\infty S_{n,l}^{\kappa*}(r) \frac{1}{r} S_{n,l}^\kappa(r) dr = 0, \text{ si } l \neq l'. \quad (4.26)$$

Pour illustrer le rôle joué par le paramètre non linéaire κ , nous représentons sur la figure 4.1 pour n et l donnés, l'amplitude de la sturmienne en fonction de κ . On constate que la sturmienne est d'autant plus comprimée que κ est grand et qu'elle est étirée lorsqu'on diminue κ . C'est pourquoi κ est également appelé *paramètre de dilatation*. Donc pour reproduire une fonction spatialement étendue et oscillant lentement, il est nécessaire d'utiliser des sturmiennes de paramètre κ petit. De même, des sturmiennes de paramètre κ grand sont nécessaires pour reproduire des fonctions oscillant rapidement et spatialement moins étendues. Sur la figure 4.2, nous représentons des fonctions sturmiennes en fonction de n , pour κ et l fixés. On montre que le nombre d'oscillations augmente en fonction de n et que le nombre de zéros est donné par $n_r = n - l - 1$, le nombre quantique principal radial. On montre également que l'étendue spatiale de la fonction croît avec n . C'est pourquoi il est communément affirmé que pour reproduire une fonction ou un PO spatialement étendu et/ou oscillant rapidement, il faut utiliser des fonctions sturmiennes d'indice n élevé. Cependant, il convient de faire remarquer que *la période des oscillations augmente avec r pour des paramètres κ et n donnés. De ce fait, les zones les plus éloignées, même lorsqu'elles sont atteintes par les sturmiennes peuvent être mal décrites à cause d'une densité insuffisante de fonctions. Ce qui, comme nous le montrerons dans la troisième partie, peut être source de réflexion inattendue du PO aux frontières.*

4.2.3.2 Résolution numérique de l'ESDT dans la MCDT

Pour résoudre l'ESDT dans la MCDT donnée par l'équation (4.15), nous développons le PO $\Phi(\vec{\xi}, t)$ sur une base de fonctions sturmiennes $S_{n,l}^\kappa$ pour la partie radiale et d'harmoniques sphériques $Y_{l,m}(\hat{\xi})$ pour la partie angulaire, soit

$$\Phi(\vec{\xi}, t) = \sum_{n,l,m} a_{n,l,m}(t) \frac{S_{n,l}^\kappa(\xi)}{\xi} Y_{l,m}(\hat{\xi}) = \sum_{n,l,m} a_{n,l,m}(t) F_{n,l,m}, \quad (4.27)$$

En substituant dans l'équation (4.15) le développement donné par l'équation (4.27), en multipliant chaque membre par les éléments $\frac{S_{n',l'}^\kappa(\xi)}{\xi} Y_{l',m'}^*(\hat{\xi}) = F_{n',l',m'}$ et en intégrant sur tout l'espace, nous obtenons un système d'équations différentielles qui peut être représenté sous la forme matricielle suivante

$$i \frac{d}{dt} \mathbf{S} \Phi(t) = \left[R^{-2} \mathbf{H}_{\text{cin}} + R^{-1} \mathbf{H}_{\text{coul}} + g(t) R^{-1} \mathbf{D} + \frac{1}{2} R \ddot{R} \mathbf{H}_{\text{harm}} \right] \Phi(t), \quad (4.28)$$

avec

$$S_{n',l',m',n,l,m} = \langle F_{n',l',m'} | F_{n,l,m} \rangle, \quad (4.29)$$

$$\mathbf{H}_{\text{cin}n',l',m',n,l,m} = \langle F_{n',l',m'} | \frac{\hat{\mathbf{P}}_\xi^2}{2} | F_{n,l,m} \rangle, \quad (4.30)$$

$$\mathbf{H}_{\text{coul}n',l',m',n,l,m} = \langle F_{n',l',m'} | -\frac{1}{\xi} | F_{n,l,m} \rangle, \quad (4.31)$$

$$\mathbf{D}_{n',l',m',n,l,m} = \langle F_{n',l',m'} | \tilde{\mathbf{z}} \cdot \hat{\mathbf{P}}_\xi | F_{n,l,m} \rangle. \quad (4.32)$$

Dans (4.28), la matrice de recouvrement \mathbf{S} est réelle, tridiagonale par bloc, symétrique et définie positive. La matrice associée à l'opérateur énergie cinétique \mathbf{H}_{cin} est tridiagonale par bloc, réelle et symétrique. La matrice associée au terme coulombien \mathbf{H}_{coul} est diagonale, réelle et symétrique. Pour ces trois premières matrices, seuls les blocs correspondant aux mêmes valeurs de moment angulaire ($l = l'$) sont non nuls. La matrice associée au terme d'interaction \mathbf{D} est bloc-tridiagonale et complexe. Le calcul de ces éléments de matrice est présenté dans la thèse de Huens [107]. $\Phi(t)$ est le vecteur des coefficients $a_{n,l,m}(t)$ de la décomposition du PO dans la base sturmiennne. La matrice \mathbf{H}_{harm} associée au potentiel harmonique de confinement est pentadiagonale, réelle et symétrique, d'éléments

$$\mathbf{H}_{\text{harm}n',l',m',n,l,m} = \langle F_{n',l',m'} | \xi^2 | F_{n,l,m} \rangle. \quad (4.33)$$

De même, seuls les blocs correspondant aux mêmes valeurs de moment angulaire ($l = l'$) sont non nuls. Le calcul analytique des éléments de matrice du potentiel harmonique est présenté dans l'annexe H. Puisque les champs que nous considérons sont polarisés linéairement, le terme d'interaction dipolaire ne couple que les états de même nombre quantique m (dans notre cas $m = 0$). La dimension de l'hypermatrice est $(N.L) \times (N.L)$ où N est le nombre de sturmiennes par moment angulaire et L le nombre total de moments angulaires. L'intégration numérique de l'ESDT-MCDT est faite directement dans

la base sturmienne au moyen des propagateurs que nous avons présentés dans le chapitre 2. L'état initial du système est, sauf mention contraire, l'état $1s$.

4.3 Evaluation de la distribution en énergie dans la MCDT

Pour établir l'expression de la distribution du PO ionisé, nous utilisons une démarche similaire à celle utilisée dans le chapitre 3, appliquée à l'atome d'hydrogène. Nous présentons ici les points essentiels de la démarche, les calculs détaillés sont présentés dans l'annexe I.

On exploite le fait que le PO total s'écrit comme une somme discrète sur les états liés et une somme continue sur les états du continuun comme suit :

$$\Psi(\vec{r}, t) = \sum_{n,l,m} a_{n,l}(t) e^{-iE_{n,l}t} \psi_{n,l,m}^{(b)}(\vec{r}) + \sum_{l,m} \int d\vec{k} c_l(k, t) e^{-iEt} \psi_{l,m}^{(c)}(\vec{k}r). \quad (4.34)$$

Les états liés $\psi_{n,l,m}^{(b)}(\vec{r})$ et les états du continuun $\psi_{l,m}^{(c)}(\vec{k}r)$ sont donnés :

$$\psi_{n,l,m}^{(b)}(\vec{r}) = \varphi_{n,l}(r) Y_{l,m}(\hat{r}), \quad (4.35)$$

$$\psi_{l,m}^{(c)}(\vec{k}r) = \mathfrak{R}_l^{(-)}(kr) Y_{l,m}(\hat{r}) Y_{l,m}^*(\hat{k}). \quad (4.36)$$

En prenant en compte (4.35) et (4.36), l'équation (4.34) devient après intégration sur les angles de \vec{k}

$$\psi(\vec{r}, t) = \sum_{n,l,m} a_{n,l}(t) e^{-iE_{n,l}t} \varphi_{n,l}(r) Y_{l,m}(\hat{r}) + \sum_{l,m} Y_{l,m}(\hat{r}) \int d\vec{k} c_l(k, t) e^{-iEt} \mathfrak{R}_l^{(-)}(kr). \quad (4.37)$$

Les fonctions radiales du continuun, normalisées en énergie, sont données par [117] :

$$\mathfrak{R}_l^{(-)}(kr) = i^l e^{-i\sigma_l} N(k) \frac{F_l(\gamma, kr)}{kr}, \quad (4.38)$$

où $F_l(\gamma, kr)$ désigne la fonction coulombienne régulière, $\sigma_l = \arg \Gamma(l + 1 + i\gamma)$ représente la déphasage coulombien, avec $\gamma = -z/k$, z étant la charge du noyau et $N(k) = \sqrt{k}$ représente le coefficient de normalisation dans l'espace des énergies.

Aux grandes distances, les fonctions d'onde des états liés tendent vers zéro. On peut donc écrire

$$\psi(\vec{r}, t) \underset{r \rightarrow \infty}{=} \sum_{l,m} Y_{l,m}(\hat{r}) \int dk c_l(k, t) e^{-iEt} \mathfrak{R}_l^{(-)}(kr, r \rightarrow \infty). \quad (4.39)$$

En posant

$$\phi_l(r, t) = \int dk c_l(k, t) e^{-iEt} \mathfrak{R}_l^{(-)}(kr, r \rightarrow \infty). \quad (4.40)$$

et en tenant compte du fait que [117, 118] :

$$F_l(\gamma, kr) \underset{r \rightarrow \infty}{=} \sin\left(kr - \frac{l\pi}{2} + \frac{z}{k} \ln(2kr) + \sigma_l\right), \quad (4.41)$$

l'équation (4.40) devient

$$\phi_l(r, t) \underset{t \rightarrow \infty}{=} i^l e^{-i\sigma_l} \int dk c_l(k, t) N(k) e^{-i\frac{k^2}{2}t} \sin\left(kr - \frac{l\pi}{2} + \frac{z}{k} \ln(2kr) + \sigma_l\right). \quad (4.42)$$

En décomposant le sinus en ondes sphériques entrante et sortante on obtient

$$\phi_l(r, t) \underset{t \rightarrow \infty}{=} \frac{i^l e^{-i\sigma_l}}{2i} (\mathcal{L}_1 - \mathcal{L}_2), \quad (4.43)$$

avec

$$\mathcal{L}_1 = \frac{i^l e^{-i\sigma_l}}{2i} \int dk c_l(k, t) N(k) e^{-i\frac{k^2}{2}t} e^{i\left(kr - \frac{l\pi}{2} + \frac{z}{k} \ln(2kr) + \sigma_l\right)} \quad (4.44)$$

$$\mathcal{L}_2 = \frac{i^l e^{-i\sigma_l}}{2i} \int dk c_l(k, t) N(k) e^{-i\frac{k^2}{2}t} e^{-i\left(kr - \frac{l\pi}{2} + \frac{z}{k} \ln(2kr) + \sigma_l\right)}. \quad (4.45)$$

En utilisant la méthode des phases stationnaires [119, 100], on montre que \mathcal{L}_2 est nul et qu'aux grands temps

$$\mathcal{L}_1 \underset{t \rightarrow \infty}{\sim} c_l(k_0, t) \times R(k_0) \sqrt{\frac{2\pi}{t \times \left| \frac{d^2\chi(k_0)}{dk^2} \right|}} e^{i\left(t \times \chi(k_0) + \frac{\pi}{4} \text{sign}\left(\frac{d^2\chi(k_0)}{dk^2}\right)\right)}, \quad (4.46)$$

avec

$$R(k_0) = \frac{N(k_0)}{2ir} e^{i\left(-\frac{l\pi}{2} + \sigma_l\right)}, \quad (4.47)$$

et

$$\chi(k) = -\frac{k^2}{2} + k \frac{r}{t} + z \frac{\ln(2kr)}{kt}. \quad (4.48)$$

Le PO aux grands temps et à grande distance est donc donné par

$$\Psi(\vec{r}, t \rightarrow \infty) \underset{r \rightarrow \infty}{\sim} \sum_{l,m} Y_{l,m}(\hat{r}) \times c_l(k_0, t) \times R(k_0) \sqrt{\frac{2\pi}{it \left| \frac{d^2\chi(k_0)}{dk^2} \right|}} e^{i(t \times \chi(k_0))}. \quad (4.49)$$

Par ailleurs, d'après (4.14) on a :

$$\Psi(\vec{r}, t \rightarrow \infty) = \frac{1}{a^{\frac{3}{2}}} e^{\frac{i}{2} a \dot{a} \xi^2} \Phi(\vec{\xi}, t \rightarrow \infty). \quad (4.50)$$

En égalant les deux dernières relations et tenant compte de la relation (4.14), on obtient les amplitudes de probabilité partielles suivantes :

$$c_l(k_0) = \frac{1}{a^{\frac{3}{2}}} e^{\frac{i}{2} a \dot{a} \xi^2} \times \left(R(k_0) \sqrt{\frac{2\pi}{i \times t \times \left| \frac{d^2\chi(k_0)}{dk^2} \right|}} e^{i(t \times \chi(k_0))} \right)^{-1} \Phi(\xi, t \rightarrow \infty), \quad (4.51)$$

avec

$$\xi = \frac{1}{a_\infty} \times \frac{r}{t} \approx \frac{1}{a_\infty} \left(k_0 - \frac{\zeta}{k_0^2 t} \ln \left(1 - \frac{k_0^3 t}{z} \right) \right). \quad (4.52)$$

L'amplitude de probabilité ainsi obtenue, s'exprime simplement en fonction du PO stationnaire correspondant au PO aux grands temps et à grande distance dans la MCDT.

4.4 Présentation des résultats et discussion

Nous présentons les résultats obtenus en résolvant l'ESDT-MCDT. Nous ne considérons ici que le cas où la MCDT est branchée au début de l'interaction.

4.4.1 Résultats en régime haute fréquence

Nous présentons ici les résultats obtenus à haute fréquence i.e des fréquences ω supérieures au potentiel d'ionisation I_p de l'atome. Nous comparons la dynamique des PO obtenus en résolvant l'ESDT dans la MCDT (ESDT-MCDT) et en résolvant l'ESDT classique. Nous comparons également les distributions en énergie totale et angulaire obtenues dans les deux représentations. Dans l'ESDT-MCDT, le spectre est obtenu en utilisant la formule

asymptotique (4.51) alors qu'il est évalué en projetant le PO obtenu à la fin de l'interaction sur des fonctions coulombiennes dans l'approche classique (ESDT).

4.4.1.1 Comparaison de la dynamique du PO dans les deux représentations

Sur les figures 4.3 et 4.4, nous représentons respectivement l'évolution, dans l'ESDT-MCDT, des parties réelles du PO total durant l'interaction et celle du PO ionisé après l'interaction. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{14}$ W.cm⁻², de fréquence $\omega = 0.7$ u.a. et de durée totale égale à 10 cycles optiques. Une base de 100 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ par moment angulaire pour un total de 8 moments angulaires est utilisée pour décrire le PO. La fonction d'échelle est donnée par la formule (4.16) avec $n = 4$ et $R_\infty = 0.01$. Sur la figure 4.5 nous représentons l'évolution des parties réelles des PO obtenues dans l'ESDT pour des paramètres du champ identiques. Les figures montrent également, dans le cas de l'hydrogène atomique, que *l'utilisation de la MCDT permet d'une part de limiter l'extension spatiale du paquet d'onde avec le temps, et d'autre part d'extraire du PO les oscillations dues au gradient de phase*. En effet, le PO ionisé est entièrement localisé dans la boîte de 100 u.a. à $t = 700$ u.a.. Nous avons par ailleurs vérifié qu'à $t = 700$ u.a., le PO est stationnaire et donne une image de la distribution en énergie du PO ionisé. Alors qu'en résolvant l'ESDT ordinaire et à seulement $t = 150$ u.a., le PO se trouve en partie hors de la boîte de 100 u.a. comme le montre la figure 4.5. Par ailleurs, le PO présente des oscillations dues aux gradients de phase ; oscillations responsables de la raideur de l'ESDT. Pour terminer cette étude, nous montrons sur la figure 4.6 que l'augmentation de la vitesse asymptotique permet de limiter d'avantage l'expansion du PO. Mais, comme nous l'avons déjà souligné, l'augmentation doit être raisonnable, au risque de faire face à la mauvaise description des états liés avant la fin de l'interaction.

4.4.1.2 Etude comparative de la distribution en énergie

Dans cette sous-section, nous comparons les spectres obtenus dans les deux représentations. Les paramètres du champ ainsi que ceux de la base restent identiques à ceux utilisés dans la sous-section précédente.

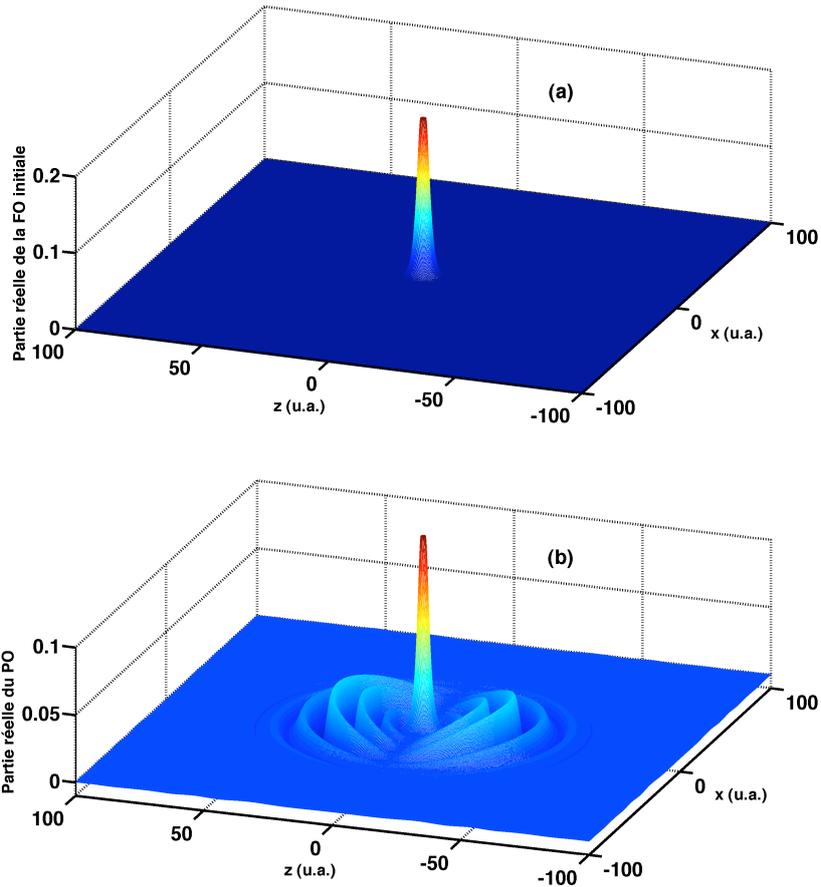


FIGURE 4.3 – Evolution des parties réelles du PO total dans le plan Oxz obtenues en résolvant l'ESDT-MCDT. Nous considérons l'interaction du système atomique avec un champ d'intensité $I = 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$, de fréquence $\omega = 0.7 \text{ u.a.}$ et de durée égale à 10 cycles optiques. La vitesse asymptotique $R_\infty = 0.01$. (a) représente la FO à l'instant initial. (b) représente le PO total à la fin de l'interaction avec le champ.

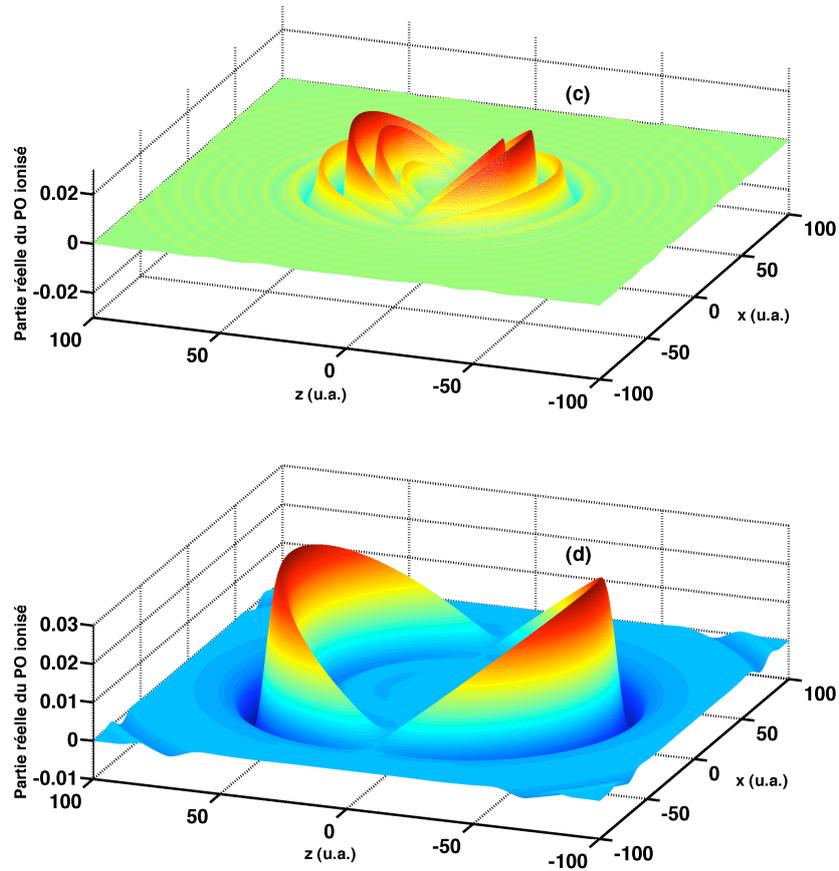


FIGURE 4.4 – Evolution des parties réelles du PO total dans le plan Oxz obtenues en résolvant l'ESDT-MCDT pour les paramètres du champ identiques à ceux de la figure 4.3. (c) représente le PO ionisé à la fin de l'interaction avec le champ. (d) représente le PO ionisé à $t = 700$ u.a.

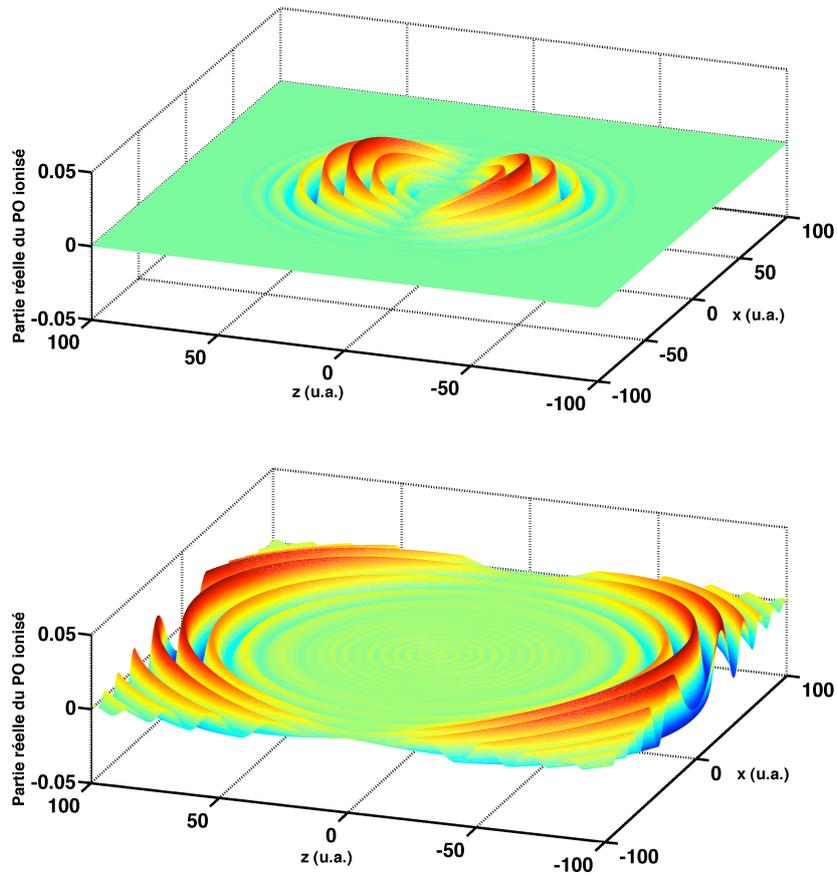


FIGURE 4.5 – Evolution des parties réelles du PO dans le plan Oxz obtenues en résolvant l'ESDT pour les paramètres du champ identiques à ceux de la figure 4.3. Le premier graphe représente le PO ionisé à la fin de l'interaction. Le deuxième graphe représente le PO ionisé à $t = 150$ u.a.

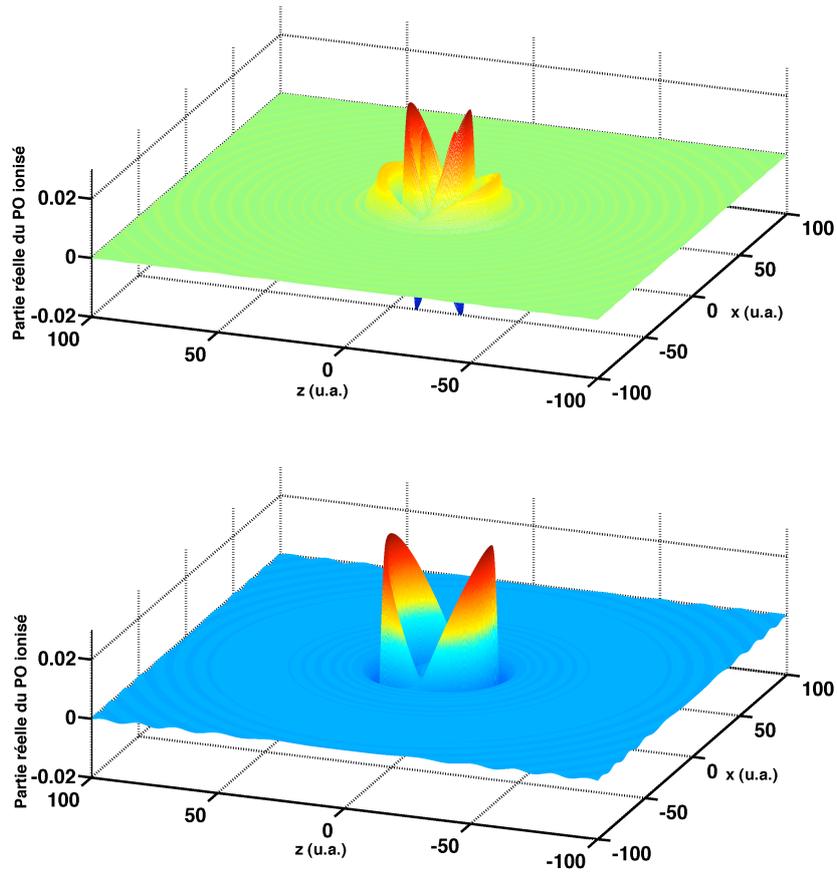


FIGURE 4.6 – Evolution des parties réelles du PO dans le plan Oxz obtenue en résolvant l'ESDT-MCDT avec un champ de paramètres identiques à ceux de la figure 4.3, mais pour une vitesse asymptotique $R_\infty = 0.03$. Le premier graphe représente le PO ionisé à la fin de l'interaction et le deuxième graphe représente le PO ionisé à $t = 700$ u.a.

Sur la figure 4.7, nous comparons les distributions en énergie intégrées sur les angles et les distributions angulaires obtenues dans les deux représentations. Dans l'ESDT-MCDT, le spectre est obtenu en utilisant la formule asymptotique (4.51). Les distributions angulaires sont représentées en fonction de θ à $\phi = 0$ pour l'énergie $E = 0.2$ u.a., valeur déduite du principe de conservation d'énergie suite à l'absorption d'un photon. Dans l'ESDT, le PO est projeté sur des fonctions coulombiennes à la fin de l'interaction. La fonction d'échelle est donnée par la formule (4.16) avec $n = 4$ et $R_\infty = 0.01$. Le spectre dans l'ESDT-MCDT est évalué à $t = 700$ u.a.. *L'accord entre les résultats permet de valider la méthode d'évaluation du spectre dans la MCDT et montre que la méthode est applicable au potentiel coulombien.*

Sur la figure 4.8, nous comparons les distributions des moments suivant p_z (dans la direction de polarisation du champ) et suivant p_n (direction perpendiculaire) obtenues dans la MCDT (premier graphe) et en projetant le PO sur des fonctions coulombiennes (deuxième graphe). Au delà de l'accord entre les deux représentations, il convient de faire remarquer que la distribution dans la MCDT est, qualitativement parlant, à l'image du PO asymptotique dans le plan Oxz présenté sur la figure 4.4 (d).

4.4.2 Résultats en régime basse fréquence

Nous présentons dans cette sous-section quelques résultats obtenus à basses fréquences ($\omega < I_p$) pour montrer d'une part que, dans le cas d'un système atomique réel, l'approche s'applique à des processus plus complexes et d'autre part pour montrer les avantages de la méthode en termes de réduction du nombre de fonctions de base.

Sur la figure 4.9, nous comparons la distribution en énergie obtenue dans la MCDT et celle obtenue dans la RN en projetant le PO sur les fonctions coulombiennes à la fin de l'interaction avec le champ. Sur le premier graphe, nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{15}$ W.cm⁻², de fréquence $\omega = 0.2$ u.a. et de durée égale à 4 cycles optiques. 800 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.4$ par moment angulaire sont utilisées pour l'ESDT ordinaire, alors que 600 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.4$ sont utilisées dans la MCDT. 10 moments angulaires sont pris en compte dans le développement du PO. Sur le deuxième graphe, la fréquence du champ $\omega = 0.1$ u.a.. La fonction d'échelle est donnée par la formule (4.16) avec $n = 4$, $R_\infty = 0.005$

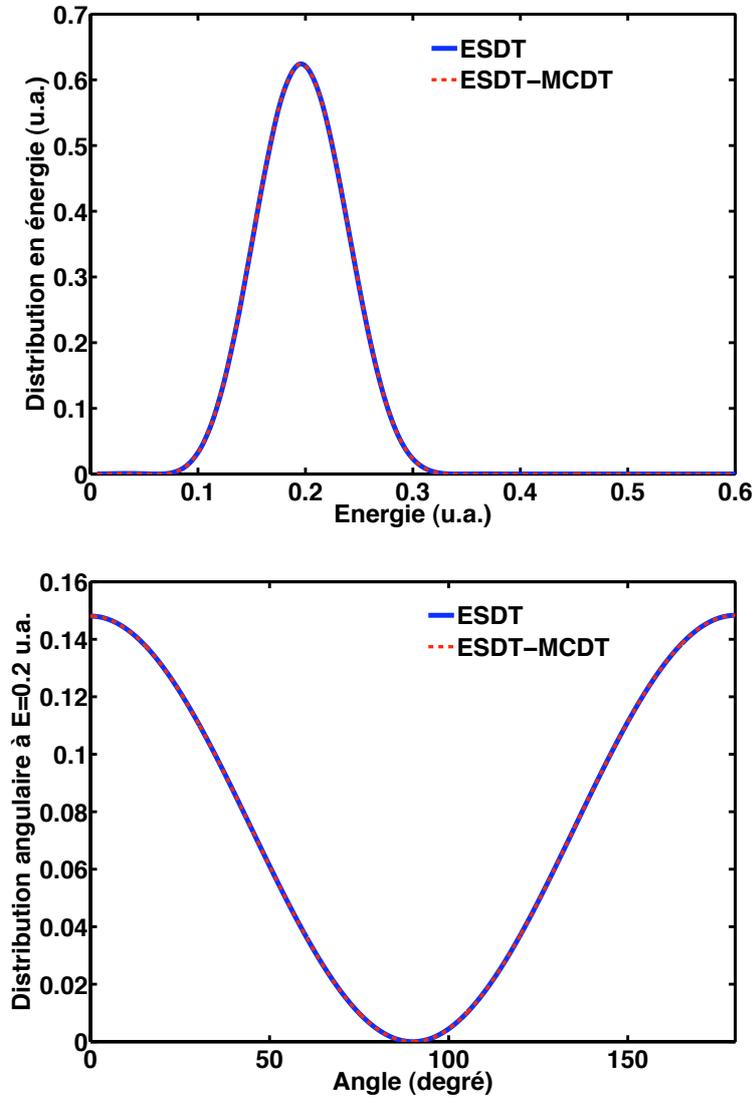


FIGURE 4.7 – Comparaison des distributions en énergie intégrées sur les angles (**premier graphe**) et des distributions angulaires à $E = 0.2$ u.a. (**deuxième graphe**) obtenues d'une part par l'ESDT-MCDT et d'autre part par projection du PO sur les fonctions coulombiennes en résolvant l'ESDT. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{14}$ W.cm $^{-2}$, de fréquence $\omega = 0.7$ u.a. et de durée égale à 10 cycles optiques. $R_\infty = 0.01$.

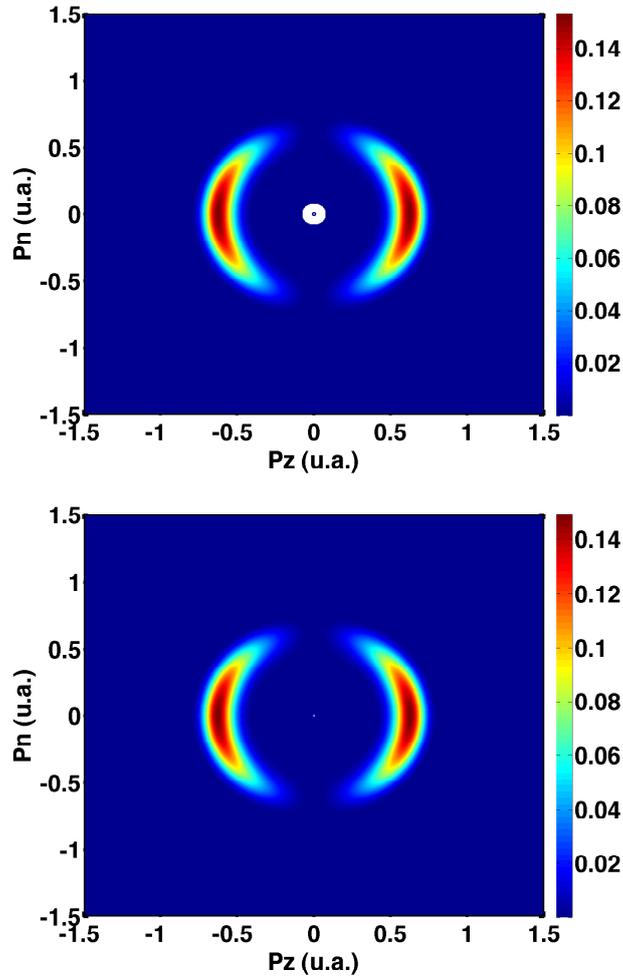


FIGURE 4.8 – Comparaison des distributions des moments suivant la direction de polarisation et la direction perpendiculaire. Le premier graphe représente celle obtenue en résolvant l'ESDT-MCDT et le deuxième graphe, celle obtenue en résolvant l'ESDT. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$, de fréquence $\omega = 0.7 \text{ u.a.}$ et de durée égale à 10 cycles optiques.

et $T_{final}=5000$ u.a.. Sur la figure 4.10, nous comparons les distributions en énergie pour des cas de référence tirés de la littérature. Sur le premier graphe, nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{15}$ W.cm⁻², de fréquence $\omega = 0.3$ u.a et de durée égale à 4 cycles optiques [79]. 800 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.4$ par moment angulaire pour l'ESDT alors que 600 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.4$ sont utilisées dans la MCDT, avec $R_\infty = 0.005$ et $T_{final} = 5000$ u.a. 10 moments angulaires sont pris en compte. Sur le deuxième, nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{15}$ W.cm⁻², de fréquence $\omega = 0.114$ u.a et de 20 cycles optiques [78, 120]. 800 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.4$ par moment angulaire pour l'ESDT et 600 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.4$ sont utilisées dans la MCDT avec $R_\infty = 0.001$ et $T_{final} = 20000$ u.a. 20 moments angulaires sont pris en compte. Ces résultats montrent que l'approche permet de reproduire les spectres à relativement basse énergie.

Sur les figures 4.11 et 4.12, nous comparons les distributions à plus basse fréquence. Sur la figure 4.11, un champ d'intensité $I = 4 \times 10^{14}$ W.cm⁻², de fréquence $\omega = 0.057$ u.a. ($\lambda = 800$ nm Ti :Sa) et de durée égale à 10 cycles optiques [79] est considéré. 1000 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ par moment angulaire pour l'ESDT alors que seulement 600 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ sont utilisées avec $R_\infty = 0.001$ et $T_{final} = 20000$ u.a. 20 moments angulaires sont pris en compte. Sur la figure la figure 4.12, un champ d'intensité $I = 10^{14}$ W.cm⁻², de fréquence $\omega = 0.0228$ u.a. ($\lambda = 2000$ nm) et de 4 cycles optiques est considéré. 1200 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ par moment angulaire sont utilisées pour l'ESDT contre 600 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ dans la MCDT. $R_\infty = 0.001$ et $T_{final} = 20000$ u.a.. 80 moments angulaires sont pris en compte. Il est important de faire remarquer que les valeurs de R_∞ dans ces derniers cas sont plus petites qu'à haute fréquence. Ceci tient aux durées d'interaction à basse fréquence. En effet, à cause de la compression des états liés dans le temps, il est important que la *vitesse de compression* soit suffisamment faible pour éviter une mauvaise description avant la fin de l'interaction, où les états liés sont éliminés. De ce fait, le PO ne devient stationnaire qu'après un temps de propagation relativement long (20000 u.a.). En ce qui concerne la comparaison des spectres, on note un assez bon accord entre les spectres obtenus à 800 nm sur la figure 4.11. Cependant à 2000 nm, on note un désaccord à très basse énergie. Plusieurs tests (utilisation d'une vitesse asymptotique légèrement plus

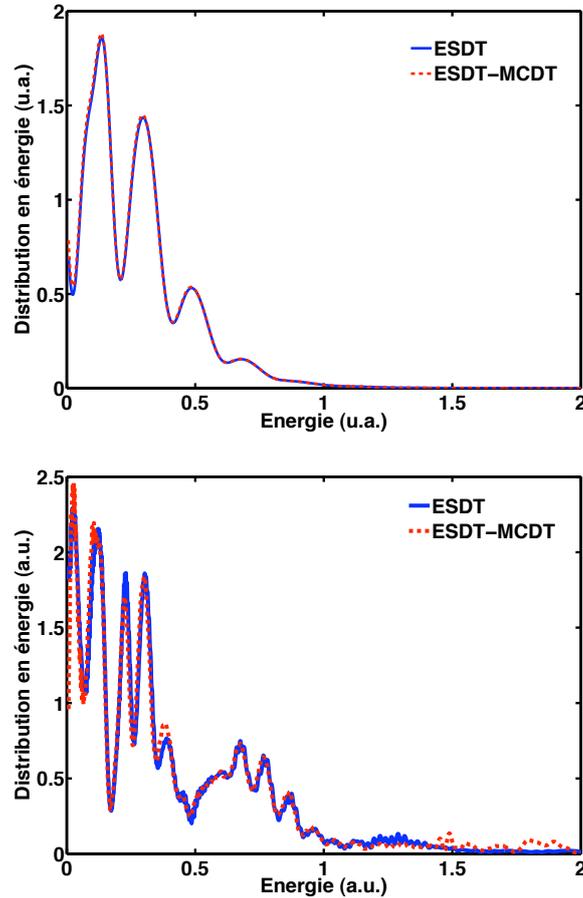


FIGURE 4.9 – Distributions en énergie obtenues par la MCDT et par projection du PO sur les fonctions coulombiennes à la fin de l'interaction avec le champ. Sur le premier graphe, nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$, de fréquence $\omega = 0.2 \text{ u.a.}$ et de 4 cycles optiques. 800 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.4$ par moment angulaire pour l'ESDT mais seulement 600 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.4$ sont utilisées dans la MCDT. 10 moments angulaires sont pris en compte. Sur le deuxième graphe, la fréquence du pulse $\omega = 0.1 \text{ u.a.}$, les autres paramètres restent identiques. La fonction d'échelle est donnée par la formule (4.16) avec $n = 4$ et $R_\infty = 0.005$.

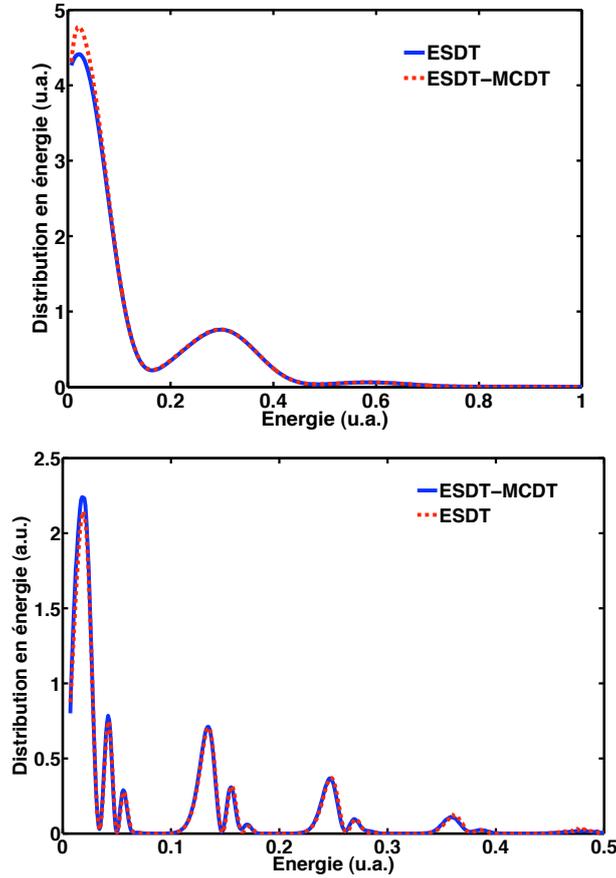


FIGURE 4.10 – Distributions en énergie obtenues par la MCDT et par projection sur les fonctions coulombiennes à la fin de l'interaction avec le champ pour des cas étudiés dans la littérature. Sur le premier graphe, nous utilisons un champ d'intensité $I = 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$, de fréquence $\omega = 0.3 \text{ u.a.}$ et de durée égale à 4 cycles optiques [79]. 800 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.4$ par moment angulaire sont utilisées pour l'ESDT alors que 600 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.4$ sont utilisées dans la MCDT. Sur le deuxième graphe, nous utilisons un champ d'intensité $I = 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$, de fréquence $\omega = 0.114 \text{ u.a.}$ et de 20 cycles optiques [78, 120]. 800 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.4$ par moment angulaire sont utilisées pour l'ESDT alors que 600 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.4$ sont utilisées dans la MCDT.

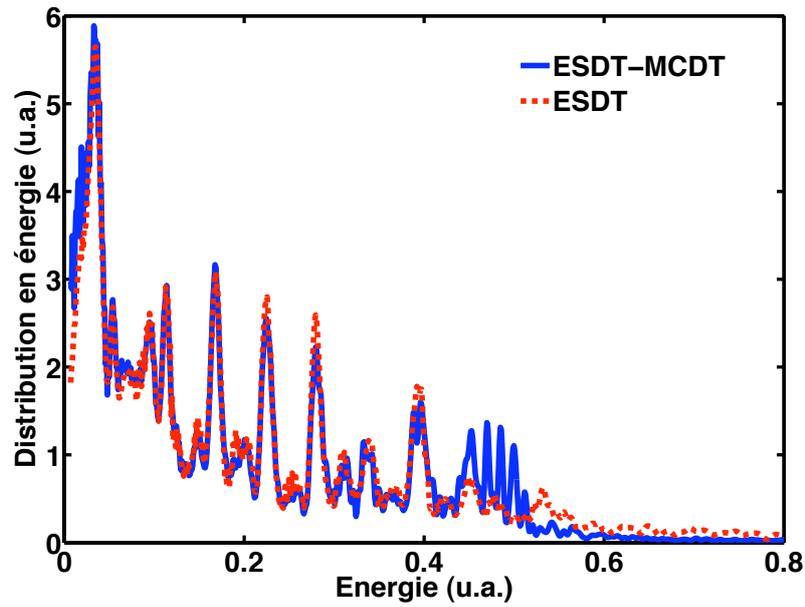


FIGURE 4.11 – Distributions en énergie obtenues par la MCDT et par projection du PO sur les fonctions coulombiennes à la fin de l'interaction avec le champ. Un champ d'intensité $I = 4 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$, de fréquence $\omega = 0.057 \text{ u.a.}$ ($\lambda = 800 \text{ nm Ti :Sa}$) et de 10 cycles optiques [79] est considéré. Pour la base, 1000 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ par moment angulaire pour l'ESDT sont utilisées alors que 600 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ sont utilisées dans la MCDT. $R_\infty = 0.001$ et $T_{final} = 20000 \text{ u.a.}$. 20 moments angulaires sont pris en compte.

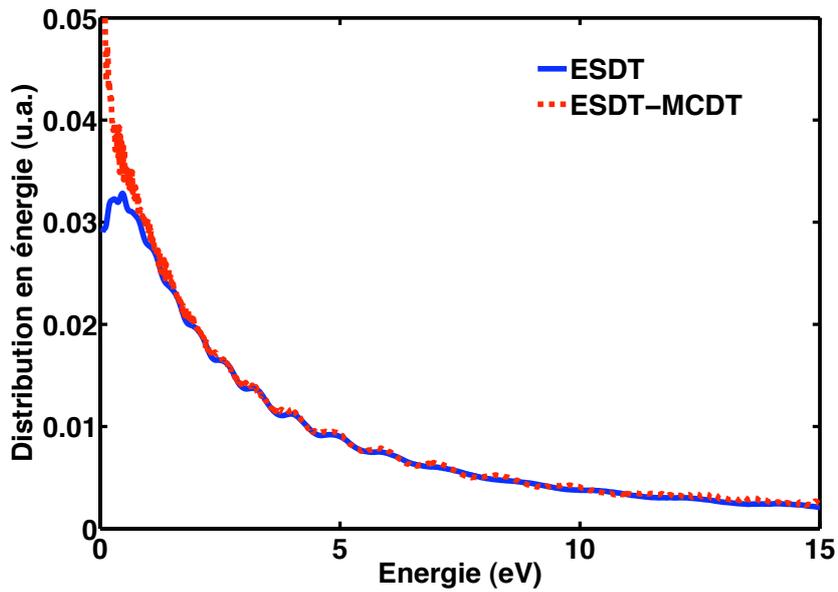


FIGURE 4.12 – Distributions en énergie obtenues par la MCDT et par projection du PO sur les fonctions coulombiennes à la fin de l'interaction avec le champ. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$, de fréquence $\omega = 0.0228 \text{ u.a.}$ ($\lambda = 2000 \text{ nm}$) et de 4 cycles optiques. 1200 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ par moment angulaire pour l'ESDT contre 600 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ dans la MCDT. $R_\infty = 0.001$ et $T_{\text{final}} = 20000 \text{ u.a.}$ 80 moments angulaires sont pris en compte.

faible, combinaison de fonctions sturmiennes de paramètres κ différents et utilisation d'une séquence de points plus dense autour de l'origine avec les B-splines) ont été effectués pour améliorer ces résultats sans succès. Deux raisons peuvent expliquer cette imprécision à basse fréquence. Il pourrait s'agir d'une détérioration dans la description des états liés jouant un rôle dans le processus d'ionisation et ce avant la fin de l'interaction. On pourrait améliorer dans ce cas les résultats en utilisant une vitesse asymptotique beaucoup plus basse, mais on perd de ce fait l'avantage (confinement du PO) lié à l'utilisation de la méthode et le PO asymptotique n'est obtenu qu'après un temps de propagation beaucoup trop élevé. Il pourrait également s'agir d'un problème lié à la technique d'extraction des états liés que nous discutons dans la sous-section suivante.

4.4.3 Discussion sur l'extraction des états liés et le choix des paramètres de la méthode

Dans le modèle du chapitre précédent, la gestion des états liés était facile du fait de leur nombre et de leur localisation dans le puits gaussien. *Tous* les états liés étaient éliminés à la fin de l'interaction. Pour les résultats présentés dans ce chapitre, il a été nécessaire de définir un critère de sélection des états à extraire à cause des états de Rydberg. Nous présentons dans cette sous-section les tests qui ont permis de définir ce critère. Nous discutons également du choix de la vitesse asymptotique de la fonction d'échelle.

Pour insister sur la nécessité d'extraire les états liés, nous présentons sur la figure 4.13, l'évolution en fonction du temps de la densité de probabilité radiale de l'état $1s$ dans la MCDT sans champ, avec $R_\infty = 0.05$. Nous montrons que l'état $1s$ devient de plus en plus étroit et piqué lorsque t augmente. On remarque même qu'à $t = 500$ u.a., la *queue* de la densité commence à présenter des *oscillations-bruits* dues à la mauvaise description de l'état. Ce sont précisément ces oscillations qui polluent le PO stationnaire et par corollaire toutes les grandeurs physiques qui en découlent, si ces états ne sont pas éliminés du PO. Nous avons essayé de pallier cette difficulté par des techniques multi-résolutions qui consistent à utiliser une base de fonctions sturmiennes avec différents paramètres κ ou une base de B-splines avec une séquence de points ajustée au cours du temps. Les résultats obtenus n'ont pas été assez satisfaisants en terme d'amélioration de la description de l'état. Par ailleurs,

l'augmentation de nombre de fonctions de base n'améliore pas significativement le spectre. D'où la nécessité d'extraire les états liés du PO à la fin de l'interaction. Mais lesquels peut-on extraire ?

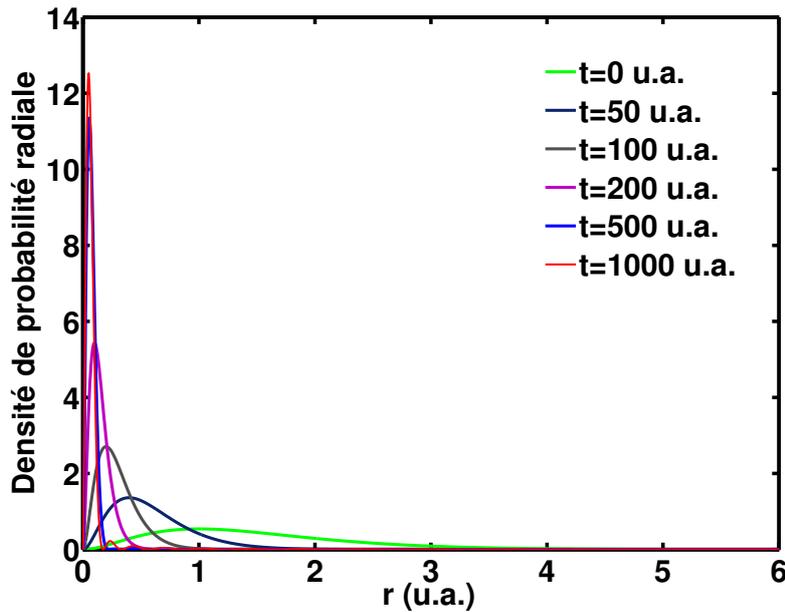


FIGURE 4.13 – Evolution de la densité de probabilité radiale de l'état $1s$ avec le temps obtenue en diagonalisant l'ESDT-MCDT sans champ. La vitesse asymptotique utilisée $R_\infty = 0.05$.

Pour répondre à cette question, nous présentons sur la figure 4.14, l'évolution des niveaux d'énergie de quelques états liés (**en noir**) et états du continuum (**en gris**) du bloc $l = 0$ dans la MCDT et en fonction du temps. La vitesse asymptotique $R_\infty = 0.01$. Rappelons que l'utilisation des fonctions sturmiennes permet de discrétiser le continuum ; c'est pourquoi nous utilisons le terme niveau d'énergie du continuum. On peut remarquer que les niveaux d'énergie des états liés qui ne sont pas proches du seuil $E = 0$, par exemple le fondamental ($E = -0.5$ u.a.), restent pratiquement constants dans le temps. Les états du continuum d'énergie élevée (qui ne sont pas proches du seuil), conservent leurs niveaux d'énergie pendant un laps de temps au début de l'in-

teraction, puis ces valeurs convergent progressivement vers le seuil d'énergie $E = 0$ lorsque le temps devient grand. C'est ce qui explique pourquoi d'une part l'on tend vers un PO stationnaire aux grands temps (toutes les énergies positives tendent vers 0) et d'autre part pourquoi dans la MCDT, l'ESDT devient moins raide aux grands temps ; la raideur de l'ESDT trouvant précisément leur origine dans ces grandes valeurs propres positives. *Les états liés et états du continuum qui sont proches du seuil $E = 0$, suivent adiabatiquement l'évolution du potentiel harmonique.* Certains états de Rydberg se retrouvent, pendant la durée d'existence du potentiel harmonique, dans le continuum. De ce fait, on est en droit de se demander si ces états sont (à partir du moment où ils franchissent le seuil) à considérer, lors de l'opération d'extraction des états, comme des états liés ou des états du continuum. Peut-on les extraire ou non du PO ? Cette question trouve son importance ici parce que, comme nous l'avons déjà souligné, les états liés doivent être extraits du PO d'onde à la fin ou après la fin de l'interaction, mais avant que ceux-ci, du fait de leur compression, ne puissent affecter le PO ionisé asymptotique. Pour apporter plus de lumière, nous nous focalisons sur quelques états du bloc $l = 0$ situés près du seuil $E = 0$ sur la figure 4.15. On observe que le premier niveau, d'énergie initiale $E = -0.03125$ u.a., est affecté par le potentiel harmonique, mais ne passe nullement au dessus du seuil $E = 0$. Par contre, les deux autres états liés représentés passent, du fait du potentiel harmonique, au dessus du seuil et y restent pendant un temps lié à la durée d'existence du potentiel harmonique. Ensuite, ces états liés reviennent progressivement vers leurs niveaux d'énergie initiaux au grands temps, lorsque le potentiel harmonique s'annule. Les états du continuum, également affectés par le potentiel harmonique, convergent vers le seuil $E = 0$ aux grands temps. Cet effet est d'autant plus marqué que la vitesse asymptotique R_∞ est grande. A titre d'illustration, nous présentons sur la figure 4.16, l'évolution des niveaux d'énergie lorsque la vitesse asymptotique $R_\infty = 0.05$. Dans ce cas précis, le fondamental d'énergie $E = -0.5$ u.a. est également affecté par le potentiel harmonique. Par ailleurs, le nombre d'états franchissant le seuil $E = 0$ devient plus important.

Le critère purement empirique que nous utilisons est celui de n'extraire que les états liés qui ne franchissent pas le seuil d'ionisation $E = 0$. Pour ce faire, nous évaluons le nombre d'états encore liés par moment angulaire l lorsque le potentiel harmonique atteint sa valeur maximale. C'est précisément ce nombre d'états qui est extrait à la fin de l'interaction. Nous supposons que les états

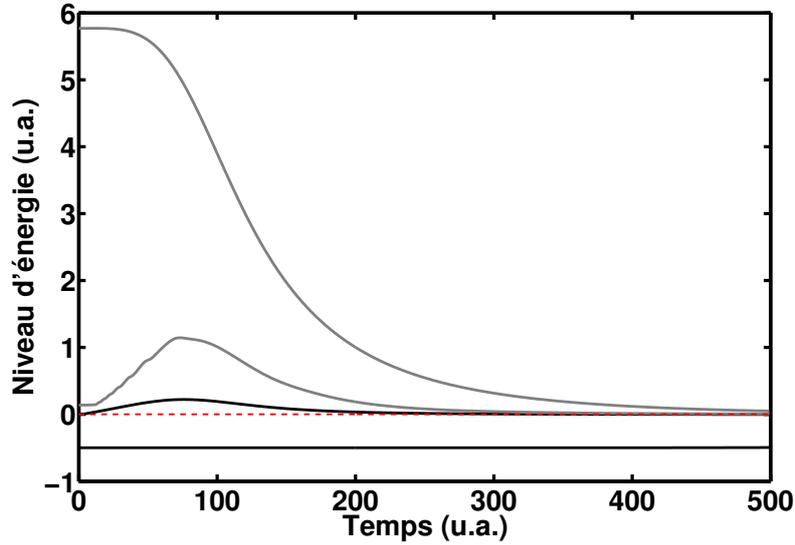


FIGURE 4.14 – Evolution des niveaux d'énergie de quelques états liés (*en noir*) et états du continuum (*en gris*) de moment angulaire $l = 0$ dans l'ESDT-MCDT. Nous utilisons un champ de fréquence $\omega = 0.7$ u.a.. et de durée égale à 10 cycles optiques. $R_\infty = 0.01$

liés qui passent au dessus du seuil contribuent à la formation du spectre et ne sauraient donc être extraits du PO. Nous avons en effet vérifié que leur extraction donne lieu à une distribution en énergie partielle comme illustré sur la figure 4.17 où nous représentons le spectre en fonction du nombre d'états liés éliminés du bloc $l = 1$. Le choix de ce bloc s'explique par le fait que pour la fréquence $\omega = 0.7$ u.a. considérée, l'ionisation a lieu par absorption d'un photon et que les règles de sélection prédisent une contribution importante de ce bloc. On observe une dégradation du spectre avec le nombre d'états liés extraits. Le spectre correct n'est obtenu que lorsqu'on extrait le nombre exact d'états liés qui ne traversent pas le seuil, c'est-à-dire 6 dans ce cas. En général, seul les états liés les plus bas et qui sont les plus localisés sont ceux qui doivent être extraits. En ce qui concerne les états proches du seuil, le fait de les conserver dans le PO n'affecte pas le spectre. Ces états sont en effet spatialement très étendus et donc ne risquent donc pas d'être comprimés au

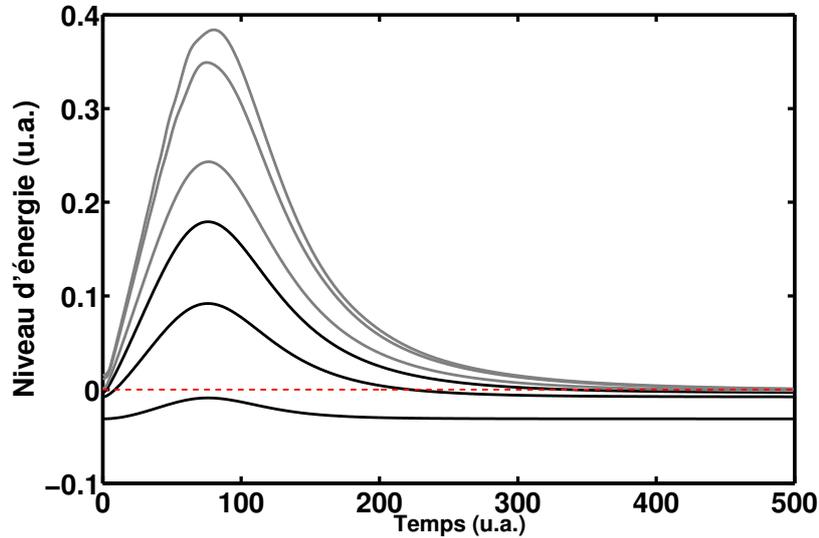


FIGURE 4.15 – Evolution des niveaux d'énergie de quelques états liés (noir) et du continuum (gris) du bloc de moment angulaire $l = 0$ dans l'ESDT-MCDT. Nous utilisons un champ de fréquence $\omega = 0.7$ u.a. et de durée égale à 10 cycles optiques. $R_\infty = 0.01$

point d'être mal décrits. Il convient de noter qu'il est possible d'extraire tous les états liés, mais il faut attendre suffisamment longtemps pour que tous ces états reviennent à leur valeur initiale. De plus il faut s'assurer qu'ils sont encore proprement décrits par la base au moment de leur extraction. A titre d'illustration, nous montrons sur la figure 4.18 l'évolution de la distribution en énergie en fonction de l'instant d'extraction lorsque tous les états liés sont éliminés du PO, lorsque le paramètre $\kappa = 1.5$. On montre en effet qu'extraire tous les états liés quelques cycles seulement après la fin de l'interaction conduit à un spectre "partiel". Ceci est justement dû au fait qu'une partie des états "liés" se trouvent au moment de l'extraction dans le continuum. En attendant suffisamment longtemps, mais avec un paramètre κ approprié, ces états retrouvent leurs niveaux d'énergie initiales. On montre qu'on peut les extraire à partir de ce moment sans affecter la distribution en énergie.

Le critère de choix de la vitesse asymptotique est également purement em-

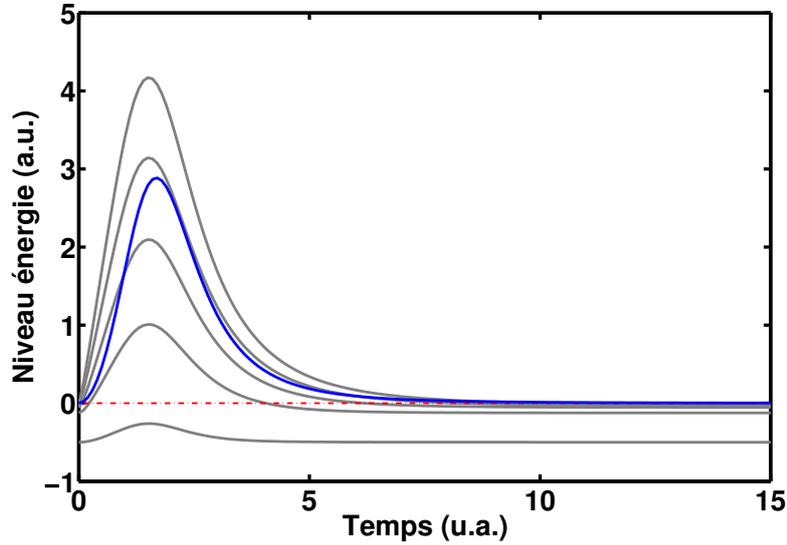


FIGURE 4.16 – Evolution des niveaux d'énergie de quelques états liés du bloc de moment angulaire $l = 0$ dans l'ESDT-MCEDT. En bleu, est représenté le potentiel harmonique. Nous utilisons un champ de fréquence $\omega = 0.7$ u.a. et de 10 cycles optiques. $R_\infty = 0.05$.

pirique. L'une des conditions à vérifier, qui est en rapport avec ce qui vient d'être dit, est que le potentiel harmonique atteigne son maximum durant l'interaction. Sinon, la technique qui consiste à extraire le nombre d'états qui traversent le seuil lorsque le potentiel harmonique est maximal perd tout son sens. Par ailleurs, la vitesse asymptotique doit être telle que les états liés doivent être bien décrits durant l'interaction. Pour ces raisons, la vitesse asymptotique est de l'ordre de l'inverse de la durée totale du champ, soit $R_\infty \approx \frac{1}{T_{champ}}$.

4.5 Conclusion

A la suite du chapitre précédent dans laquelle la MCDT a été appliquée à un modèle atomique 1D d'une particule dans un puits de potentiel gaussien, nous avons, dans ce chapitre, appliqué la MCDT à l'hydrogène atomique 3D. Il convient de rappeler que l'objectif visé était de montrer que la méthode

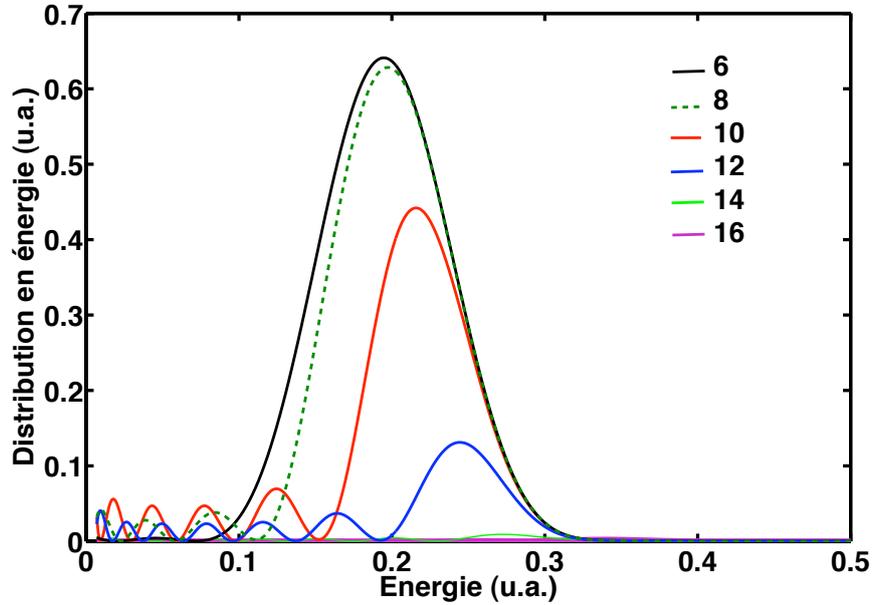


FIGURE 4.17 – Distribution en énergie en fonction du nombre d'états liés du bloc $l = 1$ extraits du PO à la fin de l'interaction. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$, de fréquence $\omega = 0.7 \text{ u.a.}$ et de 10 cycles optiques. $R_\infty = 0.01$ et $\kappa = 0.5$.

pouvait être utilisée en présence du potentiel coulombien de longue portée ; le but ultime étant de l'appliquer aux systèmes atomiques beaucoup plus complexes. Nous avons mis en évidence le rôle de la MCDT dans la dynamique du PO. Nous avons montré d'une part que l'expansion spatiale du PO reste limitée dans la MCDT, permettant de laisser évoluer le système longtemps jusqu'à ce que le PO devienne stationnaire, tout en utilisant des tailles de base relativement petites. D'autre part, nous avons montré que l'élimination des oscillations spatio-temporelles par la transformation de phase permet de réduire la raideur du système et donc de considérer des pas d'intégration plus grands. En ce qui concerne l'objectif, nous avons montré que la méthode s'applique bien au potentiel coulombien qui caractérise les systèmes atomiques et que le point fort de la méthode réside dans le fait que les grandeurs physiques

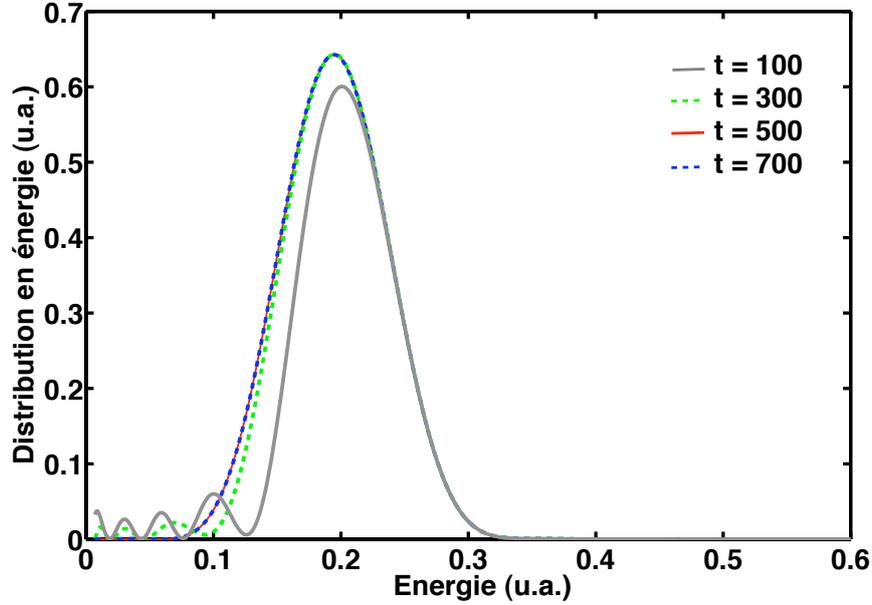


FIGURE 4.18 – *Distribution en énergie en fonction de l'instant d'extraction lorsque tous les états liés sont éliminés. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$, de fréquence $\omega = 0.7 \text{ u.a.}$ et de 10 cycles optiques. $R_\infty = 0.01$ et $\kappa = 1.5$.*

sont obtenues directement à partir du PO asymptotique stationnaire. Ce qui permet de lever la difficulté liée à la représentation du continuum lorsque l'évaluation des grandeurs physiques se fait par projection. Les tests effectués dans diverses situations physiques ont donné des résultats en accord avec ceux obtenus par projection sur une fonction coulombienne. La méthode constitue de ce fait une alternative à l'étude des systèmes à plusieurs électrons actifs pour lesquels les débats à propos de la description des continua multiples restent encore ouverts, comme le cas de la double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons.

Deuxième partie

Etude théorique de
l'ionisation de l'hydrogène
atomique en régime basse
fréquence

Ionisation en régime basse fréquence : Mécanismes d'ionisation - Approche théorique

Sommaire

5.1 Introduction	124
5.2 Aspects théoriques en régime basse fréquence et mécanismes d'ionisation	127
5.2.1 Quelques notions importantes : le <i>quiver motion</i> , le potentiel pondéromoteur et le déplacement Stark	127
5.2.2 Les approximations et le paramètre de Keldysh	129
5.2.3 Mécanismes d'ionisation en régime basse fréquence à partir du paramètre de Keldysh	130
5.3 Approche théorique	136
5.3.1 Résolution numérique de l'ESDT	136
5.3.2 Calcul des observables	137
5.4 Résultats : validation et conclusions préliminaires	141
5.4.1 Ionisation de l'hydrogène atomique par un champ de fréquence $\omega = 0.375$ u.a.	141
5.4.2 Ionisation de l'atome d'hydrogène par le laser Ti : Saphir	146
5.5 Conclusion	152

5.1 Introduction

Alors qu'on croyait avoir bien compris le mécanisme conduisant à l'ionisation des systèmes atomiques en régime basse fréquence, une récente "découverte" [41, 42] publiée dans la prestigieuse revue *Nature*, est venue semer le trouble dans l'esprit des physiciens atomistes. Comme illustrée sur la figure 5.1, l'"ionization surprise" [43] est la présence dans les spectres expérimentaux de photoionisation (mesurés dans la direction de polarisation du champ) des atomes et molécules (Ar, H₂ et N₂) étudiés, d'un pic inattendu à basse énergie qu'on convient d'appeler *Low Energy Structure* (LES) (ou encore à très basse énergie : *Very Low Energy Structure* (VLES) [44]). L'origine de

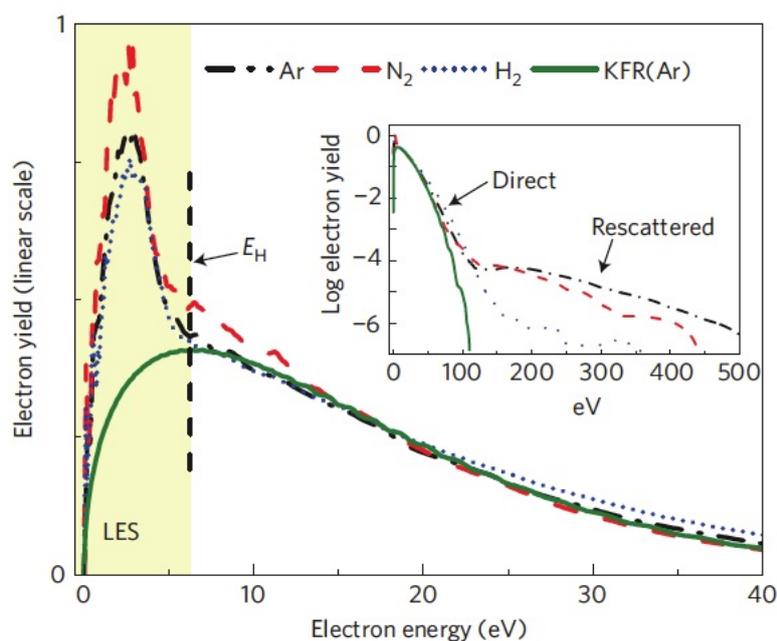


FIGURE 5.1 – *Low Energy Structure (LES) observée à basse énergie dans la distribution en énergie des atomes et molécules (Ar, H₂ et N₂) et dans la direction de polarisation du champ [41].*

cette surprise réside dans le fait que le paramètre γ de Keldysh associé aux

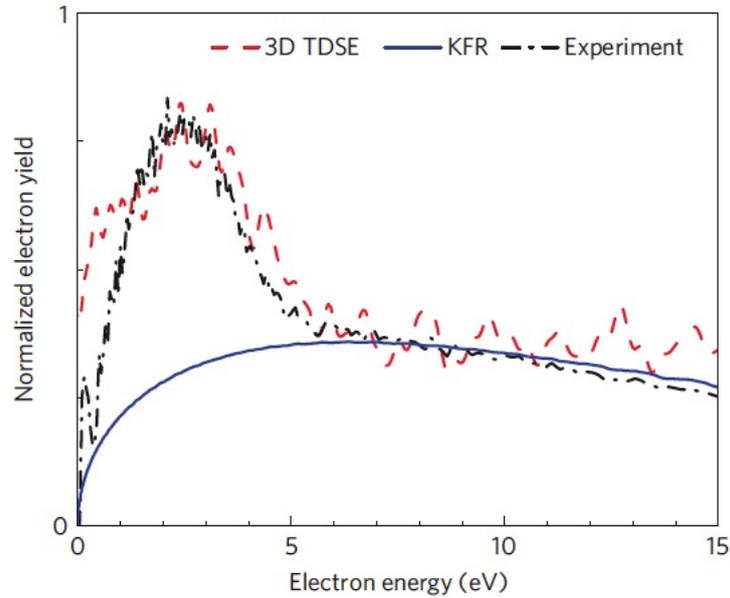


FIGURE 5.2 – *Reproduction de la LES observé dans le spectre de l'Ar (dans la direction de polarisation du champ) par la résolution de l'ESDT [41]*

longueurs d'ondes ($\lambda = 800 - 2000$ nm) et aux intensités ($I = 10^{13} - 10^{15}$ W.cm $^{-2}$) considérées [41] est tel que l'on s'attend, si l'on s'en tient à ce qui est jusqu'ici communément accepté, que l'ionisation ait lieu *essentiellement* par *effet tunnel*. Dans ce cas, la théorie du champ fort ou SFA (strong-field approximation), encore appelée théorie KFR (de Keldysh [134], Faisal [151] et Reiss [152]) qui est étroitement liée à la théorie de Keldysh [134] (mais aussi à la théorie ADK (de Amosov, Delone et Krainov [150])) et qui est généralement utilisée pour expliquer les spectres dans la limite des basses fréquences (champ quasi-statique) et jusqu'ici avec succès, devrait reproduire la LES. Il n'en est cependant pas le cas comme le montre la figure 5.1. Et plus intéressant, l'étude théorique de l'Ar à $\lambda = 2000$ nm et $I = 1.5 \times 10^{15}$ W.cm $^{-2}$ u.a., basée sur la résolution numérique de l'ESDT dans la jauge vitesse et dans l'approxima-

tion à un électron actif (SAE : single-active-electron), reproduit et confirme la présence de la LES à basse énergie comme illustrée sur la figure 5.2.

Une petite excursion dans la littérature nous a permis de nous rendre compte que la présence d'une structure à basse énergie dans le spectre (LES?) avait déjà été évoquée quelques années auparavant. En effet, Moshhammer et al. [122], Rudenko et al. [123] ainsi que Dimitriou et al. [124] avaient mis en évidence la présence de structures à basse énergie (LES?) dans les spectres de photoionisation des systèmes étudiés à $\lambda = 800$ nm. Les deux premiers groupes ont réalisé une étude expérimentale de l'ionisation du Ne. Moshhammer et al. ont attribué la présence de la LES à la *recollision* de l'électron oscillant sous l'effet du champ électrique avec le coeur atomique. Rudenko et al., qui utilisent plutôt les termes "*ATI-like pattern*", voient quant à eux dans ces structures à basse fréquence la signature de la structure atomique et donc une *possible ionisation par absorption multiphotonique*. Dimitriou et al., qui utilisent une approche théorique basée sur l'étude Monte Carlo des trajectoires classiques de l'atome d'hydrogène, réfutent la thèse de la recollision et optent pour l'influence du potentiel coulombien. Il convient également de mentionner l'étude théorique de l'ionisation de l'hydrogène en résolvant numériquement l'ESDT dans l'espace des moments à $\lambda = 800$ nm par de Bohan et al. [125]. Sans faire explicitement allusion à la LES, les auteurs mettent en évidence le rôle du potentiel coulombien dans l'émission des électrons d'énergie inférieure à $2U_p$, U_p étant le potentiel pondéromoteur. Le mécanisme d'éjection proposé par les auteurs est celui d'une collision inélastique, assistée par laser, de l'électron avec le potentiel coulombien. Si la présence de la LES dans ces cas étudiés (800 nm) peut être justifiée par l'absorption multiphotonique à cause de la valeur du paramètre de Keldysh ($\gamma \approx 1$), il ne devrait pas en être de même à 2000 nm ($\gamma < 1$) si l'on s'en tient au critère de Keldysh que nous présentons dans la suite.

Le pavé étant jeté dans la mare, il s'en est suivi toute une série d'articles [126, 127, 128, 129, 130, 44] dans le but de comprendre et d'expliquer l'origine de la LES d'une part, mais aussi de justifier l'échec la SFA à basse fréquence [131] d'autre part. Les différentes conclusions (collision, soft-collision, effet du potentiel coulombien, signature de la structure atomique, ...) semblent jusqu'ici diverger, et aucun mécanisme expliquant la LES ne fait l'unanimité. Nous nous proposons, dans cette partie, d'entrer dans la danse en étudiant l'ionisation de l'hydrogène atomique 3D dans le régime des basses fréquences,

en résolvant numériquement l'ESDT grâce à la méthode spectrale que nous avons déjà présentée. Jusqu'ici, les études théoriques menées dans notre unité se sont limitées à 800 nm ($\omega = 0.057$ u.a.), à cause des contraintes numériques liées aux basses fréquences. Les nouveaux outils d'intégration numérique de l'ESDT que nous avons développés nous ont permis, compte tenu du contexte, de considérer une fréquence plus basse ($\omega = 0.0228$ u.a.) correspondant à une longueur d'onde $\lambda = 2000$ nm. Dans ce chapitre, nous rappelons quelques notions théoriques essentielles et relatives à l'interaction en régime basse fréquence et haute intensité qui sont souvent évoquées dans cette partie. Nous présentons ensuite l'approche théorique utilisée et nous terminons le chapitre en présentant quelques résultats qui ont permis de valider l'approche et de tirer quelques conclusions importantes pour la suite.

5.2 Aspects théoriques en régime basse fréquence et mécanismes d'ionisation

5.2.1 Quelques notions importantes : le *quiver motion*, le potentiel pondéromoteur et le déplacement Stark

Nous présentons dans cette sous-section la *démarche classique* utilisée pour déterminer l'expression analytique du *quiver motion* (amplitude d'excursion) de l'électron et du potentiel pondéromoteur que nous évoquerons dans la suite. Nous rappelons également l'expression du déplacement Stark des niveaux d'énergie par un champ électrique et son effet sur les différents niveaux d'énergie.

Suivant l'électromagnétisme classique, un électron se déplaçant à vitesse \mathbf{v} dans un champ électrique \mathbf{E} et un champ magnétique \mathbf{B} est soumis à la force de Lorentz

$$\mathbf{F} = -e(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}). \quad (5.1)$$

En se référant au modèle de Bohr de l'atome à un électron, on peut montrer que le rapport v/c est petit, c étant la vitesse de la lumière dans le vide. En effet, pour une orbitale de nombre quantique principal n , la vitesse de l'électron $v = Ze^2/(4\pi\epsilon_0\hbar n)$. La valeur maximale de v , obtenue pour $n = 1$, vaut $v = Z\alpha c \simeq Zc/137$, α étant la constante de structure fine. Pour un rayonnement monochromatique, $|\mathbf{B}| / |\mathbf{E}| = 1/c$. Ce qui permet, en bonne approximation,

de négliger le terme magnétique dans la force de Lorentz (5.1). L'expression du champ électrique est obtenue à partir des équations de Maxwell [132, 133]. En effet, le champ électrique \mathbf{E} est solution de l'équation

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E} = 0, \quad (5.2)$$

dont la solution est une onde plane stationnaire monochromatique donnée par

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 \cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t + \phi), \quad (5.3)$$

où \mathbf{k} est un vecteur orienté suivant la direction de propagation, ϕ est un facteur de phase et $\omega = kc$, la fréquence angulaire. Si on suppose que l'électron est initialement immobile, le mouvement de l'électron sous l'action du champ s'effectue suivant la direction de propagation. En supposant que le champ est polarisé linéairement suivant l'axe x et en tenant compte de l'équation de Newton $F = m\ddot{x}$, on déduit les équations suivantes décrivant le mouvement d'un électron libre dans le champ \mathbf{E}

$$\ddot{x} = -\frac{e}{m} E_0 \cos(\omega t), \quad \dot{x} = -\frac{e}{m} \frac{E_0}{\omega} \sin(\omega t), \quad x = \frac{e}{m} \frac{E_0}{\omega^2} \cos(\omega t). \quad (5.4)$$

L'excursion maximale ou amplitude du *quiver motion* de l'électron oscillant librement dans le champ électromagnétique est donné par

$$\alpha = \frac{e}{m} \frac{E_0}{\omega^2}. \quad (5.5)$$

Le *potentiel pondérateur* défini comme la valeur moyenne de l'énergie cinétique sur une période optique T de l'électron dans le champ est, en tenant compte de l'expression de \dot{x} (équation (5.4)), donnée par

$$\langle E_{cin} \rangle_T \equiv U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2}. \quad (5.6)$$

Il est important de noter que α et U_p dépendent de l'intensité (du fait de E_0) et de la fréquence du champ.

Le *déplacement Stark* des niveaux d'énergie est la réponse du système à une perturbation électrique extérieure [135]. Ce déplacement, pour un état i

de niveau d'énergie E_i , est donné à basse fréquence (théorie des perturbations au second ordre) par

$$\Delta E_i = \frac{e^2 E_0^2}{4\omega^2} \left[1 - \sum_{i \neq f} \bar{f}_{fi} \frac{\omega_{fi}^2}{\omega_{fi}^2 - \omega^2} \right]. \quad (5.7)$$

Dans cette expression, la somme porte sur tous les états finaux de l'électron. $\hbar\omega_{fi}$ est la différence d'énergie entre l'état initial i et un état final j ; \bar{f}_{fi} représente la force d'oscillateur de la transition entre les états i et j . Pour les états de Rydberg pour lesquels on a en général $\omega_{fi} \ll \omega$ mais aussi pour les états du continuum, le déplacement Stark se réduit à

$$\Delta E_i = \frac{e^2 E_0^2}{4\omega^2} = U_p, \quad (5.8)$$

donc au potentiel pondéromoteur. Par contre pour les niveaux d'énergie les plus bas, l'énergie de transition entre l'état initial et l'état final est telle qu'à basse fréquence $\omega_{fi} \gg \omega$. Dans ce cas, $\sum_{i \neq f} \bar{f}_{fi} \frac{\omega_{fi}^2}{\omega_{fi}^2 - \omega^2} = \sum_{i \neq f} \bar{f}_{fi} = 1$ en vertu de la règle de Thomas-Reiche-Kuhn dans le cas de l'hydrogène. On montre ainsi qu'à basse fréquence, les premiers niveaux d'énergie ne subissent qu'un très faible effet Stark qui peut être considéré comme nul si on ne se limite qu'à la relation (5.7) et qui est de l'ordre de la polarisabilité atomique si on prend en compte les termes d'ordre supérieur.

5.2.2 Les approximations et le paramètre de Keldysh

La théorie de Keldysh [134], élaborée pour expliquer le mécanisme d'ionisation par effet tunnel dans la limite des basses fréquences, est basée sur les approximations suivantes :

- on suppose que le champ est quasi-stationnaire avec $\omega \ll I_p$, I_p étant le potentiel d'ionisation du système ;
- on suppose que la fréquence du laser ω est inférieure à la fréquence de transition de l'état fondamental vers le premier niveau excité ;
- on suppose que le taux d'ionisation est faible.

Dans ces conditions, le potentiel coulombien $1/r$ et le champ électrique en jauge longueur $\mathbf{E}(t) \cdot \vec{r}$ forment dans la direction opposée au champ, une barrière de potentiel effective vue par l'électron lié. Lorsque le champ polarisé linéairement

suivant z et oscillant lentement (du fait de la faible valeur de la fréquence) atteint une valeur suffisamment grande, le potentiel effectif forme une barrière de potentiel dans la direction de z opposée à $\mathbf{E}(t)$. Un raisonnement classique consiste à évaluer un *temps tunnel* τ_t qui correspondrait au temps nécessaire à l'électron pour franchir une distance d_k , équivalente à la largeur de la barrière formée par le champ électrique et le potentiel au niveau de I_p . En supposant que cette distance est donnée en première approximation par $d_k = I_p/E_0$ (u.a.) et que la barrière est franchie avec une vitesse moyenne $v = \sqrt{2I_p}$, le temps tunnel est donné par :

$$\tau_t = \frac{2\pi}{E} \sqrt{2I_p}. \quad (5.9)$$

Le paramètre de Keldysh est défini comme le rapport entre le *temps tunnel* et la période d'oscillation du champ, soit

$$\gamma = \frac{\tau_t}{T_{laser}} = \frac{\omega}{E} \sqrt{2I_p} = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}}. \quad (5.10)$$

5.2.3 Mécanismes d'ionisation en régime basse fréquence à partir du paramètre de Keldysh

5.2.3.1 Ionisation multiphotonique (MPI) / Ionisation au dessus du seuil (ATI)

Lorsque $\gamma > 1$ i.e. lorsque le *temps tunnel* est grand comparé à la période T_{laser} du champ laser, la barrière de potentiel formée par le potentiel effectif remonte avant qu'une partie du PO n'ait eu le temps d'être émis par effet tunnel. Le PO reste donc globalement localisé autour du noyau et l'électron n'est ionisé que par absorption de photons. A ce stade, on distingue deux cas.

Lorsque l'intensité I du champ est relativement faible $I < 10^{13}$ W.cm⁻² et la fréquence $\omega \ll I_p$, l'électron est ionisé par absorption du *nombre exact de photons nécessaire pour dépasser le seuil*. On parle d'**ionisation multiphotonique** (MPI). Le processus est représenté schématiquement sur la figure 5.3 (a) et peut s'écrire sous la forme suivante :



où n représente le nombre de photons absorbés pour atteindre le continuum et q la charge de la cible atomique A . Ce mécanisme a été prédit dès 1931 par

Göppert-Mayer et observé expérimentalement pour la première fois par G. S. Delone et N. B. Voronov en 1965 [138]. Ces derniers ont détecté l'ionisation du Xe par absorption de 7 photons, suite à l'interaction du Xe avec un laser à rubis. Les niveaux d'intensité relativement faibles sont tels que les taux d'ionisation $W_{i \rightarrow f}^{(n)}$ obtenus suite à l'absorption de n photons sont reproduits par la théorie de perturbation à l'ordre n [139, 140], à partir de la règle d'or de Fermi. Pour un flux de photons ϕ_F de fréquence ω , le taux de d'ionisation s'écrit

$$W_{i \rightarrow f}^{(n)} = \left(\frac{2\pi\alpha\phi_F\omega}{e^2} \right)^n |T_{i \rightarrow f}^{(n)}|^2 [2\pi\delta(\omega_i + n\omega - \omega_f)], \quad (5.12)$$

où

$$T_{i \rightarrow f}^{(n)} = \langle f | DG[\omega_i + (n-1)\omega] DG[\omega_i + (n-2)\omega] \cdots DG[\omega_i + \omega] D | i \rangle. \quad (5.13)$$

$D = e(\mathbf{e} \cdot \mathbf{r})$ représente l'opérateur d'interaction dipolaire (\mathbf{e} étant la direction de polarisation du champ) et

$$G(\omega) = \sum_j \frac{|j\rangle\langle j|}{(\omega - \omega_j + i\Gamma_j/2)}. \quad (5.14)$$

La sommation porte sur tous les états du continuum permis. Les méthodes d'évaluation des sections efficaces généralisées σ_n sont décrites dans les références [141, 142]. En l'absence de transitions résonantes, l'ionisation a lieu via des états virtuels, dont la durée de vie Γ_j est donnée par le principe d'incertitude de Heisenberg dans lequel on prend en compte l'écart d'énergie par rapport au niveau d'énergie le plus proche. L'énergie cinétique de l'électron dans le continuum est donnée par le principe de conservation d'énergie

$$E_{cin} = n\omega - I_p(I), \quad (5.15)$$

où n est le nombre de photons et $I_p(I) = I_p + U_p$ le potentiel d'ionisation effectif tenant compte du déplacement Stark. On montre qu'en deçà d'une intensité dite *de saturation* [143], le taux d'ionisation et la section efficace généralisée vérifient la relation $W_{i \rightarrow f}^{(n)} = \sigma_n I^n$. Cette dernière relation perd tout son sens en présence de transitions résonantes qui induisent des pics dans les sections efficaces du fait que le dénominateur correspondant à la transition dans la relation (5.14) tend vers zéro.

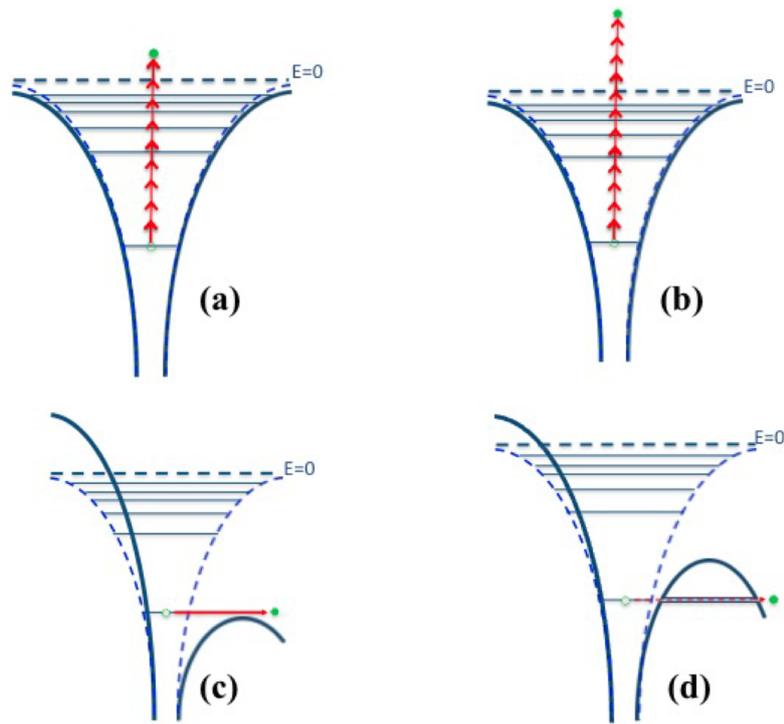


FIGURE 5.3 – Schématisation des mécanismes d'ionisation à basse fréquence : (a) ionisation multiphotonique, (b) ionisation au dessus du seuil (ATI), (c) ionisation au dessus de la barrière de potentiel, (d) ionisation tunnel. Dans les deux premiers cas (a) et (b), le paramètre de Keldysh $\gamma \gg 1$. Dans les deux derniers cas, $\gamma \ll 1$.

Pour des intensités plus élevées $I > 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$ et des fréquences $\omega \ll I_p$, l'atome peut absorber un nombre de photons supérieur au minimum nécessaire pour atteindre le continuum, comme illustré sur la figure 5.3 (b). Dans ces conditions, la théorie des perturbations n'est plus applicable du fait de la grande intensité. Par conséquent les taux de transition et la section efficace définis dans le paragraphe précédent ne sont plus valables. L'électron peut avoir une énergie cinétique supérieure à celle donnée par la relation de conservation 5.15 donnant le nombre minimal de photons à absorber pour être ionisé. Le spectre présente une succession de pics régulièrement espacés par l'énergie du photon. On parle d'*ionisation au dessus du seuil* (ATI : Above Threshold Ionisation). Les pics ATI devraient en principe apparaître à

$$E_{cin} = (n + s)\omega - I_p, \quad (5.16)$$

où n est le nombre minimum de photons nécessaire pour dépasser I_p et $s = 0, 1, \dots$ est l'*excès* de photons absorbés au dessus du seuil. Mais, compte tenu des niveaux d'intensité nécessaires à l'ionisation ATI, le déplacement Stark dynamique des états de Rydberg et du continuum, donné approximativement par l'énergie pondéromotrice U_p , peut être significativement élevé. La conservation de l'énergie s'écrit de ce fait

$$E_{cin} = (n + s)\omega - (I_p + U_p). \quad (5.17)$$

Lorsque $U_p > \omega$ le nombre de photons nécessaire pour atteindre le continuum devient plus élevé que le nombre minimum nécessaire pour dépasser le seuil d'énergie $E = 0$. L'absorption d'un ou plusieurs photons supplémentaires est alors nécessaire. Ceci se traduit aussi dans le spectre par la *disparition* des premiers pics. En réalité, ces pics ne disparaissent pas totalement dans les spectres expérimentaux [145]. On observe plutôt des pics de plus faible amplitude qui s'expliquent par le profil spatial du champ. Les pics ATI ont été observés expérimentalement pour la première fois par Agostini et al. [144] dans le spectre du Xe à $10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$. Notons en passant que ces pics ATI peuvent présenter des sous-structures [146, 147] lorsque la durée de l'impulsion est suffisamment courte ($< 1 \text{ ps}$). Ces structures sont attribuées à des transitions résonantes (résonances de Freeman) qui apparaissent à différents instants durant l'interaction du fait de l'effet Stark dynamique, et auxquelles correspondent des potentiels d'ionisation effectifs différents.

5.2.3.2 Ionisation tunnel/Ionisation au dessus de la barrière de potentiel

Le régime tunnel est atteint dans la démarche de Keldysh lorsque $\gamma \ll 1$ i.e lorsque le *temps tunnel* est petit comparé à la période T_{laser} du champ laser.

Lorsque l'intensité n'est pas très élevée, la barrière de potentiel reste au dessus de l'état lié dans lequel se trouve initialement l'électron. Le temps tunnel est suffisamment long pour que l'électron puisse être émis à travers la barrière de potentiel avec une probabilité non nulle comme illustré sur la figure 5.3 (d). Le modèle de Keldysh suppose que seul l'état lié dans lequel se trouve l'électron joue un rôle dans le processus d'ionisation (on néglige de ce fait la structure atomique). Cet état lié est directement couplé au continuum décrit par les états de Volkov [148] (on néglige l'effet *longue portée* du potentiel coulombien). En considérant que l'électron émis par effet tunnel est soumis au seul champ quasi-statique, Keldysh montre que le taux d'ionisation (en u.a.) est donné par

$$W = W_0 \exp \left[-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3\mathbf{E}_0} \right]. \quad (5.18)$$

I_p représente le potentiel d'ionisation, \mathbf{E}_0 l'amplitude du champ et W_0 une fonction peu variable des grandeurs \mathbf{E}_0 , I_p et Z la charge de l'atome résiduel. Cette expression, initialement établie à 1D, a été confirmée par Perelomov et al. [149] ainsi que par Amosov et al. [150] (théorie ADK) en jauge longueur en 3D. Elle a également été vérifiée plus tard par Faisal [151] et Reiss [152] en jauge vitesse. Toutes ces théories sont basées sur l'*approximation classique du champ fort* (une approche quantique de cet approximation a été faite par Lewenstein et al.[153]) dans laquelle ne sont pris en compte que l'état initial et les états du continuum représentés par les états de Volkov. On suppose que la fréquence du photon est telle que la probabilité d'atteindre le continuum par absorption multiphotonique est négligeable. Le mécanisme d'ionisation proposé et décrit par un processus à trois étapes comme illustré sur la figure 5.4 [43] peut se résumer ainsi :

- l'électron se retrouve dans le continuum par effet tunnel lorsque l'amplitude du champ est maximale avec une vitesse nulle ou quasi-nulle ;
- suivant la phase du champ, cet électron peut être émis directement dans le continuum (on parle d'*électron direct (direct tunnelling)*) ;
- ou alors l'électron peut osciller sous l'effet du champ (on parle d'*électron*

5.2. Aspects théoriques en régime basse fréquence et mécanismes d'ionisation 135

indirect) et subir une rediffusion vers l'avant (*forward-scattering*) par collision avec le noyau ou vers l'arrière (*back-scattering*)

L'évaluation de l'énergie maximale acquise par l'électron libre qui est émis dans le continuum par effet tunnel avec une vitesse initiale nulle et qui oscille sous l'effet du champ (*simple man's theory*), permet de montrer que les électrons qui sont émis par *direct tunnelling* et *forward scattering* ont une énergie finale maximale égale à $2U_p$ et de ce fait contribuent à la zone de basse énergie du spectre $E \leq 2U_p$. Par contre, les électrons qui subissent une collision avec le coeur atomique (*back-scattering*) ont une énergie finale $E \geq 2U_p$ et contribuent à la partie du spectre au delà de $2U_p$.

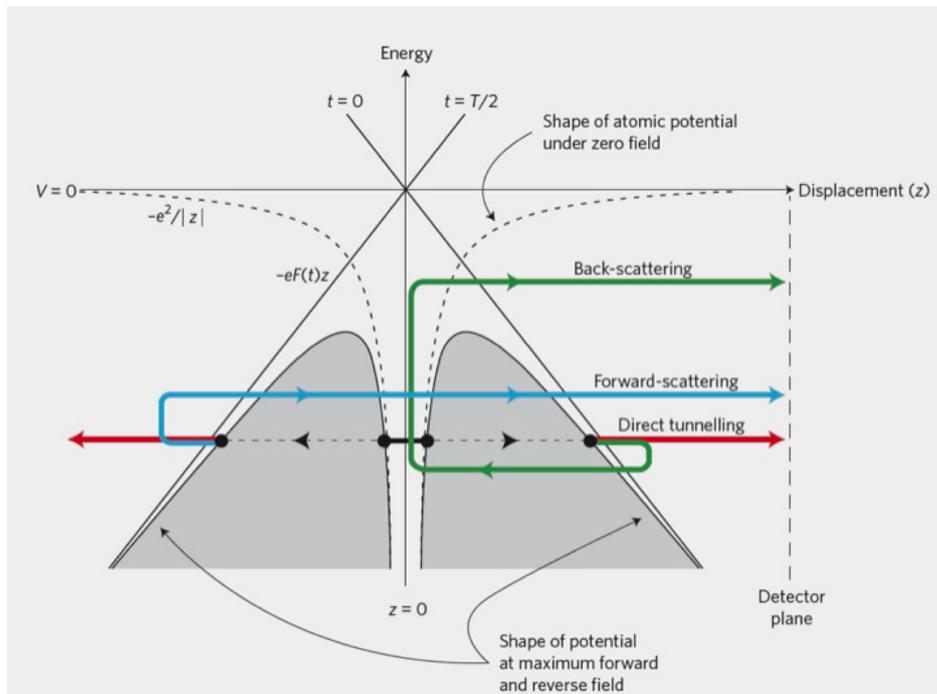


FIGURE 5.4 – Représentation du mécanisme d'ionisation tunnel à 3 étapes [43].

Lorsque l'intensité devient très élevée et supérieure à une valeur critique dite *intensité de saturation*, la barrière de potentiel effective est abaissée en dessous du niveau d'énergie de l'état fondamental comme illustré sur la figure

5.3 (c). L'électron n'est plus lié et se retrouve dans la continuum en passant au dessus de la barrière de potentiel. Ce processus est connu sous le nom d'ionisation au dessus de la barrière de potentiel (*over-the-barrier ionization*). Dans cette situation, l'ionisation est quasi-totale sur une durée inférieure à la période du champ. L'intensité de saturation pour l'hydrogène atomique est de l'ordre de $8 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$. Cette valeur a été obtenue par Shakeshaft et al. [155] et confirmée par A. de Bohan [154].

5.3 Approche théorique

Nous décrivons dans cette section l'approche théorique utilisée pour résoudre l'ESDT et nous présentons brièvement les méthodes d'évaluation des grandeurs physiques présentées.

5.3.1 Résolution numérique de l'ESDT

Pour résoudre numériquement l'ESDT décrivant l'interaction du système avec le champ électromagnétique, nous utilisons la même technique que celle présentée dans le chapitre précédent. Nous rappelons ici les points essentiels et nous précisons la méthode d'intégration utilisée pour résoudre l'ESDT.

L'ESDT non-relativiste, semi-classique, dans l'approximation dipolaire et en jauge vitesse, décrivant l'interaction du système avec le champ s'écrit (en u.a.)

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{r}, t) = \left[\frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2} - \frac{1}{r} + \mathbf{A}(t) \cdot \hat{\mathbf{p}} \right] \Psi(\vec{r}, t). \quad (5.19)$$

Il convient d'insister sur l'intérêt du choix de la jauge vitesse à basse fréquence. *En effet, dans la limite des basses fréquences et hautes intensités, l'excursion du PO ionisé sous l'influence du champ est telle que la jauge vitesse permet de décrire la dynamique du système et d'atteindre rapidement la convergence des observables physiques avec un nombre raisonnable de moments angulaires, comparativement à la jauge longueur.*

Pour résoudre numériquement l'ESDT, nous développons le PO $\Psi(\vec{r}, t)$ sur une base de fonctions sturmiennes comme suit

$$\Psi(\vec{r}, t) = \sum_{n,l,m} a_{n,l,m}(t) \frac{S_{n,l}^{\kappa}(r)}{r} Y_{l,m}(\hat{r}). \quad (5.20)$$

La forme matricielle de l'équation (5.19) est obtenue en suivant la démarche décrite dans le chapitre précédent. Il en résulte l'équation matricielle donnée par

$$i \frac{d}{dt} \mathbf{S} \Psi(t) = [\mathbf{H}_{\text{atom}} + g(t)D] \Psi(t), \quad (5.21)$$

dont les différents termes ont été définis dans le chapitre précédent.

Pour l'intégration numérique de l'ESDT, nous utilisons dans cette partie essentiellement l'algorithme d'Arnoldi que nous avons présenté dans le chapitre 2. Des tests de comparaison ont été effectués avec la méthode explicite de Fatunla pour vérifier que la dimension du sous-espace de Krylov est suffisante pour reproduire les grandeurs physiques. Nous n'utilisons pas la MCDT pour l'étude de la LES à basse fréquence pour deux raisons simples. Nous avons montré que dans la MCDT, le spectre près du seuil n'est pas bien décrit à basse fréquence alors que c'est précisément la LES qui nous intéresse. Par ailleurs, les fréquences considérées sont telles que les durées d'interaction nécessitent l'utilisation de vitesses asymptotiques très petites et par conséquent une durée de propagation libre très longue pour atteindre le PO stationnaire à partir duquel les observables sont évaluées.

5.3.2 Calcul des observables

Distribution en énergie

Les spectres de photoionisation ont essentiellement été évalués en projetant le PO $\Psi(\vec{r}, t)$ obtenu à la fin de l'interaction, sur la fonction coulombienne rentrante $\Phi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r})$ décrivant le continuum des systèmes à un électron actif. La densité de probabilité de présence de l'électron avec une impulsion \vec{k} est donnée par :

$$\rho(\vec{k}) d\vec{k} = |I(\vec{k})|^2 d\vec{k}, \quad (5.22)$$

avec

$$I(\vec{k}) = \int \Phi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}) \Psi(\vec{r}, t) d\vec{r}. \quad (5.23)$$

La fonction $\Phi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r})$ se définit comme

$$\Phi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}) = \sum_{l,m} \frac{4\pi}{2l+1} \mathcal{R}_l^{-*}(kr) Y_{l,m}^*(\hat{r}) Y_{l,m}(\hat{k}), \quad (5.24)$$

où la partie radiale $\mathcal{R}_l^{-*}(kr)$ est donnée par

$$\mathcal{R}_l^{-*}(kr) = (-1)^l \mathcal{R}_l^+(kr), \quad (5.25)$$

avec

$$\mathcal{R}_l^+(kr) = (2\pi)^{-\frac{3}{2}} (2ikr)^l e^{\frac{Z\pi}{2k}} e^{ikr} \frac{\Gamma(l+1-i\frac{Z}{k})}{(2l)!} {}_1F_1\left(l+1-i\frac{Z}{k}; 2l+2; -2ikr\right). \quad (5.26)$$

Z représente la charge du noyau de l'hydrogénoïde. $\Phi_{\vec{k}}^-(\vec{r})$ vérifie la relation d'orthogonalité suivante

$$\int \Phi_{\vec{k}}^-(\vec{r}) \Phi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}) d\vec{r} = \delta(\vec{k} - \vec{k}'). \quad (5.27)$$

Pour évaluer (5.22), nous réécrivons $\Phi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r})$ sous la forme

$$\Phi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}) = \sum_{n,l,m} a_{n,l}(k) \frac{S_{n,l}^{\kappa}(r)}{r} Y_{l,m}(\hat{k}) Y_{l,m}^*(\hat{r}). \quad (5.28)$$

Les coefficients $a_{n,l}(k)$ de la fonction coulombienne dans la base sturmienne (voir annexe J) s'expriment en fonction des fonctions hypergéométriques généralisées comme

$$\begin{aligned} a_{n,l}(k) = & (-1)^{n-1} (i\kappa k)^l (1-\lambda)^{-(2l+2)} \frac{4\pi}{2l+1} \left(\frac{2}{\kappa}\right)^{2l+3/2} \sqrt{\frac{n}{l}} \frac{1}{(2l+1)!} \\ & \left(\frac{(n+l)!}{(n-l-1)!}\right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{1-\lambda}{1+\lambda}\right)^n \Gamma\left(l+1-i\frac{Z}{k}\right) e^{\frac{Z\pi}{2k}} e^{-\frac{2Z}{k} \arctan \frac{k}{\kappa}} \\ & {}_2F_1\left(l+1-n; l+1-i\frac{Z}{k}; 2l+2; -\frac{4\lambda}{(1-\lambda)^2}\right), \end{aligned} \quad (5.29)$$

avec $\lambda = -ik/\kappa$. Pour des raisons numériques, on exprime $a_{n,l}(k)$ en fonction des polynômes de Pollaczek en exploitant la relation

$$P_n^\lambda(x; a, b) = \frac{1}{n!} (2\lambda)_n e^{in\theta} {}_2F_1\left(-n; \lambda + it; 2\lambda; 1 - e^{-2i\theta}\right), \quad (5.30)$$

avec $x = \cos \theta$ et $t = (ax+b)(1-x^2)^{-1/2}$. En posant $a_{n,l} = \frac{4\pi}{2l+1} \tilde{a}_{n,l}$, on obtient

$$\begin{aligned} \tilde{a}_{n,l}(k) = & (2l+1) (4i\kappa k)^l \frac{(-1)^{n-1}}{\pi} \sqrt{\frac{n\kappa}{2\pi}} \left(\frac{(n+l)!}{(n-l-1)!}\right)^{-\frac{1}{2}} \frac{\Gamma\left(l+1-i\frac{Z}{k}\right)}{(\kappa^2+k^2)^{l+1}} \\ & e^{\frac{Z}{k}(\pi/2-2\phi)} P_{n-l-1}^{l+1}\left(x; -\frac{Z}{\kappa}, -\frac{Z}{\kappa}\right), \end{aligned} \quad (5.31)$$

avec $\phi = \arctan k/\kappa$.

Nous avons également utilisé la méthode de la résolvante [156, 157] qui consiste à évaluer la densité de probabilité comme

$$\frac{dP}{dE} = \sqrt{2E} |\langle \Psi | \frac{\varepsilon^{2n}}{(E - H_0)^{2n} + \varepsilon^{2n}} | \Psi \rangle|^2, \quad (5.32)$$

où H_0 représente le hamiltonien atomique, n est un entier que nous choisissons égal à 2 comme dans les références [156, 157], ε est un paramètre qui définit la largeur d'une fenêtre autour du point d'énergie E où la distribution est évaluée. Ce dernier doit être plus petit que l'écart entre les niveaux d'énergie des états liés [156]. Cependant, il ne doit pas être trop petit au risque d'avoir un spectre présentant des pics reflétant la discrétisation du continuum [157] par la méthode spectrale. ε est en général de l'ordre de la densité des états du continuum.

Evolution du PO dans l'espace des moments

Dans leurs thèses respectives Tetchou [136] et de Bohan [154], ont montré qu'on peut analyser le processus d'ionisation en étudiant l'évolution du PO dans l'espace des moments (à 800 nm). Pour ce faire, ils ont résolu l'ESDT dans l'espace des moments. En ce qui nous concerne, nous évaluons le PO $\tilde{\Psi}(\vec{p}, t)$ dans l'espace des moments à partir du PO $\Psi(\vec{r}, t)$ dans l'espace des configurations en utilisant la relation suivante :

$$\tilde{\Psi}(\vec{p}, t) = (2\pi)^{-3/2} \int e^{-i\vec{p}\cdot\vec{r}} \Psi(\vec{r}, t) d\vec{r} \quad (5.33)$$

En substituant dans l'équation (5.33) $\Psi(\vec{r}, t)$ par son développement dans la base sturmienne, on obtient

$$\tilde{\Psi}(\vec{p}, t) = (2\pi)^{-3/2} \sum_{l,m} c_{n,l}(t) \int e^{-i\vec{p}\cdot\vec{r}} \frac{S_{n,l}^\kappa(r)}{r} Y_{l,m}(\hat{r}) d\vec{r}. \quad (5.34)$$

En utilisant le développement de $e^{-i\vec{p}\cdot\vec{r}}$ en ondes partielles [158]

$$e^{-i\vec{p}\cdot\vec{r}} = 4\pi \sum_{l,m} (-i)^l j_l(pr) Y_{l,m}(\hat{k}) Y_{l,m}^*(\hat{r}), \quad (5.35)$$

où j_l est la fonction de Bessel, on obtient après intégration

$$\Psi(\vec{p}, t) = \sum_{l,m} (-i)^l c_{n,l}(t) \mathcal{G}_{n,l}^\kappa(p) Y(\hat{p}), \quad (5.36)$$

$\mathcal{G}_{n,l}^\kappa(p)$ est donné par :

$$\mathcal{G}_{n,l}^\kappa(p) = \mathcal{N}_{n,l}^\kappa \frac{p^l}{(p^2 + k^2)^{l+2}} C_{n-l-1}^{l+1} \left(\frac{p^2 - k^2}{p^2 + k^2} \right), \quad (5.37)$$

où C_{n-l-1}^{l+1} désigne le polynôme de Gegenbauer [102] et

$$\mathcal{N}_{n,l}^\kappa = 2^{2l+2} \kappa^{l+2} l! \sqrt{\frac{2\kappa n (n-l-1)!}{\pi (n+l)!}}, \quad (5.38)$$

représente le facteur de normalisation.

Courant de probabilité

Dans le but d'analyser la dynamique du PO durant l'interaction, nous évaluons le courant de probabilité du PO. Il s'obtient à partir de l'équation de continuité

$$\frac{\partial}{\partial t} |\Psi(\vec{r}, t)|^2 + \vec{\nabla} \cdot \vec{J} = 0 \quad (5.39)$$

En exploitant le fait que

$$\frac{\partial}{\partial t} |\Psi(\vec{r}, t)|^2 = i [(H^*(t)\Psi^*(\vec{r}, t))\Psi(\vec{r}, t) - \Psi^*(\vec{r}, t)(H(t)\Psi(\vec{r}, t))], \quad (5.40)$$

on obtient les expressions du courant de probabilité en jauge longueur et vitesse respectivement données par

$$\vec{J}_L = \frac{1}{2i} \left(\Psi^*(\vec{r}, t) \vec{\nabla} \Psi(\vec{r}, t) - \Psi(\vec{r}, t) \vec{\nabla} \Psi^*(\vec{r}, t) \right) = \text{Im} \left(\Psi^*(\vec{r}, t) \vec{\nabla} \Psi(\vec{r}, t) \right), \quad (5.41)$$

$$\vec{J}_V = \vec{J}_L - \vec{A}(t) |\Psi(\vec{r}, t)|^2, \quad (5.42)$$

où $\vec{A}(t)$ représente le potentiel vecteur.

5.4 Résultats : validation et conclusions préliminaires

Nous présentons dans cette section quelques résultats qui constituent des tests de validation pour notre approche et qui ont surtout permis de tirer quelques conclusions essentielles pour la suite de notre analyse. Deux cas sont étudiés : l'ionisation de l'hydrogène atomique par un champ de fréquence proche de l'énergie de transition entre le 1s et le 2p (0.375 u.a.) [159, 160] d'une part et l'ionisation de l'hydrogène par le laser Ti :Saphir (800 nm) étudiée par Tetchou [136] et de Bohan [154] d'autre part.

5.4.1 Ionisation de l'hydrogène atomique par un champ de fréquence $\omega = 0.375$ u.a.

Pour valider notre approche, nous comparons sur la figure 5.5 l'évolution de la probabilité d'ionisation en fonction de la fréquence que nous obtenons, avec les résultats obtenus par Rodriguez et al. [159], qui utilisent une approche itérative de type "*split-operator*" pour l'intégration numérique de l'ESDT. Nous considérons un champ d'intensité $I = 1.4 \times 10^{13}$ W/cm² et de durée totale égale à 10 cycles optiques. La faible intensité du champ rend la comparaison fort intéressante dans la mesure où elle induit de faibles taux d'ionisation qui nécessitent des méthodes de grande précision. Pour décrire le PO, nous utilisons une base de 1500 sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ par moment angulaire et un nombre total de 10 moments angulaires. L'accord remarquable entre nos résultats avec ceux de Rodriguez et al. sur toute la plage de fréquence considérée permet de valider notre approche. Comme on pouvait s'y attendre, la probabilité d'ionisation en fonction de la fréquence présente un maximum autour de la fréquence de résonance $\omega=0.375$ u.a.. La distribution en énergie correspondant à cette fréquence (figure 5.6) présente des pics ATI (qui se justifient par la valeur du paramètre de Keldysh ($\gamma = 9.9750$) et la valeur de l'intensité). Le premier pic, situé à 0.2487 u.a., se trouve bien à la valeur déduite du principe de conservation d'énergie, suite à l'absorption de 2 photons d'énergie 0.375 u.a. ($U_p = 0.0025$ u.a.). La complexité du spectre ne permet pas d'extraire les données, mais on remarque un accord en observant les résultats de Rodriguez et al. [159].

Ceci étant, nous comparons sur les figures 5.7 et 5.8 respectivement l'évo-

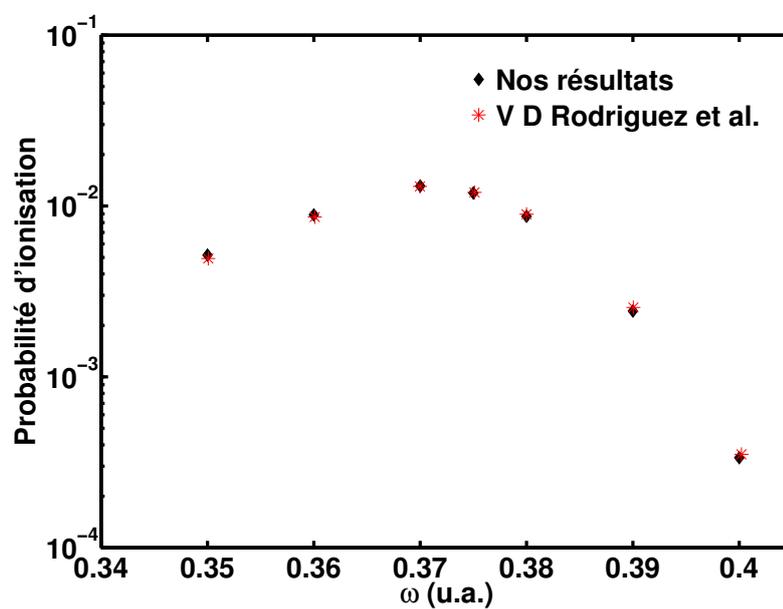


FIGURE 5.5 – Comparaison de l'évolution de la probabilité d'ionisation en fonction de la fréquence obtenue par notre méthode et par celle de Rodriguez et al. [159]. Nous considérons un champ d'intensité $I = 1.4 \times 10^{13}$ W/cm², de durée totale égale à 10 cycles optiques

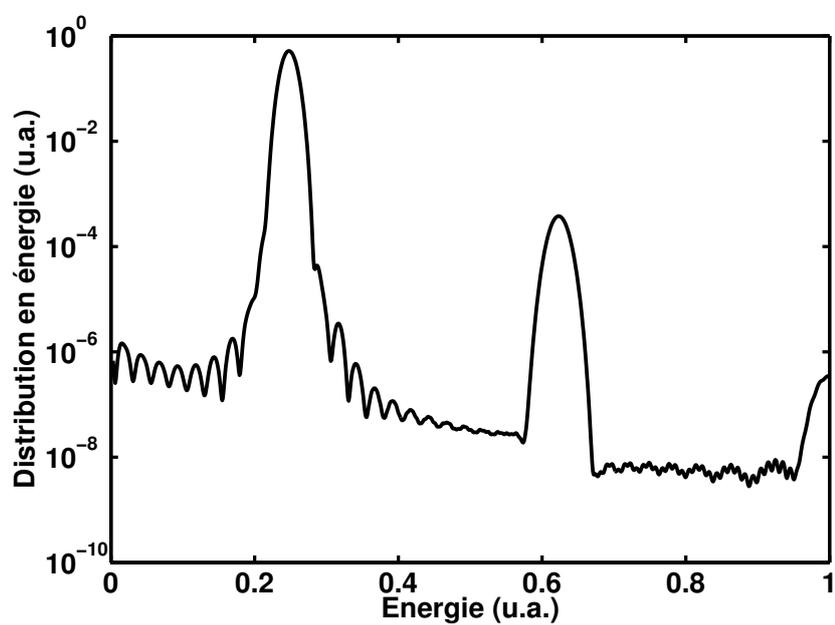


FIGURE 5.6 – *Distribution en énergie du PO ionisé. Nous considérons un champ d'intensité $I = 1.4 \times 10^{13}$ W/cm², de fréquence $\omega = 0.375$ u.a. et de durée totale égale à 10 cycles optiques*

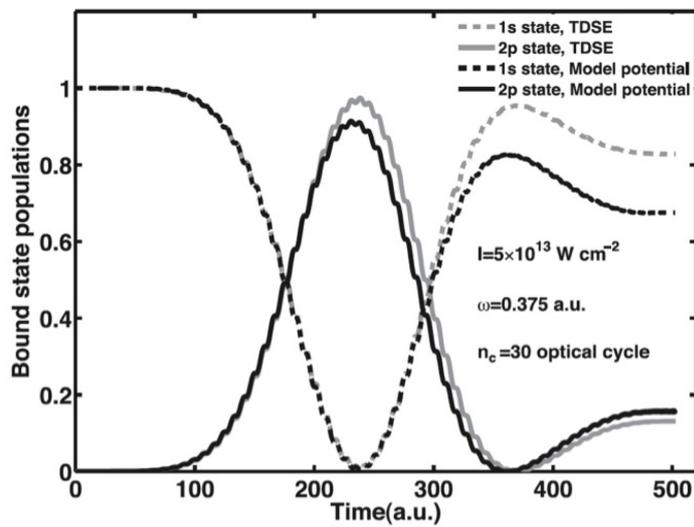


FIGURE 5.7 – Comparaison de l'évolution des populations des états $1s$ et $2p$ en fonction du temps obtenue avec notre méthode avec celle obtenue à l'aide d'un modèle atomique dans l'espace des moments, dans lequel ne sont pris en compte que quelques états liés [136, 160]. Nous considérons un champ d'intensité $I = 5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, une durée totale égale à 10 cycles optiques et de fréquence égale à $\omega = 0.375 \text{ u.a.}$

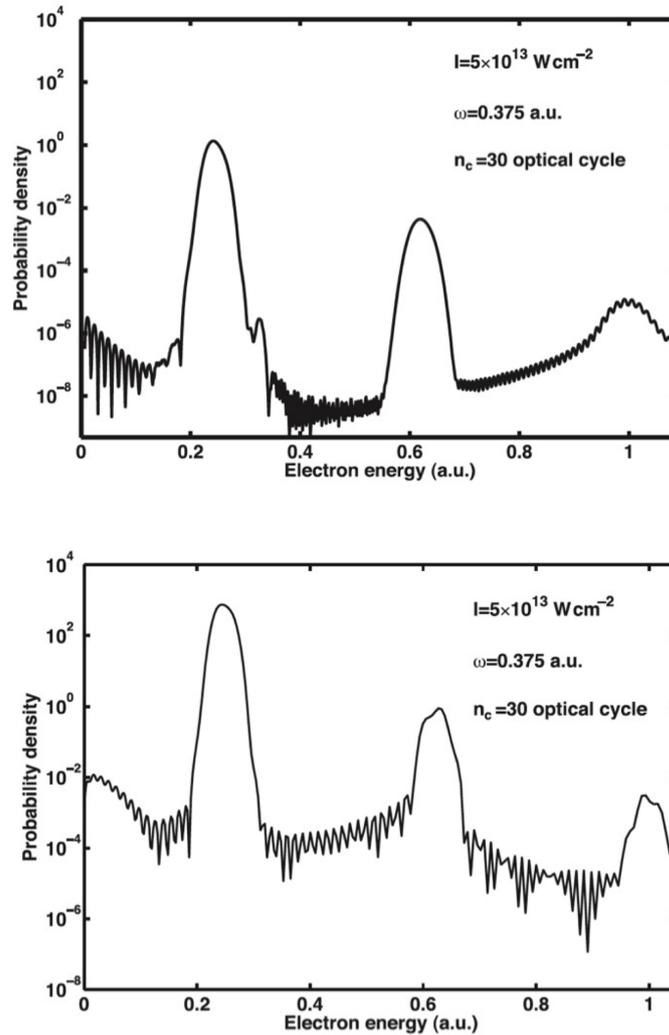


FIGURE 5.8 – Comparaison de la distribution en énergie obtenue avec notre méthode (premier graphe) et de celle obtenue à l'aide d'un modèle atomique dans l'espace des moments (deuxième graphe) [136, 160] dans lequel ne sont pris en compte que quelques états liés. Les paramètres du champ sont identiques à ceux de la figure 5.7.

lution des populations des états 1s et 2p au cours du temps, et la distribution en énergie du PO ionisé ($\omega=0.375$ u.a. pour une intensité $I = 5 \times 10^{13}$ W/cm²) obtenus avec notre approche dépendante du temps, avec les résultats obtenus grâce au modèle atomique développé par Tetchou [136]. Dans ce modèle, on résout l'ESDT dans l'espace des moments en jauge vitesse. La difficulté liée à l'évaluation du potentiel coulombien dans l'espace des moments est levée en remplaçant le noyau du potentiel coulombien par un développement en série de N potentiels séparables, chaque terme de la série supportant un état atomique. Cette opération permet de transformer l'ESDT en un système de N équations intégrales de Volterra de second espèce couplées [160]. Il est à noter que les états liés sont introduits "à la main", permettant ainsi de mieux appréhender le rôle des états liés. Cependant, le fait que la portée du potentiel soit liée au nombre d'états liés ne permet pas de dissocier clairement le rôle des états liés du rôle du potentiel coulombien dans l'interprétation des résultats. Sur les figures 5.7 et 5.8 (deuxième graphe), les états 1s, 2s et 2p ont été pris en compte dans le modèle. En ce qui concerne notre méthode dépendante du temps, les paramètres de la base restent identiques à ceux utilisés dans le paragraphe précédent. La base ainsi considérée permet de générer plus ou moins 100 états liés par moment angulaire. *On observe que le modèle reproduit qualitativement (en forme) les résultats présentés, mais que ces résultats sont quantitativement différents. Par exemple, les distributions en énergie diffèrent de près de 2 ordres de grandeur. Ce qui laisse penser que, même dans ce cas résonant où on pourrait supposer a priori que les états liés hormis le 1s et le 2p ne jouent aucun rôle, leur-non prise en compte dans la dynamique affecte les résultats. Dans ce cas précis, cela entraîne une sévère surestimation de la densité de probabilité.*

5.4.2 Ionisation de l'atome d'hydrogène par le laser Ti : Saphir

Nous présentons dans ce paragraphe les résultats obtenus pour l'ionisation de l'atome d'hydrogène par le laser Ti : Saphir ($\lambda = 800$ nm) de fréquence $\omega = 0.057$ u.a.. Nous considérons un champ d'intensité $I = 1.3 \times 10^{14}$ W/cm² et de durée totale égale à 8 cycles optiques. Le paramètre de Keldysh $\gamma = 0.9403$ est tel que l'ionisation multiphotonique et l'ionisation tunnel coexistent. L'énergie pondéromotrice vaut $U_p = 0.2824$ u.a.. Pour décrire le PO, nous utilisons une base de 1200 sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ par moment angulaire et un

nombre total de 50 moments angulaires.

Evolution du PO dans l'espace des moments

Sur la figure 5.9, nous présentons successivement l'évolution de la densité de probabilité $|\Psi(p_z, p_n = 0, t)|^2$ suivant la direction de polarisation dans l'espace des moments et l'évolution de la population dans l'état fondamental en fonction du temps. Avant de l'interpréter, il convient de rappeler l'interprétation du moment canonique, sur laquelle de Bohan [154] s'est appuyée pour analyser la densité de probabilité dans l'espace des moments. Le moment canonique dans la jauge vitesse¹ est donné par

$$\vec{p}(t) = \vec{v}(t) - \vec{A}(t),$$

$\vec{v}(t)$ est le moment mécanique. A partir de cette relation, on montre grâce au théorème d'Ehrenfest que

$$\frac{d}{dt} \langle \vec{p} \rangle = - \langle \vec{\nabla} V \rangle,$$

où V représente le potentiel coulombien. En d'autres termes, l'évolution du moment canonique en jauge vitesse est liée au gradient du potentiel coulombien. Etant donné que le potentiel coulombien est *déformé* par le champ électrique et qu'il oscille en opposition de phase avec le champ, son gradient oscillera en quadrature de phase. De ce fait, les états liés, soumis au potentiel coulombien, oscillent en quadrature de phase avec le champ électrique ou en opposition de phase avec le potentiel vecteur. La partie du PO dont le moment canonique oscille en opposition de phase avec le potentiel vecteur représente donc des états liés. Par ailleurs en supposant que l'électron éjecté ne ressent plus le potentiel coulombien, on a $\langle \vec{\nabla} V \rangle \approx 0$. De ce fait, l'éjection d'un électron devrait se manifester dans la densité de probabilité par un moment canonique constant. Ceci étant, on observe sur le premier graphe de la figure 5.9 que la densité de probabilité, qui coïncide à $t = 0$ avec l'état initial, commence à osciller en quadrature de phase avec le champ électrique (représenté en gris sur le second graphe) conformément à ce qui vient d'être dit. Après quelques cycles optiques,

1. Dans la jauge longueur, on montre que le moment canonique coïncide avec le moment mécanique $\vec{v}(t)$, soit $\vec{p}(t) = \vec{v}(t)$.

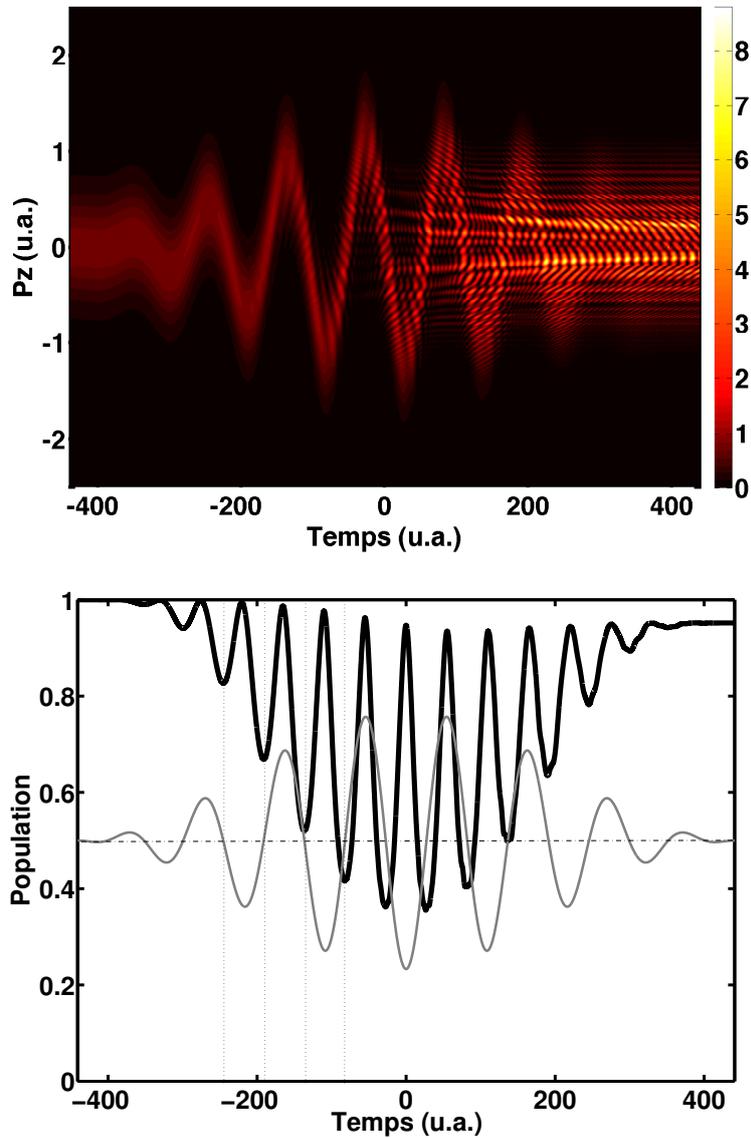


FIGURE 5.9 – Evolution de la densité de probabilité $|\Psi(p_z, p_n = 0, t)|^2$ suivant la direction de polarisation dans l'espace de moments (*en haut*) et évolution de la population dans l'état $1s$ (*en bas*) : $I = 1.3 \times 10^{14}$ W/cm², de fréquence $\omega = 0.057$ u.a. et de durée totale égale à 8 cycles optiques.

alors qu'une partie de la densité continue d'osciller (états liés résiduels), il apparaît des stries caractérisées par des moments canoniques presque constants. Ces stries caractérisent l'émission des électrons dans le continuum et le moment où elles "naissent" dans la densité donne une information sur l'instant précis d'émission des électrons. *Plus important, on remarque que les électrons ionisés qui sont émis avec un moment canonique relativement faible subissent l'effet du potentiel coulombien, alors que les autres électrons conservent un moment canonique constant. C'est précisément les électrons qui naissent avec un moment canonique faible qui contribuent à la zone de faible énergie dans le spectre. Ceci laisse penser que le potentiel coulombien joue un rôle crucial dans la construction de la LES.* Par ailleurs, dans les récents travaux de Tetchou [136], on observe que lorsqu'il ne prend en compte que l'état 1s dans son modèle, on n'observe pas de strie de faible moment canonique; alors qu'en intégrant le 2s et le 2p dans ses calculs, quelques stries de faibles moments canoniques apparaissent. Ce qui laisse penser que *les états liés jouent également un rôle crucial dans la formation de la LES.*

Distribution en énergie

Sur la figure 5.10, nous analysons la convergence de la distribution en énergie (échelles linéaire et logarithmique) du PO ionisé en fonction du nombre de moments angulaires utilisés pour décrire la dynamique du système. Il apparaît que pour un nombre total de moments angulaires $l_{max} = 3$, le spectre et notamment sa partie *basse énergie* est erroné; mais qu'à partir de $l_{max} = 10$, le spectre à basse énergie est correct et a convergé. Par ailleurs, en analysant sur la figure 5.11 les contributions des différents moments angulaires au taux d'ionisation total, la distribution résultante présente un pic autour de $l = 8$. Ce nombre correspond plus ou moins au nombre de photons nécessaires pour atteindre le continuum à partir de l'état fondamental, ceci en supposant que le potentiel pondéromoteur U_p est nul. En effet, en prenant en compte le potentiel pondéromoteur (qui vaut dans ce cas $U_p = 0.28$ u.a.), on s'attend à observer un pic autour de $l = 14$. Ces résultats laissent également penser que *les électrons ionisés et précisément ceux qui forment la structure dominante à basse énergie dans le spectre intégré, atteignent le continuum par absorption multiphotonique.* Il convient de préciser que le paramètre de Keldysh dans ce cas vaut $\gamma = 0.94 < 1$. Il convient également de noter que la partie haute

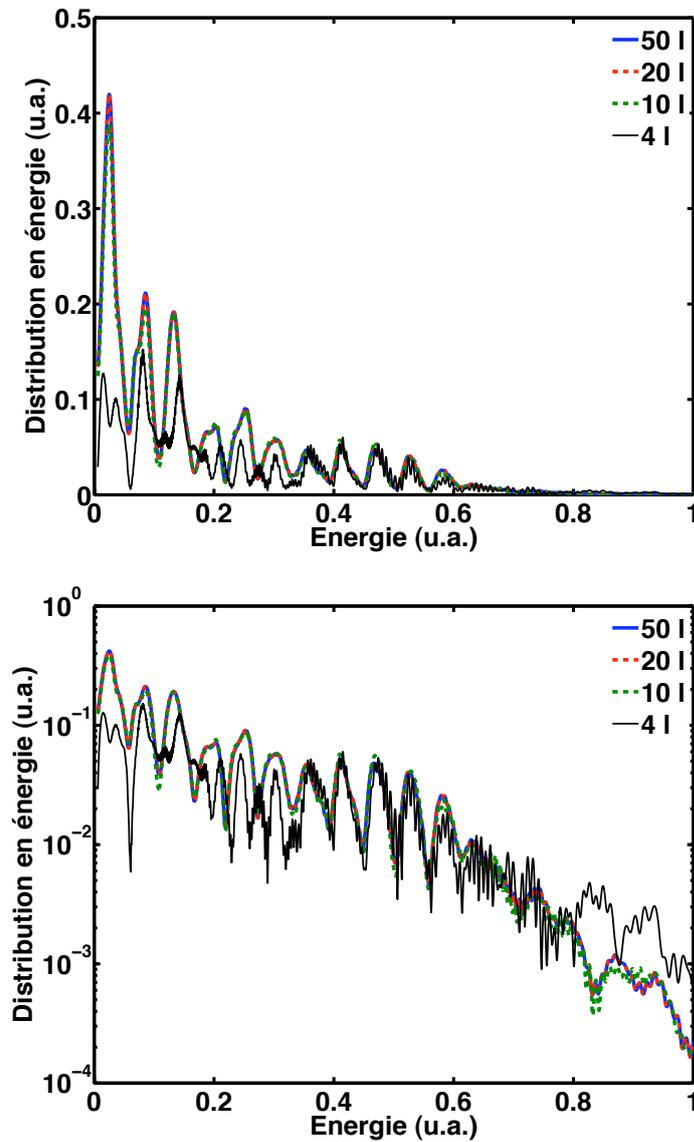


FIGURE 5.10 – Convergence de la distribution en énergie du PO ionisé en fonction du nombre de moments angulaires utilisés pour décrire la dynamique du système : $I = 1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\omega = 0.057 \text{ u.a.}$ et 8 cycles optiques

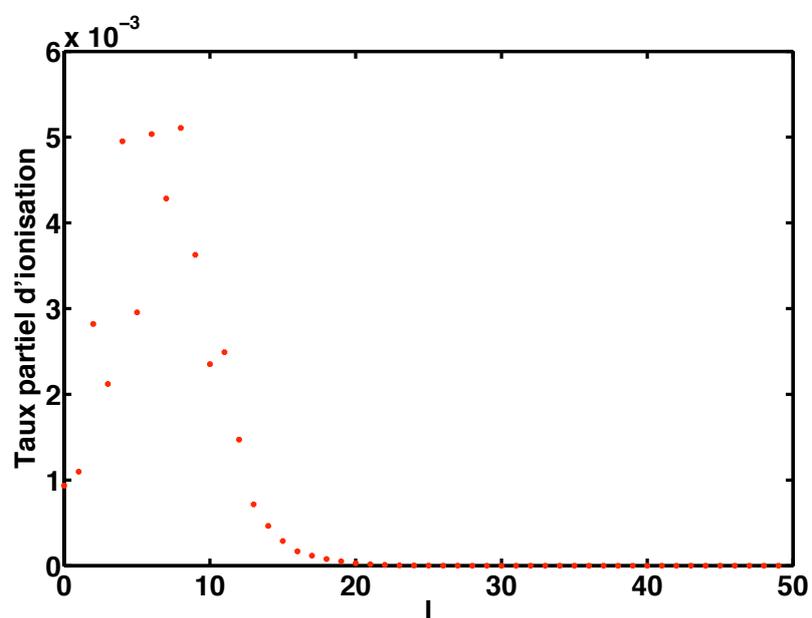


FIGURE 5.11 – Contributions des différents moments angulaires à la probabilité totale d'ionisation : $I = 1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\omega = 0.057 \text{ u.a.}$ et 8 cycles optiques

énergie du spectre est plus ou moins bien reproduite avec relativement un nombre moins élevé de moments angulaires $l_{max} = 3$ et qu'elle s'améliore lorsqu'on augmente l_{max} . Cependant, la convergence des spectres mesurés le long de l'axe de polarisation requiert un nombre de moments angulaires plus élevé ($10 < l_{max} \leq 20$). Ceci est d'autant plus important que, comme nous le montrons sur la figure 5.12, les électrons sont préférentiellement émis avec un moment orienté dans la direction de polarisation. Le fait que cette lente convergence ne se manifeste pas dans le spectre intégré vient de ce que leur contribution au spectre total devient négligeable, à cause du $\sin \theta$ qui intervient dans l'élément de volume. Le fait que la convergence du spectre suivant l'axe de polarisation nécessite un nombre élevé de moments angulaires est lié à l'oscillation du PO, dont l'amplitude maximale est obtenue dans cette direction, compte tenu de la polarisation du champ. L'utilisation d'un grand nombre de moments angulaires devient nécessaire pour décrire cette excursion du PO. Pour terminer cette analyse, il convient d'insister sur le fait qu'une *une structure dominante à basse énergie se manifeste dans le spectre intégré sur les angles.*

5.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté l'outil théorique que nous utilisons pour étudier la dynamique d'ionisation à basse fréquence. Nous avons validé l'outil en comparant nos résultats à ceux tirés de la littérature [159]. Nous avons notamment étudié l'ionisation de l'atome d'hydrogène par un champ de fréquence égale à l'écart d'énergie entre le $1s$ et le $2p$ et nous avons montré que nos résultats sont en parfait accord avec ceux de Rodriguez et al. [159]. Cependant, une comparaison avec les résultats de Tetchou et al. [160], obtenus à l'aide d'un modèle atomique où ne sont pris en compte que les états liés *essentiels* $1s$, $2s$ et $2p$, a permis de montrer que la non-prise en compte des états a priori *inutiles*, donne lieu à des résultats quantitativement erronés. Nous avons également étudié l'ionisation de l'hydrogène atomique par le laser Ti :Sa. Les paramètres du champ ont été choisis de sorte que le paramètre de Keldysh $\gamma = 0.94 < 1$. L'analyse des résultats obtenus a permis de mettre en évidence le rôle du potentiel coulombien (négligé dans la SFA) dans la formation de la partie basse fréquence du spectre. Par ailleurs, l'analyse du spectre intégré sur les angles, a mis en évidence la présence d'une structure dominante à basse

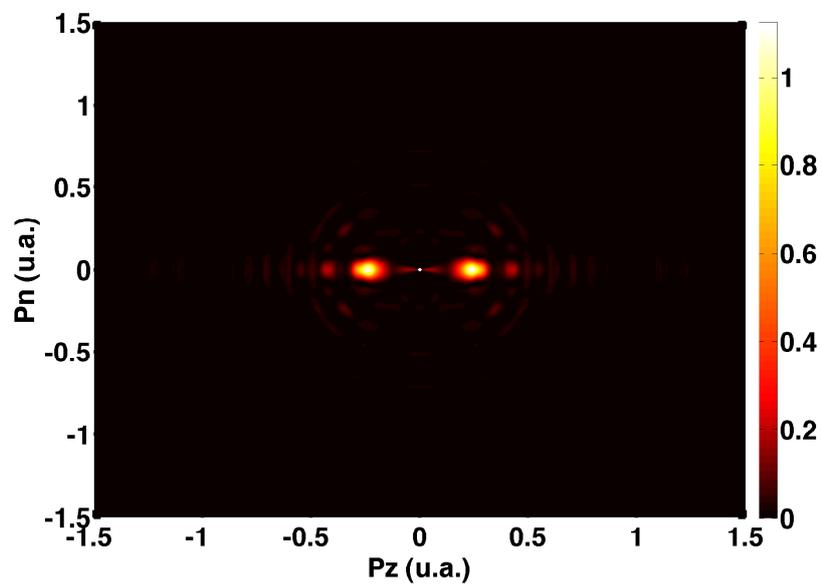


FIGURE 5.12 – *Distribution des moments* : $I = 1.3 \times 10^{14}$ W/cm², $\omega = 0.057$ u.a. et 8 cycles optiques

énergie et montré que la convergence du spectre intégré (notamment sa partie basse énergie) est obtenue avec un nombre de moments angulaires à peu près égal au nombre de photons requis pour atteindre le continuum par absorption multiphonique. L'étude de la contribution des différents moments angulaires à l'ionisation totale a révélé une contribution dominante provenant des moments angulaires dont les valeurs se trouvent autour de la valeur prédite par les règles de sélection appliquées à l'absorption multiphotonique, suggérant que la partie basse énergie est essentiellement formée par des électrons émis par absorption multiphotonique.

Etude de l'ionisation de l'hydrogène atomique par un champ de longueur d'onde $\lambda = 2000 \text{ nm}$

Sommaire

6.1 Introduction	156
6.2 Quelques remarques préliminaires	156
6.3 Présentation et analyse des résultats pour un champ de 2 cycles optiques	157
6.3.1 Présentation des distributions intégrées sur les angles et des distributions dans la direction de polarisation	157
6.3.2 Analyse des contributions des différents moments angu- lares à l'ionisation totale	161
6.3.3 Analyse de l'évolution des populations dans des sphères de rayons donnés	163
6.3.4 Analyse de l'évolution de la structure à basse énergie en fonction de l'intensité et de l'effet de la prise en compte du profil spatial du champ	167
6.4 Présentation et analyse des résultats pour un champ de 4 cycles optiques	169
6.4.1 Résultats à 10^{14} W/cm^2	170
6.4.2 Résultats à $2.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$	174
6.4.3 Effet de la prise en compte du profil spatial sur la distri- bution en énergie	175
6.5 Conclusion	178

6.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, nous avons présenté des résultats relatifs à l'ionisation de l'atome d'hydrogène par un champ de longueur d'onde $\lambda = 800$ nm et de paramètre de Keldysh $\gamma = 0.94$. Les spectres obtenus ont révélé des structures dominantes à basse énergie. Par ailleurs l'analyse des résultats a permis de montrer que ces structures sont probablement la conséquence de l'absorption multiphotonique. Dans ce chapitre, nous étudions et analysons l'ionisation de l'hydrogène atomique par un champ de longueur d'onde $\lambda = 2000$ nm. Nous considérons des situations pour lesquelles le mécanisme d'émission par effet tunnel devrait être dominant au sens de Keldysh puisque $\gamma < 0.5$. Il s'agit ici d'analyser les spectres, de vérifier la présence d'une structure dominante à basse énergie dans ces spectres, mais surtout d'apporter une contribution à la compréhension du mécanisme d'ionisation responsable de la formation de cette structure. A cet effet, nous présentons et analysons des résultats obtenus pour deux durées d'interaction : 2 et 4 cycles optiques.

6.2 Quelques remarques préliminaires

Nous souhaitons étudier l'ionisation de l'hydrogène atomique dans le régime tunnel tel que défini par l'approximation de Keldysh. A cet effet, nous considérons des paramètres du champ tels que $\gamma < 0.5$. Par ailleurs, l'intensité est inférieure à l'*intensité critique* i.e. l'intensité au delà de laquelle l'état fondamental se retrouve au dessus de la barrière de potentiel (pour éviter l'ionisation directe). Nous prenons comme référence la valeur obtenue par Bauer [162] par un calcul classique en champ statique $I_{crit} = 4.3 \times 10^{14}$ W/cm², valeur confirmée par A. de Bohan [154] ($I_{crit} \approx 5 \times 10^{14}$ W/cm²). Cette valeur se trouve bien en deçà de l'*intensité de saturation* telle que définie par R. Shakeshaft et al. [155] $I_{sat} \approx 8 \times 10^{14}$ W/cm².

Nous présentons dans le tableau 6.1, pour les besoins de la suite, les valeurs du paramètre de Keldysh γ , de l'énergie pondéromotrice U_p et de l'amplitude d'excursion d'un électron libre dans le champ α_0 en fonction de l'intensité calculées à $\lambda = 2000$ nm. Ces valeurs ont été obtenues à l'aide des relations présentées dans le chapitre précédent.

6.3. Présentation et analyse des résultats pour un champ de 2 cycles optiques

157

TABLE 6.1 – Valeurs du paramètre de Keldysh γ , de l'énergie pondéromotrice U_p et de l'amplitude d'excursion α_0 d'un électron libre dans le champ électrique, en fonction de l'intensité à $\lambda = 2000$ nm ($\omega = 0.0228$ u.a.)

Intensité $I(\text{W}/\text{cm}^2)$	γ	U_p (u.a.)	α_0 (u.a.)
0.5×10^{14}	0.6065	0.6788	72.269
0.8×10^{14}	0.4795	1.0860	91.4145
0.9×10^{14}	0.4520	1.2218	96.9597
1.0×10^{14}	0.4288	1.3575	102.2045
2.0×10^{14}	0.3032	2.7151	144.5390
2.5×10^{14}	0.2712	3.3938	161.5995
3.0×10^{14}	0.2476	4.0726	177.0234

6.3 Présentation et analyse des résultats pour un champ de 2 cycles optiques

Nous présentons dans cette section les résultats obtenus en considérant un champ de durée totale égale à 2 cycles optiques et pour les phases $\varphi = 0$ et $\varphi = \pi/2$ du champ. Pour faciliter l'interprétation des résultats, le potentiel vecteur et le champ électrique sont représentés sur la figure 6.1 pour ces deux phases du champ. Le nombre réduit d'oscillations permettra d'analyser l'effet de la phase, mais aussi de discuter du rôle, dans la formation de la structure à basse énergie, d'une éventuelle collision de l'électron (oscillant sous l'action du champ) avec le coeur ionique. Pour décrire l'évolution du PO, nous utilisons une base constituée de 1800 sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ par moment angulaire, et un nombre total $l_{max} = 80$ moments angulaires.

6.3.1 Présentation des distributions intégrées sur les angles et des distributions dans la direction de polarisation

Avant de présenter les résultats, il convient de mentionner que les distributions que nous avons obtenues sont en accord avec celles évaluées par un calcul dépendant du temps, avec une base de B-splines et ce, sur 8 ordres de grandeur.

Sur la figure 6.2, nous présentons les distributions (intégrées sur les angles)

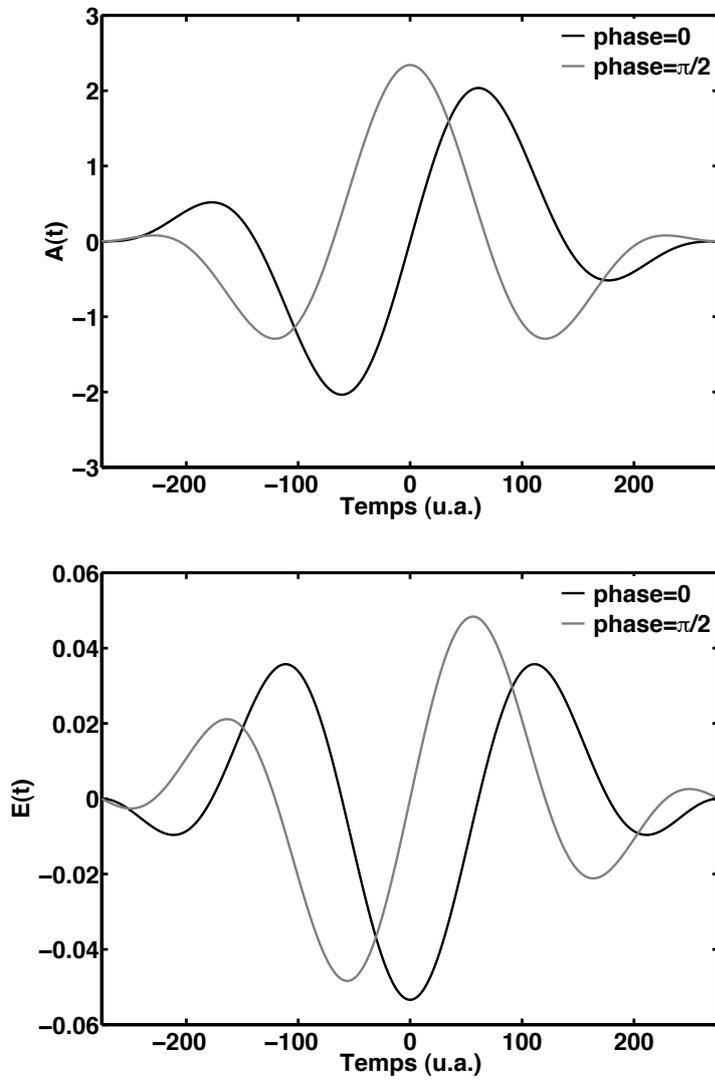


FIGURE 6.1 – Potentiel vecteur et champ électrique en fonction du temps (phases $\varphi = 0$ et $\varphi = \pi/2$); pour un champ de fréquence $\omega = 0.0228$ u.a., d'intensité $I = 1 \times 10^{14}$ W/cm² et de durée égale à 2 cycles optiques.

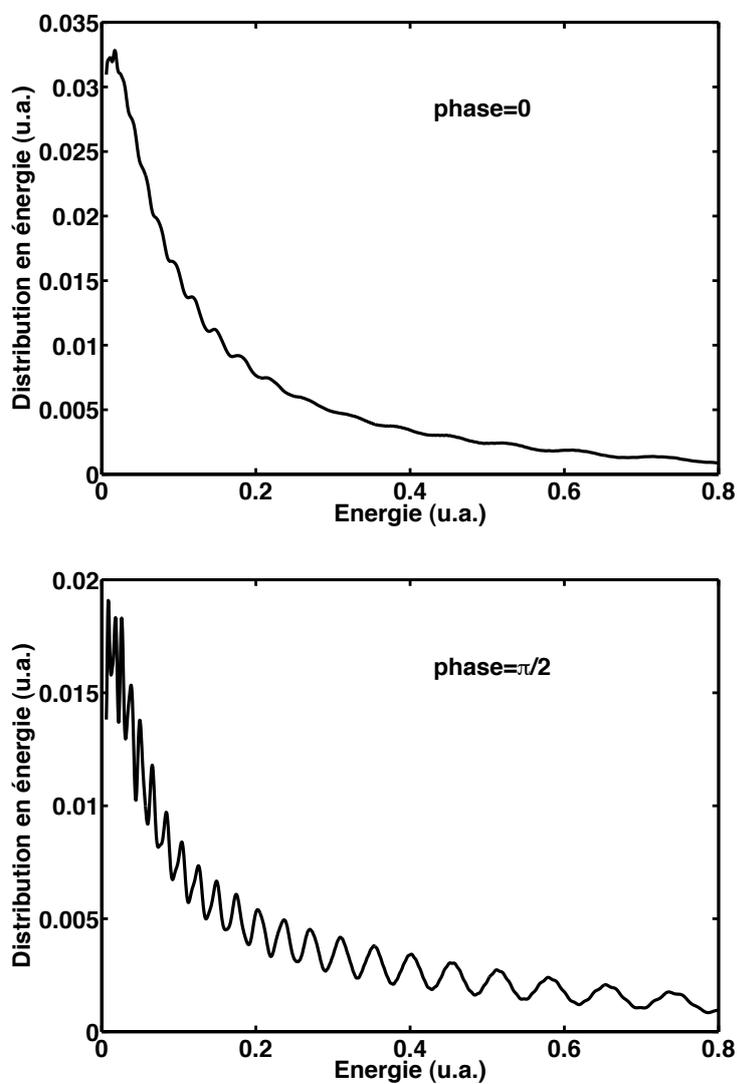


FIGURE 6.2 – Distributions en énergie des électrons émis ($\varphi = 0$ et $\varphi = \pi/2$); pour un champ de fréquence $\omega = 0.0228$ u.a., d'intensité $I = 1 \times 10^{14}$ W/cm² et de durée égale à 2 cycles optiques.

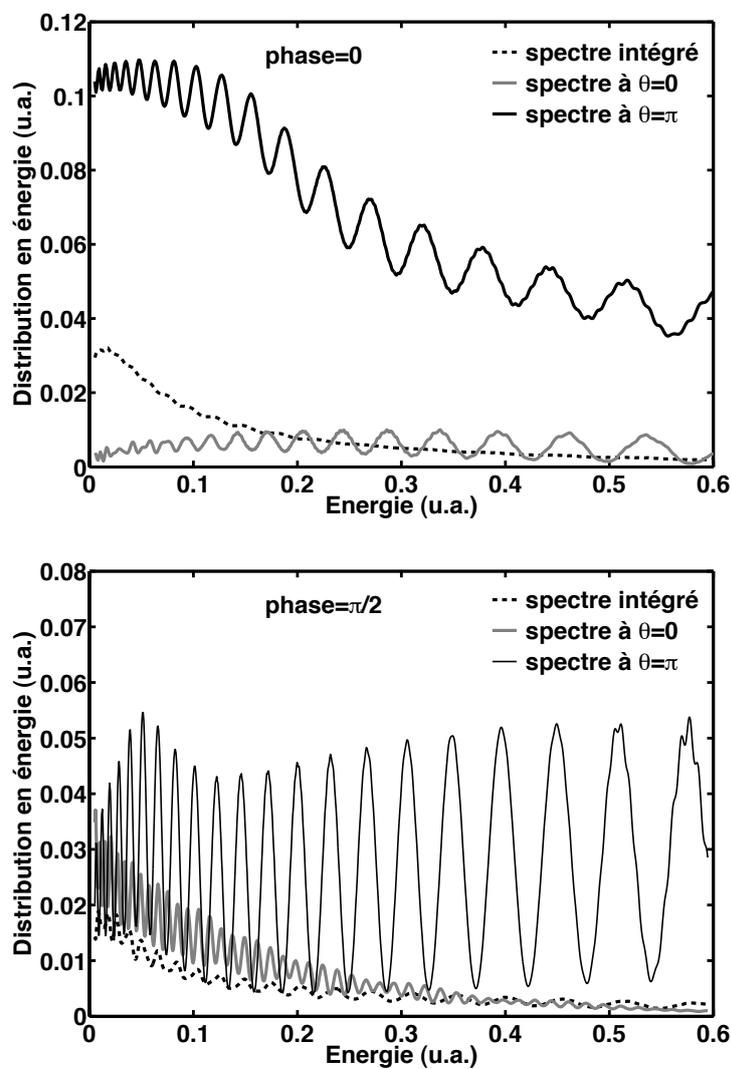


FIGURE 6.3 – Distributions en énergie des électrons émis ($\varphi = 0$ et $\varphi = \pi/2$) suivant l'axe de polarisation ($\theta = 0$, $\theta = \pi$); pour un champ de fréquence $\omega = 0.0228$ u.a., d'intensité $I = 1 \times 10^{14}$ W/cm² et de durée égale à 2 cycles optiques.

en énergie des électrons émis pour les deux phases considérées, pour l'intensité du champ $I = 1 \times 10^{14}$ W/cm². Les deux spectres présentent un *maximum et une structure dominante à très basse énergie* ($E \approx 0.017$ u.a.) suivi d'une forte décroissance vers les hautes énergies. Par ailleurs, on observe des structures dans les deux spectres qui se manifestent par des ondulations lorsque la phase $\varphi = 0$ et par de véritables pics lorsque $\varphi = \pi/2$. A basse énergie, l'écart entre les pics (≈ 0.022 u.a.) est de l'ordre de la fréquence du champ. Dans le même ordre d'idée, nous présentons sur la figure 6.3 les distributions en énergie suivant l'axe de polarisation ($\theta = 0, \theta = \pi$). Pour la phase $\varphi = 0$ du champ, l'émission s'effectue essentiellement vers l'arrière ($\theta = \pi$) alors que pour $\varphi = \pi/2$, les électrons sont émis aussi bien vers l'avant que dans le sens opposé, avec une contribution dominante vers l'arrière. On observe également que les distributions présentées sur la 6.3 présentent des pics, dont l'écart augmente avec l'énergie. Ces pics sont similaires à ceux obtenus par Arbo et al. [163] à la suite de l'étude de l'ionisation de l'atome d'hydrogène par un champ de longueur d'onde $\lambda = 0.057$ nm et de durée égale à 2 cycles optiques. Ces pics ont été interprétés par Arbo et al. [163] comme une image de diffraction résultant de la superposition des PO des électrons émis *par effet tunnel* dans un sens lors d'une demi-alternance du champ électrique (essentiellement lorsque celui-ci est maximum) mais qui changent de sens suite au changement du signe du champ (*forward scattering*), et des électrons *directs* émis par effet tunnel lors de la demi-alternance suivante du champ.

6.3.2 Analyse des contributions des différents moments angulaires à l'ionisation totale

Pour déterminer le mécanisme responsable de l'émission des électrons dans le continuum, nous présentons sur la figure 6.4, les contributions des différents moments angulaires à l'ionisation totale pour les deux phases du champ. Il apparaît que pour $\varphi = 0$, la distribution présente un maximum à $l = 23$, alors qu'il se trouve à $l = 19$ lorsque $\varphi = \pi/2$. Par ailleurs, la distribution est plus étalée lorsque $\varphi = 0$. Dans les deux cas, *les contributions dominantes se trouvent autour de la valeur correspondant au nombre de photons que l'électron doit absorber pour atteindre le continuum* ($n = 22$). *Etant donné que le spectre est dominé par la structure à basse énergie, ces résultats laissent penser que l'absorption multiphotonique pourrait être le mécanisme responsable*

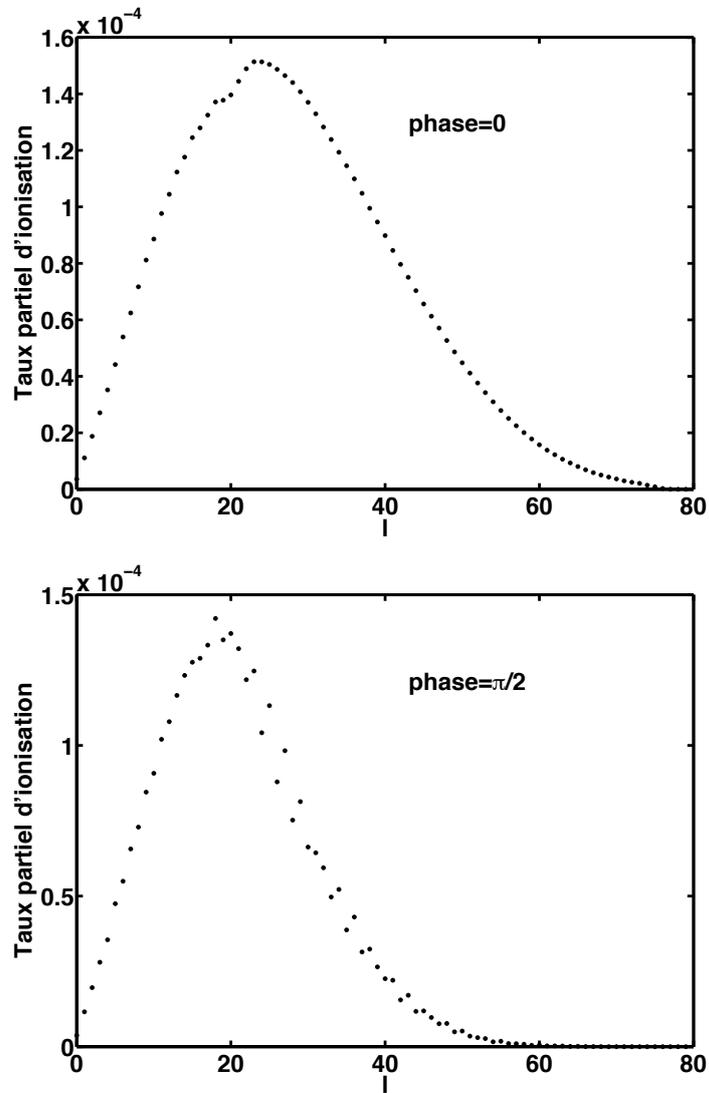


FIGURE 6.4 – Contributions des différents moments angulaires à l'ionisation totale ($\varphi = 0$ et $\varphi = \pi/2$); pour un champ de fréquence $\omega = 0.0228$ u.a., d'intensité $I = 1 \times 10^{14}$ W/cm² et de durée égale à 2 cycles optiques.

de l'ionisation des électrons formant la partie basse énergie du spectre. Pour expliquer la dispersion autour de cette valeur mais aussi les contributions des moments angulaires plus élevés, on peut évoquer d'une part l'effet de la règle de sélection ($\Delta l = \pm 1$) associée aux règles de propensité ($l + 1$ plus probable que $l - 1$) en polarisation linéaire d'une part, et l'absorption d'un nombre de photons plus élevé pour la formation des pics ATI d'autre part.

6.3.3 Analyse de l'évolution des populations dans des sphères de rayons donnés

Nous présentons respectivement sur les figures 6.5 et 6.6 l'évolution de la population dans des sphères de rayons $r_o = 5, 10, 20$ u.a. et un zoom sur l'évolution de la population dans la sphère de rayon $r_o = 10$ u.a.. Sur la figure 6.5, nous représentons également le champ électrique pour faciliter l'identification de instants correspondant à la sortie du PO des sphères. *Il est important de mentionner que ce résultat, puisqu'il s'agit du carré du module du PO, est indépendant de la jauge. Cette indépendance a été vérifiée par des calculs effectués en jauge longueur et en jauge vitesse sur un modèle 1D par un de nos collaborateurs. Les résultats obtenus à 800 nm présentent la même allure que ceux que nous présentons.*

De prime abord, on serait tenté d'affirmer que l'ionisation a lieu par effet tunnel, car l'éjection des électrons semble avoir lieu à des instants précis durant l'interaction. Mais, en analysant les résultats obtenus dans le cas où la phase $\varphi = 0$ et en tenant compte de l'évolution du champ, on fait les constats suivants.

- Sur la figure 6.5, on observe que lorsque le champ passe par un de ses extrema à $t \approx -100$ u.a., la population dans la sphère de rayon $r_o = 5$ u.a., qui est initialement de l'ordre de 0.9972 (du fait de l'extension spatiale de l'état $1s$), descend à 0.9952 avant de remonter (lorsque le champ repasse par zéro) à (approximativement) sa valeur initiale. Ceci est dû à la polarisation du système par le champ électrique qui induit une oscillation de l'état lié et le fait en partie sortir de la sphère considérée. On observe par ailleurs que la population dans la sphère de rayon $r_o = 10$ u.a. n'est pas modifiée à l'échelle de la figure. Ce qui implique que l'oscillation de l'état fondamental ne s'étend pas au delà de $r_o = 10$ u.a.. Du fait de cette oscillation (polarisation du nuage électronique par le

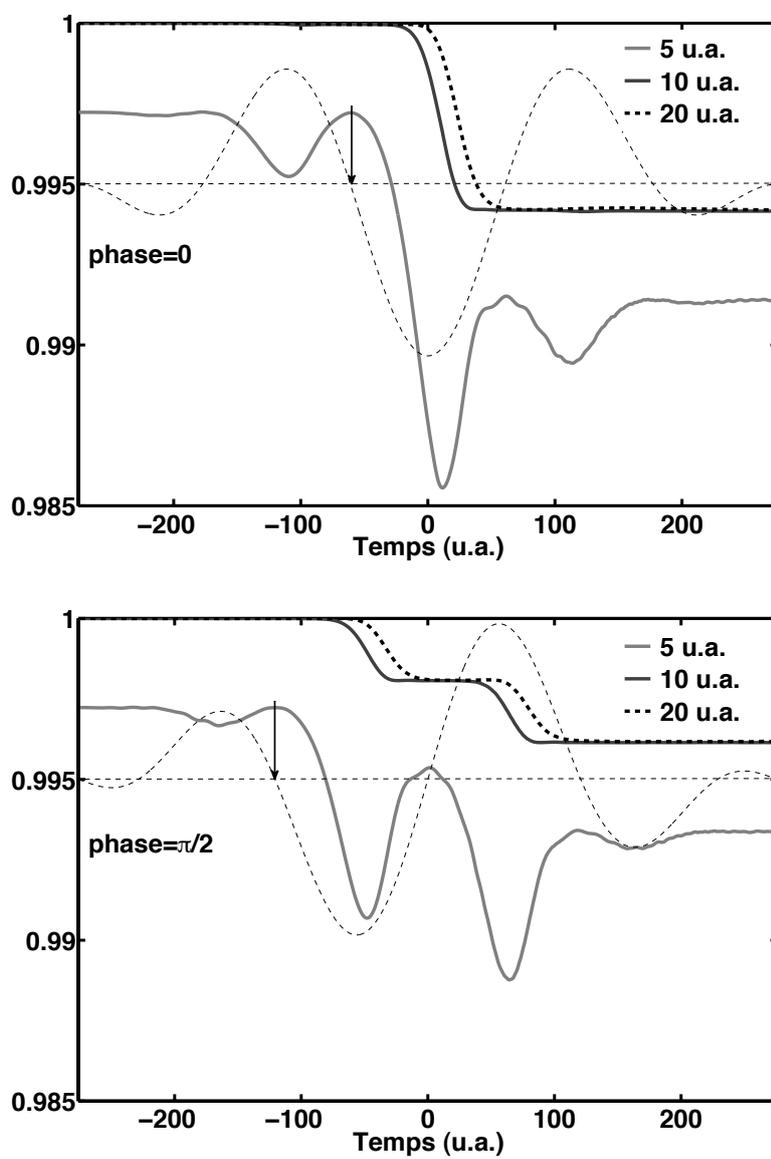


FIGURE 6.5 – Evolution du module au carré du PO dans les sphères de rayons $r_0 = 5, 10, 20$ u.a..

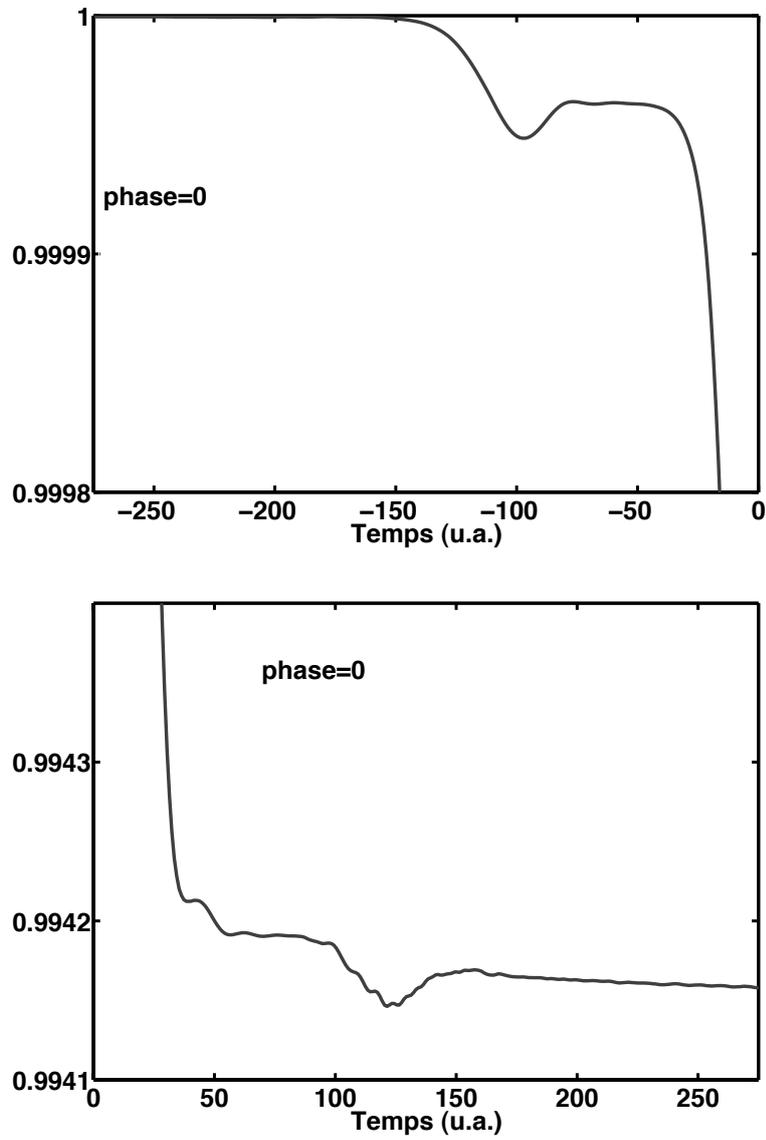


FIGURE 6.6 – Zoom sur l'évolution du module au carré du PO dans la sphère de rayon $r_0 = 10$ u.a..

champ), des moments angulaires élevés sont nécessaires pour décrire les états liés.

- En observant à la loupe la figure 6.5, on observe sur la figure 6.6 une légère diminution (invisible sur la figure 6.5) de la population dans la sphère de rayon $r_o = 10$ u.a.; *diminution qui commence juste après le passage du champ par la valeur nulle à $t \approx -150$* . Cette diminution correspond à une première émission des électrons, qui sous l'effet du champ passant par des valeurs positives (force électrique négative), devraient en principe être émis vers l'arrière.
- *Lorsque le champ passe la valeur nulle* (potentiel vecteur maximum) suivante à $t \approx -50$, une émission importante commence dès cet instant et s'effectue essentiellement durant la première moitié du demi-cycle dominant du champ électrique. Il est important d'insister sur le fait que *l'ionisation semble commencer lorsque le champ est nul*. Cette observation laisse penser que les électrons ne sont pas émis par effet tunnel, sinon ils le seraient autour du maximum du champ. Sur la courbe représentant la population dans la sphère de rayon $r_o = 10$ u.a., on distingue clairement la sortie de ces électrons.
- Le PO ionisé traverse la sphère de rayon $r_o = 20$ u.a. avec un retard dû au temps que met l'électron pour parcourir la distance séparant les deux sphères.
- La majorité des électrons émis ne semble visiblement pas revenir vers le coeur atomique car on n'observe pas de retour des électrons dans les sphères de rayons $r_o = 10$ u.a. et $r_o = 20$ u.a. La proportion des électrons qui revient est donc très faible et ne saurait justifier la structure à basse énergie dans le *spectre intégré* qui domine l'ionisation. Il convient cependant de noter que cette faible proportion peut devenir très important dès lors qu'on s'intéresse à la direction de polarisation du fait de la valeur nulle de l'angle de diffusion, comme dans le cas de la LES qui est mesurée dans la direction de polarisation du champ.
- La majorité des électrons ionisés est émise à partir de $t \approx -50$ u.a. durant la phase négative du champ lorsque la force électrique est positive. Ces électrons devraient, si l'on s'en tient au fait qu'ils ne retournent vers le coeur ionique, donner lieu à un pic important vers l'avant ($\theta = 0$). Cependant, la figure 6.3 suggère plutôt que les électrons émis dans la direction de polarisation (LES) sont détectés en grande majorité à $\theta = \pi$.

Ce qui peut vouloir dire que les électrons qui sont émis à $t \approx -50$ u.a. et qui contribuent à la formation de la LES changent de sens de propagation lors du changement de signe du champ dans la troisième demi-alternance du champ électrique, mais que ces électrons ne seraient pas visibles dans la population dans les sphères probablement à cause de l'intégration angulaire.

- Enfin, une deuxième faible émission vers l'arrière a lieu autour de $t \approx 150$ u.a. durant la phase positive du champ.

Ces observations et analyses laissent penser que *les électrons ionisés qui contribuent à la formation de la structure dominante à basse énergie dans le spectre intégré* n'effectuent pas de retour vers le coeur atomique. Les résultats semblent indiquer que ces électrons *sont essentiellement émis par absorption multiphotonique lorsque le champ est approximativement nul* et qu'ensuite ces électrons sous l'effet du champ, continuent (directement) leur excursion dans le continu. En ce qui concerne les électrons émis dans la direction de polarisation du champ (LES), les résultats semblent indiquer qu'ils subissent d'autres effets qui restent à être éclaircis par des calculs supplémentaires à déterminer.

6.3.4 Analyse de l'évolution de la structure à basse énergie en fonction de l'intensité et de l'effet de la prise en compte du profil spatial du champ

Nous terminons cette section en analysant, uniquement pour le cas où la phase du champ est nulle, l'évolution de la structure dominante dans le spectre (intégré sur les angles) en fonction de l'intensité et en étudiant l'effet de la prise en compte du profil spatial du champ sur le spectre. Sur la figure 6.7, nous présentons les distributions en énergies pour différentes valeurs d'intensité ($\lambda = 2000$ nm) : 5×10^{13} W/cm², 8×10^{13} W/cm², 9×10^{13} W/cm² et 3×10^{14} W/cm². On observe qu'en fonction de l'intensité, la largeur de cette structure augmente en fonction de l'intensité. D'autre part, son maximum se déplace vers les hautes énergies lorsque l'intensité augmente. La première observation pourrait s'expliquer par l'apparition des nouveaux pics en fonction de l'intensité, caractéristique de l'ATI. La deuxième observation quant à elle fait penser au décalage des pics ATI dû à l'effet Stark dynamique que nous avons évoqué dans le chapitre précédent. Sur la figure 6.8, nous présentons la distribution en énergie intégrée sur le profil spatial du champ pour une intensité

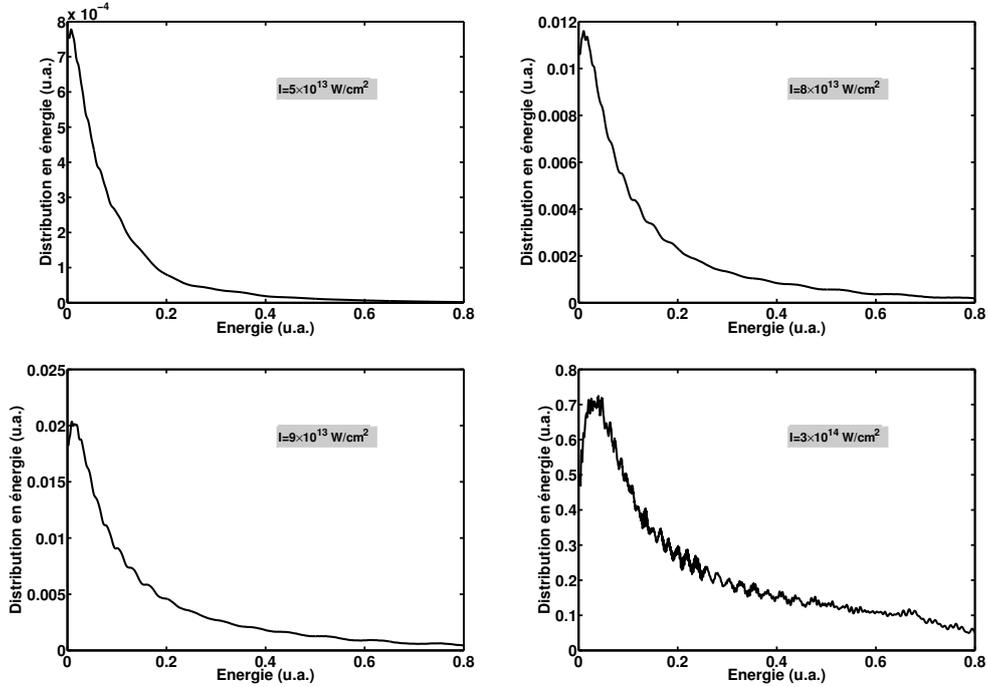


FIGURE 6.7 – Distributions en énergie du PO ionisé pour différentes valeurs d'intensités pics : fréquence $\omega = 0.0228$ u.a. et une durée totale égale à 2 cycles optiques

pic $I = 1 \times 10^{14}$ W/cm². Comme Morishita et al. [164], nous supposons que le champ possède un profil gaussien dans le plan perpendiculaire à sa direction de propagation et que la cible occupe un volume plus grand que celui du faisceau. Dans ce cas, la densité de probabilité $S(E, I_0)$ pour l'énergie E et pour une intensité pic I_0 est donnée par [164]

$$S(E, I_0) = K \int_0^{I_0} P_I(E) \frac{1}{I} \left(\frac{I_0}{I} + 2 \right) \sqrt{\frac{I_0}{I} - 1}, \quad (6.1)$$

où $P_I(E)$ représente la densité de probabilité pour l'énergie E et pour une intensité I , et K est une constante qui dépend de la densité des atomes cibles dans le volume, de la largeur du faisceau et de la portée de Rayleigh. Vu la régularité des spectres présentés sur la figure 6.7, 20 points d'intégration entre

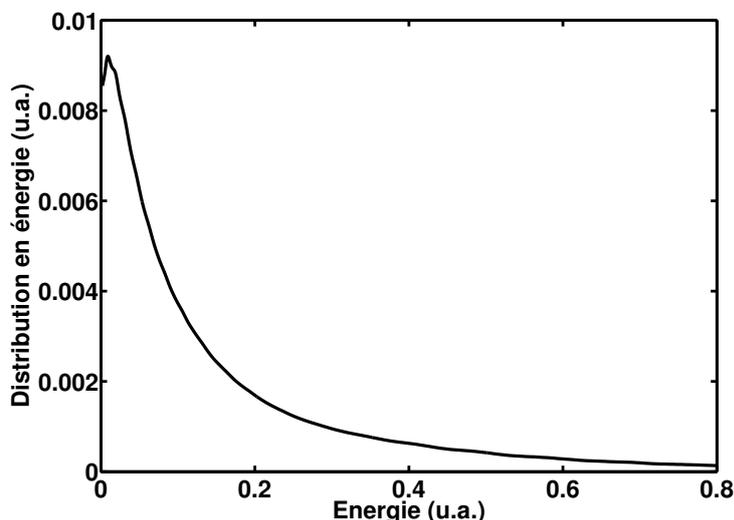


FIGURE 6.8 – Distribution en énergie du PO ionisé moyennée sur le profil spatial du champ électromagnétique pour $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

$I = 1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ et $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ont été utilisés pour obtenir le spectre intégré. Il apparaît que la prise en compte du profil spatial du champ n'a qu'un effet de lissage sur le spectre. En effet, en comparant ce résultat à celui de la figure 6.2, on note que la structure disparaît.

6.4 Présentation et analyse des résultats pour un champ de 4 cycles optiques

Dans cette section, nous présentons et analysons les résultats obtenus suite à l'interaction de l'atome d'hydrogène avec un champ de durée égale 4 cycles optiques et de phase nulle. Il s'agit ici de vérifier que les résultats et conclusions présentés dans la section précédente ne sont pas liés à la durée de l'impulsion (2 cycles). Nous considérons les deux valeurs d'intensité suivantes : 10^{14} W/cm^2 et $2.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Les paramètres de Keldysh pour ces intensités valent respectivement 0.43 et 0.27. Pour décrire le PO, nous utilisons une base de 1800 sturmiennes de paramètre $\kappa = 0.3$ par moment angulaire et un nombre

total de 80 moments angulaires pour décrire le PO.

6.4.1 Résultats à 10^{14} W/cm²

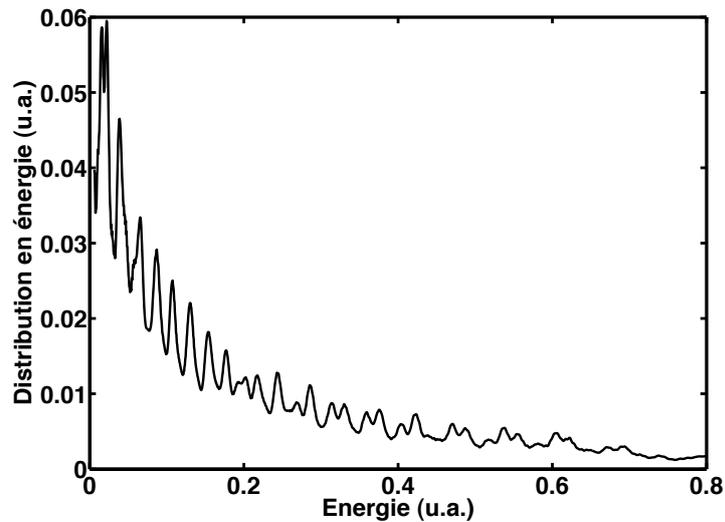


FIGURE 6.9 – Distribution en énergie du PO ionisé suite à l'interaction de l'hydrogène atomique avec un champ d'intensité $I = 10^{14}$ W/cm², de fréquence $\omega = 0.0228$ u.a. et de durée totale égale à 4 cycles optiques.

Sur la figure 6.9, nous présentons la distribution en énergie intégrée sur les angles, suite à l'interaction de l'hydrogène atomique avec un champ d'intensité $I = 10^{14}$ W/cm², de fréquence $\omega = 0.0228$ u.a. et de durée totale égale à 4 cycles optiques. Dans sa forme globale, on observe que le spectre a une structure dominante près du seuil. Mais comparativement aux spectres présentés dans la section précédente, la structure est clairement visible dans ce dernier cas; ce qui s'explique par le principe d'incertitude de Heisenberg qui impose que les énergies des électrons émis soit de mieux en mieux définies avec Δt . Par ailleurs, les pics sont séparés de $\hbar\omega \approx 0.022$ u.a. qui correspond à l'énergie d'un photon. On en conclut qu'il s'agit des pics ATI, décrits en général par le mécanisme d'absorption multiphotonique.

Pour renforcer cette dernière idée, nous présentons sur la figure 6.10, les

contributions des différents moments angulaires à l'ionisation totale. Il apparaît que les moments angulaires de contribution importante et donc qui contribuent à la structure dominante à basse énergie, se trouvent autour de la valeur ($l = 22$) qui correspond au nombre de photons à absorber pour atteindre le continuum à partir du fondamental. Dans la section précédente, nous avons

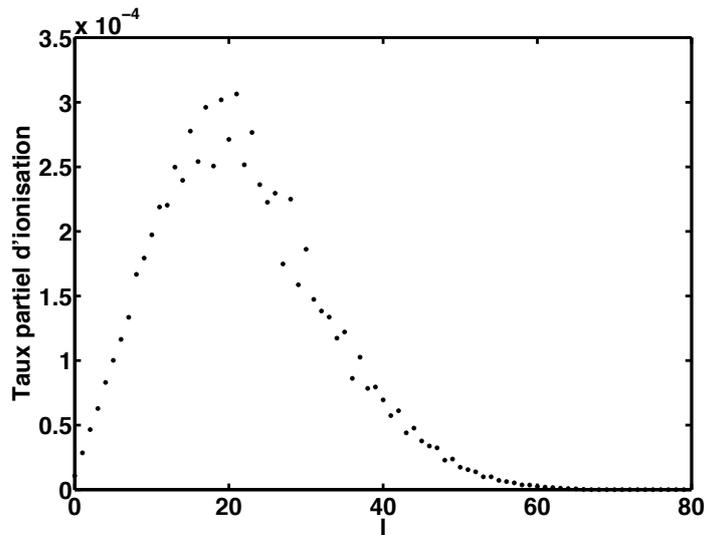


FIGURE 6.10 – Contributions des différents moments angulaires à l'ionisation totale, pour un champ de fréquence $\omega = 0.0228$ u.a., d'intensité $I = 10^{14}$ W/cm² et de durée égale à 4 cycles optiques.

analysé le processus d'émission des électrons émis dans le continuum. Suite à l'analyse de l'évolution du carré du module du PO dans des sphères de rayons différents, nous avons conclu que les électrons sont essentiellement *émis directement* dans le continuum, sans subir une collision avec le coeur atomique suite à leur retour sous l'action du champ. Dans le même ordre d'idée, nous présentons sur la figure 6.11 l'évolution du module au carré du PO dans les sphères de rayons $r_0 = 5, 10, 20, 30$ u.a.. Comme sur la figure 6.5, le PO en fonction du temps pour les sphères de rayons $r_0 = 10, 20, 30$ u.a. présente une structure en escalier. Ce qui voudrait dire que les électrons ne rentrent plus dans les sphères une fois émis; donc qu'ils sont émis *directement dans le sens défini par le signe du champ au moment de leur émission*. Par ailleurs, on

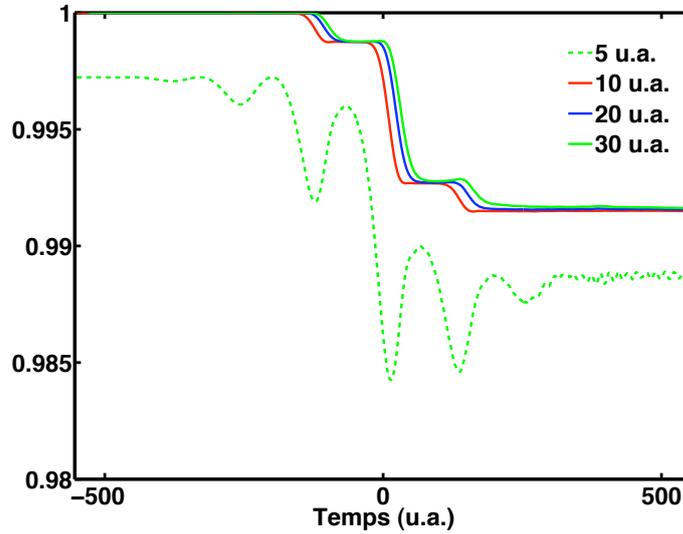


FIGURE 6.11 – Evolution du module au carré du PO dans les sphères de rayons $r_0 = 5, 10, 20, 30$ u.a. ($I = 10^{14}$ W/cm²).

observe d'une part que les émissions ont lieu au voisinage des valeurs nulles du champ (potentiel vecteur maximal), et d'autre part que la quantité d'électrons éjectés dépend de l'amplitude du potentiel vecteur au moment de l'émission. Nous insistons encore sur le fait que ces constats n'excluent pas le fait qu'une partie des électrons soit émis dans le continuum par effet tunnel compte tenu du fait que la partie haute énergie du spectre soit reproduit par la SFA ou qu'une partie des électrons retourne vers le coeur atomique et effectue une diffusion vers l'avant ou vers l'arrière. Pour renforcer cette idée, nous présentons sur la figure 6.12 successivement l'évolution du PO d'onde et du flux suivant l'axe de polarisation z et en fonction du temps. On montre qu'une partie des électrons suit des trajectoires classiques et oscille avec le champ. On peut observer suivant l'axe z des PO qui retournent vers le coeur atomique ($z = 0$).

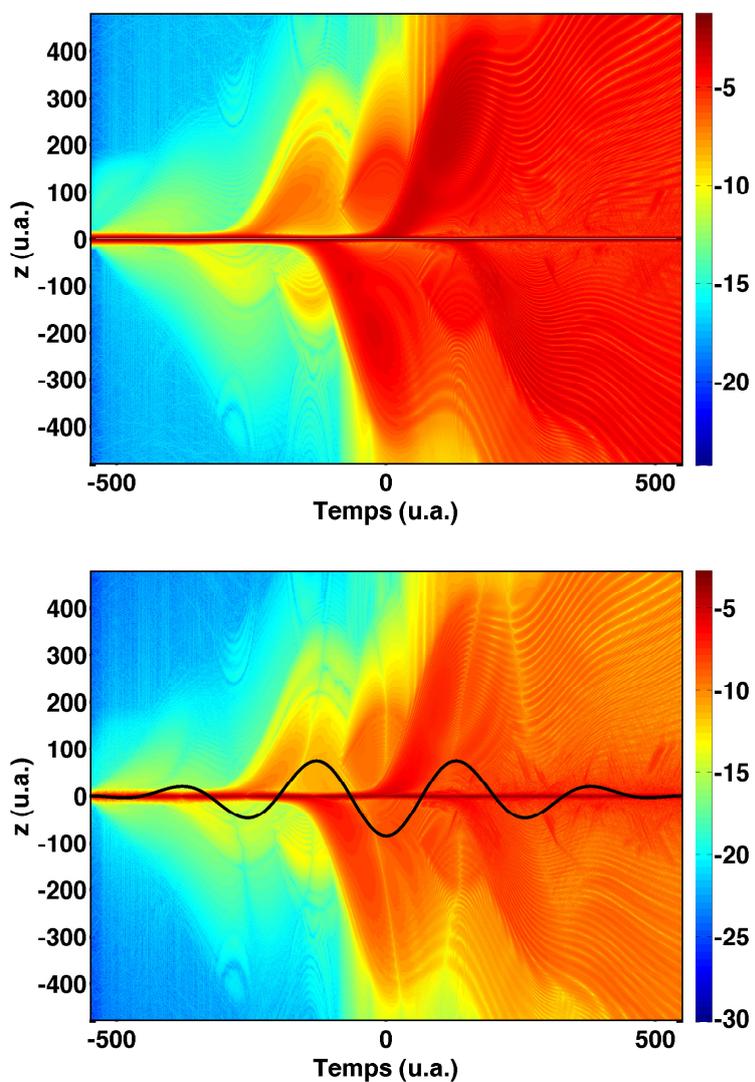


FIGURE 6.12 – Evolution du PO d'onde (premier graphe) et du flux (second graphe) suivant l'axe de polarisation z et en fonction du temps ($I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$).

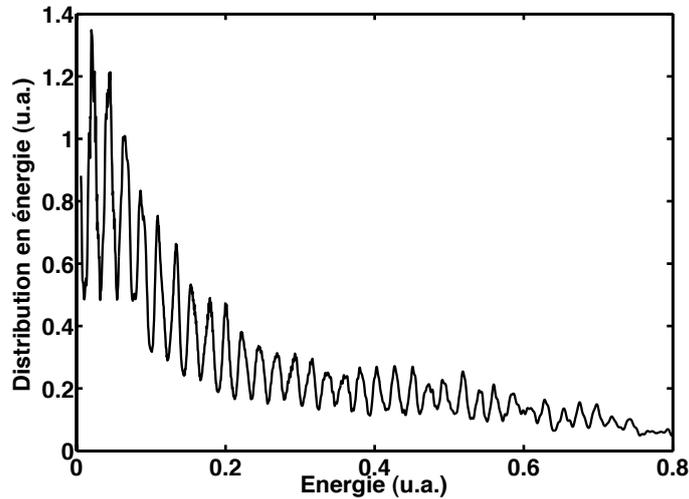


FIGURE 6.13 – *Distribution en énergie du PO ionisé suite à l'interaction de l'hydrogène atomique avec un champ d'intensité $I = 2.5 \times 10^{14}$ W/cm², de fréquence $\omega = 0.0228$ u.a. et de durée totale égale à 4 cycles optiques.*

6.4.2 Résultats à 2.5×10^{14} W/cm²

Sur la figure 6.13, nous présentons la distribution en énergie intégrée sur les angles, suite à l'interaction de l'hydrogène atomique avec un champ d'intensité $I = 2.5 \times 10^{14}$ W/cm², de fréquence $\omega = 0.0228$ u.a. et de durée totale égale à 4 cycles optiques. Hormis une ionisation plus importante révélée par une amplitude plus importante des pics, les observations et analyses faites dans la sous-section précédente s'appliquent à ce cas. De même, les figures 6.14 et 6.15 qui représentent respectivement les contributions des différents moments angulaires à l'ionisation totale et l'évolution du module au carré du PO dans des sphères de rayons donnés $r_0 = 1, 2, 5, 10, 20, 50, 100$ u.a., sont formellement identiques aux figures présentées dans la section précédente.

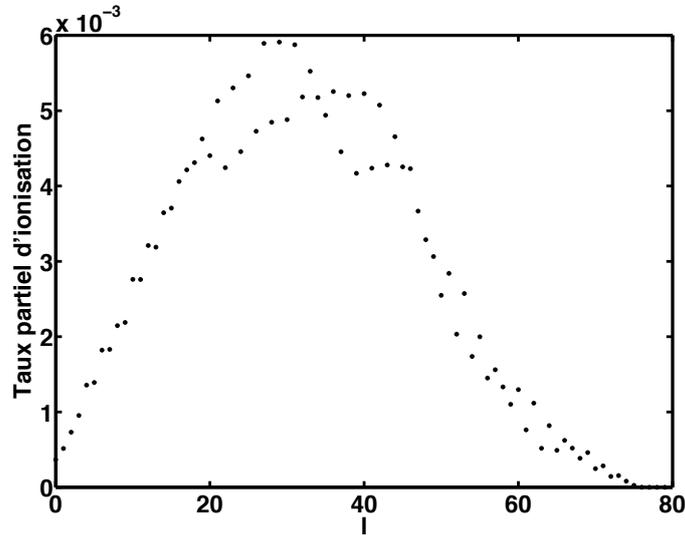


FIGURE 6.14 – Contributions des différents moments angulaires à l'ionisation totale pour un champ de fréquence $\omega = 0.0228$ u.a., d'intensité $I = 2.5 \times 10^{14}$ W/cm² et de durée égale à 4 cycles optiques.

6.4.3 Effet de la prise en compte du profil spatial sur la distribution en énergie

Dans cette dernière sous-section, nous analysons l'effet de la prise en compte du profil spatial du champ sur la distribution en énergie et nous étudions l'évolution du spectre "moyenné" avec l'intensité. A cet effet, nous présentons sur la figure 6.16 les spectres "moyennés", obtenus pour les intensités mentionnées sur les différents graphes. Pour obtenir ces spectres, 60 points d'intégration ont été utilisés. Comme nous l'avons souligné dans la section précédente, la prise en compte du profil spatial du champ a un effet de *lissage* sur les spectres, masquant ainsi la structure induite par les pics ATI. En effet, les structures présentes dans les spectres à 1×10^{14} W/cm² (figure 6.9) et à 2.5×10^{14} W/cm² (figure 6.13) semblent avoir disparu. Ce *lissage* est dû au fait que les pics ATI sont décalés en position pour différentes valeurs d'intensité. L'intégration sur le profil spatial, qui revient à sommer les spectres obtenus pour différentes intensités, a pour conséquence de masquer ces structures. Par

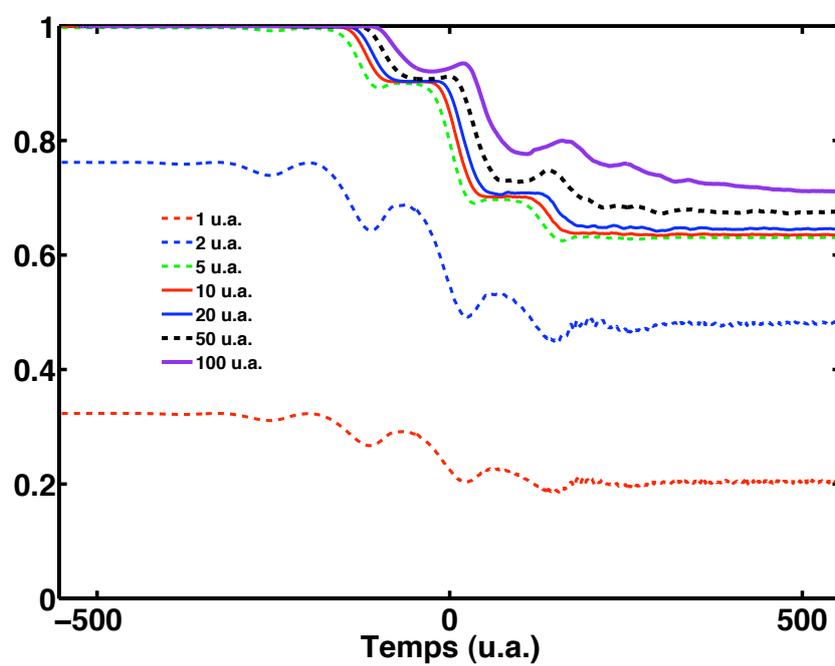


FIGURE 6.15 – Evolution du module au carré du PO dans les sphères de rayons $r_0 = 1, 2, 5, 10, 20, 50, 100$ u.a. ($I = 2.5 \times 10^{14}$ W/cm²).

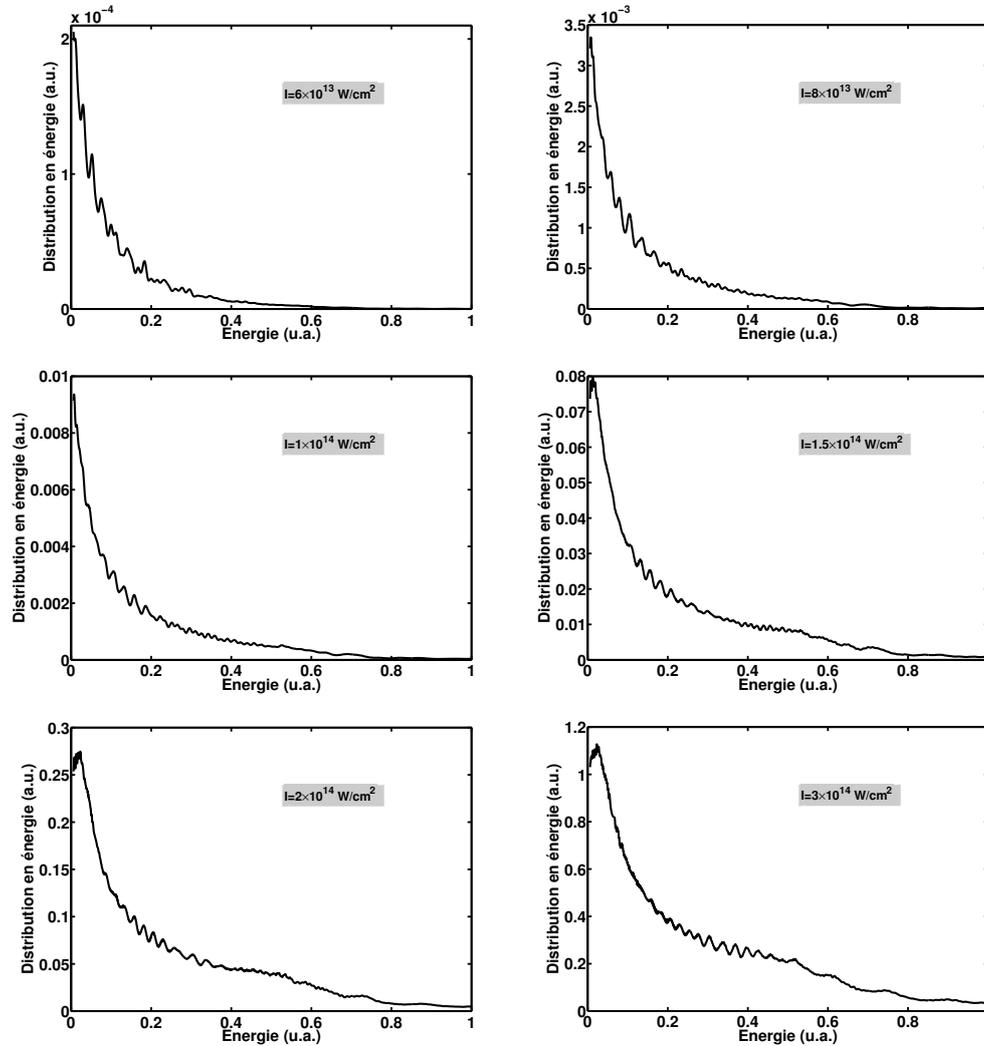


FIGURE 6.16 – Distributions en énergie du PO ionisé intégrées sur le profil spatial du champ électromagnétique pour différentes valeurs d'intensités.

ailleurs, on observe un décalage du pic de la distribution vers les hautes énergies en fonction de l'intensité. Ce décalage peut être également s'expliquer par celui des pics dans le processus d'ionisation ATI en fonction de l'intensité.

6.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié l'ionisation de l'hydrogène atomique par un champ de longueur d'onde $\lambda = 2000$ nm. Nous avons considéré des situations pour lesquelles, le mécanisme d'émission par effet tunnel devrait être dominant au sens de Keldysh. L'étude de l'interaction du système avec un champ de durée égale à 2 cycles a permis de montrer que :

- qu'une structure dominante se manifeste dans le spectre intégré sur les angles qui s'apparente à la LES mesurée dans la direction de polarisation du champ ;
- cette structure dominante dans la partie basse fréquence du spectre intégré est formée par des électrons émis par absorption multiphotonique (lorsque le champ est nul) car les moments angulaires de contributions dominantes se trouvent autour de la valeur prédite par le mécanisme d'absorption multiphotonique ;
- les électrons ionisés qui forment la structure dominante dans le spectre intégré sont essentiellement émis directement et ne subissent pas de collision avec le noyau atomique,
- les électrons émis dans la direction de polarisation du champ (LES) n'obéissent pas à cette interprétation puisqu'ils semblent effectuer un retour vers le coeur ionique si l'on s'en tient aux spectres mesurés dans la direction de propagation.

De ces constats, nous avons conclu que *les électrons qui forment la structure dominante à basse énergie dans le spectre intégré sur les angles sont émis par absorption multiphotonique lorsque le champ est nul et qu'ensuite ces électrons sous l'effet du champ, continuent (**directement**) leur excursion dans le continuum*. L'analyse des résultats obtenus suite à l'interaction du système avec un champ de 4 cycles optiques et pour deux intensités différentes a permis de conclure que hormis des pics ATI plus prononcés du fait de la durée de l'interaction, le mécanisme d'ionisation reste le même qu'à 2 cycles optiques. Il convient de souligner que tous les résultats obtenus sont, qualitativement, similaires à ceux obtenus lors de l'interaction avec un champ de longueur d'onde $\lambda = 800$ nm, où on associe aux structures à basses énergie le mécanisme d'absorption multiphotonique. En ce qui concerne les électrons émis dans la direction de polarisation du champ (LES), les résultats semblent indiquer qu'ils subissent d'autres effets qu'il reste à éclaircir par des calculs supplémentaires. Comme

nous l'avons montré dans le chapitre précédent, il convient de garder à l'esprit que les électrons de faibles énergies en général et ceux émis dans la direction de polarisation en particulier subissent fortement l'influence du potentiel coulombien aussi bien dans l'attraction que pour la focalisation du PO le long de l'axe de polarisation.

Troisième partie

Méthode hybride
ESDT/HRM-SOW pour
l'étude de la double ionisation
de l'hélium par absorption de
photons

Présentation de la méthode hybride ESDT/HRM-SOW

Sommaire

7.1	Introduction	183
7.2	Présentation de la méthode de résolution numérique de l'ESDT	185
7.2.1	Expression du hamiltonien du système	185
7.2.2	Approche spectrale	187
7.2.3	Résolution numérique de l'ESDT par l'approche matricielle	190
7.2.4	Calcul des observables physiques	192
7.3	Présentation de la méthode HRM-SOW	194
7.3.1	Equation de base, fonction d'onde de photoabsorption	194
7.3.2	Système de coordonnées hypersphériques	195
7.3.3	Calcul des observables physiques : sections efficaces	197
7.3.4	Principe de la méthode HRM-SOW	198
7.4	Méthode ESDT/HRM-SOW	207
7.4.1	Principe de la méthode ESDT/HRM-SOW	207
7.4.2	Evaluation de la transformée de Fourier locale	208
7.4.3	Principe de raccordement de l'ESDT à la méthode HRM-SOW	210
7.5	Conclusion	211

7.1 Introduction

Le désaccord observé dans les différents résultats de sections efficaces totales de double ionisation par absorption de deux photons (DIDP) de l'He

dans le régime direct, obtenus par différentes approches théoriques [1], aussi bien dépendantes qu'indépendantes du temps, est lié aux différentes méthodes utilisées pour extraire l'information physique [22, 23].

Dans les méthodes dépendantes du temps, la technique couramment utilisée pour extraire l'information sur la double ionisation (DI) consiste à projeter le PO obtenu à la fin de l'interaction ou quelques cycles optiques après la fin de l'interaction¹, sur un produit anti-symétrisé de deux fonctions coulombiennes [12, 14]. Cette représentation du double continuum ne fait malheureusement pas l'objet d'un consensus. En effet, utiliser un produit de deux fonctions coulombiennes revient à négliger la corrélation entre les deux électrons dans la voie de sortie. Par ailleurs, après la fin de l'interaction, les deux électrons se trouvent à des distances qui sont telles que l'interaction entre les deux électrons ne devrait pas être négligée. Les électrons ne peuvent être considérés comme indépendants que lorsque le PO de DI atteint la *zone asymptotique*². Ce qui suppose qu'il faudrait, après l'interaction, laisser évoluer librement le paquet d'onde [23]. Ce qui n'est pas envisageable à cause des problèmes de réflexion auxquels font face les méthodes dépendantes du temps en général. Pour prendre en compte la corrélation dans la voie finale dans les résultats de DI et étudier de ce fait le rôle de la corrélation, Fomouo et al. [14] ont récemment utilisé la méthode de la matrice-J [16, 17] pour construire des fonctions corrélées dans les différents canaux de SI, à partir desquelles les amplitudes de probabilité sont obtenues. La probabilité de DI est obtenue en soustrayant de la probabilité totale d'ionisation, celle de simple ionisation. Les résultats très précis obtenus pour la DI de l'He par absorption d'un photon, ainsi que l'étude de H⁻ ont permis de valider l'approche. Cependant, les sections efficaces de DI par absorption de deux photons de l'He se trouvent être bien au dessus de celles obtenues par d'autres approches théoriques. Ce qui a suscité des interrogations quant à la précision de cette approche dans les processus à deux photons. Il convient également de noter que cette technique ne permet pas d'accéder aux sections efficaces différentielles.

Parmi les méthodes indépendantes du temps, la méthode HRM-SOW (Hyperspherical R-Matrix with Semiclassical Outgoing Waves) développée par

1. L'objectif visé ici est celui d'attendre que l'interaction électron-électron devienne négligeable.

2. La zone asymptotique désigne la zone où les deux électrons dans la voie de sortie n'interagissent que faiblement i.e l'interaction électron-électron est quasi-nulle.

l'équipe de Laurence Malegat [25, 26, 27] se démarque particulièrement par l'excellent accord des sections efficaces de double photoionisation avec les données expérimentales, plus précisément près du seuil où les résultats sont en général difficiles à reproduire. Le point fort de la technique se trouve dans le fait qu'elle permet de propager une fonction d'onde stationnaire de DI, sur des distances asymptotiquement grandes, où l'extraction de l'information physique devient aisée. Malheureusement, elle présente l'inconvénient d'être basée sur une approche perturbative. Elle ne peut être utilisée pour étudier l'interaction du système avec des champs intenses. Par ailleurs, elle a été conçue pour l'étude de l'ionisation des systèmes à deux électrons actifs par absorption d'un photon alors que nous souhaitons nous intéresser à l'étude de l'ionisation de l'He par absorption de deux photons pour laquelle les sections efficaces ne font pas l'unanimité.

Nous présentons dans ce chapitre une approche qui combine notre méthode spectrale dépendante du temps et la méthode HRM-SOW. La méthode ESDT/HRM-SOW associe les points forts de chacune des techniques qui la constituent : le traitement *exact* de l'ESDT possible grâce aux méthodes dépendantes du temps d'une part et la possibilité de propager des FO stationnaires dans la zone asymptotique où l'extraction de l'information est facile (HRM-SOW) d'autre part. Dans la section 2, nous présentons la méthode spectrale dépendante du temps pour l'étude de l'interaction de l'He avec un champ électromagnétique. Dans la section 3, nous présentons les points essentiels de la méthode HRM-SOW et enfin dans la section 4, nous présentons la technique mise en oeuvre pour combiner les deux approches.

7.2 Présentation de la méthode de résolution numérique de l'ESDT

Nous présentons dans cette section les différentes articulations de la méthode spectrale dépendante du temps, appliquée à l'étude de l'atome d'hélium.

7.2.1 Expression du hamiltonien du système

Nous étudions l'interaction de l'atome d'He avec un champ électromagnétique, le système se trouvant initialement dans un état atomique donné. Le hamiltonien atomique (non relativiste et dans l'approximation de masse du

noyau infinie) des systèmes à deux électrons actifs est donné dans le système d'unités atomiques par

$$H(r_1, r_2) = \sum_{i=1}^2 \left(\frac{\hat{\mathbf{p}}_i^2}{2} - \frac{Z}{r_i} \right) + \frac{1}{r_{12}} = H_0 + U. \quad (7.1)$$

$r_{12} = |\vec{r}_1 - \vec{r}_2|$ représente la distance inter-électronique. \vec{r}_1 et \vec{r}_2 représentent les coordonnées des deux électrons. Les termes dans la somme représentent respectivement l'opérateur énergie cinétique et le potentiel d'attraction coulombienne entre le noyau de charge Z et chaque électron. Le dernier terme $U = \frac{1}{r_{12}}$ représente le potentiel de répulsion coulombienne entre les électrons. Ce dernier rend le potentiel coulombien non-séparable et rend l'équation de Schrödinger non soluble analytiquement. L'équation de Schrödinger stationnaire aux valeurs propres s'écrit

$$H(r_1, r_2)\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = E\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2), \quad (7.2)$$

où $\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ est la fonction d'onde spatiale du système, E la valeur propre qui lui est associée.

En présence d'un champ électromagnétique, le hamiltonien semi-classique décrivant l'interaction du système avec le champ, est donné dans l'approximation dipolaire par

$$\mathcal{H}(r_1, r_2, t) = H(r_1, r_2) + I_G(t). \quad (7.3)$$

H représente le hamiltonien atomique donné par (7.1). $I_G(t)$ est le terme d'interaction entre le champ électromagnétique et la cible; l'indice G faisant référence à la gauge utilisée pour le champ. En fonction de la gauge utilisée (longueur $G \equiv L$ ou vitesse $G \equiv V$), le hamiltonien d'interaction s'écrit

$$I_L(t) = \mathbf{E}(t) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2). \quad (7.4)$$

$$I_V(t) = -i\mathbf{A}(t) \cdot (\vec{\nabla}_1 + \vec{\nabla}_2). \quad (7.5)$$

$\mathbf{E}(t)$ et $\mathbf{A}(t)$ représentent respectivement le champ électrique et le potentiel vecteur.

Nous considérons ici des champs électromagnétiques polarisés linéairement. Le potentiel vecteur $\mathbf{A}(t)$ est donné par :

$$\mathbf{A}(t) = A_0 f(t) \sin(\omega t + \varphi) \vec{e}_z, \quad (7.6)$$

\vec{e}_z étant vecteur unitaire suivant la direction (qui coïncide ici avec l'axe z) de polarisation du champ, $f(t)$ représente l'enveloppe du champ donnée par l'équation (4.10). L'expression du champ électrique est déduite du potentiel vecteur par la relation :

$$\mathbf{E}(t) = -\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{A}(t) \quad (7.7)$$

L'équation de Schrödinger décrivant la dynamique du système atome+champ s'écrit donc

$$i\frac{\partial}{\partial t}\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = (H(r_1, r_2) + I_G(t))\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t), \quad (7.8)$$

où $\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ est le PO contenant toute l'information sur le système.

7.2.2 Approche spectrale

7.2.2.1 Bases explicitement et implicitement corrélées

Le terme d'interaction coulombienne entre les deux électrons a conduit à développer deux types de bases : les bases explicitement corrélées (EC) et les bases implicitement corrélées (IC).

Concernant les bases EC, deux types de fonctions ont été employées. Il s'agit d'une part des fonctions sturmiennes en coordonnées périmétriques [167, 168] : $u = -r_1 + r_2 + r_{12}$, $v = r_1 - r_2 + r_{12}$ et $w = r_1 + r_2 - r_{12}$; et d'autre part des fonctions de type Hylleraas [169] de la forme $r_1^k r_2^m r_{12}^n e^{-\alpha r_1} e^{-\beta r_2}$ où k , m et n sont des entiers positifs, α et β des paramètres non-linéaires. Généralement, l'avantage des méthodes EC est qu'elles décrivent très bien les FO pour des petites distances inter-électroniques, notamment l'état fondamental et quelques états simplement ou doublement excités. Cette précision tient au fait qu'on tient compte du "cusp" de Kato. De plus, dans le cas où les fonctions de base sont des fonctions sturmiennes en coordonnées périmétriques, la matrice associée au hamiltonien a une structure bande et le calcul de tous ses éléments peut se faire analytiquement [170]. Cependant, cette méthode présente l'inconvénient de ne pas bien décrire les états excités fortement asymétriques (EEFA) où l'un des électrons est dans un état très excité tandis que l'autre est dans un état faiblement excité. La raison de cette inefficacité est liée au fait que ces états impliquent de grandes valeurs de r_{12} . Pour ces états, on note une convergence lente des valeurs propres [171, 172]. Pour améliorer

la précision dans ces cas, il est nécessaire d'utiliser de grandes bases, limitant de ce fait la technique aux petites valeurs de moment angulaire totale L ($L = 0, 1$). Par ailleurs, ce type de base n'est adapté qu'aux systèmes à deux électrons actifs.

Contrairement aux méthodes EC, les méthodes de type IC présentent l'avantage d'être applicables aux systèmes à plus de deux électrons actifs. Et en général, les éléments de matrice des différents termes du hamiltonien, hormis le terme $\frac{1}{r_{12}}$, sont assez simples à évaluer. Pour calculer le terme $\frac{1}{r_{12}}$, on utilise en général le développement en multipôles donné par

$$\frac{1}{r_{12}} = \sum_{q=0}^{\infty} \sum_{p=-q}^q \frac{4\pi}{2q+1} \frac{r_{<}^q}{r_{>}^{q+1}} Y_{qp}^*(\hat{r}_1) Y_{qp}(\hat{r}_2) \quad (7.9)$$

avec $Y_{qp}(\hat{r})$ qui est une harmonique sphérique et $r_{<} = \min(r_1, r_2)$ et $r_{>} = \max(r_1, r_2)$. La différence entre les méthodes IC réside dans le choix des fonctions utilisées pour décrire la partie radiale : fonctions de Slater [173, 174, 175, 176], B-splines [177], fonctions hydrogénéoïdes [178, 179, 16]. La description de la partie angulaire se fait à l'aide des harmoniques bipolaires qui couplent les moments cinétiques individuels λ et l des deux électrons pour un moment angulaire total L donné. En pratique, la prise en compte des effets de corrélation se fait par l'inclusion de plusieurs configurations (λ, l) qui vont se coupler au moment q du développement en ondes partielles (7.9). De ce fait la précision d'une méthode IC dépend du nombre de fonctions radiales et du nombre de configurations angulaires utilisées. En général, pour les méthodes IC et indépendamment du type de fonctions radiales utilisées, les valeurs propres convergent lentement en fonction du nombre de fonctions radiales et du nombre de configurations angulaires pris en compte dans les calculs, notamment les énergies des états correspondant à de petites distances inter-électroniques. Cette convergence lente [166, 29] qui est particulièrement marquée dans le cas du fondamental est due au fait que le développement (7.9) ne vérifie pas la condition du "cusp" de Kato [180]. En effet pour un système à deux électrons, le hamiltonien possède trois singularités : $r_1 = 0$, $r_2 = 0$ et $r_{12} = 0$. Les deux premières sont masquées dans une approche IC du fait de l'utilisation explicite de r_1 et r_2 comme coordonnées. La faible convergence radiale des méthodes IC est due à la troisième singularité car le potentiel $1/r_{12}$ possède des dérivées discontinues en $r_1 = r_2$. En revanche, la méthode IC converge plus rapidement et donne des résultats précis pour les

EEFA car le recouvrement entre les nuages électroniques des deux électrons est très faible.

7.2.2.2 Expression de la fonction d'onde

Nous utilisons une méthode spectrale de type IC basée sur le développement de la fonction d'onde spatiale sur une base de fonctions sturmiennes décrivant la partie radiale et d'harmoniques bipolaires pour la partie angulaire. La décomposition de la fonction d'onde spatiale sur la base des fonctions sturmiennes s'écrit

$$\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \sum_{LM} \sum_{\lambda l} \sum_{\nu n} \alpha_{\nu n}^{\lambda l} c_{\kappa\nu n}^{\lambda LM}(t) \mathcal{A} F_{\kappa\nu n}^{\lambda LM}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \quad (7.10)$$

avec

$$F_{\kappa\nu n}^{\lambda LM}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \frac{S_{\nu\lambda}^{\kappa}(r_1)}{r_1} \Lambda_{\lambda l}^{LM}(\hat{r}_1, \hat{r}_2) \frac{S_{nl}^{\kappa}(r_2)}{r_2} \quad (7.11)$$

et $\mathcal{A} = (1 + \varepsilon P_{21}) / \sqrt{2}$ est l'opérateur de symétrisation pour un système de deux particules identiques. ε est le paramètre de symétrie valant $+1$ pour les états singulets et -1 pour les états triplets. P_{21} est l'opérateur de permutation qui tient compte de l'indiscernabilité des deux électrons. En pratique, on permute soit les coordonnées spatiales $[\vec{r}_1 \rightleftharpoons \vec{r}_2]$, soit les paramètres $[(n, l) \rightleftharpoons (\nu, \lambda)]$. Les lettres grecques ν , λ et μ représentent respectivement les nombres quantiques principal, orbital et magnétique associés à l'électron 1 tandis que les lettres romaines n , l et m sont les mêmes paramètres pour l'électron 2. Le paramètre $\alpha_{\nu n}^{\lambda l}$ défini par

$$\alpha_{\nu n}^{\lambda l} = 1 + \left(\frac{1}{\sqrt{2}} - 1 \right) \delta_{\nu n}^{\lambda l} \quad (7.12)$$

contrôle les éventuelles redondances qui pourraient survenir dans la base à cause de l'échange. Pour les éviter, on impose dans la relation (7.10) la contrainte $\lambda \leq l$ et si $\lambda = l$ alors $\nu \leq n$. La partie angulaire de la fonction d'onde spatiale est décrite par les harmoniques bipolaires définies par

$$\Lambda_{\lambda l}^{LM}(\hat{r}_1, \hat{r}_2) = \sum_{\mu m} (-1)^{\lambda-l+M} [L] \begin{pmatrix} \lambda & l & L \\ \mu & m & -M \end{pmatrix} Y_{\lambda\mu}(\hat{r}_1) Y_{lm}(\hat{r}_2), \quad (7.13)$$

où $[L] = \sqrt{2L+1}$ et les fonctions $Y_{\lambda\mu}(\hat{r})$ désignent les harmoniques sphériques et $\hat{r} = (\theta, \phi)$ les coordonnées angulaires des électrons. Ces harmoniques

bipolaires satisfont la relation d'orthogonalité

$$\int d\hat{r}_1 \int d\hat{r}_2 \Lambda_{\lambda' l'}^{L' M'}(\hat{r}_1, \hat{r}_2) \Lambda_{\lambda l}^{L M}(\hat{r}_1, \hat{r}_2) = \delta_{\lambda \lambda'} \delta_{l l'} \delta_{L L'} \delta_{M M'}. \quad (7.14)$$

On montre facilement que la fonction d'onde donnée par (7.10) est une fonction propre des opérateurs P_{21} , L^2 et L_z . De plus, pour un L fixé, la fonction d'onde d'un système possède toujours une parité bien définie puisqu'elle est fonction propre de l'opérateur parité Π . On sait que sous l'action de l'opérateur Π , les coordonnées spatiales (r, θ, ϕ) deviennent $(r, \pi - \theta, \pi + \phi)$. D'après la définition des harmoniques sphériques [183], on a

$$\Pi(Y_{\lambda \mu}(\theta, \phi)) = Y_{\lambda \mu}(\pi - \theta, \pi + \phi) = (-1)^\lambda Y_{\lambda \mu}(\theta, \phi). \quad (7.15)$$

Il s'en suit donc que $Y_{\lambda \mu}(\theta, \phi)$ a une parité de $(-1)^\lambda$. Ainsi les harmoniques bipolaires apparaissant dans l'expression (7.10) ont une parité $(-1)^{\lambda+l}$. Pour que la fonction d'onde $\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ ait une parité bien définie pour un moment angulaire total L et sa projection M , chaque couple de moment angulaire apparaissant dans le développement (7.10) doit vérifier la relation

$$(-1)^{\lambda+l} = (-1)^L. \quad (7.16)$$

Dans un processus photonique, les règles de sélection fixent la valeur de L et donc fixent les valeurs λ et l possibles.

Dans le développement (7.10), les valeurs prises par L sont telles que $L_{min} \leq L \leq L_{max}$, avec $L_{min} \geq 0$. Sa projection M est telle que $|M| \leq L$. Dans la suite, nous nous intéressons à l'interaction de l'atome avec un champ électrique polarisé linéairement à partir de l'état initial de symétrie S . On pose donc $M = 0$ dans tous les calculs, ceci en vertu de la règle de sélection obtenue grâce à la condition de non nullité des coefficients de Wigner. Pour chaque valeur de L , plusieurs couples de moments angulaires des électrons (λ, l) tels que $0 \leq \lambda \leq \lambda_{max}$ et $0 \leq l \leq l_{max}$ peuvent être sélectionnés. La seule condition à leur imposer est de satisfaire la relation (7.16) si nous traitons des transitions photoniques.

7.2.3 Résolution numérique de l'ESDT par l'approche matricielle

La formulation matricielle de l'équation (7.8) s'obtient en remplaçant dans cette dernière $\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)$ par son expression donnée par (7.10). En multipliant

l'équation résultante par $\mathcal{A}F_{\kappa\nu n}^{\lambda LLM}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ et en intégrant sur tout l'espace, on obtient la forme matricielle suivante

$$\begin{aligned} \sum_{LM} \sum_{\lambda} \sum_{\nu n} \alpha_{\nu n}^{\lambda} \left(H_{0\kappa\nu'n'\nu n}^{\lambda'L'L'M'\lambda LLM} + U_{\kappa\nu'n'\nu n}^{\lambda'L'L'M'\lambda LLM} + I_{G\kappa\nu'n'\nu n}^{\lambda'L'L'M'\lambda LLM}(t) \right) \Psi(t) \\ = i \frac{\partial}{\partial t} S_{\kappa\nu'n'\nu n}^{\lambda'L'L'M'\lambda LLM} \Psi(t). \end{aligned} \quad (7.17)$$

Les termes

$$H_{0\kappa\nu'n'\nu n}^{\lambda'L'L'M'\lambda LLM} = \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \mathcal{A}F_{\kappa\nu'n'}^{\lambda'L'L'M'*}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) H_0 \mathcal{A}F_{\kappa\nu n}^{\lambda LLM}(\vec{r}_1, \vec{r}_2), \quad (7.18)$$

$$S_{\kappa\nu'n'\nu n}^{\lambda'L'L'M'\lambda LLM} = \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \mathcal{A}'F_{\kappa\nu'n'}^{\lambda'L'L'M'*}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \mathcal{A}F_{\kappa\nu n}^{\lambda LLM}(\vec{r}_1, \vec{r}_2), \quad (7.19)$$

et

$$U_{\kappa\nu'n'\nu n}^{\lambda'L'L'M'\lambda LLM} = \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \mathcal{A}'F_{\kappa\nu'n'}^{\lambda'L'L'M'*}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \frac{1}{r_{12}} \mathcal{A}F_{\kappa\nu n}^{\lambda LLM}(\vec{r}_1, \vec{r}_2), \quad (7.20)$$

représentent respectivement les éléments de matrice du hamiltonien du modèle indépendant H_0 , de la matrice de recouvrement S et de l'interaction coulombienne U entre les deux électrons. Les matrices H_0 et S sont réelles, symétriques, bandes et évaluées analytiquement (dans la mesure où nous utilisons le même paramètre non-linéaire κ pour décrire les deux électrons). La largeur de la bande est égale à $2 \times N_{sturm} + 1$, N_{sturm} représentant le nombre de sturmiennes par moment angulaire utilisé pour décrire un électron. La matrice U est quand à elle pleine et elle est évaluée numériquement par une quadrature de Gauss-Laguerre. Les éléments de matrice d'interaction dipolaire en jauge longueur et vitesse sont respectivement donnés par

$$\begin{aligned} I_{L\kappa\nu'n'\nu n}^{\lambda'L'L'M'\lambda LLM} = \vec{E}(t) \cdot \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \mathcal{A}'F_{\kappa\nu'n'}^{\lambda'L'L'M'*}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \cdot (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \\ \mathcal{A}F_{\kappa\nu n}^{\lambda LLM}(\vec{r}_1, \vec{r}_2). \end{aligned} \quad (7.21)$$

$$\begin{aligned} I_{V\kappa\nu'n'\nu n}^{\lambda'L'L'M'\lambda LLM} = -i\vec{A}(t) \cdot \int d\vec{r}_1 \int d\vec{r}_2 \mathcal{A}'F_{\kappa\nu'n'}^{\lambda'L'L'M'*}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) (\vec{\nabla}_1 + \vec{\nabla}_2) \cdot \\ \mathcal{A}F_{\kappa_s k_s \nu n}^{\lambda LLM}(\vec{r}_1, \vec{r}_2). \end{aligned} \quad (7.22)$$

Les calculs détaillés de ces éléments de matrices sont présentés dans [166].

TABLE 7.1 – Convergence de la valeur propre de l'état fondamental $^1S^e$ de l'He par la méthode itérative inverse combinée avec l'algorithme BICGSTAB.

It	Valeur propre (u.a.)	Itérations dans BICGSTAB
1	-0.286260502129E+01	4
2	-0.290276240064E+01	2
3	-0.290276208917E+01	3
4	-0.290276208917E+01	3
5	-0.290276208917E+01	0

Pour déterminer les coefficients de la décomposition de la fonction d'onde initiale Ψ , nous résolvons l'équation de Schrödinger stationnaire aux valeurs propres généralisées suivante

$$\sum_{LM} \sum_{\lambda} \sum_s \sum_{\nu n} \alpha_{\nu n}^{\lambda} \left(H_{0\kappa\nu'n'\nu n}^{\lambda'l'L'M'\lambda LLM} + U_{\kappa\nu'n'\nu n}^{\lambda'l'L'M'\lambda LLM} - E S_{\kappa\nu'n'\nu n}^{\lambda'l'L'M'\lambda LLM} \right) \Psi = 0. \quad (7.23)$$

A cet effet, nous utilisons une combinaison de la méthode itérative inverse [161] et de la méthode du gradient biconjugué qui nous permet d'obtenir les coefficients sans diagonalisation directe des matrices (qui peuvent être de très grande taille). Les opérations à réaliser se résument, grâce à l'algorithme du gradient biconjugué, à de simples produits matrice-vecteur. La convergence sur la valeur propre de l'état fondamental $^1S^e$ est obtenue après tout au plus cinq itérations. A titre d'illustration, nous présentons dans le tableau 7.1, la convergence de la valeur propre de l'état $^1S^e$. 20 fonctions sturmiennes par moment angulaire l et par électron ont été utilisées, avec $l_{max} = 2$. Pour l'intégration numérique de l'ESDT, nous utilisons dans cette partie, le schéma explicite de Fatunla qui nous permet de résoudre l'ESDT dans la base des fonctions sturmiennes.

7.2.4 Calcul des observables physiques

Projection sur un produit de deux fonctions coulombiennes

Cette méthode consiste à projeter le PO $\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t_{fin})$ obtenu à la fin de l'interaction sur un produit antisymétrisé de deux fonctions coulombiennes de

charge $z = 2$ donné par

$$\Phi_{\vec{k}_1, \vec{k}_2}^-(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\phi_{\vec{k}_1}^-(\vec{r}_1) \phi_{\vec{k}_2}^-(\vec{r}_2) + \varepsilon \phi_{\vec{k}_1}^-(\vec{r}_2) \phi_{\vec{k}_2}^-(\vec{r}_1) \right). \quad (7.24)$$

La fonction $\phi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r})$ qui intervient dans les calculs ainsi que la décomposition dans la base sturmienne de sa partie radiale sont présentées dans l'annexe J.

La densité de probabilité de présence des deux électrons dans le continuum respectivement avec des impulsions \vec{k}_1 et \vec{k}_2 est donnée par

$$\rho(\vec{k}_1, \vec{k}_2) d\vec{k}_1 d\vec{k}_2 = |I(\vec{k}_1, \vec{k}_2)|^2 d\vec{k}_1 d\vec{k}_2, \quad (7.25)$$

avec

$$I(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = \iint \Phi_{\vec{k}_1, \vec{k}_2}^{-*}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t_{fin}) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2. \quad (7.26)$$

On en déduit la densité de présence des deux électrons intégrée sur les angles

$$D_{di}(k_1, k_2) dk_1 dk_2 = \iint d\hat{k}_1 d\hat{k}_2 I(\vec{k}_1, \vec{k}_2), \quad (7.27)$$

et la probabilité totale de double ionisation

$$P_{di} = \iint dk_1 dk_2 D_{di}(k_1, k_2). \quad (7.28)$$

La description du double continuum par un produit de deux fonctions coulombiennes ne prend pas en compte la corrélation entre les deux électrons dans la voie de sortie.

Evaluation des probabilités de simple et de double ionisation par la méthode de la matrice J

La principale motivation à la base du développement de la méthode de la matrice J est la prise en compte de la corrélation entre les électrons dans la voie de sortie. Nous n'exposons ici le principe que de façon littérale; les développements mathématiques et numériques de cette méthode sont présentés en détail par Foumouo [29] et Ngoko [188] dans leurs thèses respectives. Pour prendre en compte la corrélation, les auteurs construisent des fonctions d'onde corrélées associées aux canaux de SI à l'aide de la méthode de la matrice J [16, 17]. La projection du PO obtenu à la fin de l'interaction sur ces fonctions permet de déduire les amplitudes de probabilité associées à ces canaux, et

d'évaluer la probabilité totale de DI. La probabilité de DI est obtenue en soustrayant de la probabilité totale d'ionisation, celle de simple ionisation. Les résultats obtenus pour la DI de l'He par absorption d'un photon, ainsi que l'étude de H^- a permis de valider l'approche. Cependant, les sections efficaces de DI par absorption de deux photons de l'He se trouvent être au dessus de celles obtenues par les autres approches théoriques, dans laquelle la corrélation n'est pas prise en compte et par celles où la corrélation dans la voie de sortie n'est pas prise en compte.

7.3 Présentation de la méthode HRM-SOW

Développée par l'équipe de Malegat et al. [25, 26, 27], la méthode **Hyper-spherical R-Matrix with Semiclassical Outgoing Wave** (HRM-SOW) est une approche *ab-initio* initialement dédiée à l'étude des processus de double photoionisation de l'atome d'hélium à partir de l'état fondamental $1S^e$. Le bon accord de ses résultats avec l'expérience a permis d'étendre son cadre d'étude à une grande variété de situations dynamiques. La méthode a ensuite été étendue à l'étude de la simple photoionisation avec ou sans excitation de l'atome résiduel par Bouri [185]. Nous ne présentons que les principales articulations de la méthode en nous basant sur les références [25, 26, 27]. La méthode est exposée en détail dans la thèse de Bouri [185].

7.3.1 Equation de base, fonction d'onde de photoabsorption

On considère l'étude de l'ionisation de l'He par absorption d'un photon. Le système à étudier se trouve initialement dans l'état fondamental $\psi_0(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$, d'énergie E_0 et de symétrie $1S^e$, solution de l'équation de Schrödinger indépendante du temps donnée par l'équation (7.2). A $t = 0$, le système interagit avec un faisceau de photons issus d'un rayonnement électromagnétique. La dynamique du système est régie par l'équation de Schrödinger dépendante du temps (7.3). Le hamiltonien d'interaction est donné dans l'approximation dipolaire et en jauge de Coulomb par une onde électromagnétique plane par (7.4) et (7.5) avec

$$\mathbf{A}(t) = -A_0 \sin(\omega t + \varphi) \vec{e}_z, \quad (7.29)$$

et

$$\mathbf{E}(t) = E_0 \cos(\omega t + \varphi) \vec{e}_z. \quad (7.30)$$

Le processus à étudier étant l'ionisation par absorption d'un photon, la solution de l'ESDT est recherchée sous la forme d'une superposition de l'état fondamental ψ_0 d'énergie E_0 , et de l'état excité ψ_1 (de symétrie $^1P^o$) d'énergie $E_1 = E_0 + \omega$ atteint par absorption d'un photon d'énergie ω . La solution s'écrit donc

$$\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \psi_0(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{-iE_0 t} + \psi_1(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{-iE_1 t}. \quad (7.31)$$

En portant (7.31) dans l'équation de Schrödinger dépendante du temps (7.8) et en écrivant le hamiltonien d'interaction sous la forme générale

$$I_G(t) = \vec{E}(t) \cdot \vec{D}_G, \quad (7.32)$$

on obtient

$$(H_0 - E_1) \psi_1(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = -\frac{1}{2} \vec{E}_0 \cdot \vec{D}_G \psi_0(\vec{r}_1, \vec{r}_2). \quad (7.33)$$

Cette équation stationnaire et inhomogène est identique à celle obtenue en suivant la démarche de Floquet [141], utilisée pour un hamiltonien périodique du temps. Elle constitue le point de départ de la méthode. L'équation (7.31) est résolue avec la condition d'onde sortante appliquée à la fonction d'onde de photoabsorption ψ_1 qui contient toute l'information physique sur le processus d'absorption d'un photon.

7.3.2 Système de coordonnées hypersphériques

Dans la méthode HRM-SOW, on utilise le système de coordonnées hypersphériques. Comme le système de coordonnées de Hylleraas ou les coordonnées périmétriques, le système de coordonnées hypersphériques est un système de coordonnées globales qui décrit collectivement la dynamique des électrons. Il est basé sur l'introduction du rayon hypersphérique R défini par

$$R = \sqrt{r_1^2 + r_2^2}, \quad (7.34)$$

et l'hyperangle α qui est tel que

$$\tan \alpha = \frac{r_2}{r_1}. \quad (7.35)$$

Pour simplifier les notations, on adopte la notation Ω_5 pour désigner l'ensemble des coordonnées angulaires $(\alpha, \Omega_1, \Omega_2)$, où Ω_i avec $i = 1, 2$ représente

l'ensemble des coordonnées sphériques (θ_i, φ_i) repérant la direction de l'électron i dans l'espace.

Le système de coordonnées hypersphériques présente l'avantage de faciliter le calcul direct des sections efficaces de photoionisation définies comme étant le rapport du flux de la fonction d'onde de photoabsorption à travers une hypersphère de très grand hyperrayon R , au flux de photons incidents. Sur le plan numérique, les problèmes de convergence se trouvent être réduits par le fait qu'une seule variable radiale R doit être étendue à l'infini. Par ailleurs, la définition de l'hyperangle α permet de séparer naturellement la simple l'ionisation avec ou sans excitation de l'ion résiduel, de l'ionisation double quand R tend vers l'infini. Considérons par exemple le cas où l'électron 1 reste lié au noyau dans un état de l'ion résiduel He^+ , excité ou non, tandis que l'électron 2 s'échappe du coeur atomique. Pour $R \rightarrow \infty$, cette situation correspond à $r_1 \ll r_2$, $r_2 \sim R$, et par conséquent $\alpha \sim \pi/2$. La situation inverse aurait conduit à $r_1 \gg r_2$, $r_1 \sim R$, et par conséquent $\alpha \sim 0$. Ainsi donc, la simple ionisation reste exclusivement confinée au voisinage des bornes $\alpha = 0$ ou $\alpha = \pi/2$. Par corrolaire, la double ionisation est décrite par le domaine $]0, \pi/2[$.

En nous limitant au cas de la double ionisation qui nous intéresse, on suppose en bonne approximation dans la méthode HRM-SOW que les deux électrons éjectés se comportent classiquement lorsque R devient très grand et les grandeurs physiques de DI sont évaluées. Ils ont des trajectoires rectilignes et des vitesses constantes. Leurs coordonnées radiales r_1 et r_2 sont alors proportionnelles à leurs vitesses asymptotiques, soit à la racine carrée de leurs énergies asymptotiques respectives E_1 et E_2 . Comme par ailleurs $E = E_1 + E_2$, E étant l'énergie totale partagée entre les deux électrons, on en déduit

$$E_1 = E \cos^2 \alpha, \quad (7.36)$$

$$E_2 = E \sin^2 \alpha. \quad (7.37)$$

Il est facile de montrer que la variable α est dès lors liée au partage de l'énergie E entre les deux électrons par :

$$\tan \alpha = \sqrt{\frac{E_1}{E_2}}, \quad (7.38)$$

7.3.3 Calcul des observables physiques : sections efficaces

L'un des points forts de la méthode HRM-SOW réside dans le fait que le calcul des sections efficaces est basé sur le quotient du nombre d'électrons émis par unité de temps pour une cinématique donnée, au nombre de photons incidents par unité de temps et par unité de surface. L'unité de section efficace utilisée est le barn ($1b = 10^{-24}\text{cm}^2$). Dans le cas de la double ionisation qui nous intéresse, deux électrons sont détectés dans la voie de sortie. La quantité généralement mesurée est le nombre $d^3N(E_1, \Omega_1, \Omega_2)$ d'événements dans lesquels un des électrons est détecté dans la direction Ω_1 à $d\Omega_1$ près avec une énergie E_1 , en coïncidence avec l'autre électron détecté dans Ω_2 à $d\Omega_2$ près, avec une énergie $E_2 = E - E_1$ qui se déduit de la conservation d'énergie. Ce nombre peut être vu en coordonnées hypersphériques comme la somme des flux à travers les éléments de surface situés sur l'hypersphère de rayon $R = R_\infty$ et centrés en $(\alpha, \Omega_1, \Omega_2)$ et $(\pi/2 - \alpha, \Omega_2, \Omega_1)$. Ces flux sont égaux du fait de la symétrie de la fonction d'onde dans l'échange des deux électrons ; la quantité $d^3N(E_1, \Omega_1, \Omega_2)$ s'écrit

$$d^3N(E_1, \Omega_1, \Omega_2) = 2 \lim_{R \rightarrow \infty} \mathcal{F}_R(R; \Omega) dS_5, \quad (7.39)$$

où $\mathcal{F}_R(R; \Omega)$ est la composante hyperradiale du flux associé à la fonction d'onde de photoabsorption $\Psi_1(R; \Omega)$ donnée par

$$\mathcal{F}_R(R; \Omega) = \frac{1}{2} \Im \left(\Psi_1^*(R; \Omega) \frac{\partial \Psi_1(R; \Omega)}{\partial R} \right), \quad (7.40)$$

et dS_5 l'élément d'hypersurface autour du point $(\alpha, \Omega_1, \Omega_2)$ donné par

$$dS_5 = R^5 (\sin^2 \alpha \cos^2 \alpha) d\alpha d\Omega_1 d\Omega_2 = \frac{R^5}{4E} \sin 2\alpha dE_1 d\Omega_1 d\Omega_2. \quad (7.41)$$

En tenant compte des relations précédentes, la section efficace différentielle triple (TDCS : Triple Differential Cross Section) s'écrit

$$\frac{d^3\sigma}{dE_1 d\Omega_1 d\Omega_2} = \frac{1}{2E \mathcal{F}_{phot}} \lim_{R \rightarrow \infty} R^5 \sin 2\alpha \Im \left(\Psi_1^*(R; \Omega) \frac{\partial \Psi_1(R; \Omega)}{\partial R} \right), \quad (7.42)$$

où \mathcal{F}_{phot} est le nombre de particules incidentes, les photons, traversant l'unité de surface perpendiculaire à la direction de propagation par unité de temps.

La TDCS est l'information la plus complète et celle à laquelle ont accès les expérimentateurs.

L'intégration de la TDCS autour de la direction de l'un des électrons permet d'obtenir la section efficace différentielle double (DDCS : Double Differential Cross Section). Cette grandeur renseigne sur l'impulsion d'un des électrons indépendamment de la direction d'éjection du second. Elle s'écrit

$$\frac{d^2\sigma}{dE_1 d\Omega_1} = \int d\Omega_2 \frac{d^3\sigma}{dE_1 d\Omega_1 d\Omega_2}. \quad (7.43)$$

L'intégration de la DDCS permet d'obtenir la section efficace différentielle simple (SDCS : Singly Differential Cross Section) ou distribution en énergie qui renseigne sur la répartition de l'énergie totale entre les deux électrons. Elle s'écrit

$$\frac{d\sigma}{dE_1} = \int d\Omega_1 \int d\Omega_2 \frac{d^3\sigma}{dE_1 d\Omega_1 d\Omega_2}. \quad (7.44)$$

Enfin la section efficace totale de double ionisation σ^{++} (ICS : Integrated Cross Section) s'obtient en intégrant par rapport à l'énergie de l'électron la SDCS, soit

$$\sigma_E^{++} = \int_{0^+}^{E/2} dE_1 \int d\Omega_1 \int d\Omega_2 \frac{d^3\sigma}{dE_1 d\Omega_1 d\Omega_2}, \quad (7.45)$$

où les bornes d'intégration sur l'énergie 0^+ et $E/2$ permettent respectivement d'exclure la simple ionisation et de tenir compte de l'indiscernabilité des électrons.

7.3.4 Principe de la méthode HRM-SOW

La méthode HRM-SOW est une combinaison de la technique R-matrice très utilisée en théorie des collisions, reformulée en coordonnées hypersphériques, et d'une approche semiclassique de propagation. Pour résoudre l'équation (7.33), l'espace des configurations est divisé en deux régions délimitées par une hypersphère d'hyperrayon R_0 . Dans la *région interne* $R \leq R_0$, toutes les variables dynamiques sont traitées par l'approche quantique et sans approximation. Dans la *région externe* $R \geq R_0$, la variable R est traitée semiclassiquement. Les variables angulaires sont traitées par l'approche quantique. Compte tenu de cette subdivision spatiale, la résolution de l'équation (7.33) se fait en trois étapes successives présentées sur la figure 7.1 [185] :

- la résolution de l'équation (7.33) dans la région interne grâce à la méthode de la matrice-R en coordonnées hypersphériques, complétée par la condition d'onde sortante adiabatique qui permet de déterminer la solution ψ_1 en R_0 et d'éliminer du PO les premiers canaux de SI qui se découplent naturellement ;
- la résolution de l'équation (7.33) dans la région externe qui se ramène à un problème de propagation spatiale de R_0 jusqu'à une distance macroscopique R_{max} de l'ordre de 10^6 u.a, avec l'extraction progressive des canaux de SI.
- et enfin, le calcul des quantités mesurables telles les sections efficaces différentielles et totale en R_{max} .

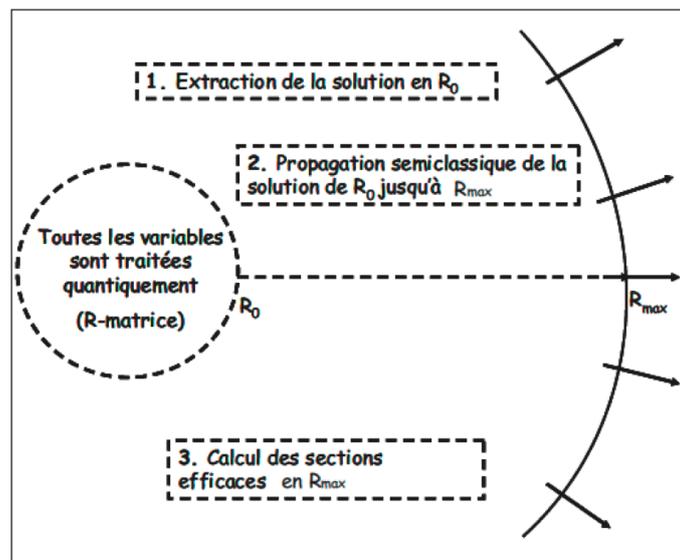


FIGURE 7.1 – Schéma récapitulatif des différentes étapes de la méthode HRM-SOW

- Trois outils essentiels sont utilisés par la méthode HRM-SOW :
- *l'analyseur en ondes partielles adiabatiques*
 - *le propageur hyper-radial semi-classique*
 - *le projecteur sur le n -ième état de l'ion hydrogénéoïde He^+*

Chacun de ces outils s'appliquent sur une hypersphère de rayon spécifique et vise progressivement à extraire du paquet d'onde les contributions du SI.

7.3.4.1 L'analyse en ondes partielles

L'utilisation de l'analyseur est subordonnée à la résolution de l'équation (7.33) combinée à la condition d'onde sortante adiabatique dans la zone interne. Nous précisons, sans nous y attarder que, pour ce faire, l'équation est réécrite dans le système de coordonnées hypersphériques. La solution est développée sur une base constituée d'harmoniques sphériques bipolaires et d'une base ad hoc pour la partie angulaire, et une base de fonctions de Lagrange normalisées pour le partie hyperradiale. La résolution de (7.33) permet d'extraire la solution sur l'hypersphère de rayon R_0 .

L'analyse en ondes partielles permet d'extraire les premiers canaux de SI du PO sur l'hypersphère de rayon R_0 . Pour ce faire, on développe la fonction d'onde $\Psi(R_0, \Omega_5; E)$ sur une base angulaire particulière $5D$ constituée des fonctions propres $\Phi_\lambda(R_0, \Omega_5)$ - appelées *ondes partielles adiabatiques* - du hamiltonien atomique $H_{at}(R_0, \Omega_5)$ à $R = R_0$, en coordonnées hypersphériques. Pour des valeurs de R suffisamment grandes, les valeurs propres les plus basses coïncident avec les énergies des premiers canaux de SI. Ceci s'explique à partir de la structure du hamiltonien en coordonnées hypersphériques. Elle est donnée par :

$$H_{at}(R_0, \Omega_5) = \frac{1}{2R_0^2} T(\Omega_5) - \frac{Z(\alpha, \theta_{12})}{R_0}, \quad (7.46)$$

avec

$$T(\Omega_5) = -\frac{\partial^2}{\partial \alpha^2} + \frac{\vec{l}_1^2}{\cos^2 \alpha} + \frac{\vec{l}_2^2}{\sin^2 \alpha}, \quad (7.47)$$

et

$$Z(\alpha, \theta_{12}) = \left(\frac{z}{\cos \alpha} + \frac{z}{\sin \alpha} - \frac{1}{\sqrt{1 - \sin 2\alpha \cos \theta_{12}}} \right). \quad (7.48)$$

L'expression de $H_{at}(R_0, \Omega_5)$ contient deux termes. Le premier fait intervenir l'opérateur angulaire énergie cinétique $T(\Omega_5)$, avec \vec{l}_1 et \vec{l}_2 les moments angulaires individuels des électrons 1 et 2. Le second terme représente l'ensemble des potentiels coulombiens du système à trois corps. Il s'exprime en fonction de $Z(\alpha, \theta_{12})$, qui dépend de la géométrie du système à trois corps formé du coeur ionique, et des deux électrons à travers l'hyper-angle α et l'angle θ_{12} entre les directions d'éjection des deux électrons ; z étant la charge du noyau atomique.

Sur la figure 7.2, nous représentons en fonction de α et θ_{12} , $Z(\alpha, \theta_{12})$ pour $R_0 = 10$ u.a., $z = 2$. Le potentiel coulombien à R fixe a la forme d'une selle de

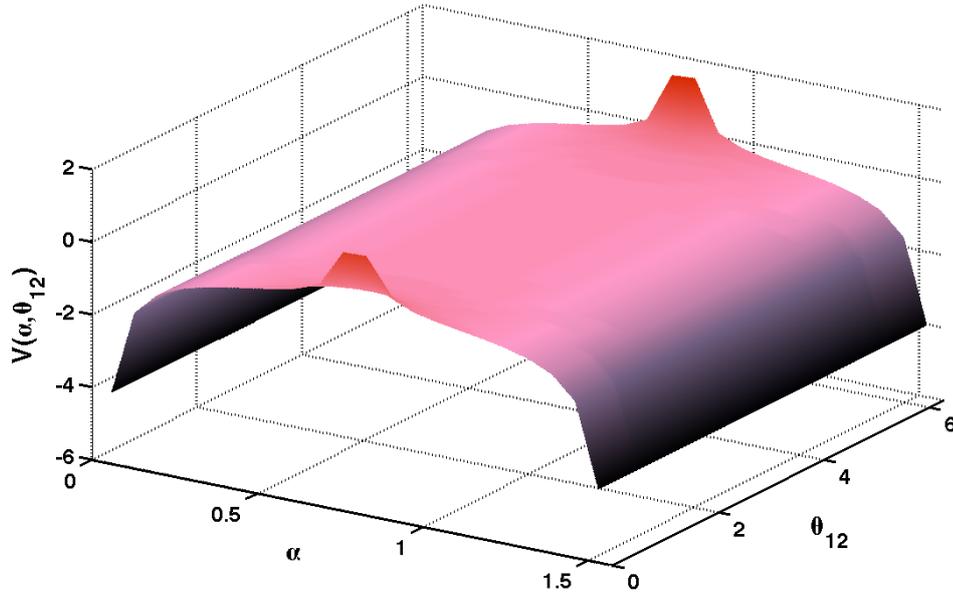


FIGURE 7.2 – Potentiel coulombien en coordonnées hypersphériques en fonction de α et θ_{12} pour $R_0 = 10$ et $z = 2$

cheval où les puits infinis en $\alpha = 0$ et $\alpha = \pi/2$ correspondent aux étriers et les barrières infinies en $(\alpha = \pi/4, \theta_{12} = 0)$ et $(\alpha = \pi/4, \theta_{12} = 2\pi)$ aux pommeaux. Les puits attractifs infinis en $\alpha = 0$ et $\alpha = \pi/2$ deviennent plus étroits quand R devient grand et correspondent à des situations physiques où $r_1 \gg r_2$ et inversement. Ce qui décrit la situation physique où l'un des électrons est proche du coeur ionique tandis que l'autre est très éloigné, c'est-à-dire la SI. La zone qui sépare les 2 puits pour $\alpha \sim \pi/4$ correspond aux points d'équilibre instable. Pour de petites valeurs de R , la pente cette barrière est importante. La durée de vie de l'état à deux électrons sur la crête y est très courte (l'un des électrons se retrouve rapidement dans les puits infinis en $\alpha = 0$ et $\alpha = \pi/2$), rendant le processus de DI peu probable et celui de SI dominant. Lorsque R augmente,

la barrière s'aplatit et son sommet tend vers 0 de sorte qu'on obtient un plateau qui correspond à r_1 et r_2 grands. La ligne joignant les barrières infinies dite crête de *Wannier* [184] comporte un point d'équilibre ($\alpha = \pi/4, \theta_{12} = \pi$) stable par rapport à θ_{12} , mais instable par rapport à α . Ce point joue un très grand rôle dans la double ionisation. Cette configuration correspond à la géométrie où les deux électrons sont à égale distance de part et d'autre du coeur ionique, ce qui minimise la répulsion biélectronique. Les deux électrons auront donc tendance à s'échapper de l'attraction du noyau s'ils arrivent à se maintenir sur la crête de Wannier en $\alpha = \pi/4$ pendant un temps relativement long, au lieu de tomber dans le puits. On comprend intuitivement ici que la DI n'est assurée que pour de grandes valeurs de R pour lesquelles le plateau est large et donc plus stable [185].

Les fonctions propres associées aux états d'énergie les plus bas se trouvent localisées dans les puits de potentiel attractifs en $\alpha = 0$ ou $\alpha = \pi/2$, et peuvent donc être considérées comme les états propres du hamiltonien exprimé au voisinage de $\alpha = 0$ ou $\alpha = \pi/2$. Pour des valeurs de R_0 suffisamment grandes et au voisinage de $\alpha = 0$, le hamiltonien (7.46) devient

$$H_{at}(R_0, \Omega_5) \xrightarrow{R_0 \rightarrow \infty, \alpha \rightarrow 0} \left(-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial r_2^2} + \frac{\vec{l}_2^2}{2r_2^2} - \frac{Z}{r_2} \right) + \frac{r_2 \cos \theta_{12}}{R_0^2} - \frac{Z-1}{R_0} \quad (7.49)$$

où \vec{l}_2 est le moment angulaire orbital de l'électron lié. Le terme entre parenthèses dans la relation (7.49) représente le hamiltonien de l'ion He^+ . Le second terme décrit l'interaction entre le dipole formé par l'ion et le champ électrique créé par l'électron lointain à la distance R_0 , et le dernier terme représente l'énergie potentielle de l'électron externe dans le champ de l'ion He^+ . Le hamiltonien donné par (7.49) est soluble analytiquement en coordonnées paraboliques. Les niveaux d'énergie Stark de l'ion He^+ en fonction des nombres quantiques paraboliques n_1 et n_2 , et du nombre quantique principal n sont données par

$$E_{nn_1n_2}(R_0) = -\frac{Z^2}{2n^2} + \frac{3}{2} \frac{n}{Z} (n_1 - n_2) \frac{1}{R_0^2} - \frac{Z-1}{R_0}, \quad (7.50)$$

où les nombres quantiques paraboliques n_1 et n_2 ainsi que leur somme sont compris entre 0 et $n - |m| - 1$, m . Les fonctions propres adiabatiques correspondant aux niveaux d'énergie les plus bas, peuvent être identifiées aux fonctions

TABLE 7.2 – Comparaison entre les premières valeurs propres adiabatiques à $R_0 = 25$ u.a., et les niveaux d'énergie Stark He_n^+ pour les états $n=1$ à 3

n	n_1	n_2	$E_{n n_1 n_2}(R_0)$	$E_\lambda(R_0)$	λ
1	0	0	-2.0400	-2.0390	1
2	0	1	-0.5424	-0.5426	2
2	0	0	-0.5400	-0.5401	3
2	1	0	-0.5376	-0.5354	4
3	0	2	-0.2694	-0.2719	5
3	0	1	-0.2658	-0.2678	6
3	1	1	-0.2622	-0.2621	7
3	1	0	-0.2586	-0.2583	8
3	2	0	-0.2550	-0.2510	9

propres des premiers canaux de SI. Pour le montrer, le tableau 7.2 compare les premières valeurs propres adiabatiques $E_\lambda(R_0)$ obtenues en diagonalisant numériquement le hamiltonien à celles obtenues par l'expression (7.50). On montre qu'à $R_0 = 25$ u.a., les 4 premiers canaux adiabatiques - canaux de SI - se découpent clairement et peuvent donc être éliminés du PO.

Il est important de noter aussi que l'analyse adiabatique, appliquée à la fonction d'onde stationnaire d'énergie E , permet d'identifier les canaux ouverts (d'énergies $E_\lambda(R_0) < E$, des canaux fermés (d'énergies $E_\lambda(R_0) > E$) qui peuvent être négligés lors de la propagation hyperradiale de la FO stationnaire.

7.3.4.2 Le propagateur hyperradial semi-classique

Le propagateur hyperradial semi-classique que nous notons ici $P_E(R_0, R_1)$, permet, à partir d'une fonction d'onde stationnaire $\Psi(R_0, \Omega_5; E)$ d'énergie E sur une hypersphère de rayon R_0 , d'obtenir la fonction d'onde stationnaire $\Psi(R_1, \Omega_5; E)$ correspondante sur une hypersphère de rayon $R_1 > R_0$. C'est-à-dire

$$P_E(R_0, R_1)\Psi(R_0, \Omega_5; E) = \Psi(R_1, \Omega_5; E). \quad (7.51)$$

Il est à noter que si le rayon R_0 est de l'ordre de quelques unités atomiques, R_1 peut atteindre des valeurs de l'ordre de 10^6 à 10^7 u.a. correspondant à la zone asymptotique où les interactions peuvent être négligées.

Le propagateur s'utilise dans la région externe, où l'équation de base (7.33) est résolue en coordonnées hypersphériques en négligeant le terme de droite. Ce terme est en effet proportionnel à l'état fondamental qui est de portée inférieure à R_0 et qui peut donc être considéré comme nul. Il est important de noter qu'en négligeant le terme source dans la zone externe, on fait aussi disparaître la dépendance de jauge (introduite par \vec{D}_G) de l'équation ; rendant ainsi la méthode invariante de jauge. La solution est cherchée sous la forme

$$\psi(R; \Omega_5) = \frac{1}{R^{5/2} \sin 2\alpha} \frac{1}{\sqrt{p(R, E)}} \exp \left(i \int_{R_0}^R p(R', E) dR' \right) \Phi(R; \Omega_5), \quad (7.52)$$

E étant l'énergie totale du système.

Le premier terme de la relation (7.52), utilisé pour des raisons numériques, permet de simplifier l'élément de volume en coordonnées hypersphériques.

Le deuxième terme représente une onde sortante semiclassique (SOW : semiclassical outgoing wave) qui décrit le mouvement hyperradial associé à l'impulsion locale

$$p(R, E) = \sqrt{2 \left(E + \frac{Z_{eff}(R)}{R} \right)}. \quad (7.53)$$

Il correspond à un mouvement hyperradial d'énergie E dans un potentiel coulombien moyen associé à une charge effective $Z_{eff}(R)$. La charge effective est obtenue par le biais d'une interpolation, fonction d'un paramètre η , entre ses deux valeurs limites $Z_{eff}(R_0) = Z_0$ et $Z_{eff}(\infty)$. Z_0 est obtenue à partir de la valeur moyenne de $p(R, E)$ en R_0 . $Z_{eff}(\infty)$ est égale à la charge au point de selle ou la charge de Wannier $Z_S = Z(\pi/4, \pi) = 4.95$. Pour garantir la validité semiclassique, la longueur d'onde locale $\lambda(R, E)$, reliée à l'impulsion locale par $\lambda(R, E) = p^{-1}(R, E)$ doit vérifier la relation

$$\frac{\partial \lambda}{\partial R} \ll 1 \equiv \frac{1}{p^2} \frac{\partial p}{\partial R} \ll 1. \quad (7.54)$$

Le dernier terme est une fonction d'onde réduite qui ne dépend que faiblement de R et décrit essentiellement la dynamique angulaire des électrons. On introduit ainsi une séparation approchée entre le mouvement hyperradial et le mouvement angulaire. La faible dépendance de $\Phi(R; \Omega_5)$ par rapport à R permet de négliger l'énergie et l'impulsion radiales associées à la fonction réduite par rapport à celle de l'onde semiclassique soit

$$\frac{\partial^2 \Phi}{\partial R^2} \ll p^2 \Phi, \quad \frac{\partial \Phi}{\partial R} \ll p \Phi. \quad (7.55)$$

En cherchant la solution sous la forme (7.52), deux hypothèses importantes sont faites : (i) le “gros” du mouvement hyperradial en R est sensiblement le même dans tous les canaux de sorte que, rapport au mouvement angulaire Ω_5 , il puisse être approximativement factorisé ; (ii) le mouvement hyperradial en R peut être traité semiclassiquement du fait de la faible variation du potentiel coulombien du système atomique avec l’hyperrayon. Ces deux hypothèses impliquent que la vitesse des électrons émis dans le continuum est sensiblement la même dans les différents canaux d’ionisation. Or dans le cas de l’He qui nous intéresse, les seuils de simple ionisation I_n^+ forment les séries de Rydberg qui convergent vers le seuil de double ionisation. Le premier seuil d’ionisation SI_1^+ , le plus bas de la série, se trouve à 2 u.a. en dessous de ce seuil. Il semble donc irréaliste de prétendre décrire de la même manière le mouvement en R des électrons rapides du SI_1^+ et celui des électrons plus lents de DI. Cependant, l’extraction des premiers canaux de SI du PO en R_0 - décrite précédemment - résout ce problème et garantit la validité de l’approximation. En effet, les canaux $SI_{n>3}^+$ restants et ceux de DI forment un groupe de canaux de vitesse moyenne approximativement identique. L’extraction des premiers canaux de SI de la fonction d’onde stationnaire $\Psi(R_0, \Omega_5; E)$ est donc indispensable pour initier la propagation semiclassique.

En insérant dans l’équation de base (7.33) sans second membre la fonction d’onde donnée par (7.52), en prenant en compte les approximations données par les équations (7.54) et (7.56) et en introduisant une nouvelle variable τ telle que $Rp(R)d\tau = dR$, on déduit l’équation du premier ordre suivante

$$i \frac{\partial \Phi}{\partial \tau} = \left(\frac{1}{2} \frac{T(\Omega_5)}{R(\tau)} + V(\Omega_5) \right) \Phi. \quad (7.56)$$

L’équation (7.56) est résolue facilement et permet de propager la fonction d’onde stationnaire jusqu’aux valeurs de R quasi-macroscopiques. Sur le plan numérique, la solution $\Phi(\tau; \alpha, \Omega_1, \Omega_2)$ est développée sur une base d’harmoniques bipolaires symétrisées ; soit

$$\Phi^{LM}(\tau; \alpha, \Omega_1, \Omega_2) = \sum_{l_1 l_2} \sum_{\varepsilon=g,u} a_{l_1 l_2}^{\varepsilon}(\tau; \alpha) \mathcal{Y}_{l_1 l_2}^{LM}(\Omega_1, \Omega_2), \quad (7.57)$$

avec

$${}^{\varepsilon} \mathcal{Y}_{l_1 l_2}^{LM}(\Omega_1, \Omega_2) = \frac{1}{\sqrt{2(1 + \delta_{l_1 l_2})}} (\Lambda_{l_1 l_2}^{LM}(\Omega_1, \Omega_2) \pm (-1)^{l_1 + l_2 - L} \Lambda_{l_2 l_1}^{LM}(\Omega_1, \Omega_2)). \quad (7.58)$$

Dans le cas particulier de la photonionisation à partir de l'état fondamental, l'expression donnée par (7.57) devient

$$\Phi(\tau; \alpha, \Omega_1, \Omega_2) = \sum_l \sum_{\varepsilon=g,u} a_l^\varepsilon(\tau; \alpha)^\varepsilon \mathcal{Y}_{ll+1}^{10}(\Omega_1, \Omega_2), \quad (7.59)$$

En remplaçant (7.59) dans (7.56) et projetant sur les fonctions de base, il en résulte un système d'EDP couplées pour les coefficients $a_l^\varepsilon(\tau; \alpha)$. L'intégration numérique de l'EDP est faite par le méthode du split-operator. Le propagateur permet d'évaluer la FO à n'importe quel instant ultérieur τ et par conséquent en n'importe quel hyperrayon $R(\tau) > R_0$. Il présente l'avantage d'être rigoureusement unitaire, permettant de ce fait une conservation du flux total à travers la région. La section efficace totale de photoionisation en R_0 est donc conservée pour $R > R_0$ [185].

7.3.4.3 Extraction des canaux de $\text{SI}_{n>3}$

Dans le paragraphe précédent, nous avons mentionné que les premiers canaux $\text{SI}_{n \leq 3}$ sont éliminés du PO sur l'hypersphère de rayon R_0 grâce à l'analyse adiabatique en ondes partielles. Les canaux supérieurs $\text{SI}_{n > 3}$ ouverts, qui ne sont pas découplés et qui ne peuvent être éliminés à $R = R_0$ sont extraits du PO en projetant ce dernier sur les états propres de l'ion He^+ correspondants sur différentes hypersurfaces d'hyperrayons $R = R_n$ appropriés.

Si nous notons P_n , le projecteur sur les fonctions propres de l'ion He^+ sur l'hypersphère de rayon R_n , le PO de DI s'obtient par la relation suivante

$$\begin{aligned} \Psi^{2+}(R_{n_{max}}, \Omega_5; E) &= \left\{ \prod_{n=3}^{n_{max}} (1 - P_n) P_E(R_{n-1}, R_n) \right\} \\ &\times \left(1 - \sum_{\lambda=1}^4 |\Phi_\lambda\rangle \langle \Phi_\lambda| \right) \Psi(R_0, \Omega_5; E). \end{aligned} \quad (7.60)$$

En d'autres termes, l'extraction des canaux de SI du paquet d'onde stationnaire s'obtient au travers d'une série d'opérations. L'analyse adiabatique en R_0 permet d'extraire les premiers canaux de SI et de fournir un paquet d'onde éligible pour la propagation semiclassique. Le propagateur semiclassique fournit le POS équivalent sur l'hypersphère d'hyperrayon R_3 . L'application du projecteur $1 - P_3$ sur le POS en R_3 , permet d'extraire le canal SI_3 à la distance R_3

où il s'est découplé. L'opération est répétée pour différentes valeurs R_n durant la propagation hyperradiale. Une étude détaillée sur le choix du rayon R_n a été faite par Bouri et al. [27]. Le POS résiduel à la fin de l'opération est celui issu de DI à partir duquel les informations physiques sur le DI sont évaluées.

7.4 Méthode ESDT/HRM-SOW

Nous présentons la méthode ESDT/HRM-SOW qui combine judicieusement les points forts des deux approches qui la constituent de façon à tirer profit des avantages tout en compensant les inconvénients liés à chacune d'elles. Il s'agit d'exploiter le traitement "exact" de l'interaction atome-laser, en ce qui concerne la résolution directe de l'ESDT par l'approche spectrale dépendante du temps d'une part. Et d'autre part, il s'agit de tirer avantage de la possibilité de fournir une fonction d'onde stationnaire de DI dans la zone asymptotique, où le calcul des informations physiques est facile en ce qui concerne la méthode HRM/SOW.

7.4.1 Principe de la méthode ESDT/HRM-SOW

La méthode est construite en substituant le traitement R-matrice (perturbatif et restreint à l'étude de l'ionisation par absorption d'un photon) utilisé dans la région interne par la résolution numérique de l'ESDT. Pour obtenir une fonction d'onde stationnaire d'énergie E sur l'hypersphère d'hyperrayon R_0 , il suffit d'évaluer la transformée de Fourier du PO sur l'hypersphère en R_0 sous certaines conditions que nous précisons dans la sous-section suivante. Cette technique est similaire à celle utilisée par Palacios et al. [186, 187]. De façon schématique, la méthode se résume par les étapes présentées sur la figure 7.3 c'est-à-dire :

- la résolution de l'ESDT par la méthode spectrale telle que décrite dans la section 1 et calcul de la TF du PO sur l'hypersphère de rayon R_0 , qui permet d'avoir une fonction d'onde stationnaire ψ_1 en R_0 et duquel sont éliminés les premiers canaux de simple ionisation qui se découplent naturellement ;
- la résolution de l'équation (7.33) dans la région externe qui se ramène à un problème de propagation spatiale de R_0 jusqu'à des distances macroscopiques de l'ordre de 10^6 u.a., avec extraction progressive des canaux

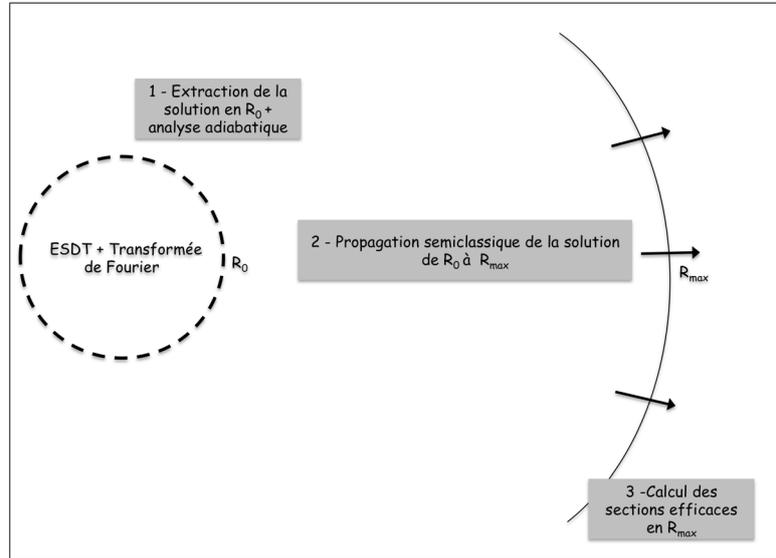


FIGURE 7.3 – Schéma récapitulatif des différentes étapes de la méthode ESDT/HRM-SOW.

de simple ionisation avec excitation ;

- et enfin, le calcul des quantités mesurables telles les sections efficaces différentielles et totale, ainsi que le paramètre d’anisotropie en R_{max} .

7.4.2 Évaluation de la transformée de Fourier locale

Considérons un système atomique à deux électrons actifs initialement dans un état atomique donné. A $t = -T$, le système entre en interaction avec une impulsion électromagnétique de durée T . Le PO, solution de l’ESDT, se propage dans une région de l’espace définie par $r_1, r_2 < r_{max}$ et en fonction du temps. On désire obtenir, par application de la TF au PO, une fonction d’onde *stationnaire* d’énergie E . Il suffit de définir dans la boîte $r_1, r_2 < r_{max}$, qui est telle qu’aucune réflexion ne survient durant la propagation, une hypersphère de rayon $R = R_0$ qui satisfait les conditions suivantes :

- le PO ionisé ne commence à traverser l’hypersphère qu’à partir de l’instant t_i situé après la fin de l’interaction avec l’impulsion,

– le PO ionisé doit avoir entièrement traversé l'hypersphère avant l'instant t_f qui doit être plus petit que la durée totale T_{max} de la propagation; c'est-à-dire

$$\Psi(R_0, \Omega_5; t) \neq 0 \quad \text{lorsque} \quad 0 \leq t_i < t < t_f \leq T_{max}. \quad (7.61)$$

L'évolution du PO sur l'hypersphère de rayon R_0 est alors gouvernée par l'équation de Schrödinger sans champ :

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(R_0, \Omega_5; t) = H_{at}(R_0; \Omega_5) \Psi(R_0, \Omega_5; t), \quad (7.62)$$

où H_{at} représente le hamiltonien sans champ. On peut ainsi définir la TF locale du PO pour l'énergie E sur cette hypersphère comme

$$\begin{aligned} \Psi(R_0, \Omega_5; E) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \Psi(R_0, \Omega_5; t) \exp^{iEt} \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{t_i}^{t_f} dt \Psi(R_0, \Omega_5; t) \exp^{iEt}. \end{aligned} \quad (7.63)$$

Compte tenu du développement du PO sur la base de fonctions sturmiennes donné par

$$\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \sum_{LM} \sum_{\lambda l} \sum_{\nu n} \alpha_{\nu n}^{\lambda l} c_{\nu n}^{\lambda l LM}(t) \mathcal{A} \frac{S_{\nu\lambda}^{\kappa}(r_1)}{r_1} \Lambda_{\lambda l}^{LM}(\hat{r}_1, \hat{r}_2) \frac{S_{nl}^{\kappa}(r_2)}{r_2} \quad (7.64)$$

et en tenant compte des relations de passage des coordonnées sphériques au coordonnées hypersphériques données par les équations (7.34) et (7.35), la fonction d'onde en coordonnées hypersphériques est donnée par

$$\Psi(R_0, \Omega_5, t) = \sum_{LM} \sum_{\lambda l} \sum_{\nu n} \alpha_{\nu n}^{\lambda l} c_{\nu n}^{\lambda l LM}(t) \mathcal{A} \tilde{F}_{\kappa\nu n}^{\lambda l LM}(R_0, \Omega_5), \quad (7.65)$$

où $\tilde{F}_{\kappa\nu n}^{\lambda l LM}$ se définit par

$$\tilde{F}_{\kappa\nu n}^{\lambda l LM}(R_0, \Omega_5) = \frac{S_{\nu\lambda}^{\kappa}(R_0 \cos \alpha)}{R_0 \cos \alpha} \Lambda_{\lambda l}^{LM}(\hat{r}_1, \hat{r}_2) \frac{S_{nl}^{\kappa}(R_0 \sin \alpha)}{R_0 \sin \alpha}. \quad (7.66)$$

La seule dépendance temporelle se trouvant dans les coefficients, on trouve facilement la FO stationnaire d'énergie E à partir de de la relation (7.63). Elle est donnée par

$$\Psi(R_0, \Omega_5, E) = \sum_{LM} \sum_{\lambda l} \sum_{\nu n} \alpha_{\nu n}^{\lambda l} \tilde{c}_{\nu n}^{\lambda l LM}(E) \mathcal{A} \tilde{F}_{\kappa\nu n}^{\lambda l LM}(R_0, \Omega_5), \quad (7.67)$$

où $\tilde{c}_{\nu n}^{\lambda LLM}(E)$ est donné par

$$\tilde{c}_{\nu n}^{\lambda LLM}(E) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} dt c_{\nu n}^{\lambda LLM}(t) \exp^{iEt} \quad (7.68)$$

On montre aisément que la TF locale d'énergie E est solution de l'équation de Schrödinger stationnaire pour cette même énergie, condition nécessaire pour initialiser la propagation semiclassique hyperradiale. En effet, l'action H_{at} de sur la TF donne :

$$\begin{aligned} H_{at}(R_0; \Omega_5) \Psi(R_0, \Omega_5; E) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{t_i}^{t_f} dt [H_{at}(R_0; \Omega_5) \Psi(R_0, \Omega_5; t)] \exp^{iEt} \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{t_i}^{t_f} dt \left[i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(R_0, \Omega_5; t) \right] \exp^{iEt} \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} i \left\{ \left[\Psi(R_0, \Omega_5; t) \exp^{iEt} \right]_{t_i}^{t_f} \right\} \\ &\quad + \frac{E}{\sqrt{2\pi}} \left\{ \int_{t_i}^{t_f} dt \Psi(R_0, \Omega_5; t) \exp^{iEt} \right\} \\ &= E \Psi(R_0, \Omega_5; E). \end{aligned} \quad (7.69)$$

Ce résultat est obtenu en tenant compte du fait que H_{at} est indépendant du temps et exploitant les relations (7.62) et (7.61).

7.4.3 Principe de raccordement de l'ESDT à la méthode HRM-SOW

La composante de Fourier d'énergie E obtenue en R_0 est donnée par l'équation (7.67) que nous réécrivons, par souci de simplification comme

$$\Psi(R_0, \Omega_5, E) = \sum_k \tilde{c}_k(E) f_k(R_0, \Omega_5), \quad (7.70)$$

avec

$$f_k(R_0, \Omega_5) = \alpha_{\nu n}^{\lambda} \tilde{A} \tilde{F}_{\kappa \nu n}^{\lambda LLM}(R_0, \Omega_5). \quad (7.71)$$

La fonction d'onde stationnaire utilisée par le propagateur hyperradial s'écrit dans la base des vecteurs propres adiabatiques en R_0 sous la forme simplifiée

$$\Psi(R_0, \Omega_5, E) = \frac{1}{R_0^{5/2} \sin 2\alpha} \sum_{\beta} \tilde{b}_{\beta}(E) u_{\beta}(R_0, \Omega_5), \quad (7.72)$$

où $u_\beta(R_0, \Omega_5)$ sont les vecteurs propres adiabatiques en R_0 (i.e les vecteurs propres obtenus en diagonalisant le hamiltonien en R_0). Pour avoir une équation de la même forme que (7.72), on réécrit (7.70) comme

$$\Psi(R_0, \Omega_5, E) = \frac{1}{R_0^{5/2} \sin 2\alpha} \sum_k \tilde{c}_k(E) \tilde{f}_k(R_0, \Omega_5), \quad (7.73)$$

avec

$$\tilde{f}_k(R_0, \Omega_5) = R_0^{5/2} \sin 2\alpha f_k(R_0, \Omega_5). \quad (7.74)$$

En égalant les équations (7.73) et (7.72), en multipliant l'équation résultant par les fonctions $u_\beta(R_0, \Omega_5)$ et en intégrant sur la l'élément de surface $dS = \frac{1}{4} d\alpha d\Omega_1 d\Omega_2$ (le terme $R_0^5 \sin(2\alpha)^2$ disparaît dans l'élément de surface avec le facteur apparaissant dans les équations (7.74) et (7.72)), on obtient l'équation matricielle suivante permettant d'obtenir le vecteur de coefficients $\tilde{\mathbf{b}}(R_0)$ à partir du vecteur $\tilde{\mathbf{c}}(E)$

$$\tilde{\mathbf{b}}(E) = \mathbf{I}(R_0) \tilde{\mathbf{c}}(E). \quad (7.75)$$

$\mathbf{I}(R_0)$ représente la matrice de recouvrement entre les fonctions de la base $\tilde{f}_k(R_0, \Omega_5)$ et celles de la base $u_\beta(R_0, \Omega_5)$. Les éléments de matrice $I_{k\beta}(R_0)$ de $\mathbf{I}(R_0)$ sont donnés par

$$I_{k\beta}(R_0) = \int dS \tilde{f}_k(R_0, \Omega_5) u_\beta(R_0, \Omega_5). \quad (7.76)$$

Il convient de préciser que pour obtenir la base adiabatique $u_\beta(R_0, \Omega_5)$ en R_0 dans l'approche HRM-SOW, on part d'une base angulaire non orthogonale formée par les harmoniques bipolaires symétrisées données par l'équation (7.58) et des polynômes de Chebyshev pour l'hyperangle α . On en déduit une base orthogonale par diagonalisation de la matrice de recouvrement. La base adiabatique est finalement obtenue par diagonalisation du hamiltonien à R fixe.

L'obtention du vecteur de coefficients $\tilde{\mathbf{b}}(E)$ dans la base adiabatique permet d'appliquer les outils de la technique HRM-SOW : l'analyse en ondes partielles pour dépouiller la FO des canaux de SI, la propagation hyperradiale jusque dans la région asymptotique et l'extraction des sections efficaces.

7.5 Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre une approche alternative pour l'évaluation des grandeurs physiques caractérisant la double ionisation de l'He

par absorption de photons. Il s'agit de la méthode ESDT/HRM-SOW qui combine astucieusement une méthode spectrale dépendante du temps et la méthode HRM-SOW. La méthode spectrale dépendante du temps présente l'avantage de décrire "*exactement*" l'interaction d'un système atomique avec un champ électromagnétique, mais l'inconvénient majeur est la difficulté à extraire l'information physique dans les cas des continua multiples. Dans la méthode HRM-SOW les informations physiques sont évaluées dans la zone asymptotique et le calcul des sections efficaces est basé sur une approche naturelle basée sur le flux. Le principe de la méthode ESDT/HRM-SOW a été présenté, de même que la technique et les conditions de matching des deux méthodes qui la composent.

Application de la ESDT/HRM-SOW à la DI de l'He par absorption d'un et deux photons

Sommaire

8.1	Introduction	213
8.2	Etude de la double photo-ionisation de l'He	214
8.2.1	Choix de l'hypersphère	216
8.2.2	Résultats et discussions	217
8.3	DI de l'He par absorption de deux photons : résultats à 45 eV et discussions	231
8.4	Conclusion	237

8.1 Introduction

Nous avons posé dans le chapitre précédent les bases théoriques de la méthode ESTD/HRM-SOW dédiée à l'étude de la double ionisation des systèmes atomiques à deux électrons actifs - notamment l'He - par absorption de photons. La motivation principale du développement de cette méthode, nous le rappelons, se trouve dans les désaccords observés entre les différents résultats théoriques des sections efficaces totales de double ionisation de l'He par absorption de deux photons [1] dans le régime direct. L'une des critiques, formulée à l'égard des méthodes dépendantes du temps, est liée au fait que l'extraction

des informations physiques s'effectue à la fin ou juste après la fin de l'interaction, par projection sur une représentation non corrélée du double continuum (notamment un produit de deux fonctions coulombiennes), alors que le PO n'a pas atteint la zone asymptotique [23]. Pour étudier l'effet de la corrélation, Fomouo [29] a évalué les sections efficaces de DI en extrayant du PO les contributions des états liés et celle de la SI; ces dernières étant obtenues par la méthode de la matrice-J qui permet de construire les FO corrélées du simple continuum. De ce fait, les composantes de DI tiennent compte implicitement de la corrélation. Les résultats obtenus par cette technique se trouvent cependant bien au dessus de ceux obtenus par projection sur une représentation non corrélée du continuum, laissant plus d'un perplexe. La question qu'on se pose est celle de savoir si les différences observées sont une signature de l'effet de la prise en compte de la corrélation inter-électronique dans la description du double continuum ou si elles sont un artefact lié à l'utilisation de la méthode.

Pour tenter d'apporter une contribution à la compréhension de ces différences, nous utilisons la méthode ESDT/HRM-SOW qui combine une approche spectrale dépendante du temps dont le mérite est d'apporter un traitement "*exact*" de l'interaction atome-champ et l'approche HRM-SOW qui permet d'extraire les sections efficaces dans la zone asymptotique. Pour valider l'approche, nous l'appliquons à l'étude de la DI de l'He par absorption d'un photon dont les résultats ne souffrent d'aucune controverse. Dans la deuxième section nous présentons les résultats de la DI par absorption de deux photons à 45 eV pour répondre à la question sur le rôle présumé de la prise en compte de la corrélation électronique dans la surestimation des sections efficaces de DI par la méthode de la matrice-J.

8.2 Etude de la double photo-ionisation de l'He

Pour tester la faisabilité de la méthode et valider l'approche que nous avons présentée dans la chapitre précédent, nous étudions l'ionisation de l'He par absorption d'un photon à partir de l'état singulet $1S^e$. Pour ce cas test, nous considérons l'interaction du système avec un champ électromagnétique polarisé linéairement suivant l'axe z défini par l'équation (7.4). Les profils temporel et spectral du champ sont respectivement représentés sur les figures 8.1 et 8.2. L'intensité pic du champ vaut 10^{13} W/cm² qui correspond à une amplitude $E_0 = 0.053$ u.a.. La fréquence du champ $\omega = 3.2$ u.a. soit 87 eV est

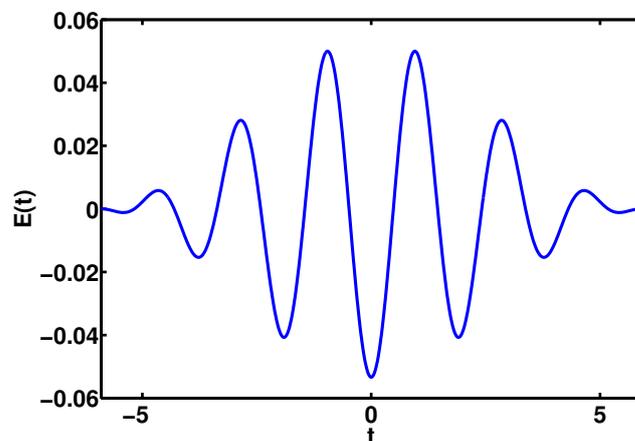


FIGURE 8.1 – Profil temporel du champ électrique $E(t)$ d'intensité $I = 10^{13}$ W/cm², de fréquence $\omega = 3.2$ u.a. et de durée totale égale à 6 cycles optiques.

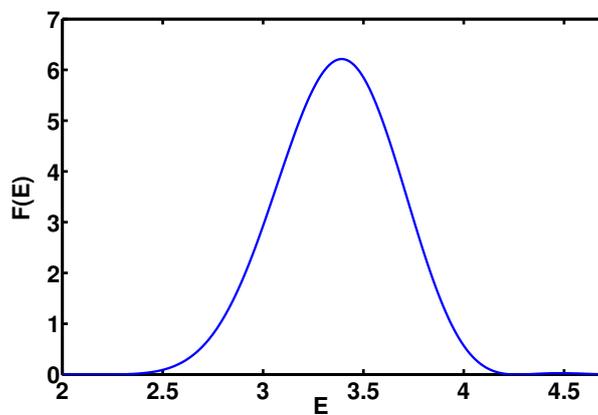


FIGURE 8.2 – Profil spectral $F(E)$ du champ électrique $E(t)$ d'intensité $I = 10^{13}$ W/cm², de fréquence $\omega = 3.2$ u.a. et de durée totale égale à 6 cycles optiques.

choisie (supérieure au seuil de double ionisation à ≈ 2.9 u.a. du fondamental) de sorte que les électrons initialement dans l'état fondamental $1S^e$ de l'He, puissent atteindre les états de symétrie $1P^o$ en absorbant un photon. La durée totale de l'interaction est $N_{cycles} = 6$.

8.2.1 Choix de l'hypersphère

L'un des prérequis à l'utilisation de la méthode ESDT/HRM-SOW est la détermination de l'hypersphère sur laquelle la TF du PO est calculée en vue d'obtenir la FO stationnaire d'énergie E souhaitée. Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre précédent, l'hypersphère en question doit répondre aux deux exigences suivantes :

- elle ne peut être atteinte par le PO ionisé avant la fin de l'interaction : condition nécessaire pour que la TF du PO soit stationnaire et donc éligible pour la traitement semiclassique ;
- le PO ionisé doit avoir entièrement traversé l'hypersphère à la fin de la propagation sans champ.

A cet effet, on pourrait choisir R le plus grand possible pour être certain que l'hypersphère ne soit pas atteinte par la PO durant l'interaction et se contenter de propager jusqu'à ce que le PO l'ait entièrement traversée. Les deux conditions seraient ainsi remplies. Cependant, les problèmes de réflexions et les contraintes numériques liées à l'utilisation de grandes bases qui résulteraient de l'approche spectrale que nous utilisons ne nous permettent pas d'envisager cette solution. Ce qui nous amène alors à déterminer l'*hyperrayon critique* R_0 remplissant les deux conditions sus-évoquées. Cet hyperrayon doit néanmoins être suffisamment grand pour que les premiers états liés se découplent du reste du PO en vue de l'extraction des premiers canaux de SI par l'analyse en ondes partielles adiabatiques de l'approche HRM-SOW.

La borne inférieure $R_{0_{inf}}$ de R_0 est fixée par la distance totale parcourue par les électrons les plus rapides du paquet d'onde ionisé à la fin de l'interaction. Il s'agit des électrons issus du premier canal I_1^+ de SI d'énergie $3.2 - 0.9 = 2.3$ u.a., laissant l'ion résiduel dans l'état fondamental de l'He⁺. Ce sont essentiellement ces électrons qui sont concernés par la première exigence ci-dessus. En supposant que ces derniers soient émis au début de l'interaction,

la borne $R_{0_{inf}}$ est donc donnée de façon "approximative" par :

$$R_{0_{inf}} = v_{I_1^+} \times T = \sqrt{2(\omega - I_1^+)} \times T. \quad (8.1)$$

T désigne la durée totale de l'interaction et $v_{I_1^+}$ la vitesse des électrons ionisés issus du canal I_1^+ .

La borne supérieure $R_{0_{sup}}$ de R_0 est donnée par la distance parcourue par les électrons les plus lents, issues des canaux de DI à la fin de la propagation. Les deux électrons dans la voie de sortie se partagent l'excès d'énergie au dessus du seuil de DI qui est égal à $(\omega - I^{2+})$. La vitesse de chacun des électrons peut de ce fait varier de 0 à $\sqrt{2(\omega - I^{2+})}$. Compte tenu de la symétrie dans le partage d'énergie entre les deux électrons (l'émission de l'électron 1 avec le maximum d'énergie induit une énergie nulle pour l'électron 2 et vice-versa), on peut se restreindre à la plage de vitesse allant de $\sqrt{(\omega - I^{2+})}$ à $\sqrt{2(\omega - I^{2+})}$. L'estimation meilleure la plus rigoureuse de $R_{0_{sup}}$ serait

$$R_{0_{sup}} = \sqrt{(\omega - I^{2+})} \times (T + T_{libre}), \quad (8.2)$$

où T_{libre} désigne la durée de la propagation après l'interaction, durant laquelle le paquet d'onde évolue librement. Mais nous nous contentons de l'estimation grossière

$$R_{0_{sup}} = \sqrt{2(\omega - I^{2+})} \times (T + T_{libre}). \quad (8.3)$$

Cette estimation pourrait avoir pour conséquence une sous-estimation du flux des électrons issus des canaux de DI du fait qu'une partie des électrons de DI n'ait pas traversé l'hypersphère à la fin de la propagation. Cependant, nous verrons dans la suite que leur contribution est négligeable. Par ailleurs, $R_{0_{inf}} \leq R_{0_{sup}}$ pour que les électrons les plus rapides n'atteignent l'hypersphère qu'après la fin de l'interaction.

Pour le champ de fréquence $\omega = 3.2$ u.a. considéré, de durée totale égale à 6 cycles optiques et une valeur $T_{libre} = 20$ u.a., nous obtenons $R_{0_{inf}} \simeq R_{0_{sup}} \simeq 25$ u.a., fixant ainsi la valeur de R_0 .

8.2.2 Résultats et discussions

8.2.2.1 Validation de R_0 par l'analyse du flux

Le rayon *idéal* de l'hypersphère ayant été estimé, nous le validons, en vérifiant que les deux exigences recherchées sont remplies, par l'analyse du flux à

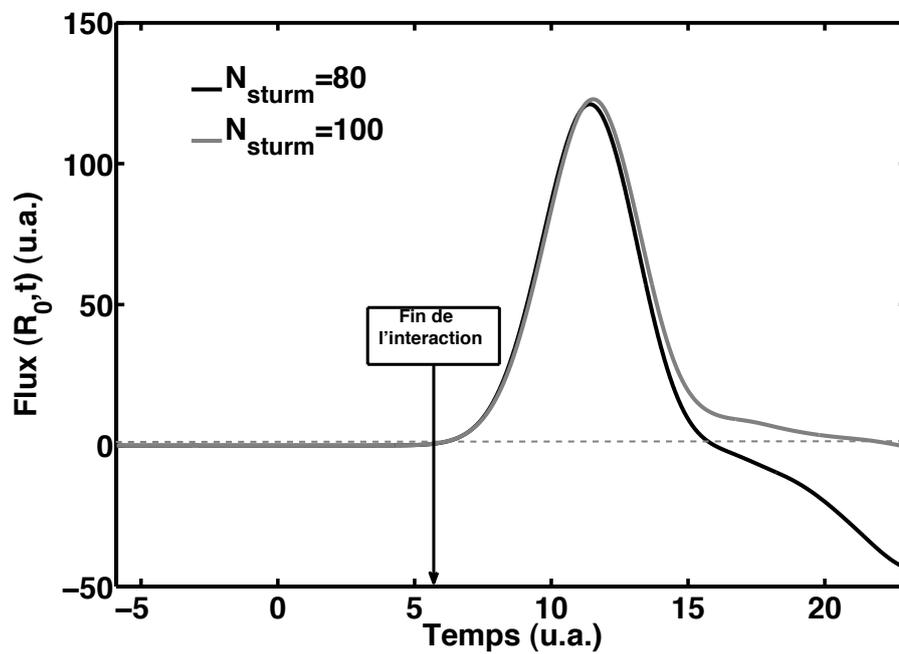


FIGURE 8.3 – Evolution du flux traversant la sphère de rayon $R_0 = 25$ u.a. durant la propagation en fonction du nombre de fonctions de base. Le paramètre non linéaire $\kappa = 2$. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{13}$ W/cm², de fréquence $\omega = 3.2$ u.a. et de 6 cycles optiques.

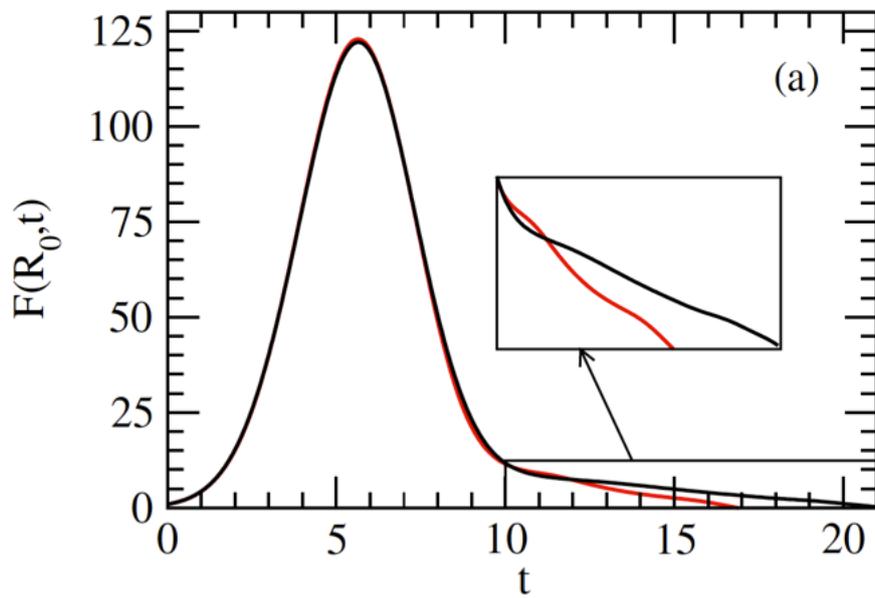


FIGURE 8.4 – *Comparaison de l'évolution du flux traversant la sphère de rayon $R_0 = 25$ u.a. durant la propagation obtenue avec une base de 100 sturmiennes de paramètre $\kappa = 2$ (rouge) et de celle obtenue avec une base de 60 B-splines d'ordre 8 (séquence de noeuds linéaire) couvrant une boîte de 50 u.a. (noir) [189].*

travers l'hypersurface déterminée par ce rayon. Nous analysons également la convergence des résultats en fonction des paramètres de la base. Les résultats exprimés en kb sont obtenus en divisant le flux par le flux de photons intégré sur le temps qui est égal à $3IT/(8\hbar\omega)$ (kb^{-1}). Le facteur 3/8 provient du profil temporel de l'impulsion.

Sur la figure 8.3, nous représentons en fonction du temps le flux traversant la sphère de rayon $R_0 = 25$ u.a., selon que le nombre N_{sturm} de sturmiennes par électron et par moment angulaire l soit égal à 80 ou 100. Le paramètre non linéaire des fonctions sturmiennes $\kappa = 2$ (nous reviendrons sur le choix de cette valeur dans la suite). La valeur maximale du moment angulaire associé à chaque électron $l_{max} = 3$ et le moment angulaire total maximal $L_{max} = 2$. On peut noter que la valeur de R_0 et le nombre de sturmiennes utilisées dans les deux bases permettent de satisfaire la première exigence. En effet, dans les 2 cas, le flux ne commence à traverser qu'après fin de l'interaction avec le champ, montrant ainsi que la première condition est satisfaite. Le pic observé est la signature des électrons rapides issus des canaux de SI qui traversent la sphère. On remarque cependant que lorsque 80 sturmiennes sont utilisées, le flux change de signe autour de $t = 16$ u.a., alors qu'avec 100 sturmiennes, le flux présente une longue "queue" qui tend *régulièrement* vers zéro et ne devient négatif qu'autour de $t = 22$ u.a.. Ce changement de signe traduit le retour des électrons rapides qui ont subi une réflexion aux frontières imposées par la taille de la base. Pour preuve, l'augmentation du nombre de fonctions de base, qui permet d'étendre spatialement la zone *proprement décrite* par les fonctions de base, améliore les résultats. Nous insistons sur le terme *proprement* parce qu'en réalité, le domaine spatial couvert par la base s'étend bien au-delà de la zone où les électrons subissent les réflexions. Par exemple, la sturmienne de paramètres $n = 20$, $\kappa = 2$ et $l = 0$ a une extension spatiale supérieure à 60 u.a., alors que le graphe indique que les réflexions ont lieu bien avant 50 u.a. pour une base de 80 sturmiennes (paramètre n de l'ordre de 80) par moment angulaire. Ceci tient au fait que la pseudo-période d'oscillation des fonctions sturmiennes de paramètre κ donné augmente avec r . Pour de grandes valeurs de r , cette période devient beaucoup trop grande pour pouvoir décrire l'oscillation des électrons émis dans le continuum. D'autre part, la densité et le recouvrement entre les fonctions de base à grande distance sont faibles. Ces deux effets combinés expliquent pourquoi les réflexions ont lieu beaucoup plus tôt et justifient l'expression *zone proprement décrite*.

Sur la figure 8.4, nous comparons le résultat que nous avons obtenu avec une base de 100 fonctions sturmiennes de paramètre $\kappa = 2$ avec celui obtenu avec une base de 60 B-splines d'ordre 8 (séquence de noeuds linéaire) couvrant une boîte de 50 u.a. [189]. Il est intéressant de remarquer que malgré le nombre plus élevé de sturmiennes, le flux est davantage affecté par les réflexions comparativement aux B-splines. Ce qui conforte l'idée selon laquelle les fonctions B-splines permettent de mieux décrire le continuum et de mieux gérer les problèmes de réflexion.

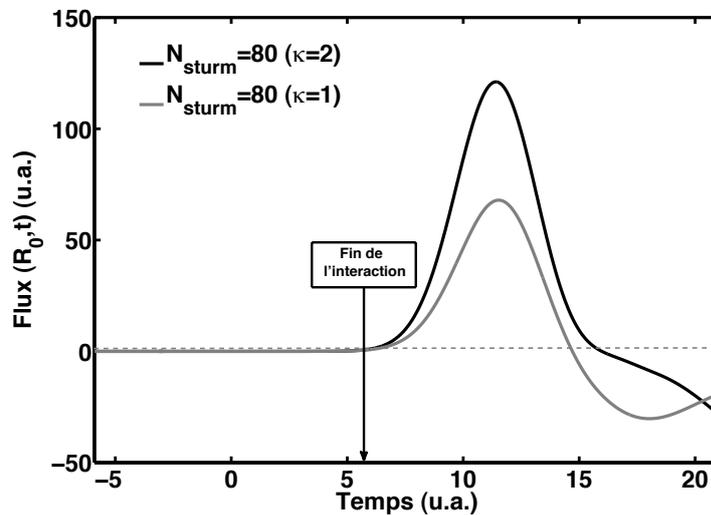


FIGURE 8.5 – Influence du paramètre non-linéaire κ sur le flux traversant la sphère de $R_0 = 25$. Nous considérons un nombre $N_{sturm} = 80$ de fonctions de base par électron et un champ d'intensité $I = 10^{13}$ W/cm², de fréquence $\omega = 3.2$ u.a. et de 6 cycles optiques.

Nous avons mentionné en présentant les fonctions sturmiennes que le paramètre κ , encore appelé *paramètre de dilatation* [29, 166, 188], permet de modifier l'étendue des fonctions sturmiennes. En effet, les fonctions sturmiennes deviennent spatialement plus étendues lorsqu'on diminue κ comme nous l'avons montré sur la figure 4.1. On pourrait penser à tort qu'en diminuant la valeur de κ , on amoindrirait les problèmes de réflexion comme on l'a toujours

laissé penser. Nous montrons grâce à la figure 8.5 qu'il n'en est rien. Bien au contraire, la diminution du paramètre κ détériore davantage les résultats, signifiant que les réflexions ont lieu beaucoup plus tôt. Ceci s'explique par le fait que l'extension des fonctions sturmiennes a également pour effet pervers d'augmenter la pseudo-période des fonctions sturmiennes, pour n fixé. On comprend aisément, au regard de la remarque faite dans le paragraphe précédent pourquoi les résultats se détériorent plus tôt. Par ailleurs, l'augmentation du paramètre κ , quoiqu'augmentant la densité des fonctions de base, réduit leurs extensions spatiales. Les tests que nous avons effectués ont montré que les valeurs optimales se trouvent au voisinage de $\kappa = 2$. C'est peut être ce qui explique que cette valeur ait en général été utilisée pour les études menées sur l'atome d'hélium [29, 188].

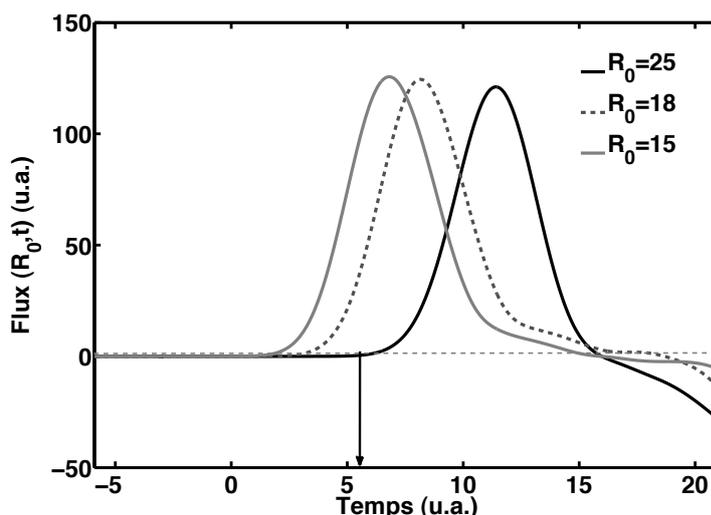


FIGURE 8.6 – Evolution du flux traversant les sphères de rayons $R_0 = 25, 18, 15$ u.a. durant la propagation. Nous utilisons une base de 80 sturmiennes de paramètre $\kappa = 2$. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{13}$ W/cm², de fréquence $\omega = 3.2$ u.a. et de 6 cycles optiques.

Pour terminer cette sous-section, nous analysons sur la figure 8.6 l'évolution du flux à travers les sphères de rayons $R_0 = 25, 18, 15$ u.a.. Nous utilisons

80 sturmiennes de paramètre $\kappa = 2$ par moment angulaire l pour décrire chaque électron. Comme on pouvait s'y attendre, plus le rayon R_0 diminue, plus tôt les premiers électrons atteignent la sphère et mieux on distingue la partie de la courbe correspondant au passage des électrons *lents* issus des canaux de DI. Malheureusement, la première condition nécessaire pour que le traitement SOW soit applicable, à savoir que le PO n'atteigne l'hypersphère qu'après la fin de l'interaction, n'est plus remplie. Mais cette technique peut néanmoins être intéressante pour l'évaluation de la probabilité d'ionisation totale comme nous le montrerons dans la sous-section suivante.

8.2.2.2 Du flux à la section efficace totale

Les sections efficaces totales sont obtenues, en ce qui concerne la méthode ESDT/HRM-SOW, en intégrant sur le temps le flux traversant la surface choisie. Nous comparons ces résultats aux résultats expérimentaux [190].

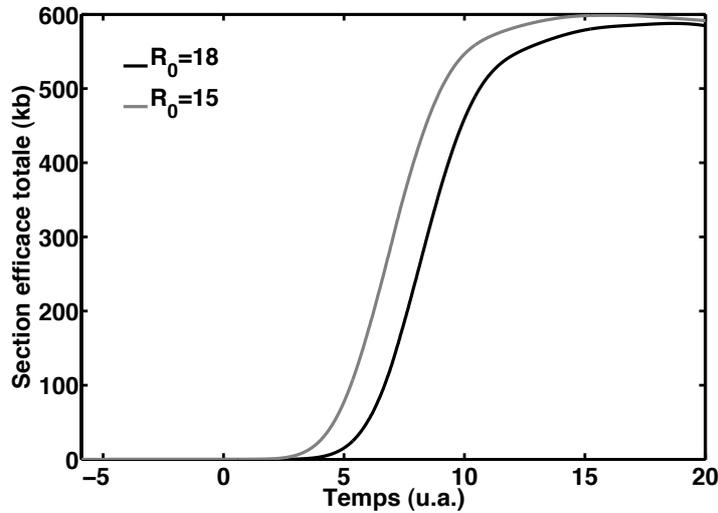


FIGURE 8.7 – Flux intégré sur le temps de $-T$ à t , renormalisé pour produire les sections efficaces pour $t \rightarrow \infty$, et calculé à travers les sphères de rayons $R_0 = 15$ u.a. et $R_0 = 18$ u.a.. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{13}$ W/cm², de fréquence $\omega = 3.2$ u.a. et de 6 cycles optiques.

Nous présentons sur la figure 8.7 le flux intégré sur le temps de $-T$ à t et renormalisé pour produire les sections efficaces pour $t \rightarrow \infty$ pour les cas présentés sur la figure 8.6. Nous considérons les sphères de rayons $R_0 = 15$ u.a. et $R_0 = 18$ u.a.. Dans le premier cas ($R_0 = 15$ u.a.), le flux intégré atteint la valeur 598,7 kb à $t = 15,24$ u.a. et garde la même valeur jusqu'à $t = 16,35$ u.a.. Cette stabilisation traduit le fait que tous les électrons émis ont traversé la sphère et donc que cette valeur correspond à la section efficace totale. Cette valeur est en accord avec les résultats expérimentaux [190]. Dans le deuxième cas ($R_0 = 18$ u.a.), le flux intégré ne plafonne qu'à 587,8 kb à $t = 18,86$ u.a. du fait de la réflexion évoquée précédemment.

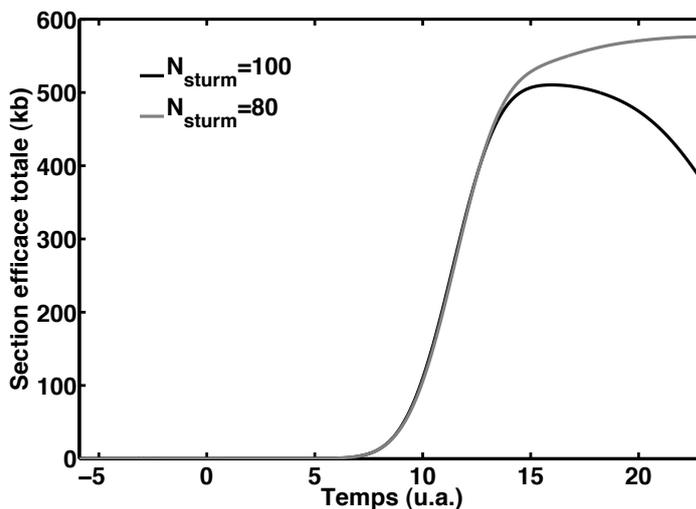


FIGURE 8.8 – Flux intégré sur le temps à travers la sphère de rayon $R_0 = 25$ u.a. en fonction du nombre de fonctions de base ($N_{sturm} = 100$ et $N_{sturm} = 80$). Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{13}$ W/cm², de fréquence $\omega = 3.2$ u.a. et de 6 cycles optiques.

Sur les graphes 8.8 et 8.9, nous présentons les résultats du flux intégré à travers l'hypersphère de rayon $R_0 = 25$ u.a. obtenus respectivement avec les sturmiennes ($N_{sturm} = 80$ et $N_{sturm} = 100$) et les B-splines. La courbe obtenue avec la base de 80 sturmiennes montre une fois de plus l'effet de la réflexion sur

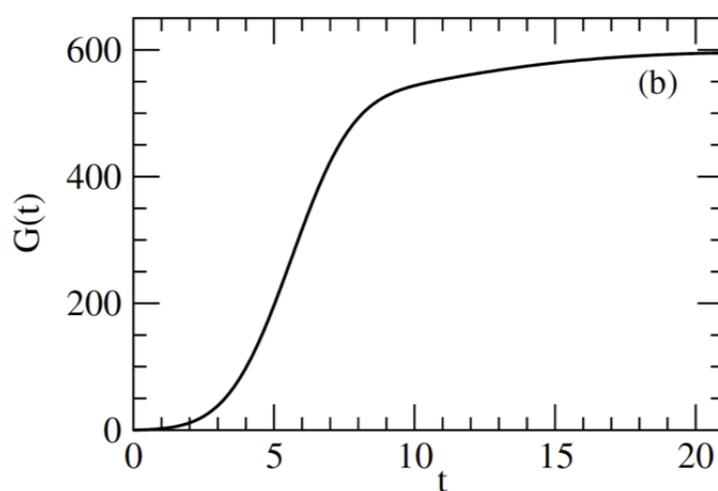


FIGURE 8.9 – Flux à travers la sphère de rayon $R_0 = 25$ u.a. intégré sur le temps obtenu avec la base de B-splines [189]. Nous considérons un champ d'intensité $I = 10^{13}$ W/cm², de fréquence $\omega = 3.2$ u.a. et de 6 cycles optiques.

TABLE 8.1 – Sections efficaces de SI et DI intégrées (en kb) à 87 eV. Les résultats 2C sont obtenus par projection, les résultats ESDT/HRM-SOW sont obtenus par l'approche hybride avec une base de B-splines et les résultats HRM-SOW sont obtenus pas la méthode HRM-SOW originale.

	2C [189]	ESDT/HRM-SOW [189]	HRM-SOW [189]	EXP [190]
σ_{tot}	594	594	589	570 ± 9
σ_1^+	530	520	520	510 ± 10
σ_2^+	41	53	43.7	41.5 ± 2
σ^{2+}	5.7	6	7.42	7.1 ± 0.5

la section efficace totale attendue et par conséquent sur l'estimation des autres grandeurs physiques. L'augmentation de la taille de la base permet d'atteindre 576, 1 kb, valeur qui se trouve être proche de la valeur expérimentale 570 ± 9 kb obtenue par Bizau et al. [190]. Cette valeur reste néanmoins inférieure à celle obtenue avec les B-splines (594 kb) à cause des réflexions qui ont été identifiées en fin de propagation sur la figure 8.4. Il convient de souligner qu'il n'a pas été possible d'augmenter la taille de la base pour améliorer les résultats à cause d'une part de la taille des matrices à gérer et d'autre part de la raideur croissante de l'ESDT engendrée. A titre d'exemple, le pas de propagation pour une base de 100 sturmiennes par électron est de l'ordre de 10^{-5} (méthode explicite de Fatunla), nécessitant pour un seul run un peu plus de 20 jours de calcul pour un programme exécuté en parallèle sur 8 processeurs.

Néanmoins, l'accord de la section efficace totale obtenue par intégration du flux traversant la sphère de $R_0 = 25$ u.a. avec les résultats expérimentaux montre d'une part que l'approximation dans la relation 8.3 pour l'évaluation de $R_{0_{sup}}$ est tout à fait raisonnable et d'autre part montre la validité de la nouvelle approche pour l'évaluation des sections efficaces totales.

8.2.2.3 Sections efficaces de SI et DI

Les sections efficaces totales obtenues avec la base de B-splines étant plus précises, nous ne présentons dans cette sous-section que les résultats qui ont été obtenus dans cette base [189].

Dans le tableau 8.1, nous comparons les sections efficaces totales ainsi que

les sections efficaces des deux premiers canaux de SI (σ_1^+ et σ_2^+) et de DI (σ^{2+}), obtenues par trois méthodes théoriques avec les résultats expérimentaux [190]. Les résultats 2C ont été obtenus en projetant le PO obtenu à l'issue de l'interaction sur le produit de l'état lié concerné de l'ion He^+ de charge effective $z = 1$ et d'une fonction coulombienne pour l'extraction des sections de SI, ou d'un produit de deux fonctions coulombiennes de charge $z = 2$ pour l'extraction des sections de DI, et ce 10 u.a après la fin de l'interaction. Les résultats ESDT/HRM-SOW sont ceux obtenus avec la présente approche, tandis que les résultats HRM-SOW sont ceux obtenus par l'approche stationnaire HRM-SOW. Il convient de rappeler que ces deux dernières approches ne diffèrent ici que par le traitement dans la zone interne qui permet de fournir la solution initiale en R_0 . Dans la méthode ESDT/HRM-SOW, nous utilisons une approche dépendante du temps combinée avec une TF du PO, alors que la méthode HRM-SOW utilise la théorie des perturbations au premier ordre. L'accord en ce qui concerne les sections efficaces totales entre les trois méthodes théoriques et la valeur expérimentale est globalement satisfaisant. En ce qui concerne les sections efficaces de SI et DI, l'accord entre les résultats HRM-SOW et expérimentaux est très bonne. Le fait que les résultats HRM-SOW soient plus proches des résultats expérimentaux tient au fait que l'approximation du champ quasi-stationnaire (relations (7.29) et (7.30)) utilisée dans cette approche est en phase avec la durée des rayonnements synchrotron. Cette comparaison permet de valider le traitement SOW. L'écart observé, pour le deuxième canal de SI, entre la 2C et l'ESDT/HRM-SOW est probablement dû à la technique d'extraction de ces grandeurs. En ce qui concerne l'amplitude des sections efficaces de DI, les écarts observés entre les méthodes 2C et ESDT/HRM-SOW d'une part, et les méthodes HRM-SOW et EXP d'autre part, sont liés au fait que le nombre de cycles (6 cycles) utilisé pour les deux premières méthodes est relativement faible comparé à la durée des impulsions délivrées par le rayonnement synchrotron comme nous l'avons déjà fait remarquer. Rappelons que dans la méthode HRM-SOW, on suppose que le champ électromagnétique est quasi-stationnaire et qu'il est en effet admis qu'il faut au minimum 10 cycles optiques pour que cette approximation soit utilisée.

Sur le graphe 8.10, nous présentons les sections efficaces différentielles de DI en énergie (SDCS) (kb/eV) à 87 eV en fonction du rapport (E_2/E) de l'énergie d'émission d'un des électrons sur l'excès d'énergie au dessus du seuil de DI, obtenues par les méthodes ESDT/HRM-SOW (continu), 2C (interrompu) et

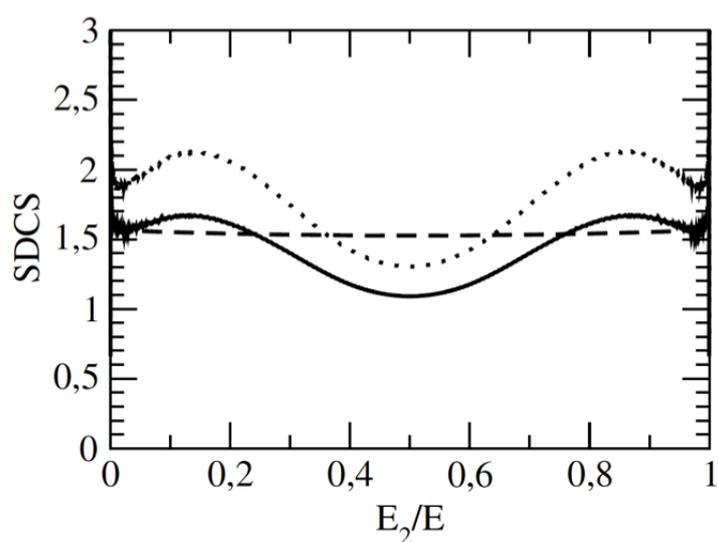


FIGURE 8.10 – Sections efficaces différentielles de DI en énergie (kb/eV) à 87 eV en fonction du ratio entre E_2/E de l'énergie d'émission d'un des électrons sur l'excès d'énergie totale au dessus du seuil de DI, obtenues par les méthodes ESDT/HRM-SOW (continu), 2C (interrompu) et HRM-SOW (en pointillé) [189].

HRM-SOW (en pointillé). En principe, la surface en dessous de la SDCS (l'intégration de la SDCS) multipliée par E (en eV), devrait être égale au double des sections efficaces totales de DI σ^{2+} présentées dans le tableau 8.1. Si les résultats ESDT/HRM-SOW et HRM-SOW permettent de retrouver les valeurs correspondantes du tableau, le résultat 2C est un peu plus élevé (≈ 6.12 kb) [189]. Cette différence est attribuée à la technique utilisée pour évaluer la SDCS [189]. En ce qui concerne les résultats, les courbes ESDT/HRM-SOW et HRM-SOW sont qualitativement en accord. La différence en amplitude est la conséquence de l'écart entre les sections efficaces totales de DI σ^{2+} présentées dans le tableau 8.1, écart que nous avons attribué à la durée du champ. Par ailleurs, on note des oscillations aux bords ($E_2 = 0$ et $E_2 = E$) dans les courbes des approches ESDT/HRM-SOW et HRM-SOW. Ces oscillations sont un artefact propre à la méthode et sont liées au rayon relativement petit R_0 de la surface de séparation entre la zone interne et la zone externe où s'effectue le raccordement. L'amplitude de ces oscillations devient négligeable lorsque R_0 devient grand comme le suggère l'étude sur la convergence des sections efficaces différentielles triples de DI en fonction de R_0 présentée par Selles et al. [191].

Sur le graphe 8.11, nous comparons les sections efficaces différentielles en énergie et en angle de DI (kb/(eV.sr²)) à 87 eV en fonction de l'angle d'émission des deux électrons obtenues avec les méthodes ESDT/HRM-SOW (en continu), 2C (en interrompu), HRM-SOW (en pointillé) et les résultats expérimentaux (EXP) (cercles pleins avec barre d'erreur) pour deux situations différentes. Dans le cas (a), les électrons se partagent également ($E_2/E_1 = 1$) l'excès d'énergie au dessus du seuil alors que le cas (b) correspond à un partage fortement asymétrique ($E_2/E_1 = 8$). Les résultats expérimentaux sont ceux obtenus par Soejima et al. [192] suite à l'ionisation de l'He par un flux de photons de 87 eV. Un des électrons est détecté suivant la diagonale du plan OXY et le second électron est détecté selon une direction (du même plan) repérée par l'angle formé par les deux directions. Tous les résultats ont été normalisés à ceux obtenus par l'approche HRM-SOW pour des raisons liées d'une part à la durée de l'interaction en ce qui concerne la comparaison (2C et ESDT/HRM-SOW) versus (HRM/SOW et EXP), et d'autre part aux oscillations dans les résultats présentés sur la figure 8.10 en ce qui concerne la comparaison 2C versus ESDT/HRM-SOW. L'accord raisonnable entre les résultats de DI par absorption d'un photon permet ainsi de valider l'approche

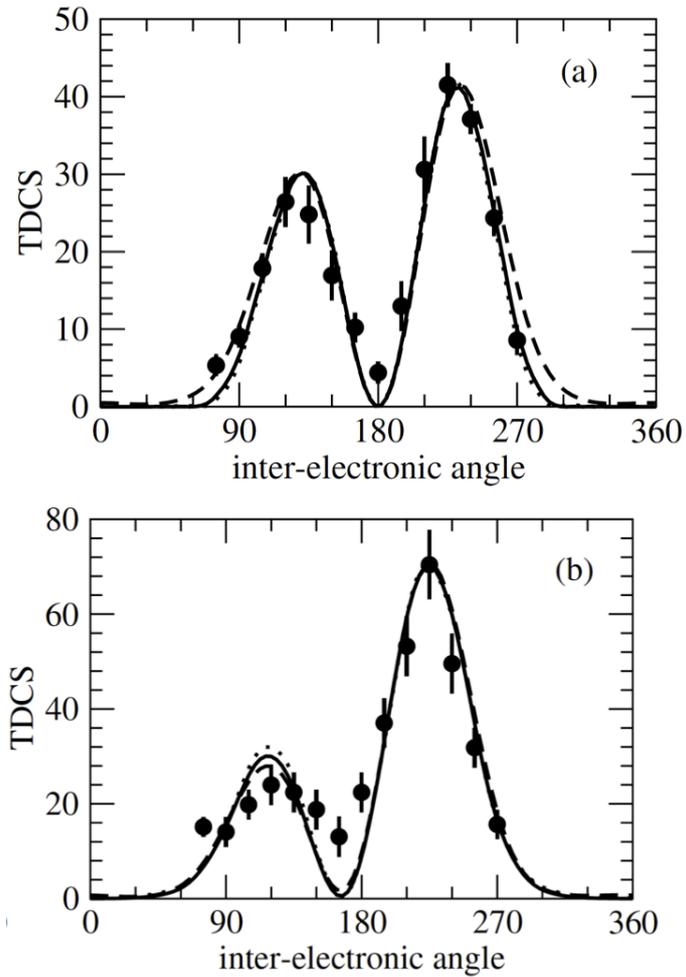


FIGURE 8.11 – Comparaisons des sections efficaces différentielles en énergie et en angle de DI ($\text{kb}/(\text{eV} \cdot \text{sr}^2)$) à 87 eV en fonction de l'angle d'émission des deux électrons. (a) $E_2/E_1 = 1$, (b) $E_2/E_1 = 8$. ESDT/HRM-SOW (en continu), 2C (en interrompu), HRM-SOW (en pointillé) et résultats expérimentaux (cercles pleins avec barre d'erreur) [189].

ESDT/HRM-SOW et de l'appliquer à la très controversée DI de l'He par absorption de deux photons.

8.3 DI de l'He par absorption de deux photons : résultats à 45 eV et discussions

Les résultats pour la DI de l'He par absorption de deux photons présentés dans cette section ont été obtenus exclusivement en résolvant l'ESDT dans une base de fonctions B-splines. Nous ne présentons que les résultats et conclusions essentiels [193] auxquels la méthode ESDT/HRM-SOW a permis d'aboutir.

On considère l'interaction de l'atome d'He avec un champ donné par l'équation 7.6, avec une enveloppe $f(t)$ en sinus carré. Un champ d'intensité $I = 10^{13}$ W/cm² (soit $E_0 = 0.0168$), de fréquence $\omega = 1.65$ u.a. et de 10 cycles optiques a été utilisé. La fréquence $\omega = 1.65$ u.a. (soit 45 eV) est choisie de sorte que les électrons, initialement dans l'état fondamental $1S^e$ de l'He, puissent atteindre les états de symétrie $1S^e$ et $1D^e$ en absorbant deux photons. Par ailleurs, la largeur spectrale ($1.44 \frac{\omega}{N_{cycles}} = 0.24$) de l'impulsion correspondant à 10 cycles optiques est telle que la TF du champ s'étend de 1.41 u.a. à 1.89 u.a., soit une limite inférieure approximativement égale à 1.45 u.a., l'énergie nécessaire pour la DI par absorption de deux photons. La limite supérieure de la valeur d'énergie de la TF est quant à elle plus petite que le seuil d'énergie 2 u.a. pour l'ionisation séquentielle. L'ionisation dans ces conditions ne peut avoir lieu que de façon directe, i.e les deux électrons sont éjectés dans un intervalle de temps plus court que le temps de relaxation sur un état lié de l'ion He⁺. D'autre part, la notion de section efficace trouve ici tout son sens, car la durée de l'interaction (10 cycles optiques) autorise l'approximation quasi-stationnaire pour le champ et l'intensité du champ ($I = 10^{13}$ W/cm²) autorise un traitement perturbatif. Il convient de souligner que pour déterminer R_0 grâce à l'équation 8.3, la durée du impulsion a été définie comme $\frac{T}{2} + \frac{T_{eff}}{2}$ où T_{eff} est la durée effective de l'interaction [194] donnée par :

$$T_{eff} = \int_{-\infty}^{+\infty} (f(t))^{2p} dt. \quad (8.4)$$

T_{eff} vaut $\frac{3}{8}T$ pour les processus à un photon ($p = 1$) et $\frac{25}{128}T$ pour les processus à deux photons ($p = 2$). T et $f(t)$ représentent respectivement la durée totale

et l'enveloppe du champ. L'étude de la stabilité de la méthode en fonction du rayon R_0 , précisément la stabilité du flux et des sections efficaces de DI du bloc de symétrie $^1D^e$ du PO pour différentes valeurs du rayon, a permis de déterminer l'intervalle $22 < R_0 < 28$ u.a. [193].

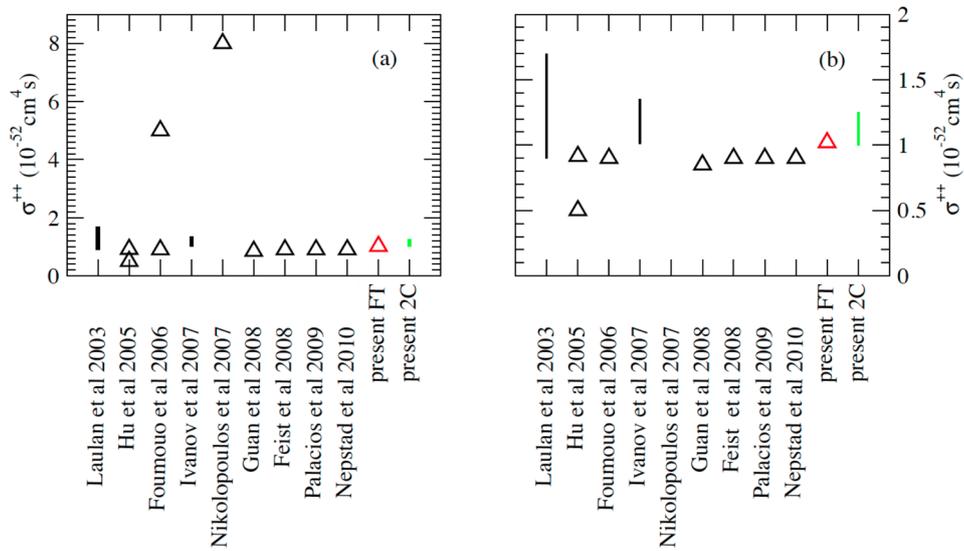


FIGURE 8.12 – Comparaison des sections efficaces totales de DI présentées sur la figure 1.1 et celles obtenues par les méthodes ESDT/HRM-SOW (triangle rouge) et 2C (barre verte) pour un champ d'intensité $I = 10^{13} \text{ W/cm}^2$, de fréquence $\omega = 1.65$ u.a. et de 10 cycles optiques [193]. Sur le graphe (a), tous les résultats sont présentés. Sur le graphe (b), on effectue un zoom sur les résultats théoriques en accord.

Sur la figure 8.12, nous comparons les sections efficaces totales de DI obtenues grâce aux méthodes ESDT/HRM-SOW (triangle rouge) et 2C (barre verte), et celles présentées sur la figure 1.1 [193]. Les résultats montrent que la section efficace de DI obtenue par l'approche ESDT/HRM-SOW (present FT) est en accord non seulement avec celle obtenue en projetant le PO sur un produit de deux fonctions coulombiennes (present 2C) mais aussi avec la

grande majorité des résultats théoriques à l'exception du résultat de Fomouou et al. [14] obtenu avec la méthode de la matrice-J et de celui de Nikopoulos et al. [15]. Dans ces deux derniers cas, la corrélation entre les deux électrons est censée être prise en compte dans la description du continuum. Le résultat 2C diffère de ceux obtenus par la même technique du fait que la projection sur un produit de deux fonctions coulombiennes de charge effective $Z = 2$ s'effectue quelques unités atomiques après l'interaction et non immédiatement à la fin comme dans la plupart des cas. Le résultat 2C est représenté par une barre dont l'extrémité inférieure correspond à la valeur obtenue lorsque l'ESDT est résolue dans la représentation d'interaction et l'extrémité supérieure à celle obtenue dans la représentation de Schrödinger. Les résultats dans les deux représentations ne sont pas identiques parce qu'un produit de deux fonctions coulombiennes n'est pas un état stationnaire du hamiltonien atomique dans la représentation de Schrödinger [29].

Les résultats présentés sur la figure 8.12 permettent de dire, sans risque de se tromper, que l'effet de la prise en compte ou non de la corrélation entre les deux électrons dans la voie de sortie est négligeable et n'influe sur pas la section efficace de DI au point de justifier l'écart par rapport aux résultats de Fomouou et al. [14] et de Nikopoulos et al. [15]. En effet la méthode ESDT/HRM-SOW, dans laquelle la section efficace est évaluée directement à partir de la TF du PO et sans projection prend totalement en compte la corrélation dans la voie de sortie. Par contre dans la méthode 2C, on projette le PO sur une représentation du double continuum où la corrélation est négligée. L'accord entre ces deux résultats suggère que l'effet de la corrélation est négligeable et donc qu'un produit de deux fonctions coulombiennes peut être utilisé en bonne approximation pour décrire le double continuum électronique.

S'il s'avère (communication privée) aujourd'hui que les résultats de Nikopoulos et al. [15] sont erronés, il est important de comprendre pourquoi la méthode de la matrice-J fournit une section efficace de DI au dessus des autres résultats théoriques. Sur la figure 8.13, sont comparées les sections efficaces des 8 canaux $n = 1 - 8$ de l'He⁺ obtenues par la ESDT/HRM-SOW (en vert) et par la méthode de la matrice-J (en rouge) pour un champ d'intensité $I = 10^{13}$ W/cm², de fréquence $\omega = 1.65$ u.a. et de durée totale 10 cycles optiques. Alors que les sections efficaces totales (SI+DI) sont du même ordre de grandeur (1.67×10^{-51} cm⁴.s avec l'ESDT/HRM-SOW et 1.73×10^{-51} cm⁴.s avec la MMJ), la figure 8.13 montre que la distribution des électrons dans les

différents canaux de SI n'est pas la même entre les deux méthodes et d'autre part que la contribution totale des canaux de SI obtenue avec la méthode de la matrice-J est plus petite. Cette sous-estimation de la section efficace partielle de SI est, de notre point de vue, la raison de la surestimation de la section efficace de DI. Cette sous-estimation de la section efficace de SI pourrait être elle-même liée, comme le suggère la figure 8.14, aux réflexions qui ont pour effet de diminuer la section efficace du canal SI_2^+ , et donc la conséquence est la surestimation de la section efficace de DI. Mais comment expliquer ce fait ?

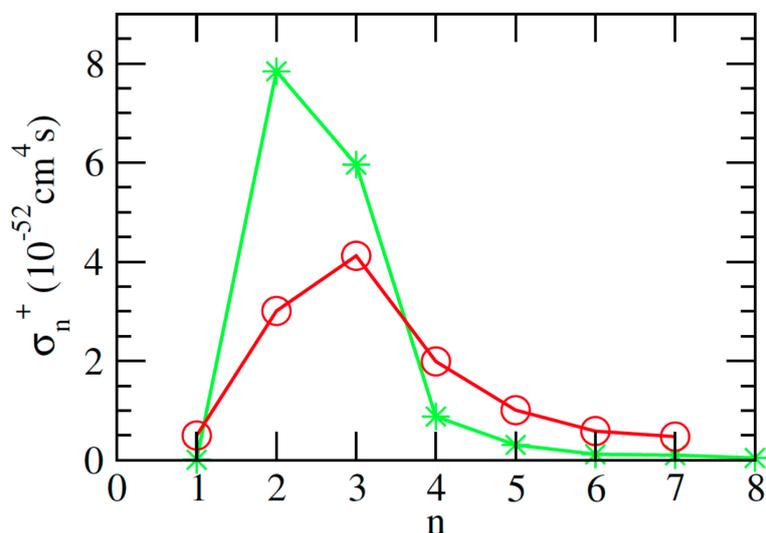


FIGURE 8.13 – Sections efficaces partielles des 8 premiers canaux $n = 1 - 8$ de l'He⁺ obtenues par la ESDT/HRM-SOW (en vert) et par la méthode de la matrice-J (en rouge) [29] pour un champ d'intensité $I = 10^{13}$ W/cm², de fréquence $\omega = 1.65$ u.a. et de durée totale égale à 10 cycles optiques [193].

Ivanov et al. [195] avaient déjà suggéré que ce problème pouvait être lié au fait que la MMJ ne serait pas assez précise pour estimer la DI qui est très faible (en ce qui concerne l'absorption de deux photons dans le régime direct), en comparaison des contributions des états liés et de la SI. Rappelons que

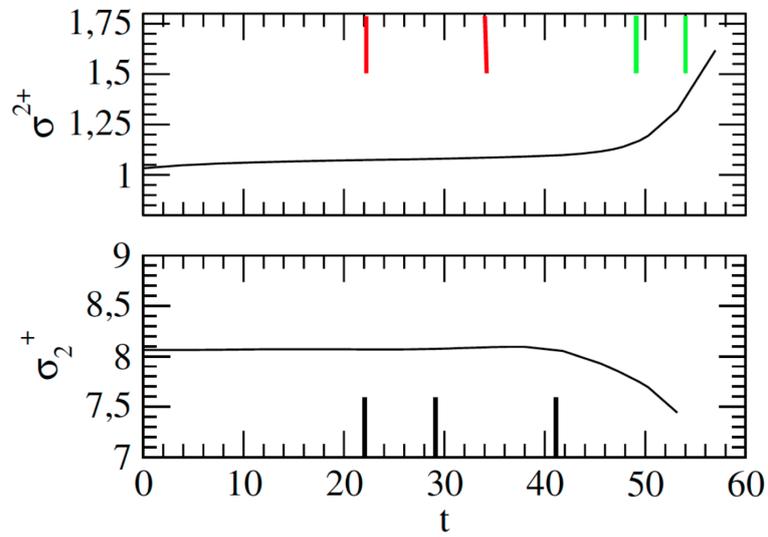


FIGURE 8.14 – Sections efficaces de DI et du canal $n = 2$ de SI, évaluées avec la méthode 2C, en fonction de l'instant après l'interaction où la projection est effectuée [193].

pour estimer la DI par la méthode de la MMJ, la probabilité de SI est obtenue en projetant le PO total sur les fonctions corrélées décrivant le SC, obtenues par la MMJ. La probabilité de DI est alors obtenue en soustrayant du paquet la contribution des états liés et celles des canaux de SI. Le fait que la MMJ fonctionne bien dans le cas de la DI par absorption d'un photon pourrait alors être justifié par le fait la section efficace de DI est du même ordre de grandeur que celle de la SI dans ce cas.

Sans réfuter leur point de vue, nous pensons, au vu des différents résultats, que la sous-estimation des sections efficaces de SI, qui conduit à la sur-estimation de la section efficace totale de DI, est probablement liée aux réflexions des électrons rapides aux frontières artificielles imposées par la base. En effet, nous avons montré dans la section précédente, lors de l'étude de l'interaction de l'He avec un champ de fréquence $\omega = 3.2$ u.a. et de durée totale égale à 11.8 u.a. (4 cycles optiques), que les réflexions se manifestent à $R_0 = 25$ u.a., quelques unités atomiques seulement après la fin de l'interaction pour une base de 100 sturmiennes par moment angulaire l et par électron. Or dans les cas étudiés par Fomouo [29], au plus 70 fonctions sturmiennes ont été utilisées (par électron et par moment angulaire l) pour représenter le PO. Le fait que les résultats obtenus pour l'ionisation de l'atome d'hélium par absorption d'un photon par la MMJ soient en accord avec les autres résultats théoriques peut être associé au fait que les bases sont suffisantes compte tenu de la fréquence ($\omega > 2.9$ u.a.) du champ. En effet, les durées d'interaction associées à ces fréquences étant relativement courtes, le PO simplement ionisé n'a pas le temps d'atteindre la frontière avant la fin de l'interaction. Dans ces conditions, la projection sur les fonctions du simple continuum issues de la MMJ donne des sections efficaces de SI précises. Cependant, les durées d'interaction considérées sont plus longues à cause d'une part des fréquences utilisées pour l'étude de l'ionisation de l'atome d'hélium par absorption de deux photons dans le régime direct ($\omega < 2$ u.a.), et d'autre part du fait de la durée totale de l'interaction (10 cycles optiques). Compte tenu des résultats présentés et qui montrent que le PO est affecté par les réflexions pour des durées d'interaction quatre fois moins longues, il est quasi-certain que les électrons issus des premiers canaux de SI sont affectés et pollués par les réflexions avant la fin de l'interaction pour le cas étudié (45 eV). De ce fait, la *projection du PO dont les composantes de SI sont déjà polluées* sur les fonctions du simple continuum, construites avec la MMJ, donne une section efficace erronée et plus

faible, conduisant à une section efficace de DI plus élevée compte tenu de la technique utilisée pour l'évaluer.

Deux autres raisons, évoquées par les auteurs de la méthode (communication privée), pourraient également justifier la sous-estimation des sections efficaces dans les canaux de SI. Il s'agit d'une part de la description asymétrique des deux électrons dans les canaux ouverts de DI par la MMJ et d'autre part de la densité des états atomiques au-dessus du seuil de simple ionisation qui serait trop faible. En effet, la MMJ permet de construire des fonctions de diffusion des canaux de SI, mais aussi des canaux *ouverts* de DI à cause de la dégénérescence en énergie de ces canaux. Pour construire ces fonctions, on sépare l'espace des fonctions en deux zones : une zone interne dans laquelle on utilise les états obtenus par diagonalisation du problème à deux corps et une zone externe, dans laquelle un des électrons est décrit par une onde coulombienne, tandis que le deuxième électron est décrit par un pseudoétat du continuum de l'ion résiduel He^+ . Or les pseudo-états obtenus en diagonalisant le hamiltonien ne "représentent" véritablement le continuum que si leur densité est élevée. Ce qui n'est pas toujours le cas à cause des contraintes numériques liées à la dimension des matrices à manipuler.

8.4 Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre les résultats obtenus en appliquant la méthode ESDT/HRM-SOW à l'étude de la DI de l'hélium par absorption d'un et deux photons. L'étude de la double photo-ionisation, dont les résultats sont bien connus, a permis de valider l'approche. L'étude de la double ionisation par absorption de deux photons visait à expliquer les différences observées dans les sections efficaces totales de DI, entre d'une part les résultats obtenus par la MMJ qui prend en compte la corrélation entre les deux électrons dans la voie de sortie et les autres méthodes d'autre part. La section efficace obtenue à 45 eV par la méthode ESDT/HRM-SOW confirme plutôt les résultats obtenus par la plupart des méthodes théoriques, et parmi lesquelles les méthodes qui projettent le PO obtenu à la fin de la propagation sur un produit de deux fonctions coulombiennes ; mettant ainsi hors de cause le rôle de la corrélation électronique dans la sur-estimation des sections efficaces de DI par la méthode de la matrice-J. Il convient de préciser que la méthode ESDT/HRM-SOW prend en compte la corrélation puisqu'aucune projection n'est faite. Après

Chapitre 8. Application de la ESDT/HRM-SOW à la DI de l'He
238 **par absorption d'un et deux photons**

analyse des résultats, nous avons attribué cette sur-estimation des sections efficaces de DI par la MMJ, aux réflexions des électrons rapides issus des canaux de SI.

Conclusion et perspectives

Ce travail a porté sur le développement de nouvelles approches dépendantes du temps et visait initialement deux objectifs. Le *premier objectif* visé est l'explication de l'écart observé entre les sections efficaces de double ionisation par absorption de deux photons obtenus par la méthode de la matrice-J et les autres résultats théoriques. Plus précisément, il s'agit de savoir si ces différences sont la conséquence de la prise en compte de la corrélation inter-électronique dans la description des deux électrons dans la voie de sortie, ou alors si elles sont liées à l'utilisation de la méthode. Au delà de cet objectif ponctuel, le *deuxième objectif* plus général est le développement des méthodes alternatives d'extraction des informations physiques (sans projection sur des fonctions du continuum) pour l'étude des systèmes complexes dont les continua multiples ne sont en général pas analytiquement connus. A cet effet, deux méthodes ont été développées : la méthode MCDT et la méthode ESDT/HRM-SOW. L'utilisation de ces nouvelles méthodes a nécessité l'implémentation de nouveaux outils d'intégration numérique de l'ESDT. Le succès de ces précieux outils de résolution numérique de l'ESDT nous a permis d'étudier l'interaction de l'atome d'hydrogène à basse fréquence, régime auquel les théoriciens s'intéressent du fait de la découverte dans les spectres de photoionisation des atomes et molécules, d'une structure à basse énergie (LES) que la SFA, théorie de référence dans le régime tunnel, ne reproduit pas. Le *troisième objectif* visé par cette étude est l'apport d'une contribution à la compréhension de la LES.

Concernant le premier objectif, nous avons grâce à la méthode ESDT/HRM-SOW (approche alternative à l'étude et l'évaluation des grandeurs physiques dédiée à l'étude de la double ionisation de l'He par absorption de photons) qui a été présentée et validée par l'étude de la DI de l'hélium par absorption de deux photons, montré que la surestimation de la DIDP

par la méthode de la matrice-J n'est pas le fait de la prise en compte de la corrélation. En effet, les résultats obtenus à 45 eV par l'approche ESDT/HRM-SOW tendent plutôt à confirmer ceux obtenus par la plupart des méthodes théoriques, et parmi lesquelles la projection du PO sur un produit de deux fonctions coulombiennes. Par ailleurs, en tenant compte des résultats obtenus suite à l'étude de la double photoionisation de l'atome d'hélium, il ressort que l'une des causes fortement probables de cette surestimation de la section efficace de DIDP est la réflexion du PO ionisé et précisément des électrons rapides issus des premiers canaux de SI, aux frontières artificielles imposées par les fonctions de base.

Concernant le deuxième objectif, nous avons développé et implémenté la MCDT. Nous avons appliqué la méthode à l'étude d'un modèle atomique 1D d'une particule dans un puits de potentiel gaussien et nous avons montré qu'en plus des avantages liés à la méthode que sont le confinement du PO (et donc l'utilisation d'une plus petite base pour décrire la dynamique du système) et la diminution de la raideur de l'ESDT (et donc l'utilisation d'un pas d'intégration plus grand dans la résolution numérique), *la méthode permet d'extraire les informations physiques directement du PO asymptotique obtenu en laissant suffisamment évoluer le PO après l'interaction.* Pour montrer que la méthode est applicable en présence du potentiel coulombien qui caractérise les systèmes atomiques, nous l'avons appliqué à l'atome d'hydrogène. Nous avons montré, en comparant nos résultats à plusieurs cas de référence, que la méthode permet d'obtenir des distributions en énergie comparables à ceux obtenus par projection sur une fonction coulombienne. La méthode offre donc une réelle alternative pour l'étude des systèmes à plusieurs électrons actifs.

Concernant le troisième objectif, nous avons étudié l'ionisation de l'hydrogène atomique par un champ de longueur d'onde $\lambda = 2000$ nm et pour des situations pour lesquelles le mécanisme d'émission par effet tunnel devrait être dominant au sens de Keldysh. Les résultats obtenus nous ont permis de montrer qu'à l'instar de la LES observée dans les spectres mesurés dans la direction de polarisation du champ, une structure dominante se manifeste dans les spectres intégrés sur les angles. L'analyse des contributions des différents moments angulaires à la probabilité d'ionisation totale a révélé que les contributions dominantes proviennent des moments angulaires qui se trouvent

autour de la valeur prédite par l'absorption multiphotonique, suggérant que la structure dominante dans les spectres intégrés, qui constitue la plus grosse contribution à l'ionisation totale, serait formée par des électrons émis par absorption multiphotonique. L'analyse de l'évolution de la population dans des sphères de rayons différents, grandeur indépendante de la jauge utilisée, a permis de montrer, dans les cas étudiés, que la majorité des électrons émis ne revient pas vers le noyau atomique, suggérant que la (re)collision ne joue pratiquement aucun rôle dans la formation de la structure dans le spectre intégré. Concernant cette structure, les résultats obtenus sont similaires à ceux obtenus lors de l'interaction avec un champ de longueur d'onde $\lambda = 800$ nm (où on associe aux structures à basse énergie le mécanisme d'absorption multiphotonique) et ne montrent pas de changement de régime manifeste lorsqu'on passe à $\lambda = 2000$ nm. Cependant en ce qui concerne les électrons émis dans la direction de polarisation du champ (LES), les résultats semblent indiquer qu'ils n'obéissent pas à cette interprétation. En effet, les spectres mesurés dans la direction de propagation suggère que les électrons effectuent un retour où il effectuent un diffusion vers l'avant donnant lieu à des interférences avec d'autres PO. Comme les résultats l'ont montré, les électrons de faibles énergies en général et ceux émis dans la direction de polarisation en particulier subissent fortement l'influence du potentiel coulombien aussi bien dans l'attraction que pour la focalisation du PO le long de l'axe de polarisation. Des calculs supplémentaires sont néanmoins encore nécessaires pour expliquer précisément leur formation.

En termes de perspectives, il convient tout d'abord de noter que la méthode MCDT telle que nous l'avons développée fait déjà l'objet, par un de nos collaborateurs, d'une application à l'étude de l'atome d'hélium qui est en cours. Par ailleurs, un travail de thèse récemment initié dans notre groupe consistera à utiliser la MCDT en coordonnées hypersphériques pour l'étude des systèmes à deux électrons actifs. L'utilisation des coordonnées hypersphériques présente l'atout de passer de deux à une seule coordonnée radiale. Nous envisageons néanmoins, fort de notre expérience, de finaliser les calculs et les codes pour l'étude des systèmes à deux électrons actifs dans la MCDT déjà entamés. En ce qui concerne l'étude et la compréhension de la LES, nous envisageons d'effectuer d'autres calculs pour tenter d'élucider le mystère de la formation de

la LES. Nous envisageons également de calculs plus poussés, notamment pour des durées d'interaction plus longues à $\lambda = 2000$ nm et pour des longueurs d'onde $\lambda > 2000$ nm pour suivre l'évolution de la LES dans la limite de plus basses fréquences. Dans le même ordre d'idée, il est envisagé d'étudier le rôle joué par les états liés et par la portée du potentiel atomique dans la formation de la LES, à l'aide du modèle atomique dans l'espace des moments et dans lequel on peut introduire "à la main" des états liés. En effet, des calculs effectués à $\lambda = 800$ nm montrent que les structures de faibles moments canoniques (LES) disparaissent du spectre. Des premiers calculs effectués à $\lambda = 2000$ nm semblent confirmer cette observation. Or, il est mentionné dans l'article [41] qui nous a amené à nous intéresser à la LES que ni les états liés, ni la portée du potentiel atomique ne modifient la LES ; raison pour laquelle il est important d'éclaircir ce point.

Systeme d'unités atomiques

Les équations de base en physique et les grandeurs physiques sont généralement quantifiées en fonction des unités de base que sont le mètre, le kilogramme, l'ampère, la seconde. Ces unités de base sont connues comme le *systeme d'unités international* (SI) ou encore le systeme M.K.S.A. Pour des raisons de commodité cependant, d'autres unités de mesure ont été introduites. C'est ainsi qu'on rencontre par exemple le systeme d'unités gaussien, les unités de Heaviside-Lorentz en électromagnétisme. En physique théorique, le systeme d'unités privilégié est le *systeme d'unités atomiques* (u.a.) . Dans ce systeme, les grandeurs physiques \hbar , m , e , a_0 sont égales à l'unité. Ce qui permet de simplifier la formulation des équations de base en physique. Le passage au systeme d'unités SI se fait via le facteur de conversion approprié. Nous rappelons ici les facteurs de conversion entre le systeme u.a. et le systeme SI ¹. Nous présentons également les expressions analytiques permettant d'évaluer quelques grandeurs physiques évoquées dans le manuscrit.

1. Peter J. Mohr and Barry N. Taylor, CODATA Recommended values of the Fundamental Physical Constants, *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, (2002); Peter J. Mohr and Barry N. Taylor, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 1 (2005)

A.1 Les unités atomiques

A.1.1 Unités de base

Dimension	Unité	Quantité physique	Valeur en unités SI
Moment angulaire	$\hbar = \frac{h}{2\pi}$	Constante de Planck réduite	1.05457×10^{-34} J.s
Masse	m	Masse de l'électron	9.10938×10^{-31} kg
Charge	e	Valeur absolue de la charge de l'électron	1.60218×10^{-19} C

A.1.2 Autres dimensions en unités atomiques

Les dimensions de base peuvent être combinées pour en déduire d'autres. La constante de structure fine de Sommerfeld est un nombre sans dimension et sa valeur est indépendante du système d'unités. Elle s'exprime en fonction des unités de base par la relation

$$\alpha = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\hbar c} = \frac{1}{137.03599911} = \frac{1}{c}. \quad (\text{A.1})$$

α est la quatrième dimension de base du système d'unités atomiques. La vitesse de la lumière dans le système u.a.. $c = 137.03599911$ u.a. peut ainsi être déduite. D'autre part, en unités SI, la vitesse de la lumière

$$c = 2.99792 \times 10^8 \text{ m.s}^{-1},$$

la permittivité électrique du vide

$$\epsilon_0 = 8.85419 \times 10^{-12} \text{ F.m}^{-1},$$

et la perméabilité magnétique

$$\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ H/m}$$

sont reliées par la relation

$$\epsilon_0\mu_0c^2 = 1.$$

Nous présentons dans le tableau ci-dessous les grandeurs physiques dérivées.

Dimension	Expression	Signification physique	Valeur en unités SI
Longueur	$a_0 = \frac{4\pi\epsilon_0\hbar^2}{me^2}$	Rayon de Bohr de l'hydrogène atomique	5.29177×10^{-11} m
Vitesse	$v_0 = \frac{a_0 E_h}{\hbar}$	Vitesse d'un électron sur la première orbite de Bohr	2.18769×10^6 m.s ⁻¹
Temps	$\tau_0 = \frac{2\pi a_0}{v_0}$ $= \frac{\hbar}{E_h}$	Temps mis pour parcourir l'orbite de Bohr	2.41888×10^{-17} s
Energie	$E_h = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 a_0}$	Double du potentiel d'ionisation de l'hydrogène atomique	4.35974×10^{-18} J 27.2114 eV
Champ électrique	$\mathcal{E}_a = \frac{E_h}{ea_0}$	Champ ressenti par l'électron sur la première orbite de Bohr	5.14221×10^{11} V.m ⁻¹
Intensité	$I_a = \frac{E_h^2}{8\pi\hbar\alpha a_0^2}$	Intensité correspondant à \mathcal{E}_a	3.5095×10^{20} W.m ⁻²

A.2 Quelques relations utiles

L'amplitude du champ électrique E est obtenue à partir de l'intensité I par la relation

$$E(\text{V.cm}^{-1}) = 27.4682\sqrt{I(\text{W.cm}^{-2})}. \quad (\text{A.2})$$

Le paramètre de Keldysh est un nombre sans dimension qui s'obtient par

$$\gamma = \frac{\omega(\text{u.a.})\sqrt{I_p(\text{u.a.})}}{\sqrt{I(\text{W.cm}^{-2})}} 0.266 \times 10^9, \quad (\text{A.3})$$

où ω représente l'énergie du photon en u.a., I_p le potentiel d'ionisation de l'atome et I l'intensité du champ. Dans la suite, nous considérons ω en unités

atomiques. L'amplitude d'oscillation (*quiver motion*) d'un électron libre dans un champ électrique est donnée par

$$\alpha(\text{u.a.}) = \frac{E}{\omega^2} = \frac{5.313 \times 10^{-9} \sqrt{I(\text{W.cm}^{-2})}}{\omega^2(\text{u.a.})}. \quad (\text{A.4})$$

L'énergie pondéromotrice acquise par un électron libre dans un champ électrique est donnée par

$$U_p(\text{u.a.}) = \frac{E^2}{4\omega^2} = \frac{7.057 \times 10^{-18} I(\text{W.cm}^{-2})}{\omega^2(\text{u.a.})}. \quad (\text{A.5})$$

La longueur d'onde du rayonnement est obtenue à partir de l'énergie du photon par

$$\lambda(\text{nm}) = \frac{45.563}{\omega(\text{u.a.})}. \quad (\text{A.6})$$

Méthode d'intégration explicite de Fatunla

Nous décrivons ici la démarche utilisée pour l'approche explicite de Fatunla [76, 77, 79] de résolution d'équations différentielles "raides" de premier ordre.

Soit un système d'équations différentielles raides de dimension m de premier ordre donné par

$$\mathbf{y}' = \mathbf{f}(x, \mathbf{y}), \quad \mathbf{y}' = (y_1, y_2, \dots, y_m). \quad (\text{B.1})$$

$\mathbf{f}(x, \mathbf{y})$ est une fonction complexe de dimension m . La solution $\mathbf{y}(x)$ de l'équation B.1 oscille fortement avec x , nécessitant sur le plan numérique un pas d'intégration plus petit que la fréquence d'oscillation de la solution. D'où la notion de "raideur". La méthode explicite de Fatunla consiste à approximer la solution $\mathbf{y}(x)$ par la fonction

$$\mathbf{F}(x) = (\mathbf{I} - e^{\Omega_1 x})\mathbf{a} - (\mathbf{I} - e^{-\Omega_2 x})\mathbf{b} + \mathbf{c}, \quad (\text{B.2})$$

où \mathbf{I} est la matrice identité, $\Omega_i = \text{diag}(\omega_{1i}, \omega_{2i}, \dots, \omega_{mi})$ est une matrice diagonale et \mathbf{a} , \mathbf{b} , et \mathbf{c} des vecteurs de dimension m . Les nombres complexes $\omega_{1i}, \omega_{2i}, \dots, \omega_{mi}$ représentant les fréquences propres du système d'EDP sont appelés *paramètres de raideur*. En suposant que $\mathbf{F}(x)$ coïncide avec $\mathbf{y}(x)$ en x_n et x_{n+1} , on a :

$$\mathbf{y}_n = \mathbf{y}(x_n) = (\mathbf{I} - e^{\Omega_1 x_n})\mathbf{a} - (\mathbf{I} - e^{-\Omega_2 x_n})\mathbf{b} + \mathbf{c}, \quad (\text{B.3})$$

$$\mathbf{y}_{n+1} = \mathbf{y}(x_{n+1}) = (\mathbf{I} - e^{\Omega_1 x_{n+1}})\mathbf{a} - (\mathbf{I} - e^{-\Omega_2 x_{n+1}})\mathbf{b} + \mathbf{c}. \quad (\text{B.4})$$

De même on fait coïncider $\mathbf{F}^{(1)}(x)$ avec $\mathbf{y}'(x)$ (soit avec $\mathbf{f}(x, \mathbf{y})$) et, $\mathbf{F}^{(2)}(x)$ -on adopte les notations $\mathbf{F}^{(1)}(x) = \frac{d}{dx}\mathbf{F}(x)$ et $\mathbf{F}^{(2)}(x) = \frac{d^2}{dx^2}\mathbf{F}(x)$ - avec $\mathbf{f}^{(1)}(x, \mathbf{y})$. Ce qui permet d'écrire les relations suivantes :

$$\mathbf{f}_n = -\Omega_1 e^{\Omega_1 x_n} \mathbf{a} - \Omega_2 e^{-\Omega_2 x_n} \mathbf{b}, \quad (\text{B.5})$$

$$\mathbf{f}_n^{(1)} = -\Omega_1^2 e^{\Omega_1 x_n} \mathbf{a} + \Omega_2^2 e^{-\Omega_2 x_n} \mathbf{b}. \quad (\text{B.6})$$

À partir des relations (B.5) et (B.6) on trouve :

$$e^{\Omega_1 x_n} \mathbf{a} = -\frac{\mathbf{f}_n^{(1)} + \Omega_2 \mathbf{f}_n}{\Omega_1 (\Omega_1 + \Omega_2)}, \quad (\text{B.7})$$

$$e^{-\Omega_2 x_n} \mathbf{b} = \frac{\mathbf{f}_n^{(1)} - \Omega_1 \mathbf{f}_n}{\Omega_2 (\Omega_1 + \Omega_2)}. \quad (\text{B.8})$$

En utilisant les équations (B.3) et (B.4), on obtient finalement pour la solution la récurrence suivante :

$$\mathbf{y}_{n+1} = \mathbf{y}_n + \mathbf{R} \mathbf{f}_n + \mathbf{S} \mathbf{f}_n^{(1)}. \quad (\text{B.9})$$

\mathbf{R} et \mathbf{S} sont des matrices diagonales qui s'écrivent en fonction des paramètres de raideur comme

$$\mathbf{R} = \Omega_2 \mathbf{\Theta} - \Omega_1 \mathbf{\Xi}, \quad \mathbf{S} = \mathbf{\Theta} + \mathbf{\Xi}, \quad (\text{B.10})$$

où $\mathbf{\Theta}$ et $\mathbf{\Xi}$ sont des matrices diagonales, d'éléments diagonaux donnés par

$$\Theta_i = \frac{e^{\omega_{1i} h} - 1}{\omega_{1i} (\omega_{1i} + \omega_{2i})}, \quad (\text{B.11})$$

$$\Xi_i = \frac{e^{-\omega_{2i} h} - 1}{\omega_{2i} (\omega_{1i} + \omega_{2i})}. \quad (\text{B.12})$$

Il est intéressant de noter que lorsque les paramètres ω_{1i} (ω_{2i}) tendent vers zéro, les éléments de matrices de $\mathbf{\Theta}$ et $\mathbf{\Xi}$ donnés par les équations (B.11) et (B.12) s'écrivent

$$\Theta_i = \frac{h}{\omega_{2i}} \left(\Xi_i = -\frac{h}{\omega_{1i}} \right). \quad (\text{B.13})$$

de paramètres de raideur $\Omega_i = \text{diag}(\omega_{1i}, \omega_{2i}, \dots, \omega_{mi})$, $i = 1, 2$ qu'il reste donc à déterminer.

Evaluation des paramètres de raideur

En introduisant dans l'équation (B.9) le développement de Taylor de $\mathbf{y}(x_n+h)$ en x_n et le développement en série de MacLaurin de $e^{\Omega_1 h}$ et $e^{-\Omega_2 h}$ suivants

$$\mathbf{y}_{n+1} = \sum_{r=0}^{\infty} \frac{h^r \mathbf{y}^r(x_n)}{r!}, \quad (\text{B.14})$$

$$e^{\Omega_1 h} = \sum_{r=0}^{\infty} \frac{(\Omega_1 h)^r}{r!}, \quad (\text{B.15})$$

$$e^{-\Omega_2 h} = \sum_{r=0}^{\infty} (-1)^r \frac{(\Omega_2 h)^r}{r!}, \quad (\text{B.16})$$

et compte tenu des équations (B.10), (B.11) et (B.12), on obtient les systèmes d'équations non linéaires suivants

$$(\Omega_2 - \Omega_1) \mathbf{f}_n^{(1)} - \Omega_1 \Omega_2 \mathbf{f}_n = -\mathbf{f}_n^{(2)}, \quad (\text{B.17})$$

$$- (\Omega_1^2 - \Omega_1 \Omega_2 + \Omega_2^2) \mathbf{f}_n^{(2)} + \Omega_1 \Omega_2 (\Omega_2 - \Omega_1) \mathbf{f}_n^{(1)} = -\mathbf{f}_n^{(3)}. \quad (\text{B.18})$$

En adoptant comme définition de $\Omega_1 \Omega_2 \mathbf{f}_n$ celle tirée de la relation (B.17), l'équation (B.18) devient

$$(\Omega_2 - \Omega_1) \mathbf{f}_n^{(2)} - \Omega_1 \Omega_2 \mathbf{f}_n^{(1)} = -\mathbf{f}_n^{(3)}. \quad (\text{B.19})$$

En posant

$$D_i = \omega_{2i} - \omega_{1i}, \quad i = 1, m; \quad (\text{B.20})$$

et

$$E_i = \omega_{1i} \omega_{2i}, \quad i = 1, m; \quad (\text{B.21})$$

On obtient à partir de (B.17) et (B.19) les m paires d'équations linéaires

$$D_i f_{ni}^{(1)} - E_i f_{ni} = -f_{ni}^{(2)}, \quad (\text{B.22})$$

$$D_i f_{ni}^{(2)} - E_i f_{ni}^{(1)} = -f_{ni}^{(3)}. \quad (\text{B.23})$$

La résolution des paires d'équations permet d'obtenir les relations suivantes pour les éléments D_i et E_i

$$D_i = \frac{f_{ni} f_{ni}^{(3)} - f_{ni}^{(1)} f_{ni}^{(2)}}{f_{ni}^{(1)} f_{ni}^{(1)} - f_{ni} f_{ni}^{(2)}}, \quad i = 1, m; \quad (\text{B.24})$$

$$E_i = \frac{f_{ni}^{(1)} f_{ni}^{(3)} - f_{ni}^{(2)} f_{ni}^{(2)}}{f_{ni}^{(1)} f_{ni}^{(1)} - f_{ni}^{(2)} f_{ni}^{(2)}}, \quad i = 1, m. \quad (\text{B.25})$$

Les paramètres de raideur sont finalement obtenus grâce aux relations [B.20](#) et [B.21](#) par

$$\omega_{1i} = \frac{1}{2} \left(-D_i + \sqrt{D_i^2 + 4E_i} \right), \quad (\text{B.26})$$

$$\omega_{2i} = \omega_{1i} + D_i. \quad (\text{B.27})$$

les dénominateurs des expressions ([B.24](#)) et ([B.25](#)) étant supposés non nuls.

Evaluation de l'erreur de troncature locale

L'erreur de troncature locale en $x = x_{n+1}$ est définie comme la différence entre la solution exacte en x_{n+1} et la solution numérique obtenue par la relation de récurrence ([B.9](#)). En supposant exacte la solution en $x = x_n$, soit $y(x_n) = y_n$, l'erreur de troncature en $x = x_{n+1}$ est donnée par

$$\mathbf{T}_{n+1} = \mathbf{y}(x_n + h) - \mathbf{y}(x_n) - \mathbf{Rf}(x_n, y_n) - \mathbf{Sf}^{(1)}(x_n, y_n). \quad (\text{B.28})$$

En substituant $\mathbf{y}(x_n + h)$ par son développement de Taylor, l'équation ([B.28](#)) devient

$$\begin{aligned} \mathbf{T}_{n+1} = & \frac{h^5}{5} [f_n^{(4)} + (\omega_2^3 - \omega_2^2 \omega_1 + \omega_2 \omega_1^2 - \omega_1^3) f_n^{(1)} \\ & - \omega_1 \omega_2 (\omega_1^2 - \omega_1 \omega_2 + \omega_2^2) f_n^{(0)}] + \mathcal{O}(h^6). \end{aligned} \quad (\text{B.29})$$

Dérivation de l'ESDT dans la MCDT en 1D

Considérons un modèle atomique 1D en interaction avec un champ électromagnétique, l'ESDT décrivant la dynamique du système est donnée de façon générale par :

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(x, t) = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + V(x) + I(x, t) \right] \Psi(x, t). \quad (\text{C.1})$$

La méthode des coordonnées dépendantes du temps est basée sur les transformations suivantes :

$$x = R(t)\xi \quad (\text{C.2})$$

$$\Psi(x, t) = \frac{1}{\sqrt{R}} \exp(iR\dot{R}\xi^2) \Phi(\xi, t). \quad (\text{C.3})$$

En substituant les équations (C.2) et (C.3) l'ESDT (C.1), on obtient respectivement à droite et à gauche les termes :

$$i \frac{\partial}{\partial t} \left[\frac{1}{\sqrt{R}} \exp(iR\dot{R}\xi^2) \Phi(\xi, t) \right] \quad (\text{C.4})$$

et

$$\left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{R^2 \partial \xi^2} + V(R\xi) + I(R\xi, t) \right] \left[\frac{1}{\sqrt{R}} \exp(iR\dot{R}\xi^2) \Phi(\xi, t) \right]. \quad (\text{C.5})$$

Pour évaluer le terme à gauche de l'égalité, nous exploitons le fait que la différentielle d'une fonction $f(x, t)$ soit donnée par :

$$df = dx \frac{\partial f}{\partial x} + dt \frac{\partial f}{\partial t}, \quad (\text{C.6})$$

$$\frac{df}{dt} = \dot{x} \frac{\partial f}{\partial x} + \frac{\partial f}{\partial t}. \quad (\text{C.7})$$

Soit

$$\frac{\partial f}{\partial t} = \frac{df}{dt} - \dot{x} \frac{\partial f}{\partial x} = \frac{df}{dt} - \xi \frac{\dot{R}}{R} \frac{\partial f}{\partial \xi}. \quad (\text{C.8})$$

On trouve après quelques développements algébriques

$$\begin{aligned} i \frac{\partial}{\partial t} \left[\frac{1}{\sqrt{R}} \exp(-iR\dot{R}\xi^2) \Phi(\xi, t) \right] &= i \left[\frac{d}{dt} - \xi \frac{\dot{R}}{R} \frac{\partial}{\partial \xi} \right] \left[\frac{1}{\sqrt{R}} \exp(iR\dot{R}\xi^2) \Phi(\xi, t) \right] \\ &= \frac{1}{\sqrt{R}} \exp(iR\dot{R}\xi^2) \times \left[\frac{i}{2} \frac{\dot{R}}{R} + \frac{1}{2} \dot{R}^2 \xi^2 \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{2} R \ddot{R} \xi^2 + i \frac{\partial}{\partial t} + \frac{i}{2} \frac{\dot{R}}{R} \xi \frac{\partial}{\partial \xi} \right] \Phi(\xi, t). \quad (\text{C.9}) \end{aligned}$$

A droite de l'égalité, on obtient après dérivation que le terme cinétique du hamiltonien s'écrit

$$\begin{aligned} - \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{R^2 \partial \xi^2} \left[\frac{1}{\sqrt{R}} \exp(iR\dot{R}\xi^2) \Phi(\xi, t) \right] &= \frac{1}{\sqrt{R}} \exp(iR\dot{R}\xi^2) \times \left[\frac{i}{2} \frac{\dot{R}}{R} + \frac{1}{2} \dot{R}^2 \xi^2 + \right. \\ &\quad \left. \frac{i}{2} \frac{\dot{R}}{R} \xi \frac{\partial}{\partial \xi} - \frac{1}{2R^2} \frac{\partial^2}{\partial \xi^2} \right] \Phi(\xi, t). \quad (\text{C.10}) \end{aligned}$$

L'ESDT dans la méthode des coordonnées dépendantes du temps s'obtient finalement en égalant les expressions (C.9) et (C.9)+ $V(R\xi)$ + $I(R\xi, t)$ comme :

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Phi(\xi, t) = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{R^2 \partial \xi^2} + V(R\xi) + I(R\xi, t) + \frac{1}{2} R \ddot{R} \xi^2 \right] \Phi(\xi, t) \quad (\text{C.11})$$

$\langle \xi \rangle_t$ et $\Delta\xi$ dans la MCDT

Soit un modèle atomique 1D à un électron actif. Supposons qu'à $t = 0$, l'électron qui se trouve initialement à $x = 0$ est ionisé. Nous supposons en outre que l'électron évolue librement (potentiel de courte portée) après émission. Le paquet d'onde à $t \geq 0$ peut s'écrire sous la forme intégrale de Fourier comme

$$\Psi(x, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} a(k) e^{ikx} e^{-i\frac{\hbar k t}{2m}} dk. \quad (\text{D.1})$$

L'enveloppe $a(k)$ du paquet d'onde s'obtient grâce à la transformée de Fourier comme

$$a(k) = \int_{-\infty}^{+\infty} \Psi(x, 0) e^{-ikx} dx. \quad (\text{D.2})$$

Dans la méthode des coordonnées dépendantes du temps, nous effectuons les deux transformations suivantes :

$$x = R(t)\xi, \quad (\text{D.3})$$

et

$$\psi(x, t) = \frac{1}{\sqrt{R}} e^{\frac{i}{2}mR\dot{R}\xi^2} \Phi. \quad (\text{D.4})$$

La fonction d'échelle $R(t)$ est choisie de sorte que

$$R(t) = 1, t \leq 0, \quad (\text{D.5})$$

$$R(t) \geq 1, t > 0, \quad (\text{D.6})$$

$$R(t) \approx \gamma t, t \rightarrow \infty. \quad (\text{D.7})$$

D.1 Evaluation de $\langle \xi \rangle_t$

Si on suppose que $\Psi(x, t)$ est correctement normalisé, on a :

$$\langle x \rangle_t = \int_{-\infty}^{+\infty} \Psi^*(x, t)x\Psi(x, t)dx = \langle x \rangle_{t=0} + \frac{\langle p \rangle}{m}t \quad (\text{D.8})$$

où $\frac{\langle p \rangle}{m}$ est la vitesse de groupe.

Par ailleurs, on peut également écrire en exploitant les relations (D.3) et (D.4)

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \Psi^*(x, t)x\Psi(x, t)dx = \frac{1}{R}R^2 \int_{-\infty}^{+\infty} \Phi^*(\xi, t)\xi\Phi(\xi, t)d\xi = R \langle \xi \rangle_t. \quad (\text{D.9})$$

En combinant les relations (D.8) et (D.9) et pour $t \rightarrow \infty$, on obtient

$$\langle \xi \rangle_t = \frac{\langle x \rangle_{t=0}}{\gamma t} + \frac{\langle p \rangle}{m} \frac{1}{\gamma} = \frac{v_g}{\gamma} + \mathcal{O}\left(\frac{1}{t}\right). \quad (\text{D.10})$$

En d'autres termes, la position de la particule devient artificiellement fixe aux grands temps. En plus, le résultat ne dépend pas de la transformation de phase.

D.2 Evaluation de $\Delta\xi$

La largeur du PO se définit à chaque instant par

$$\Delta x = \left(\langle x^2 \rangle - \langle x \rangle^2 \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (\text{D.11})$$

La dispersion comme le taux de variation de Δx par rapport au temps, soit

$$D = \frac{1}{2} \left(\langle \Delta x \rangle_t^2 - \langle \Delta x \rangle_0^2 \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (\text{D.12})$$

On montre que

$$\begin{aligned} \langle x^2 \rangle_t &= \int_{-\infty}^{+\infty} \Psi^*(x, t)x^2\Psi(x, t)dx \\ &= \langle x^2 \rangle_{t=0} + \frac{\hbar^2 \langle k^2 \rangle}{m^2}t^2 = R^2 \langle \xi^2 \rangle_t. \end{aligned} \quad (\text{D.13})$$

D'autre part

$$\begin{aligned} \langle x^2 \rangle_{t=0} &= \int_{-\infty}^{+\infty} \Psi^*(x, 0) x^2 \Psi(x, 0) dx \\ &= \int_{-\infty}^{+\infty} \Phi^*(\xi, 0) \xi^2 \Phi(\xi, 0) d\xi = \langle \xi^2 \rangle_{t=0}. \end{aligned} \quad (\text{D.14})$$

On a donc

$$R^2 \langle \xi^2 \rangle_t = \langle \xi^2 \rangle_{t=0} + \frac{\hbar^2 \langle k^2 \rangle}{m^2} t^2. \quad (\text{D.15})$$

En exploitant l'équation (D.10), on a aussi

$$R^2 \langle \xi \rangle_t^2 = \langle \xi \rangle_{t=0}^2 + \frac{\hbar^2 \langle k \rangle^2}{m^2} t^2. \quad (\text{D.16})$$

On a ainsi

$$R^2 (\Delta\xi)_t^2 = (\Delta\xi)_{t=0}^2 + \frac{(\Delta p)^2}{m^2} t^2. \quad (\text{D.17})$$

Sachant qu'aux grands temps $R(t) \approx \gamma t$, on a

$$(\Delta\xi)_t^2 = \frac{1}{\gamma^2 t^2} (\Delta\xi)_{t=0}^2 + \frac{(\Delta p)^2}{\gamma^2 m^2} = \frac{(\Delta p)^2}{\gamma^2 m^2} + \mathcal{O}\left(\frac{1}{t^2}\right). \quad (\text{D.18})$$

Ce qui signifie qu'aux grands temps, la largeur du PO devient fixe et donc que ce dernier ne se disperse plus.

Formulation matricielle de l'ESDT du modèle atomique 1D

L'ESDT décrivant l'interaction du modèle atomique 1D d'un électron dans un puits de potentiel gaussien avec un champ laser est donnée par :

$$i\frac{\partial}{\partial t}\Psi(x,t) = \left[-\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial x^2} - V_0e^{-\beta x^2} + g(t)\frac{\partial}{\partial x} \right] \Psi(x,t) \quad (\text{E.1})$$

où $g(t)$ est donné par :

$$g(t) = -iA_0f(t)\sin(\omega t + \varphi), \quad (\text{E.2})$$

avec $f(t) = \cos^2(\pi t/\tau)$, $\tau = 2\pi n_c/\omega$, n_c étant le nombre de cycles optiques du champ. A_0 désigne l'amplitude maximale du champ laser.

Pour résoudre l'ESDT, la fonction d'onde est décomposée sur une base de fonctions de carré sommable comme suit :

$$\Psi(x,t) = \sum_n a_n(t)\varphi_n(x). \quad (\text{E.3})$$

Les termes $a_n(t)$ représentent les coefficients de la décomposition sur la base à déterminer et $\varphi_n(x)$ sont les fonctions d'Hermite *généralisées* de paramètre α définies par :

$$\varphi_n(x) = \left(2^n n! \sqrt{\frac{\pi}{\alpha}} \right)^{-\frac{1}{2}} e^{-\frac{\alpha}{2}x^2} H_n(\sqrt{\alpha}x). \quad (\text{E.4})$$

Ces fonctions d'Hermite vérifient la relation d'orthonormalisation

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \varphi_n(x)\varphi_{n'}(x)dx = \delta_{nn'}, \quad (\text{E.5})$$

et la relation de récurrence suivante

$$\sqrt{n-1}\varphi_{n+1} = \sqrt{2\alpha}x\varphi_n - \sqrt{n}\varphi_{n-1}, \quad (\text{E.6})$$

que nous déduisons de celle vérifiée par les polynômes d'Hermite :

$$H_{n+1} = 2xH_n - 2nH_{n-1}. \quad (\text{E.7})$$

En remplaçant dans l'ESDT la fonction d'onde exprimée dans la base de fonctions d'Hermite, on obtient :

$$i\frac{\partial}{\partial t}\sum_n a_n(t)\varphi_n(x) = \sum_n \left[-\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial x^2} - V_0e^{-\beta x^2} + g(t)\frac{\partial}{\partial x} \right] a_n(t)\varphi_n(x). \quad (\text{E.8})$$

En multipliant successivement l'équation (E.8) à gauche par les fonctions de base $\varphi_{n'}(x)$ et en intégrant sur tout l'espace (1D), on obtient un système d'équations différentielles qu'on peut écrire sous la forme matricielle suivante :

$$\mathbf{H}(t)\mathbf{\Psi}(t) = i\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{\Psi}(t). \quad (\text{E.9})$$

$\mathbf{H}(t) = \mathbf{H}_{cin} + \mathbf{H}_{pot} + g(t)\mathbf{H}_{int}$ est la matrice totale associée au hamiltonien décrivant l'interaction du système avec le champ. $\mathbf{\Psi}(t)$ est le vecteur des coefficients de la décomposition de la fonction d'onde dans la base. Les éléments de matrice de la partie cinétique \mathbf{H}_{cin} sont donnés par :

$$(H_{cin})_{nn'} = \begin{cases} \frac{\alpha(2n+1)}{4} & \text{si } n = n' \\ -\frac{\alpha\sqrt{(n-1)n}}{4} & \text{si } n = n' - 2 \\ -\frac{\alpha\sqrt{(n+1)(n+2)}}{4} & \text{si } n = n' + 2 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases}. \quad (\text{E.10})$$

Les éléments de matrice du terme associé au potentiel gaussien \mathbf{H}_{pot} s'écrivent :

$$(H_{pot})_{nn'} = -V_0 \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\beta x^2} \varphi_n(x)\varphi_{n'}(x)dx, \quad (\text{E.11})$$

et sont calculés par la quadrature de Gauss-Hermite :

$$(H_{pot})_{nn'} = -V_0 \sum_i \omega_i \varphi_n(x_i)\varphi_{n'}(x_i), \quad (\text{E.12})$$

où x_i et ω_i sont les noeuds et les poids aux points de quadrature. Les éléments de matrice du hamiltonien d'interaction sont donnés par :

$$(H_{int})_{nn'} = \begin{cases} \sqrt{\frac{\alpha n}{2}} & \text{si } n = n' - 1 \\ \sqrt{\frac{\alpha(n+1)}{2}} & \text{si } n = n' + 1 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (\text{E.13})$$

Relation de récurrence pour le calcul du spectre par projection sur l'onde plane

Une des méthodes utilisées pour évaluer la distribution en énergie des électrons émis lors de l'interaction d'un électron dans un puits de potentiel gaussien 1D consiste à projeter le PO obtenu à la fin de la propagation sur l'onde plane. L'amplitude d'ionisation correspondant à l'émission d'électron avec une impulsions k s'écrit :

$$c(k) = \int_{-\infty}^{+\infty} \psi_k(x) \Psi(x, T) dx, \quad (\text{F.1})$$

où

$$\psi_k(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{ikx}. \quad (\text{F.2})$$

En remplaçant dans **(F.1)** le PO par sa décomposition sur la base, on obtient

$$\begin{aligned} c(k) &= \sum_n a_n(T) \int_{-\infty}^{+\infty} \psi_k^*(x) \varphi_n(x) dx \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \sum_n A_n a_n(T) \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-ikx} e^{-\frac{\alpha}{2}x^2} H_n(\sqrt{\alpha}x) dx, \end{aligned} \quad (\text{F.3})$$

avec $A_n = \left(2^n n! \sqrt{\frac{\pi}{\alpha}}\right)^{-\frac{1}{2}}$. Le calcul des intégrales dans la somme de l'équation **(F.3)** peut être réalisé par la quadrature de Gauss-Hermite ou par la méthode du prolongement dans le plan complexe associée aux quadratures. Mais ces calculs deviennent fastidieux et lourds lorsque le nombre de fonctions de base devient grand. De plus, pour avoir des résultats précis, un nombre élevé de

**Annexe F. Relation de récurrence pour le calcul du spectre par
262 projection sur l'onde plane**

points de quadrature est nécessaire. Pour les grandes valeurs de noeuds, les poids correspondants deviennent plus petits que la précision machine. La précision dans les résultats est limitée de ce fait. Pour contourner ce problème, nous avons développé une formule de récurrence obtenue en réécrivant l'équation (F.3) sous la forme :

$$c(k) = \sum_n a_n(T) P_n(k), \quad (\text{F.4})$$

avec

$$P_n(k) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-ikx} \varphi_n(x) dx. \quad (\text{F.5})$$

En utilisant les expressions analytiques des deux premières fonctions d'Hermite suivantes

$$\varphi_0(x) = \left(\frac{\alpha}{\pi}\right)^{\frac{1}{4}} e^{-\frac{\alpha}{2}x^2}, \quad (\text{F.6})$$

$$\varphi_1(x) = \sqrt{2\alpha} \left(\frac{\alpha}{\pi}\right)^{\frac{1}{4}} x e^{-\frac{\alpha}{2}x^2}, \quad (\text{F.7})$$

on trouve après développement que

$$P_0(k) = \left(\frac{1}{\alpha\pi}\right)^{\frac{1}{4}} e^{-\frac{k^2}{2\alpha}}, \quad (\text{F.8})$$

$$P_1(k) = -i\sqrt{2}k \left(\frac{1}{\alpha^3\pi}\right)^{\frac{1}{4}} e^{-\frac{k^2}{2\alpha}}. \quad (\text{F.9})$$

Par ailleurs, la définition générale (F.5) permet d'écrire :

$$P_{n-1} = \frac{A_{n-1}}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-ikx} e^{-\frac{\alpha}{2}x^2} H_{n-1}(\sqrt{\alpha}x) dx \quad (\text{F.10})$$

$$P_n = \frac{A_n}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-ikx} e^{-\frac{\alpha}{2}x^2} H_n(\sqrt{\alpha}x) dx. \quad (\text{F.11})$$

En tenant compte du fait que les polynômes d'Hermite vérifient la relation

$$H_{n-1} = \frac{1}{2n} \frac{d}{dx} H_n(x), \quad (\text{F.12})$$

on montre que l'équation (F.10) devient après le changement de variable $X = \sqrt{\alpha}x$ et intégration par parties

$$P_{n-1} = \frac{A_{n-1}}{2n\sqrt{2\alpha\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \left(i \frac{k}{\sqrt{\alpha}} + x\right) e^{-i \frac{k}{\sqrt{\alpha}}x - \frac{x^2}{2}} H_n(x) dx, \quad (\text{F.13})$$

soit

$$P_{n-1} = \frac{A_{n-1}}{2n\sqrt{2\alpha\pi}} \left[ik \frac{\sqrt{2\pi}P_n}{A_n} + \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\frac{k}{\sqrt{\alpha}}x - \frac{x^2}{2}} x H_n(x) dx \right]. \quad (\text{F.14})$$

D'autre part, les polynômes d'Hermite vérifient également la relation

$$xH_n = \frac{H_{n+1}}{2} + nH_{n-1}. \quad (\text{F.15})$$

En tenant compte de cette dernière relation, on obtient après quelques développements la relation

$$P_{n-1} = \frac{1}{n} \left(\frac{ikA_{n-1}}{\sqrt{\alpha}A_n} P_n + \frac{1}{2} \frac{A_{n-1}}{A_{n+1}} P_{n+1} \right), \quad (\text{F.16})$$

ou encore

$$P_{n+1} = \frac{2A_{n+1}}{A_{n-1}} \left(nP_{n-1} - ik \frac{A_{n-1}}{\sqrt{\alpha}A_n} P_n \right). \quad (\text{F.17})$$

On obtient finalement en simplifiant les constantes de normalisation, la relation de récurrence suivante :

$$P_{n+1} = \sqrt{\frac{n}{n+1}} P_{n-1} - ik \sqrt{\frac{2}{\alpha(n+1)}} P_n. \quad (\text{F.18})$$

Evaluation de la distribution en énergie dans la MCDT : cas du modèle atomique 1D

Le paquet d'onde solution de l'ESDT peut s'écrire :

$$\Psi(x, t) = \sum_n a_n \psi_n(x) e^{-iE_n t} + \int_{-\infty}^{+\infty} c(k) \psi_k(x) e^{-i\frac{k^2}{2}t} dk, \quad (\text{G.1})$$

c'est-à-dire comme une somme discrète sur les états liés du système $\psi_n(x)$ d'énergie propre E_n et d'une somme continue sur les états $\psi_k(x)$ du continuum d'impulsion k et d'amplitude $c(k)$. Les états du continuum sont solutions de l'équation de Schrödinger stationnaire de valeur propre positive donnée par :

$$\left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + V(x) - \frac{k^2}{2} \right] \psi_k(x) = 0 \quad (\text{G.2})$$

Par ailleurs, elles vérifient la relation d'orthogonalité :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \psi_k^*(x) \psi_{k'}(x) dx = \delta(k - k') \quad (\text{G.3})$$

Lorsque $x \rightarrow \infty$, les états liés tendent vers 0. Concernant les états du continuum, on peut supposer, compte tenu de la courte portée du potentiel gaussien utilisé dans le modèle, que ces états sont décrits par l'onde plane (normalisée dans l'espace des impulsions k) et donnée par :

$$\psi_k(x \rightarrow \infty) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{ikx}, \quad k \in \mathbb{R} \quad (\text{G.4})$$

La relation (G.1) pour $x \rightarrow \infty$ devient

$$\Psi(x \rightarrow \infty, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} c(k) \psi_k(x) e^{-i \frac{k^2}{2} t} dk, \quad (\text{G.5})$$

et en remplaçant $\psi_k(x)$ par son expression asymptotique, on trouve :

$$\Psi(x \rightarrow \infty, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} c(k) e^{ikx} e^{-i \frac{k^2}{2} t} dk \quad (\text{G.6})$$

Nous effectuons le calcul de l'intégrale dans l'équation (G.6) grâce à la méthode des phases stationnaires [100, 119] basées sur les deux théorèmes suivants :

théorème 1 : soient $\lambda(k)$ et $\chi(k)$ deux fonctions continues sur l'intervalle $[a, b]$, si $\frac{d\chi}{dk} \neq 0$ sur $[a, b]$, alors

$$\int_a^b \lambda(k) e^{iR\chi(k)} dk \underset{R \rightarrow \infty}{\sim} \left[\frac{\lambda(k) e^{iR\chi(k)}}{iR \frac{d\chi(k)}{dk}} \right]_{k=a}^{k=b}. \quad (\text{G.7})$$

théorème 2 : Soient $\lambda(k)$ et $\chi(k)$ deux fonctions continues sur l'intervalle $[a, b]$, si $\frac{d\chi}{dk} = 0$ en $k = k_0 \in [a, b]$ avec $\frac{d^2\chi}{dk^2} \neq 0$, alors

$$\int_a^b \lambda(k) e^{iR\chi(k)} dk \underset{R \rightarrow \infty}{\sim} \lambda(k_0) \left\{ \frac{2\pi}{R \left| \frac{d^2\chi(k_0)}{dk^2} \right|} \right\}^{\frac{1}{2}} e^{i \left[R\chi(k_0) + \frac{1}{4}\pi \text{sign}\left(\frac{d^2\chi(k_0)}{dk^2}\right) \right]} \quad (\text{G.8})$$

Pour cela, posons

$$\chi(k) = \frac{k}{t} x - \frac{k^2}{2}. \quad (\text{G.9})$$

L'équation (G.6) s'écrit :

$$\Psi(x \rightarrow \infty, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} c(k) e^{it\chi(k)} dk. \quad (\text{G.10})$$

On montre que

$$\frac{d\chi(k)}{dk} = \frac{x}{t} - k = 0 \Rightarrow k_0 = \frac{x}{t}, \quad (\text{G.11})$$

et

$$\frac{d^2\chi(k)}{dk^2} = -1. \quad (\text{G.12})$$

Ce qui permet d'utiliser le théorème 2 à partir duquel on trouve que :

$$\begin{aligned}
\Psi(x \rightarrow \infty, t \rightarrow \infty) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} c(k) e^{it\chi(k)} dk \\
&= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} c(k_0) \left\{ \frac{2\pi}{t} \right\}^{\frac{1}{2}} e^{i \left[t \left(\frac{x^2}{t^2} - \frac{1}{2} \frac{x^2}{t^2} \right) - \frac{\pi}{4} \right]} \\
&= c(k_0) \left\{ \frac{1}{t} \right\}^{\frac{1}{2}} e^{i \left[\frac{x^2}{2t} - \frac{\pi}{4} \right]}. \tag{G.13}
\end{aligned}$$

En tenant compte du fait que

$$e^{-i\frac{\pi}{4}} = \frac{1}{\sqrt{i}}, \tag{G.14}$$

on trouve

$$\Psi(x \rightarrow \infty, t \rightarrow \infty) = c(k_0) \frac{1}{\sqrt{it}} e^{i\frac{x^2}{2t}} = c\left(\frac{x}{t}\right) \frac{1}{\sqrt{it}} e^{i\frac{x^2}{2t}}. \tag{G.15}$$

Rappelons que la MCDT est basée sur les deux transformations suivantes :

$$x = R(t)\xi \tag{G.16}$$

$$\Psi(x, t) = \frac{1}{\sqrt{R}} \exp\left(\frac{i}{2} R \dot{R} \xi^2\right) \Phi(\xi, t). \tag{G.17}$$

Le facteur d'échelle $R(t)$ est choisi de façon à tendre vers une droite affine lorsque $t \rightarrow \infty$

$$R(t \rightarrow \infty) = a_\infty t, \quad \frac{d}{dt} R(t \rightarrow \infty) = a_\infty, \quad a_\infty > 0. \tag{G.18}$$

Ainsi, on a :

$$x(t \rightarrow \infty) = R(t \rightarrow \infty)\xi = a_\infty t \xi, \tag{G.19}$$

soit

$$\frac{x}{t} = a_\infty \xi, \tag{G.20}$$

et

$$t = \frac{R}{a_\infty}. \tag{G.21}$$

En intégrant ces dernières relations dans (G.15), on a :

$$\Psi(x \rightarrow \infty, t \rightarrow \infty) = c\left(\frac{x}{t}\right) \sqrt{\frac{a_\infty}{iR}} e^{iRa_\infty \frac{\xi^2}{2}} = c\left(\frac{x}{t}\right) \sqrt{\frac{a_\infty}{iR}} e^{iR \frac{dR}{dt} \frac{\xi^2}{2}}. \tag{G.22}$$

En comparant cette dernière relation à l'équation (G.17) liant les fonctions d'onde dans les deux représentations, et en tenant compte du fait que $\frac{x}{t} = k$ d'un point de vue classique, on obtient :

$$c(k) = \sqrt{\frac{i}{a_\infty}} \Phi(\xi, t \rightarrow \infty) = \sqrt{\frac{i}{a_\infty}} \Phi\left(\frac{k}{a_\infty}, t \rightarrow \infty\right). \quad (\text{G.23})$$

Cette dernière équation relie directement l'amplitude d'ionisation au paquet d'onde dans la MCDT. Bien plus elle montre que $\Phi(\xi, t \rightarrow \infty)$ devient indépendant de t , et elle représente l'enveloppe de $\Psi(x \rightarrow \infty, t \rightarrow \infty)$ [37]. On peut expliquer ce fait en analysant l'expression du hamiltonien dans la nouvelle représentation

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Phi(\xi, t) = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{R^2 \partial \xi^2} + V(R\xi) + I(R\xi, t) + \frac{1}{2} R \ddot{R} \xi^2 \right] \Phi(\xi, t). \quad (\text{G.24})$$

Si on considère que le champ est éteint, et en tenant compte de la courte portée du potentiel, l'évolution du paquet d'onde dans la MCDT est régie par :

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Phi(\xi, t \rightarrow \infty) = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{R^2 \partial \xi^2} + \frac{1}{2} R \ddot{R} \xi^2 \right] \Phi(\xi, t \rightarrow \infty). \quad (\text{G.25})$$

Par ailleurs $\frac{d^2}{dt^2} R(t \rightarrow \infty) = 0$, et $\frac{1}{R^2(t)} \frac{\partial^2}{\partial \xi^2} \xrightarrow{t \rightarrow \infty} 0$; on montre ainsi que $\Phi(\xi, t \rightarrow \infty)$ devient indépendant de t .

Expression dans l'espace des énergies

L'onde plane normalisée dans l'espace des énergies suivant

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \psi_E^*(x) \psi_{E'}(x) dx = \delta(E - E') \quad (\text{G.26})$$

est donnée par

$$\Psi_E^\pm(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \left(\frac{1}{2E} \right)^{\frac{1}{4}} e^{\pm i k x} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \left(\frac{1}{2E} \right)^{\frac{1}{4}} e^{\pm i \sqrt{2E} x}, \quad k > 0 \quad (\text{G.27})$$

où le signe \pm représente des ondes se propageant en sens inverses et orthogonales entre elles.

Pour calculer la distribution en énergie du fragment ionisé, nous tenons compte des deux contributions décrites par le signe \pm en posant

$$\Psi^-(x \rightarrow \infty, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \left(\frac{1}{2E} \right)^{\frac{1}{4}} \int_0^{+\infty} c^-(E) e^{-ikx} e^{-i\frac{k^2}{2}t} dE, \quad k > 0, \quad (\text{G.28})$$

et

$$\Psi^+(x \rightarrow \infty, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \left(\frac{1}{2E} \right)^{\frac{1}{4}} \int_0^{+\infty} c^+(E) e^{ikx} e^{-i\frac{k^2}{2}t} dE, \quad k > 0, \quad (\text{G.29})$$

En suivant la même procédure que celle utilisée pour calculer l'amplitude d'ionisation dans l'espace des impulsions, on trouve :

$$c(E) = c^-(E) + c^+(E) = 2(2E)^{\frac{1}{4}} \sqrt{\frac{i}{a_\infty}} \Phi\left(\frac{\sqrt{2E}}{a_\infty}, t \rightarrow \infty\right). \quad (\text{G.30})$$

Correction

Les expressions (G.23) et (G.30) donnant le spectre du paquet d'onde ont été obtenues en posant :

$$R(t \rightarrow \infty) = a_\infty t. \quad (\text{G.31})$$

Cette relation n'est en effet correcte que si le facteur d'échelle est branché à $t = 0$. Dans le cas où le facteur d'échelle est branché à $t = t_b$, le comportement asymptotique s'écrit

$$R(t \rightarrow \infty) = a_\infty (t - t_b). \quad (\text{G.32})$$

En fonction de la valeur de t_b , sa non-prise en compte peut donner lieu à un spectre erroné. En introduisant cette correction dans les développements précédents, on obtient les relations :

$$c(k) = \sqrt{i\left(\frac{1}{a_\infty} + \frac{t_b}{R}\right)} \Phi\left(\frac{k}{a_\infty\left(1 - \frac{t_b}{t}\right)}, t\right), \quad (\text{G.33})$$

$$c(E) = 2(2E)^{\frac{1}{4}} \sqrt{i\left(\frac{1}{a_\infty} + \frac{t_b}{R}\right)} \Phi\left(\frac{\sqrt{2E}}{a_\infty\left(1 - \frac{t_b}{t}\right)}, t\right). \quad (\text{G.34})$$

Evaluation des éléments de matrice du potentiel harmonique dans le cas de l'atome d'hydrogène 3D

Evaluer les éléments de matrice associés au potentiel harmonique de confinement $R\ddot{R}r^2$ revient à calculer, dans l'approche spectrale que nous utilisons et basée sur la décomposition de la solution dans la base sturmienne, les termes radiaux $\langle S_{n,l}^\kappa | r^2 | S_{n',l}^\kappa \rangle$. L'intégration sur la partie angulaire est simplement égale à $\delta_{ll'}$. En tenant compte de l'expression de la fonction sturmienne en terme de polynôme de Laguerre [166]

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

et en tenant compte du kronecker $\delta_{ll'}$ introduit par l'intégrale sur les termes angulaires, la partie radiale des éléments du potentiel harmonique à évaluer s'écrivent

$$\langle S_{n,l}^\kappa | r^2 | S_{n',l}^\kappa \rangle = N_{n,l}^\kappa N_{n',l}^\kappa \int_0^\infty r^{2l+4} e^{-2\kappa r} L_{n-l-1}^{2l+1}(2\kappa r) L_{n'-l-1}^{2l+1}(2\kappa r) dr. \quad (\text{H.2})$$

Pour calculer ces éléments de matrice, nous tirons avantage de la relation (7.41-3) de Gradsteyn [102] suivante vérifiée par les polynômes de Laguerre :

$$\int_0^\infty r^\alpha e^{-r} L_n^\alpha(r) L_\nu^\alpha(r) dr = \frac{\Gamma(\alpha + n + 1)}{n!} \delta_{nm} \quad (\text{H.3})$$

Nous transformons les polynômes de Laguerre d'ordre $2l + 1$ en polynômes d'ordre $2l + 4$ en exploitant la relation de récurrence (22.7.30) d'Abramowitz

et Stegun [116]. On obtient en posant $\alpha = 2l$

$$\begin{aligned} L_n^{\alpha+1} &= L_n^{\alpha+2} - L_{n-1}^{\alpha+2} \\ &= L_n^{\alpha+3} - 2L_{n-1}^{\alpha+3} + L_{n-2}^{\alpha+3} \\ &= L_n^{\alpha+4} - 3L_{n-1}^{\alpha+4} + 3L_{n-2}^{\alpha+4} - L_{n-3}^{\alpha+4} \end{aligned} \quad (\text{H.4})$$

En posant $x = 2\kappa r$, $I_{nn'} = \langle S_{n,l}^\kappa | r^2 | S_{n',l}^\kappa \rangle$ et

$$K_{nn'} = N_{n,l}^\kappa \times N_{n',l}^\kappa \times (2\kappa)^{-(2l+5)}, \quad (\text{H.5})$$

l'équation (H.2) devient

$$\begin{aligned} I_{nn'} &= K_{nn'} \int_0^\infty x^{\alpha+4} e^{-x} \times \\ &\quad \left(L_n^{\alpha+4}(x) - 3L_{n-1}^{\alpha+4}(x) + 3L_{n-2}^{\alpha+4}(x) - L_{n-3}^{\alpha+4}(x) \right) \times \\ &\quad \left(L_{n'}^{\alpha+4}(x) - 3L_{n'-1}^{\alpha+4}(x) + 3L_{n'-2}^{\alpha+4}(x) - L_{n'-3}^{\alpha+4}(x) \right) dr, \end{aligned} \quad (\text{H.6})$$

On obtient en exploitant la relation (H.3) et après développement le résultat

$$\begin{aligned} \frac{I_{nn'}}{K_{nn'}} &= \left(\frac{\Gamma(n+l+4)}{(n-l-1)!} + 9 \frac{\Gamma(n+l+3)}{(n-l-2)!} + 9 \frac{\Gamma(n+l+2)}{(n-l-3)!} + \frac{\Gamma(n+l+1)}{(n-l-4)!} \right) \times \\ &\quad \delta_{nn'} - \left(3 \frac{\Gamma(n+l+4)}{(n-l-1)!} + 9 \frac{\Gamma(n+l+3)}{(n-l-2)!} + 3 \frac{\Gamma(n+l+2)}{(n-l-3)!} \right) \delta_{nn'-1} \\ &\quad + \left(3 \frac{\Gamma(n+l+4)}{(n-l-1)!} + 3 \frac{\Gamma(n+l+3)}{(n-l-2)!} \right) \delta_{nn'-2} \\ &\quad - \left(3 \frac{\Gamma(n+l+4)}{(n-l-1)!} \right) \delta_{nn'-3} \\ &\quad - \left(3 \frac{\Gamma(n+l+1)}{(n-l-4)!} \right) \delta_{nn'+3} \\ &\quad + \left(3 \frac{\Gamma(n+l+2)}{(n-l-3)!} + 3 \frac{\Gamma(n+l+1)}{(n-l-4)!} \right) \delta_{nn'+2} \\ &\quad - \left(3 \frac{\Gamma(n+l+3)}{(n-l-2)!} + 9 \frac{\Gamma(n+l+2)}{(n-l-3)!} + 3 \frac{\Gamma(n+l+1)}{(n-l-4)!} \right) \delta_{nn'+1}, \end{aligned} \quad (\text{H.7})$$

qui peut s'écrire comme une matrice penta-diagonale par bloc de moment angulaire l , réelle et symétrique, dont les éléments non nuls sont donnés par :

$$I_{nn} = \frac{\kappa}{n(2\kappa)^3} [(n+l+3)(n+l+2)(n+l+1) + 18n(n+l+1) \times (n-l-1) + (n-l-1)(n-l-2)(n-l-2)];$$

$$I_{nn+1} = -\frac{\kappa\sqrt{(n+l+1)(n-l)}}{\sqrt{n(n+1)}(2\kappa)^3} [3(n+l+3)(n+l+2) + (n-l-1)(9(n+l+2) + 3(n-l-2))];$$

$$I_{nn-1} = -\frac{\kappa\sqrt{(n+l)(n-l-1)}}{\sqrt{n(n-1)}(2\kappa)^3} [3(n+l+2)(n+l+1) + (n-l-2)(9(n+l+1) + 3(n-l-3))];$$

$$I_{nn+2} = \frac{3\kappa(2n+2)}{\sqrt{n(n+2)}(2\kappa)^3} \sqrt{(n-l+1)(n+l+2)(n-l)(n+l+1)};$$

$$I_{nn-2} = \frac{3\kappa(2n-2)}{\sqrt{n(n-2)}(2\kappa)^3} \sqrt{(n+l)(n+l-1)(n-l-1)(n-l-2)};$$

$$I_{nn+3} = -\frac{\kappa}{\sqrt{n(n+3)}(2\kappa)^3} \sqrt{(n+l+3)(n+l+2)(n+l+1)(n-l+2)(n-l+1)(n-l)};$$

$$I_{nn-3} = -\frac{\kappa}{\sqrt{n(n-3)}(2\kappa)^3} \sqrt{(n+l)(n+l-1)(n+l-2)(n-l-1)(n-l-2)(n-l-3)}.$$

Evaluation de la distribution en énergie dans la MCDT : cas de l'hydrogène atomique

Le paquet d'onde total dans notre approche spectrale peut s'écrire comme étant une somme discrète sur les états liés et d'une somme sur les états du continuum. soit :

$$\psi(\vec{r}, t) = \sum_{n,l,m} a_{n,l,m}(t) e^{-iE_{n,l,m}t} \psi_{n,l,m}^{(b)}(\vec{r}) + \sum_{l,m} \int d\vec{k} c_l(k, t) e^{-iEt} \psi_{l,m}^{(c)}(\vec{k}\vec{r}). \quad (\text{I.1})$$

Les états liés $\psi_{n,l,m}^{(b)}(\vec{r})$ et les états du continuum $\psi_{l,m}^{(c)}(\vec{k}\vec{r})$ sont respectivement donnés par :

$$\psi_{n,l,m}^{(b)}(\vec{r}) = \varphi_{n,l}(r) Y_{l,m}(\hat{r}), \quad (\text{I.2})$$

$$\psi_{l,m}^{(c)}(\vec{k}\vec{r}) = \mathfrak{R}_l^{(-)}(kr) Y_{l,m}(\hat{r}) Y_{l,m}(\hat{k}). \quad (\text{I.3})$$

$Y_{l,m}$ représente l'harmonique sphérique pour décrire la partie angulaire. Les fonctions radiales $\varphi_{n,l}(r)$ des états liés sont données par

$$\varphi_{n,l}(r) = \sum_{\nu} b_{\nu} \frac{S_{\nu,l}^{\kappa}(r)}{r}, \quad (\text{I.4})$$

où les $S_{\nu,l}(r)$ représentent les fonctions de base qui dans notre cas sont des fonctions sturmiennes de paramètre non linéaire κ . Les fonctions radiales du continuum, normalisées en énergie, sont données par [117] :

$$\mathfrak{R}_l^{(-)}(kr) = i^l e^{-i\sigma_l} N(k) \frac{F_l(\gamma, kr)}{kr}, \quad (\text{I.5})$$

où $F_l(\gamma, kr)$ désigne la fonction coulombienne régulière, $\sigma_l = \arg \Gamma(l + 1 + i\gamma)$ représente le facteur de phase avec $\gamma = -z/k$, z étant la charge du noyau

et $N(k) = \sqrt{k}$ représente le coefficient de normalisation dans l'espace des énergies. Le paquet d'onde s'écrit donc :

$$\begin{aligned} \psi(\vec{r}, t) &= \sum_{n,l,m} a_{n,l}(t) e^{-iE_n t} \varphi_{n,l}(r) Y_{l,m}(\hat{r}) + \\ &\sum_{l,m} Y_{l,m}(\hat{r}) \int dk c_l(k, t) e^{-iEt} \mathfrak{R}_l^{(-)}(kr). \end{aligned} \quad (\text{I.6})$$

Aux grandes distances,

$$\psi(\vec{r}, t) \underset{r \rightarrow \infty}{=} \sum_{l,m} Y_{l,m}(\hat{r}) \int dk c_l(k, t) e^{-iEt} \mathfrak{R}_l^{(-)}(kr, r \rightarrow \infty). \quad (\text{I.7})$$

Posons

$$\phi_l(r, t) = \int dk c_l(k, t) e^{-iEt} \mathfrak{R}_l^{(-)}(kr, r \rightarrow \infty). \quad (\text{I.8})$$

En exploitant la forme asymptotique de la fonction coulombienne [117, 118] qu'on peut déduire de la relation suivante :

$$F_l(\gamma, kr) \underset{r \rightarrow \infty}{=} \sin \left(kr - \frac{l\pi}{2} + \frac{z}{k} \ln(2kr) + \sigma_l \right), \quad (\text{I.9})$$

l'équation (I.8) devient

$$\phi_l(r, t) \underset{t \rightarrow \infty}{=} i^l e^{-\sigma_l} \int dk c_l(k, t) N(k) e^{-i\frac{k^2}{2}t} \sin \left(kr - \frac{l\pi}{2} + \frac{z}{k} \ln(2kr) + \sigma_l \right). \quad (\text{I.10})$$

En décomposant le sinus en ondes sphériques rentrante et sortante, on obtient

$$\begin{aligned} \phi_l(r, t) &\underset{t \rightarrow \infty}{=} \frac{i^l e^{-\sigma_l}}{2i} \int dk c_l(k, t) N(k) e^{-i\frac{k^2}{2}t} \times \\ &\left(e^{i(kr - \frac{l\pi}{2} + \frac{z}{k} \ln(2kr) + \sigma_l)} - e^{-i(kr - \frac{l\pi}{2} + \frac{z}{k} \ln(2kr) + \sigma_l)} \right) \\ &= \frac{i^l e^{-\sigma_l}}{2i} (\mathcal{L}_1 - \mathcal{L}_2), \end{aligned} \quad (\text{I.11})$$

avec

$$\mathcal{L}_1 = \frac{i^l e^{-i\sigma_l}}{2i} \int dk c_l(k, t) N(k) e^{-i\frac{k^2}{2}t} e^{i(kr - \frac{l\pi}{2} + \frac{z}{k} \ln(2kr) + \sigma_l)} \quad (\text{I.12})$$

$$\mathcal{L}_2 = \frac{i^l e^{-i\sigma_l}}{2i} \int dk c_l(k, t) N(k) e^{-i\frac{k^2}{2}t} e^{-i(kr - \frac{l\pi}{2} + \frac{z}{k} \ln(2kr) + \sigma_l)}. \quad (\text{I.13})$$

L'évaluation des intégrales \mathcal{L}_1 et \mathcal{L}_2 , lorsque $t \rightarrow \infty$, se fait aisément par la méthode des phases stationnaires [119, 100]. Pour rappel, la méthode est basée sur les deux théorèmes suivants :

théorème 1 : soient $\lambda(k)$ et $\chi(k)$ deux fonctions continues sur l'intervalle $[a, b]$, si $\frac{d\chi}{dk} \neq 0$ sur $[a, b]$, alors

$$\int_a^b \lambda(k) e^{iR\chi(k)} dk \underset{R \rightarrow \infty}{\sim} \left[\frac{\lambda(k) e^{iR\chi(k)}}{iR \frac{d\chi(k)}{dk}} \right]_{k=a}^{k=b} + \mathcal{O}(1/R) \quad (\text{I.14})$$

théorème 2 : soient $\lambda(k)$ et $\chi(k)$ deux fonctions continues sur l'intervalle $[a, b]$, si $\frac{d\chi}{dk} = 0$ en $k = k_0 \in [a, b]$ avec $\frac{d^2\chi}{dk^2} \neq 0$, alors

$$\int_a^b \lambda(k) e^{iR\chi(k)} dk \underset{R \rightarrow \infty}{\sim} \lambda(k_0) \left\{ \frac{2\pi}{R \left| \frac{d^2\chi(k_0)}{dk^2} \right|} \right\}^{\frac{1}{2}} e^{i \left[R\chi(k_0) + \frac{1}{4}\pi \text{sign}\left(\frac{d^2\chi(k_0)}{dk^2}\right) \right]} + \mathcal{O}(1/R) \quad (\text{I.15})$$

On montre que \mathcal{L}_2 est nul du fait que l'exposant de l'exponentielle ne possède pas de point stationnaire dans le domaine d'intégration $k \geq 0$. Posons

$$\chi(k) = -\frac{k^2}{2} + k\frac{r}{t} + z\frac{\ln(2kr)}{kt}. \quad (\text{I.16})$$

La dérivée première de la fonction $\chi(k)$ vaut :

$$\frac{d\chi}{dk} = -k + \frac{r}{t} + z\frac{1 - \ln(2kr)}{k^2t}. \quad (\text{I.17})$$

La dérivée seconde de la fonction $\chi(k)$ est donnée :

$$\frac{d^2\chi}{dk^2} = -1 + z\frac{3 - 2\ln(2kr)}{k^3t} \underset{t \rightarrow \infty}{=} -1. \quad (\text{I.18})$$

Le point de phase stationnaire qui annule la dérivée première donnée par (I.17), est en première approximation (l'approximation est faite dans le terme correctif $z\frac{1 - \ln(2kr)}{k^2t}$ où k est remplacé par $\frac{r}{t}$) donné par :

$$k_0 = \frac{r}{t} + z\frac{1 - \ln\left(\frac{2r^2}{t}\right)}{\frac{r^2}{t}} \quad (\text{I.19})$$

En appliquant le théorème 2, l'intégrale \mathcal{L}_1

$$\mathcal{L}_1 = \int dk c_l(k, t) R(k) e^{it \left(-\frac{k^2}{t} + \frac{k}{t} r + \frac{z}{kt} \ln(2kr) \right)} \quad (\text{I.20})$$

est donnée en bonne approximation aux grands temps par

$$\mathcal{L}_1 \underset{t \rightarrow \infty}{\sim} c_l(k_0, t) \times R(k_0) \sqrt{\frac{2\pi}{t \times \left| \frac{d^2\chi(k_0)}{dk^2} \right|}} e^{i \left(t \times \chi(k_0) + \frac{\pi}{4} \text{sign} \left(\frac{d^2\chi(k_0)}{dk^2} \right) \right)} \quad (\text{I.21})$$

avec

$$R(k_0) = \frac{N(k_0)}{2ir} e^{i \left(-\frac{t\pi}{2} + \sigma_l \right)}. \quad (\text{I.22})$$

Le PO aux grandes distances et aux grands temps est donc donné par

$$\psi(\vec{r}, t \rightarrow \infty) \underset{r \rightarrow \infty}{\sim} \sum_{l,m} Y_{l,m}(\hat{r}) \times c_l(k_0, t) \times R(k_0) \sqrt{\frac{2\pi}{i \times t \times \left| \frac{d^2\chi(k_0)}{dk^2} \right|}} e^{i(t \times \chi(k_0))}. \quad (\text{I.23})$$

Par ailleurs

$$\psi(\vec{r}, t \rightarrow \infty) = \frac{1}{a^{\frac{3}{2}}} e^{\frac{i}{2} a \hat{a} \xi^2} \varphi(\vec{\xi}, t \rightarrow \infty) \quad (\text{I.24})$$

Donc

$$\varphi(\vec{\xi}, t \rightarrow \infty) \underset{r \rightarrow \infty}{\sim} a^{\frac{3}{2}} \times e^{-\frac{i}{2} a \hat{a} \xi^2} \sum_{l,m} Y_{l,m}(\hat{r}) \times c_l(k_0, t) \times R(k_0) \sqrt{\frac{2\pi}{i \times t \times \left| \frac{d^2\chi(k_0)}{dk^2} \right|}} e^{i(t \times \chi(k_0))}. \quad (\text{I.25})$$

Les amplitudes de probabilité partielles (correspondant à chaque moment angulaire) en énergie sont finalement données (en tenant compte du fait que le paquet d'onde devient stationnaire aux grands temps) par :

$$c_l(k_0) = \frac{1}{a^{\frac{3}{2}}} e^{\frac{i}{2} a \hat{a} \xi^2} \times \left(R(k_0) \sqrt{\frac{2\pi}{i \times t \times \left| \frac{d^2\chi(k_0)}{dk^2} \right|}} e^{i(t \times \chi(k_0))} \right)^{-1} \varphi(\xi, t \rightarrow \infty) \quad (\text{I.26})$$

La distribution en énergie du paquet ionisé est directement obtenue à partir du paquet d'onde stationnaire.

Evaluation de la quantité $\frac{r}{t}$ par une approche classique de la quantité de mouvement

L'énergie - au sens classique - d'une particule dans un champ coulombien est donnée par :

$$E = \frac{p_r^2}{2} - \frac{z}{r} + \frac{l(l+1)}{2r^2}. \quad (\text{I.27})$$

Par ailleurs l'énergie d'une particule (en u.a.) est donnée par :

$$E = \frac{k^2}{2}. \quad (\text{I.28})$$

En combinant ces deux équations et en tenant compte des conditions asymptotiques, la quantité de mouvement est donnée par :

$$p_r = \sqrt{k^2 - \frac{2z}{r} - \frac{l(l+1)}{r^2}} \approx k - \frac{z}{kr} + \mathcal{O}(1/r^2). \quad (\text{I.29})$$

Le temps nécessaire pour parcourir la distance r est donné par :

$$t(r) = \int_0^r \frac{dr}{p_r} = \frac{r}{k} + \frac{\zeta}{k^3} \ln \left(1 - \frac{k^2 r}{z} \right). \quad (\text{I.30})$$

L'expression de la distance parcourue par la particule après un temps t est :

$$r = kt - \frac{\zeta}{k^2} \ln \left(1 - \frac{k^2 r}{z} \right). \quad (\text{I.31})$$

Finalement en introduisant dans la correction coulombienne le terme du premier ordre, on obtient :

$$r \approx kt - \frac{\zeta}{k^2} \ln \left(1 - \frac{k^3 t}{z} \right). \quad (\text{I.32})$$

La forme asymptotique de la fonction d'échelle $a(t)$ étant de la forme

$$a(t \rightarrow \infty) = \dot{a}_\infty t, \quad (\text{I.33})$$

on déduit les relations suivantes

$$\frac{a}{t} = \dot{a}_\infty, \quad (\text{I.34})$$

$$\frac{r}{t} = a_{\infty} \xi. \quad (\text{I.35})$$

On obtient ainsi une relation entre la coordonnée radiale ξ et l'énergie

$$\xi = \frac{1}{a_{\infty}} \times \frac{r}{t} \approx \frac{1}{a_{\infty}} \left(k - \frac{\zeta}{k^2 t} \ln \left(1 - \frac{k^3 t}{z} \right) \right). \quad (\text{I.36})$$

Développement de la fonction coulombienne dans la base sturmiennne

Une des méthodes que nous utilisons pour évaluer la distribution en énergie des électrons émis dans le continuum, dans le cas de l'ionisation de l'atome d'hydrogène, consiste à projeter le PO $\Psi(\vec{r}, t)$ obtenu à la fin de l'interaction sur les fonctions coulombiennes. Ces fonctions coulombiennes décrivent le continuum des systèmes à un électron actif. Il est important d'exprimer ces fonctions dans la base des fonctions sturmiennes dans laquelle le PO est développé. La fonction coulombienne rentrante $\Phi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r})$ qui intervient dans les calculs est donnée par

$$\Phi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r}) = \sum_{l,m} \frac{4\pi}{2l+1} \mathcal{R}_l^{-*}(kr) Y_{l,m}(\hat{k}) Y_{l,m}^*(\hat{r}), \quad (\text{J.1})$$

où la fonction d'onde radiale $\mathcal{R}_l^{-*}(kr)$ est donnée par

$$\mathcal{R}_l^{-*}(kr) = (-1)^l \mathcal{R}_l^+(kr), \quad (\text{J.2})$$

avec

$$\mathcal{R}_l^+(kr) = (2\pi)^{-\frac{3}{2}} (2ikr)^l e^{\frac{z\pi}{2k}} e^{ikr} \frac{\Gamma(l+1-i\frac{z}{k})}{(2l)!} {}_1F_1\left(l+1-i\frac{z}{k}; 2l+2; -2ikr\right). \quad (\text{J.3})$$

z représente la charge du noyau de l'hydrogénoïde. La fonction $\Phi_{\vec{k}}^{-*}(\vec{r})$ vérifie la relation d'orthonormalisation suivante

$$\int \Phi_{\vec{k}}^{-}(\vec{r}) \Phi_{\vec{k}'}^{-*}(\vec{r}) d\vec{r} = \delta(\vec{k} - \vec{k}'). \quad (\text{J.4})$$

Pour faciliter les calculs, on développe $\Phi_{\hat{k}}^{-*}(\vec{r})$ dans la base sturmienne, soit

$$\Phi_{\hat{k}}^{-*}(\vec{r}) = \sum_{\nu, l, m} a_{\nu, l}(k) \frac{S_{\nu, l}^{\kappa}(r)}{r} Y_{l, m}(\hat{k}) Y_{l, m}^*(\hat{r}), \quad (\text{J.5})$$

où les coefficients $a_{\nu, l}(k)$ sont à déterminer. En multipliant à droite les relations J.1 et J.5 par $\frac{S_{n, l}^{\kappa}(r)}{r} Y_{l', m'}^*(\hat{k}) Y_{l', m'}(\hat{r})$, en intégrant sur tout l'espace chacune des expressions puis en égalant les deux expressions, on obtient

$$a_{\nu, l}(k) = \frac{4\pi}{2l+1} \frac{\nu}{\kappa} \int_0^{\infty} S_{\nu, l}^{\kappa}(r) r \mathcal{R}_{l, k}^{-*}(r) dr. \quad (\text{J.6})$$

En utilisant la relation (J.3) et l'expression

$$S_{n, l}^{\kappa}(r) = N_{n, l}^{\kappa} r^{l+1} e^{-\kappa r} {}_1F_1(l+1-n; 2l+2, 2\kappa r), \quad (\text{J.7})$$

dans (J.6) on obtient

$$\begin{aligned} a_{\nu, l}(k) &= \sqrt{\frac{2\nu\kappa}{\pi}} \frac{2(-1)^l}{[(2l+1)!]^2} \left[\frac{(\nu+l)!}{(\nu-l-1)!} \right]^{\frac{1}{2}} (-4i\kappa k)^l e^{\frac{z\pi}{2k}} \Gamma\left(l+1 - \frac{iz}{k}\right) \times \\ &\int_0^{\infty} e^{-(\kappa-ik)r} r^{2l+1} {}_1F_1(l+1-\nu; 2l+2, 2\kappa r) \times \\ &{}_1F_1\left(l+1 - i\frac{z}{k}; 2l+2, -2ikr\right) dr. \end{aligned} \quad (\text{J.8})$$

La relation (7.622.1) de Gradsteyn [102] permet d'évaluer l'intégrale suivante :

$$\begin{aligned} I &= \int_0^{\infty} e^{-(\kappa-ik)r} r^{2l+1} {}_1F_1(l+1-\nu; 2l+2, 2\kappa r) \times \\ &{}_1F_1\left(l+1 - i\frac{z}{k}; 2l+2, -2ikr\right) dr \\ &= \left(\frac{1}{2\kappa}\right)^{2l+2} \int_0^{\infty} e^{-\frac{1}{2}(1-i\frac{k}{\kappa})x} x^{2l+1} {}_1F_1(l+1-\nu; 2l+2, x) \\ &{}_1F_1\left(l+1 - i\frac{z}{k}; 2l+2, -i\frac{k}{\kappa}x\right) dx \\ &= \left(\frac{1}{2\kappa}\right)^{2l+2} (2l+1)! \left[-\frac{1}{2} - \frac{ik}{2\kappa}\right]^{\nu-l-1} \left[\frac{1}{2} + \frac{ik}{2\kappa}\right]^{\frac{iz}{k}-l-1} \times \\ &\left[\frac{1}{2} - \frac{ik}{2\kappa}\right]^{-\nu-\frac{iz}{k}} {}_2F_1\left(l+1-\nu, l+1 - i\frac{z}{k}; 2l+2, \frac{i\frac{k}{\kappa}}{\left(\frac{1}{2} + \frac{ik}{2\kappa}\right)^2}\right). \end{aligned} \quad (\text{J.9})$$

En posant $\lambda = -ik/\kappa$, on obtient après quelques simplifications

$$I = \left(\frac{1}{2\kappa}\right)^{2l+2} 4^{l+1} (-1)^{\nu-l-1} (1-\lambda)^{-2l-2} \left[\frac{1-\lambda}{1+\lambda}\right]^{\nu+\frac{iz}{k}} \times \\ (2l+1)! {}_2F_1\left(l+1-\nu, l+1-i\frac{z}{k}; 2l+2, \frac{-4\lambda}{(1-\lambda)^2}\right). \quad (\text{J.10})$$

En prenant en compte le fait que

$$\left[\frac{1-\lambda}{1+\lambda}\right]^{\frac{iz}{k}} = e^{-\frac{2z}{k} \arctan \frac{k}{\kappa}}, \quad (\text{J.11})$$

on obtient finalement

$$a_{n,l}(k) = (-1)^{n-1} (i\kappa k)^l (1-\lambda)^{-(2l+2)} \frac{4\pi}{2l+1} \left(\frac{2}{\kappa}\right)^{2l+3/2} \sqrt{\frac{n}{l}} \frac{1}{(2l+1)!} \\ \left(\frac{(n+l)!}{(n-l-1)!}\right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{1-\lambda}{1+\lambda}\right)^n \Gamma\left(l+1-i\frac{Z}{k}\right) e^{\frac{Z\pi}{2k}} e^{-\frac{2Z}{k} \arctan \frac{k}{\kappa}} \\ {}_2F_1\left(l+1-n; l+1-i\frac{Z}{k}; 2l+2; -\frac{4\lambda}{(1-\lambda)^2}\right). \quad (\text{J.12})$$

Pour des raisons numériques, nous exprimons $a_{n,l}(k)$ en fonction des polynômes de Pollaczek (qui se calculent aisément par récurrence). En posant $a_{n,l} = \frac{4\pi}{2l+1} \tilde{a}_{n,l}$ et en exploitant la relation

$$P_n^\lambda(x; a, b) = \frac{1}{n!} (2\lambda)_n e^{in\theta} {}_2F_1\left(-n; \lambda + it; 2\lambda; 1 - e^{-2i\theta}\right), \quad (\text{J.13})$$

avec $x = \cos \theta$ et $t = (ax + b)(1 - x^2)^{-1/2}$, on obtient

$$\tilde{a}_{n,l}(k) = (2l+1)(4i\kappa k)^l \frac{(-1)^{n-1}}{\pi} \sqrt{\frac{n\kappa}{2\pi}} \left(\frac{(n+l)!}{(n-l-1)!}\right)^{-\frac{1}{2}} \frac{\Gamma(l+1-i\frac{z}{k})}{(\kappa^2 + k^2)^{l+1}} \\ e^{\frac{Z}{k}(\pi/2-2\theta)} P_{n-l-1}^{l+1}\left(x; -\frac{z}{\kappa}, -\frac{z}{\kappa}\right), \quad (\text{J.14})$$

avec $\theta = \arctan k/\kappa$.

Calcul du flux dans la méthode ESDT/HRM-SOW

Nous souhaitons évaluer le flux ou densité de probabilité du courant du paquet d'onde à travers une hypersphère de rayon fixe. Par définition, la densité de probabilité du courant [165] est donnée par

$$d\vec{\mathcal{F}} = -i\frac{\hbar}{2m} (\psi^* \vec{\nabla} \psi - \psi \vec{\nabla} \psi^*), \quad (\text{K.1})$$

qui en unités atomiques devient

$$d\vec{\mathcal{F}} = -i\Re_e (\psi^* \vec{\nabla} \psi). \quad (\text{K.2})$$

Le flux que nous souhaitons évaluer est celui qui traverse une hypersphère d'hyperrayon $R = R_0$. L'élément de surface en coordonnées hypersphériques est donné par

$$dS = R_0^5 (\sin \alpha \cos \alpha)^2 d\alpha d\Omega_1 d\Omega_2. \quad (\text{K.3})$$

Pour passer des coordonnées sphériques aux coordonnées hypersphériques, les relations suivantes sont utilisées :

$$r_1 = R \cos \alpha, \quad (\text{K.4})$$

$$r_2 = R \sin \alpha, \quad (\text{K.5})$$

avec $R = \sqrt{r_1^2 + r_2^2}$ et $0 \leq \alpha \leq \pi/2$. Le calcul du flux de la fonction d'onde à travers l'hypersphère de rayon $R = R_0$ est donc donné par :

$$\mathcal{F}(R_0, t) = -i\Re_e \left(\int \psi_{R_0}^* \frac{\partial \psi}{\partial R_{R=R_0}} dS \right). \quad (\text{K.6})$$

286 Annexe K. Calcul du flux dans la méthode ESDT/HRM-SOW

La fonction d'onde, développée sur une base de fonctions sturmiennes (un même paramètre non-linéaire est utilisé pour décrire les deux électrons), est donnée par

$$\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \sum_{LM} \sum_{\lambda l} \sum_{\nu n} \alpha_{\nu n}^{\lambda l} c_{\nu n}^{\lambda LLM}(t) \mathcal{A} F_{\kappa \nu n}^{\lambda LLM}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \quad (\text{K.7})$$

avec

$$F_{\kappa \nu n}^{\lambda LLM}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \frac{S_{\nu \lambda}^{\kappa}(r_1)}{r_1} \Lambda_{\lambda l}^{LM}(\hat{r}_1, \hat{r}_2) \frac{S_{nl}^{\kappa}(r_2)}{r_2} \quad (\text{K.8})$$

et $\mathcal{A} = (1 + \varepsilon P_{21})/\sqrt{2}$ étant l'opérateur de symétrisation pour un système de deux particules identiques. En utilisant les relations (K.4) et (K.5) pour passer en coordonnées hypersphériques, la fonction d'onde s'écrit

$$\psi(R_0, \Omega_5, t) = \sum_{LM} \sum_{\lambda l} \sum_{\nu n} \alpha_{\nu n}^{\lambda l} c_{\nu n}^{\lambda LLM}(t) \mathcal{A} \tilde{F}_{\kappa \nu n}^{\lambda LLM}(R_0, \Omega_5) \quad (\text{K.9})$$

où Ω_5 représente l'ensemble des angles $(\alpha, \Omega_1, \Omega_2) \equiv (\alpha, \hat{r}_1, \hat{r}_2)$ et \mathcal{F} se définit

$$\tilde{F}_{\kappa \nu n}^{\lambda LLM}(R_0, \Omega_5) = \frac{S_{\nu \lambda}^{\kappa}(R_0 \cos \alpha)}{R_0 \cos \alpha} \Lambda_{\lambda l}^{LM}(\hat{r}_1, \hat{r}_2) \frac{S_{nl}^{\kappa}(R_0 \sin \alpha)}{R_0 \sin \alpha} \quad (\text{K.10})$$

Par ailleurs

$$\frac{\partial}{\partial R} \psi(R_0, \Omega_5, t) = \sum_{LM} \sum_{\lambda l} \sum_{\nu n} \alpha_{\nu n}^{\lambda l} c_{\nu n}^{\lambda LLM}(t) \mathcal{A} \frac{\partial}{\partial R} \tilde{F}_{\kappa \nu n}^{\lambda LLM}(R_0, \Omega_5), \quad (\text{K.11})$$

avec

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial R} \tilde{F}_{\kappa \nu n}^{\lambda LLM}(R_0, \Omega_5) = & \frac{1}{\cos \alpha \sin \alpha} \Lambda_{\lambda l}^{LM}(\hat{r}_1, \hat{r}_2) \left(-\frac{2}{R^3} S_{\nu \lambda}^{\kappa}(R \cos \alpha) S_{nl}^{\kappa}(R \sin \alpha) \right. \\ & + \frac{\cos \alpha}{R^2} S'_{\nu \lambda}{}^{\kappa}(R \cos \alpha) S_{nl}^{\kappa}(R \sin \alpha) \\ & \left. + \frac{\sin \alpha}{R^2} S_{\nu \lambda}^{\kappa}(R \cos \alpha) S'_{nl}{}^{\kappa}(R \sin \alpha) \right). \quad (\text{K.12}) \end{aligned}$$

L'évaluation de la dérivée de la sturmienne coulombienne $S'_{\nu \lambda}{}^{\kappa}$ est développée dans l'annexe G. En tenant compte de (K.9) et (K.11), l'équation (K.6)

devient

$$\begin{aligned}
\mathcal{F}(R_0, t) = & R_0 \sum_{L'M'}^{\lambda'l'\nu'n'} \sum_{LM}^{\lambda\nu n} \alpha_{\nu'n}^{\lambda'l'} \alpha_{\nu n}^{\lambda} c_{\nu'n'}^{*\lambda'l'L'M'}(t) c_{\nu n}^{\lambda LM}(t) \\
& \times \int_0^{\pi/2} d\alpha \mathcal{A}' S_{\nu'\lambda'}^{\kappa}(R_0 \cos \alpha) S_{n'l'}^{\kappa}(R_0 \sin \alpha) \\
& \mathcal{A} \left(-\frac{2}{R_0} S_{\nu\lambda}^{\kappa}(R_0 \cos \alpha) S_{nl}^{\kappa}(R_0 \sin \alpha) + \cos \alpha S_{\nu\lambda}^{\prime\kappa}(R_0 \cos \alpha) \right. \\
& \left. S_{nl}^{\kappa}(R_0 \sin \alpha) + \sin \alpha S_{\nu\lambda}^{\kappa}(R_0 \cos \alpha) S_{nl}^{\prime\kappa}(R_0 \sin \alpha) \right) \\
& \times \iint d\Omega_1 d\Omega_2 \Lambda_{\lambda'l'}^{L'M'}(\hat{r}_1, \hat{r}_2) \Lambda_{\lambda l}^{LM}(\hat{r}_1, \hat{r}_2). \tag{K.13}
\end{aligned}$$

Compte tenu de l'orthonormalité des harmoniques bipolaires [183]

$$\iint d\Omega_1 d\Omega_2 \Lambda_{\lambda'l'}^{L'M'}(\hat{r}_1, \hat{r}_2) \Lambda_{\lambda l}^{LM}(\hat{r}_1, \hat{r}_2) = \delta_{\lambda'\lambda} \delta_{l'l} \delta_{L'L} \delta_{M'M}. \tag{K.14}$$

En effectuant le changement de variable

$$z = 1 - \frac{4}{\pi} \alpha, \tag{K.15}$$

soit

$$\alpha = \frac{\pi}{4}(1-z) \quad \int_0^{\pi/2} d\alpha = -\frac{4}{\pi} \int_{-1}^1 dz. \tag{K.16}$$

Finalement, le flux à travers l'hypersphère d'hyperrayon R_0 au temps t est donné par

$$\begin{aligned}
\mathcal{F}(R_0, t) = & -\frac{\pi}{4} R_0 \sum_{L'M'}^{\lambda'l'\nu'n'} \sum_{LM}^{\lambda\nu n} \alpha_{\nu'n}^{\lambda'l'} \alpha_{\nu n}^{\lambda} c_{\nu'n'}^{*\lambda'l'L'M'}(t) c_{\nu n}^{\lambda LM}(t) \\
& \times \int_{-1}^1 dz \mathcal{A}' S_{\nu'\lambda'}^{\kappa}(R_0 \cos \alpha) S_{n'l'}^{\kappa}(R_0 \sin \alpha) \\
& \mathcal{A} \left(-\frac{2}{R_0} S_{\nu\lambda}^{\kappa}(R_0 \cos \alpha) S_{nl}^{\kappa}(R_0 \sin \alpha) + \cos \alpha S_{\nu\lambda}^{\prime\kappa}(R_0 \cos \alpha) \right. \\
& \left. S_{nl}^{\kappa}(R_0 \sin \alpha) + \sin \alpha S_{\nu\lambda}^{\kappa}(R_0 \cos \alpha) S_{nl}^{\prime\kappa}(R_0 \sin \alpha) \right) \\
& \times \delta_{\lambda'\lambda} \delta_{l'l} \delta_{L'L} \delta_{M'M}. \tag{K.17}
\end{aligned}$$

288 Annexe K. Calcul du flux dans la méthode ESDT/HRM-SOW

(K.17) se réécrit sous la forme matricielle

$$\begin{pmatrix} c_1 & c_2 & \cdots & c_N \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{F}_{LL'MM'}^{\nu\nu'nn'\lambda\lambda'll'} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \\ \vdots \\ c_N \end{pmatrix}. \quad (\text{K.18})$$

Les éléments de matrices $\mathcal{F}_{LL'MM'}^{\nu\nu'nn'\lambda\lambda'll'}$ sont évalués grâce à la quadrature de Legendre.

Evaluation de la dérivée de la fonction sturmienne

La sturmienne coulombienne s'exprime en fonction des polynômes de Laguerre ou des fonctions hypergéométriques [166]

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

où $\tilde{N}_{n,l}^\kappa$ et $N_{n,l}^\kappa$ sont des constantes de normalisation. En tenant compte de la relation de récurrence sur les fonctions hypergéométriques, on évalue numériquement les sturmiennes à partir de la relation de récurrence

$$C_1 S_{n,l}^\kappa(r) - C_2(n-1-\kappa r) S_{n-1,l}^\kappa(r) + C_3 S_{n-2,l}^\kappa(r) = 0, \quad (\text{L.2})$$

avec

$$\begin{cases} C_1 = \sqrt{n(n-l-1)(n+l)} \\ C_2 = 2\sqrt{n-1} \\ C_3 = \sqrt{(n-2)(n-l-2)(n+l-1)} \end{cases}, \quad (\text{L.3})$$

En dérivant la relation de récurrence (L.2) par rapport à r , on trouve

$$C_1 S'_{n,l}{}^\kappa(r) - C_2 \left((n-1-\kappa r) S'_{n-1,l}{}^\kappa(r) - \kappa S_{n-1,l}^\kappa(r) \right) + C_3 S'_{n-2,l}{}^\kappa(r) = 0. \quad (\text{L.4})$$

Nous obtenons ainsi une relation de récurrence permettant de calculer la dérivée de la sturmienne coulombienne de degré n en fonction des dérivées de degrés $n-1$ et $n-2$, et de la sturmienne de degré $n-1$. La sturmienne $S_{n,l}^\kappa$ étant évaluée grâce à la relation (L.1), déterminons à présent l'expression de sa dérivée $S'_{n,l}{}^\kappa$ par rapport à r . Dérivons (L.1) par rapport à la variable radiale r , on obtient

$$S'_{n,l}{}^\kappa(r) = N_{n,l}^\kappa e^{-\kappa r} \left(((l+1)r^l - \kappa r^{l+1}) {}_1F_1(-(n-l-1); 2l+2, 2\kappa r) + r^{l+1} {}_1F'_1(-(n-l-1); 2l+2, 2\kappa r) \right). \quad (\text{L.5})$$

290 Annexe L. Evaluation de la dérivée de la fonction sturmienne

En utilisant la relation suivante (relation (13.4.8) d'Abramowitz [116] ou relation (9.213) de Gradsteyn[102])

$$\frac{d}{dz} {}_1F_1(a; b, c) = \frac{a}{b} {}_1F_1(a+1; b+1, c), \quad (\text{L.6})$$

et en posant

$$z = 2\kappa r, \quad (\text{L.7})$$

on trouve, en tenant compte de (L.6), que

$${}_1F'_1(a; b, 2\kappa r) = 2\kappa \frac{a}{b} {}_1F_1(a+1; b+1, 2\kappa r). \quad (\text{L.8})$$

Donc

$${}_1F'_1(-(n-l-1); 2l+2, 2\kappa r) = -\kappa \frac{n-l-1}{l+1} {}_1F_1(-(n-l-2); 2l+3, 2\kappa r). \quad (\text{L.9})$$

Finalement, la dérivée $S'_{n,l}{}^\kappa$ par rapport à r s'exprime en termes de fonctions hypergéométriques

$$S'_{n,l}{}^\kappa(r) = N_{n,l}{}^\kappa e^{-\kappa r} \left(((l+1)r^l - \kappa r^{l+1}) {}_1F_1(-(n-l-1); 2l+2, 2\kappa r) - \kappa r^{l+1} \frac{n-l-1}{l+1} {}_1F_1(-(n-l-2); 2l+3, 2\kappa r) \right). \quad (\text{L.10})$$

On peut évaluer les 2 premiers termes directement grâce aux fonctions hypergéométriques et les termes suivants à l'aide de la relation de récurrence (L.4). Sur la figure L.1, nous comparons $S_{n,l}{}^\kappa(r)$ et $S'_{n,l}{}^\kappa(r)$ pour $n = 4$, $l = 0$ et $\kappa = 0.5$.

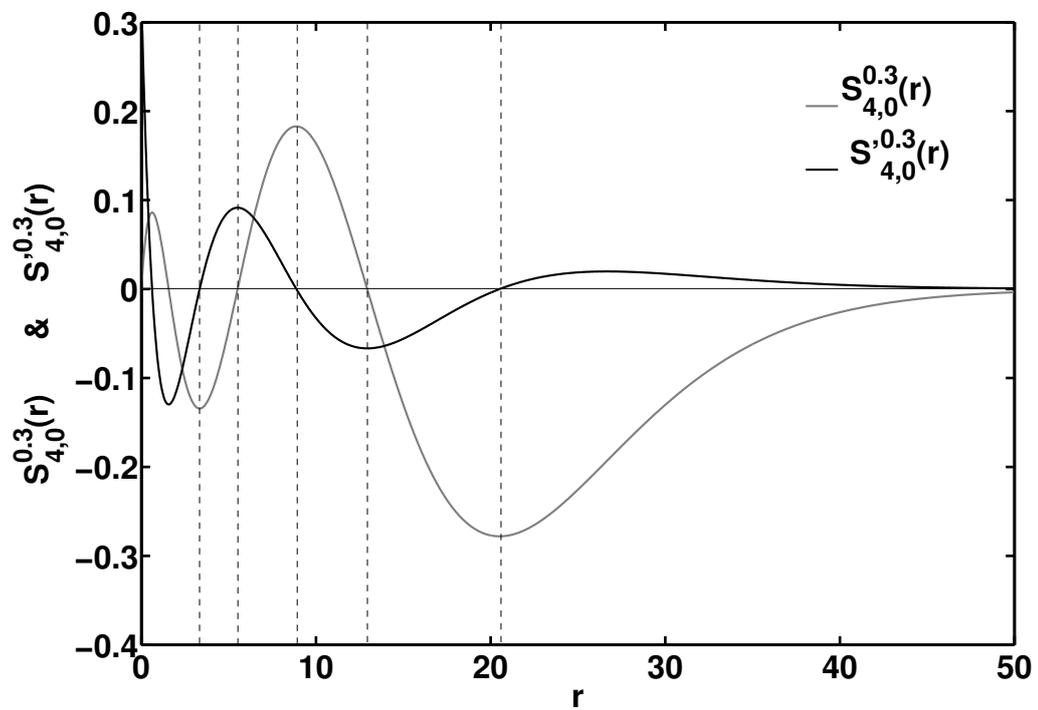


FIGURE L.1 – Représentation de $S_{n,l}^\kappa(r)$ et $S'_{n,l}{}^\kappa(r)$ pour $n = 4$, $l = 0$ et $\kappa = 0.5$.

Bibliographie

- [1] Antoine P, Fomouo E, Piraux B, Shimizu T, Hasegawa H, Nabekawa Y and Midorikawa K, 2008 *Phys. Rev. A* **78**, 023415.
- [2] Agostini P and DiMauro L F, 2004 *Rep. Prog. Phys.* **67**, 813.
- [3] Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, Baltuska A, Yakovlev V, Bammer F, Scrinzi A, Westerwalbesloh Th, Kleineberg U, Heinzmann U, Drescher M and Frausz F, 2004 *Nature* **427**, 817.
- [4] Wabnitz H, Bittner L, de Castro A R B, Döhrmann R, Görtler P, Laarmann T, Laasch W, Schulz J, Swiderski A, von Haefen K, Möller T, Faatz B, Fateev A, Feldhaus J, Gerth C, Hahn U, Saldin E, Schneidmiller E, Sytchev K, Tiedtke K, Treusch R and Yurkov M, 2002 *Nature* **420**, 482.
- [5] Ayvazyan V and al., 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88**, 104802.
- [6] Madronero J, Hilico L, Grémaud B, Delande D and Buchleitner A, 2007 *Math. Struct. in Comp. Science* **17**, 225.
- [7] Richter K, Tanner G and Wintgen D, 1993 *Phys. Rev. A* **48**, 4182.
- [8] Hu S X, Colgan J and Collins L A, 2005 *J. Phys. B* **38**, L35.
- [9] Ivanov I and Kheifets A, 2008 *J. Phys. B* **41**, 095002.
- [10] Feist J, Nagele S, Pazourek R, Persson E, Schneider B I, Collins L A and Bürgdorfer J, 2008 *Phys. Rev. A* **77**, 043420.
- [11] Bray J T and Stelbovics, 1992 *Phys. Rev. A* **46** 6995
- [12] Laulan S and Bachau H, 2003 In *International Conference on Electron and photon Impact Ionization and related Topic* by Ancarani L U, IOP Conf. Ser. No. 172 (Institute of Physics, Bristol), p. 109.
- [13] Piraux B, Bauer J, Laulan S and Bachau H, 2003 *Eur. Phys. J. D.* **26**, 7.
- [14] Fomouo E, Kamta G L, Edah G and Piraux B, 2006 *Phys. Rev. A* **74**, 063409.
- [15] Nikolopoulos L A A and Lambropoulos P, 2007 *J. Phys. B* **40** 1347.
- [16] Broad J T, 1985 *Phys. Rev. A* **31** 1494.
- [17] Yamani H A and Fishman L, 1975 *J. Math. Phys.* Vol. **16** No 2.
- [18] Feng L and van der Hart H W, 2003 *J. Phys. B* **36** L1.
- [19] Hörner D A, Morales F, Rescigno T N, Martin F and McCurdy C W, 2007 *Phys. Rev. A* **76** 030701 (R).
- [20] Shakeshaft R, 2007 *Phys. Rev. A* **76** 063405.

- [21] Sorokin A A, Wellhöfer M, Bobashev S V, Tiedtke K and Richter M, 2007 *Phys. Rev. A* **75** 051402.
- [22] Madsen L B, Nikolopoulos L A A, Kjeldsen T K and Fernandez J, 2007 *Phys. Rev. A* **76** 063407.
- [23] Chuluunbaatar O, Bachau H, Popov Y V, Piraux B and Stefanska K, 2010 *Phys. Rev. A* **81** 063424.
- [24] Brauner M, Briggs J S and Klar H, 1989 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **36** L1. (Non citÉ.)
- [25] Malegat L, Selles P and Kazansky A K, 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 4450.
- [26] Selles P, Malegat L and Kazansky A K, 2002 *Phys. Rev. A* **65** 032711.
- [27] Bouri C, Selles P, Malegat L, Teuler J M, Kwato Njock M G and Kazansky A K, 2005 *Phys. Rev. A* **72** 042716.
- [28] Bouri C, Malegat L, Selles P and Kwato Njock M G, 2007 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **40** F51.
- [29] Foumouo E, *Thèse de doctorat*, Université Catholique de Louvain, (2008).
- [30] Solov'ev E A and Vinitzky S I, 1985 *J. Phys. B*, **18**, L557.
- [31] Manfredi G, Mola S and Feix M R, 1993, *Phys. Fluids B*, **5** 2.
- [32] Mola S, Manfredi G and Feix M R, 1993 *J. Plasma Physics*, **50** 145.
- [33] Bouquet S and Feix M R, 1982 *C. R. Acad. Sci.*, Paris, 295, 993.
- [34] Zrineh H, Feix M, Fijalkow E and Navet M, 1987 *Trans. Theory and Stat. Phys.*, **16** 279.
- [35] Besnard D, Burgan J R, Munier A, Feix M R and Fijalkow E, 1983 *J. Math. Phys.*, **24** 1123.
- [36] Sidky E Y and Esry B D, 2000 *Phys. Rev. Lett.*, **85** 5086.
- [37] Derbov V L, Kaschiev M S, Serov V V, Gusev A A and Vinitzky S I, 2003 *Proc. SPIE* **52**, 5069.
- [38] Serov V V, Derbov V L, Joulakian B B and Vinitzky S I, 2001 *Phys. Rev. A*, **63** 062711.
- [39] Serov V V, Derbov V L, Joulakian B B and Vinitzky S I, 2007 *Phys. Rev. A*, **75** 012715.
- [40] Serov V V, Derbov V L, Joulakian B B and Vinitzky S I, 2008, *Phys. Rev. A*, **78** 063403.
- [41] Blaga C I, Catoire F, Colisimo P, Paulus G G, Muller H G, Agostini P and DiMauro L F, 2009, *Nature Phys.*, **5** 335.

- [42] Quan W, Lin Z, Wu M, Kang H, Liu H, Liu X, Chen J, Liu J, He X T, Chen S G, Xiong H, Guo L, Xu H, Fu Y, Cheng Y and Xu Z Z, 2009, *Phys. Rev. Lett.*, **103** 093001.
- [43] Faisal F H M, 2009, *Nature Phys.*, **5** 319.
- [44] Wu C Y, Yang Y D, Liu Y Q, Gong Q H, Wu M, Liu X, Hao X L, Li W D, He X T and Chen J, 2012, *Phys. Rev. Lett.*, **109**, 043001.
- [45] Burnett K, Reed V C and Knight P L, 1993 *J. Phys. B*, **26** 561.
- [46] Protopapas M, Keitel C H and Knight P L, 1997 *Rep. Prog. Phys.*, **60** 389.
- [47] Hall J L, Robinson E J and Branscomb L M, 1965 *Phys. Rev. Lett.*, **14** 1013.
- [48] Keldysh L V, 1964, *JETP*, **47** 1945 [1965, *Sov. Phys. JETP*, **20** 1307].
- [49] Kruit P, Kimman J, Muller H G and van der Wiel M J, 1983 *Phys. Rev. A*, **28** 248.
- [50] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, Petite G and Rahman N K, 1979 *Phys. Rev. Lett.*, **42** 1127.
- [51] Shore B W and Knight P L, 1987 *J. Phys. B*, **20** 413.
- [52] L'Hullier A and Balcou Ph, 1993 *Phys. Rev. Lett.*, **70** 774.
- [53] Chu S I, 1985 *Adv. At. Mol. Phys.*, **21**, 197.
- [54] Potvliege R M and Shakeshaft R, 1988 *Phys. Rev. A*, **38**, 4597.
- [55] Burke P G, Framcken P and Joachain C J, 1991 *J. Phys. B*, **24**, 761.
- [56] Su Q, Eberly J H and Javanainen J, 1990 *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 862.
- [57] Javanainen J, Eberly J H and Su Q, 1998 *Phys. Rev. A*, **38**, 3430.
- [58] Eberly J H, Su Q and Javanainen J, 1989 *J. Opt. Soc. Am. B*, **7**, 1289.
- [59] Reed V C and Burnett K, 1990 *Phys. Rev. A*, **42**, 3152.
- [60] Schneider B I, 1997 *Phys. Rev. A*, **55**, 3417.
- [61] Gavrilin M and Shertzer J, 1996 *Phys. Rev. A*, **53**, 3431.
- [62] Huens E, Piraux B, Bugacov A and Gajda M, 1997 *Phys. Rev. A*, **55**, 2132.
- [63] Kamta G L, Grosjes T, Piraux B, Hasbani R, Cormier E and Bachau H, 2001 *J. Phys. B*, **34**, 857.
- [64] Hairer E, Norsett A P and Wanner G, *Solving Ordinary Differential Equations I : Nonstiff Problems*, (Springer-Verlag, Berlin, 1993).
- [65]
- [66] Frapiccini A L, Hamido A, Schröter S, Pyke D, Mota-Furtado F, O'Mahony P, Madroñero J, Eiglsperger J and Piraux B, 2014, *Phys. Rev. A*, **89**, 023418.
- [67] Hairer E and Wanner G, *in Solving Ordinary Differential Equations II : Stiff and Differential-Algebraic Problems*, (Springer-Verlag, Berlin, 1991).

- [68] Asher U M, Ruuth S J and Wetton B, 1995 *SIAM J. Numer. Anal.*, **32**, 797.
- [69] Asher U M, Ruuth S J and Spiteri S J, 1997 *Appl. Numer. Math.*, **25**, 151.
- [70] Finlayson B A *The Method Weighted Residuals et Variational Principles Academic Press*, New York, (1972).
- [71] Formberg B and Sloan D M, 1994 *J. Fourier Anal. Appl.* **203** 864.
- [72] Coleman J P, 1976 *IMA J. Appl. Math.*, **17** 85.
- [73] Lambert J D, in *Numerical methods for ordinary differential systems, The initial value problem*, Wiley, New York (1991).
- [74] Lapidus L and Seinfeld J H, 1971 *Numerical Solution of Ordinary Differential Equations*, Academic Press, New York and London. (Non citÈ.)
- [75] S Pieraccini and G Puppo, 2007, *Journal of Scientific Computing*, **32**, 1.
- [76] Fatunla S O, 1978, *Math. Comput.*, **32**, 1.
- [77] Fatunla S O, 1980, *Math. Comput.*, **34**, 373.
- [78] Hamido A, Eiglsperger J, Madroñero J, Mota-Furtado F, O'Mahony P, Frapiccini A L and B Piraux, 2011 *Phys Rev A*, **84**, 013422.
- [79] Madroñero J and B. Piraux, 2009 *Phys Rev A*, **80**, 033409.
- [80] Madroñero j and Piraux B, 2010 *J Phys Conf series*, **212**, 012027.
- [81] Saad Y, 2000 *Iterative Methods for Sparse Linear Systems* (SIAM).
- [82] Arnoldi W E, *Quart. Appl. Math* 9 (1951), 17-29.
- [83] Smyth E S, Parker J S and Taylor K T, 1998 *Comp. Phys. Comm.*, **114** 1 .
- [84] Park T J and Light J C, 1986, *J Chem Phys* **85**, 5870.
- [85] van der Houwen P J and Sommeijer B P, 1991 *SIAM J Sci Stat Comput*, **12** 1000.
- [86] van der Houwen P J and Sommeijer B P, 1993 *Appl Numer Math*, **11** 169.
- [87] van der Vorst H , 1992 *SIAM J Sci Statist Comput*, **13** 631.
- [88] Anderson E, Bai Z, Bisch C, Blackford S, Demmel J, Dongarra J, Du Croz J, Greenbaum A, Hammarling S, McKenney A and Sorensen D, *LAPACK Users' Guide*, Third Ed., Society for Industrial and Applied Mathematics, Philadelphia, PA (1999).
- [89] Ho Y K, 1983 *Phys. Rep.*, **99**, 1.
- [90] Krause J L, Schafer K J and Kulander K C, 1992 *Phys. Rev. A*, **45**, 4998.
- [91] Balakrishnan N, Kalyanaraman C and Sathyamurthy N, 1997 *Phys. Rep.*, **280**, 79.
- [92] Di Menza L, 1997, *Numer. Funct. Anal. Optim.*, **18**, 759.

-
- [93] Muga J G, Palao J P, Navarro B and Egusquiza I L, 2004, *Phys. Rep.*, **395**, 357.
- [94] He F, Ruiz C and Becker A, *Phys. Rev. A*, **75**, 053407.
- [95] Scrinzi A, 2010, *Phys. Rev. A*, **81**, 053845.
- [96] Rotenberg M, *Adv. At. Mol. Phys.*, **6**, 233.
- [97] Rotenberg M, 1962, *Ann. Phys.* **9**.
- [98] Jiang T F and Chu S I, 1992 *Phys. Rev. A*, **46**, 7322. (Non citÈ.)
- [99] Merzbacher E, *Quantum Mechanics*, Second edition (1970). (Non citÈ.)
- [100] H and B S Jeffreys, *Mathematical physics*, Third edition, cambridge, University press (1962).
- [101] Bender C M and Orsag S A, *Advanced Mathematical Methods for scientists and engineers*, International student edition, (1984).
- [102] Gradshteyn I. S. and Ryzhik I.M., *Table of Integrals, Series and Products*, 5th Ed., Academic Press, San Diego, USA (1994).
- [103] E. Cormier and P. Lambropoulos, *J. Phys. B.*,**29**, 1667 (1996)
- [104] B. R. Mollow, *Phys. Rev. A*, **12**, 1919 (1975)
- [105] M. H. Mittleman, *Introduction to the theory of laser-atom interaction*, Plenum (1982)
- [106] B. H. Bransden et C. J. Joachim, *Physics of atoms and molecules*, Longman (1983)
- [107] Huens E et Piraux B *Thèse de doctorat*, Université Catholique de Louvain, (1996).
- [108] H A Kramers, *Collected scientific Papers*, North-Holland, Amsterdam (1956).
- [109] W C Henneberger, 1968, *Phys. Rev. Lett* **21**, 838.
- [110] R R Schlicher, W Becker, J Bergou et O Scully, *Quantum Electrodynamics and Quantum Optics*, ed. by A O Barut, (Plenum 1984)
- [111] A Giusti-Suzor et P Zoller, 1987, *Phys. Rev. A* **36** 5178.
- [112] W E Lamb, R R Schlicher et O Scully, 1987 *Phys. Rev. A* **36** 2763.
- [113] P S Epstein 1926 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **12** 630.
- [114] Rotenberg M 1962 *Ann. Phys.* **19** 262.
- [115] Rotenberg M 1970 *Adv. At. Mol. Phys* **6** 233.
- [116] Abramowitz M et Stegun I A, *Handbook of Mathematical Functions with Formulas, Graphs, et Mathematical Tables*, Dover Publications, New York (1970).
- [117] Mott N F and Massey H S W, *The theory of atomic collisions*, Third edition, Oxford : Clarendon Press (1965)

- [118] Rudge M R H and Seaton M J, 1965 *Proc. R. Soc. A*, **283**, 262.
- [119] Bender C M and Orsag S A, *Advanced Mathematical Methods for scientists and engineers*, International student edition, (1984).
- [120] Grum-Grzhimailo A N, Abeln B, Bartschat K and Wefen D, 2010, *Phys. Rev. A* **81**, 043408
- [121] Einstein A, 1905, *Gesichtspunkt. Annalen der Physik*, **322**, 132. (Non citÈ.)
- [122] Moshhammer R, Ullrich J, Feuerstein B, Fischer D, Dorn A, Schröter C D, Crespo Lopez-Urrutia J R, Hoehr C, Rottke H, Trump C, M Wittmann, Korn G and Sandner W, 2003, *Phys. Rev. Lett.*, **91**, 113002.
- [123] Rudenko A, Zrost K, Schröter C D, de Jesus V L B, Feuerstein B, Moshhammer R and Ullrich J, 2004, *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **37**, L407.
- [124] Dimitriou K I, Arbo D G, Yoshida S, Persson E and Burgdöfer J, 2004, *Phys. Rev. A*, **70**, 061401(R).
- [125] de Bohan A, Piraux B, Ponce L, Taïeb R, Vèniard V and Maquet A, 2002, *Phys. Rev. Lett.*, **108**, 113002.
- [126] Catoire F, Blaga C I, Sistrunk E, Muller H G, Agostini P and DiMauro L F, 2009, *Laser Physics*, **89**, 1574.
- [127] Liu C and Hatsagortsyan K Z, 2010, *Phys. Rev. Lett.*, **105**, 113003.
- [128] Yan T, Popruzhenko S V, Vrakking M J J and Bauer D, 2010, *Phys. Rev. Lett.*, **105**, 253002.
- [129] Kätsner A, Saalman U and Rost J M, 2012, *Phys. Rev. Lett.*, **108**, 033201.
- [130] Lemell C, Dimitriou K I, Tong X and Nagele S, 2012, *Phys. Rev. A*, **85**, 011403(R).
- [131] Guo L, Han S S, Liu X, Cheng Y, Xu Z Z, Fan J, Chen J, Chen S G, Becker W, Blaga C I, DiChiara A D, Sistrunk E, Agostini P and DiMauro L F, 2013, *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 013001.
- [132] Bransden B H and Joachain C J, *Quantum Mechanics* 2nd ed (Pearson Education Ltd, England, 2000).
- [133] Pilkuhn H M, *Relativistic Quantum Mechanics* (Springer, Berlin, 2003).
- [134] Keldysh L V, 1965, *Sov. Phys. JETP* **20**, 1307.
- [135] Delone N and Krainov V, 1999, *Physics-Uspèkhi* **42**, 669.
- [136] Tetchou H M G *Thèse de doctorat*, Université Catholique de Louvain, (2010).
- [137] Göppert-Mayer M, 1931, *Ann. Phys.* **9**, 273. (Non citÈ.)
- [138] Voronov G S and Delone N B, 1965, *JETP Letters* **1**, 66.
- [139] Fabre F, Petite G, Agostini P and Clement M, 1982, *J. Phys. B* **15**, 1353.

- [140] Petite G, Fabre F, Agostini P, Crance M and Aymar M, 1984, *Phys. Rev. A* **29**, 2677.
- [141] Faisal F H L, *Theory of Multiphoton Processes* (Plenum, New York, 1987).
- [142] Lambropoulos P, 1976, *Adv. At. Mol. Phys.* **12**, 87.
- [143] Lompre L A, L'Huillier A, Mainfray G and Manus C, 1985, *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 1906.
- [144] Agostini P, Fabre F, Petite G and Rahman N K, 1979, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1127.
- [145] Yergeau F, Petite G and P Agostini, 1986, *J. Phys. B* **19**, 1669.
- [146] Agostini P, Breger P, L'Huillier A, Muller H G, Petite G, Antonetti A and Migus A, 1989a, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 2208.
Agostini P, Antonetti A, Breger P, Crance M, Migus A, Muller H G and Petite G, 1989b, *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **22**, 1971.
- [147] Rottke H, Wolff B, Brickwedde X, Feldmann D and Welge K H, 1990, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 404.
- [148] Volkov D M Z , 1935, *Phys.*, **94**, 250; 1937, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, **7**, 1286.
- [149] Perelomov A M , Popov V S and Terent'ev M V, 1966, *Sov. Phys. JETP*, **23**, 924.
- [150] Ammosov M V, Delone N B and Krainov V P, 1986, *Sov. Phys. JETP* textbf64, 1191.
- [151] Faisal F H M, 1973, *J. Phys. B* **6**, L89.
- [152] Reiss H R, 1980, *Phys. Rev. A* **22**, 1786.
- [153] Lewenstein M, Balcou Ph, Yu Ivanov M, L'Huillier A and Corkum P B, 1994, *Phys. Rev. A* **49**, 2117.
Lewenstein M, Kulander K C, Schafer K J and Bucksbaum P H, 1995, *Phys. Rev. A* **51**, 1495.
- [154] de Bohan A *Thèse de doctorat*, Université Catholique de Louvain, (2001).
- [155] Shakeshaft R, Potvliege R, Dörr M and Cooke W E, 1991, *Phys. Rev. A*, **42**, 1656.
- [156] Schafer K J and Kulander K C, 1990, *Phys. Rev. A*, **42**, 5794.
- [157] Catoire F and Bachau H, 2012, *Phys. Rev. A*, **85**, 023422.
- [158] Joachain C J, *Quantum Collision Theory*, North-Holland, Amsterdam (1983).
- [159] Rodriguez V D, Arbo D G and Macri PA, 2011, *J. Phys. B* **44** 125603.
- [160] Nganso H M T, Hamido A, Njock M J K, Popov Y V and B Piraux, 2013, *Phys. Rev. A*, **87**, 013420.

- [161] Press W P, Teukolsky S A, Vetterling W T, Flannery B P and Metcalf M, *Numerical Recipes in Fortran 77 : The Art of Scientific Computing* , Second Edition, Cambridge University Press (1992).
- [162] Bauer D, 1997, *Phys. Rev. A*, **55**, 2180.
- [163] Arbo D G, Persson E and Burgdörfer J, 2006, *Phys. Rev. A*, **74**, 063407.
- [164] Morishita T, Chen Z, Watanabe S and Lin C, 2007, *Phys. Rev. A*, **75**, 023407.
- [165] Cohen-Tannoudji C, *Mécanique Quantique*, Ed. Hermann, (1997).
- [166] Lagmago Kamta G *Thèse de doctorat*, Université Nationale du Benin et Université Catholique de Louvain, (1999).
- [167] Pekeris C L, 1958 *Phys. Rev.* **112** 1649.
- [168] Schiff B, Lifson H, Pekeris C L and Rabinowitz P, 1965 *Phys. Rev.* **140** A1104.
- [169] Bhatia A K and Temkin A, 1964 *Rev. Mod. Phys.* **36** 1050; Sims J S and Martin W C 1988 *Phys. Rev. A* **37** 2259; Scrinzi A and Piraux B, 1997 *ibid.* **56** R13.
- [170] Grémaud B and Deleate D, 1997 *Europhys. Lett.* **40** 363.
- [171] Sims J S, Parmer D R and Reese J M, 1982 *J. Phys. B* **15** 327.
- [172] Kono A and Hattori S, 1984 *Phys. Rev. A* **29** 2981.
- [173] Schwartz H M, 1956 *Phys. Rev.* **103** 110; 1960 *ibid.* **128** 483.
- [174] Schwartz C, 1962 *Phys. Rev.* **126** 1015; 1962 *ibid.* **128** 1146; 1964 *ibid.* **134** 1181.
- [175] Bunge C F, 1980 *Phys. Scr.* **21** 328.
- [176] Davis B F and Chung K T, 1981 *Phys. Rev. A* **25** 1328.
- [177] Carroll D P, Silverstone H J and Metzger R M, 1979 *J. Chem. Phys.* **71** 4142.
- [178] Davis H L, 1963 *J. Chem. Phys.* **39** 1183.
- [179] Brown R T, 1968 *J. Chem. Phys.* **48** 4698.
- [180] Roothaan C C J and Weiss A W, 1960 *Rev. Mod. Phys.* **32**, 194.
- [181] Pont M and Shakeshaft R, 1991, *Phys. Rev. A* **44** R4110.
- [182] Nikiforov A and Ouvarov V, *Fonctions spéciales de la physique Mathématique.*, Edition Mir (1983). (Non citÉ.)
- [183] Varshalovich D A, Moskalev A N and Khersouskii V K *Quantum theory of angular momentum, Word Sientific.*, Singapore (1988).
- [184] Wannier G H, 1953 *Phys. Rev.* **90** 817.
- [185] Bouri C, *Thèse de doctorat*, Université de Douala et Université de Paris XI, (2007).

-
- [186] Palacios A, Rescigno T N and McCurdy C W 2007 *Phys. Rev. A* **76** 043420.
- [187] Palacios A, McCurdy C W and Rescigno T N 2007 *Phys. Rev. A* **77** 032716.
- [188] Ngoko, M *Thèse de doctorat*, Université de Douala (CEPAMAQ) et Université Catholique de Louvain (2010).
- [189] Malegat L, Bachau H, Hamido A and Piraux B, 2010 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 245601.
- [190] Bizau J M and Wuilleumier F J, 1995, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **71**, 205.
- [191] Selles P, Malegat L, Huetz A, Kazansky A K, Collins S A, Seccombe D P and Reddish T J, 2004 *Phys. Rev. A* **69** 052707.
- [192] Soejima K, Danjo A, Okuno K and Yagishita A, 1999 *Phys. Rev. Lett* **83** 1546. D
- [193] Malegat L, Bachau H, Piraux B and Reynal F, 2012 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **45**, 175601.
- [194] Madsen L B and Lambropoulos P, 2009 *Phys. Rev. A* **59** 4574.
- [195] Ivanov I A, Kheifets A S and Dubau J, 2011, *Eur. Phys. J. D* **61** 563.

