

UNIVERSIDAD DE SALAMANCA

DEPARTAMENTO DE FÍSICA APLICADA

GENERACIÓN DE ARMÓNICOS DE
ORDEN ALTO MEDIANTE CAMPOS
INTENSOS: MÁS ALLÁ DEL
FORMALISMO ESTÁNDAR

RESUMEN EN CASTELLANO DE LA MEMORIA PRESENTADA EN INGLÉS POR
JOSÉ ANTONIO PÉREZ HERNÁNDEZ
PARA OBTENER EL GRADO DE DOCTOR EN FÍSICA
EN LA UNIVERSIDAD DE SALAMANCA

Director: Luis Plaja Rustein

2015

**LUIS PLAJA RUSTEIN, PROFESOR TITULAR DEL DEPARTAMENTO
DE FÍSICA APLICADA DE LA UNIVERSIDAD DE SALAMANCA,**

CERTIFICA:

Que el presente trabajo, "**Intense-field high-order harmonic generations: beyond the standard picture**" ha sido realizado bajo su dirección en el Área de Óptica del Departamento de Física Aplicada de la Universidad de Salamanca por José Antonio Pérez Hernández y constituye la Memoria que presenta para optar al Título de Doctor en Física.

Y para que así conste, firma la presente en

Salamanca, a 27 de Marzo de 2015.

A handwritten signature in black ink, appearing to be 'Luis Plaja', written in a cursive style.

Luis Plaja
Departamento de Física Aplicada
Universidad de Salamanca

En esta tesis se lleva a cabo un estudio teórico del proceso conocido como *generación de armónicos de orden alto* en un contexto diferente al que normalmente aparece en la literatura. En la primera parte de la tesis, el término *más allá* implica que abordamos el estudio del citado proceso desarrollando primero, y usando después, una extensión del formalismo standard conocido como Aproximación de Campo Fuerte o SFA (de sus siglas en inglés Strong Field Approximation). Dicha extensión la hemos denotado como SFA+. Como veremos, las dos aportaciones novedosas de la SFA+ consisten, por un lado en no utilizar la aproximación de fase estacionaria y por otro en tener en cuenta el efecto del campo externo en la dinámica del estado fundamental durante el proceso de interacción con el átomo. Como veremos, la primera aportación mejora la descripción del proceso de generación de armónicos aportando una descripción puramente cuántica (y no semiclásica como la SFA standard) del proceso. El segundo hecho, tiene importantes consecuencias, como veremos, en la correcta descripción del escalado de la eficiencia del espectro de armónicos con al incrementarse la longitud de onda del láser incidente.

En la segunda parte de ésta tesis (capítulo 3) se estudiarán dos nuevas rutas para generar radiación coherente de alta energía, via la generación de armónicos. De nuevo, en consistencia con el título, en este caso, el término *más allá* alude al hecho de que las dos técnicas propuestas se basan en métodos diferentes a los convencionales para generar fotones en el rango de los rayos X blandos. La primera técnica consiste en *esculpir* el pulso láser incidente, dividiendo éste en dos réplicas idénticas y superponiéndolas con un retraso adecuado, justo antes de la interacción con el átomo. La forma de pulso así obtenida hace más eficiente el proceso de recombinación electrónica generándose así fotones de mayor energía que con un pulso convencional. La segunda técnica consiste en estudiar la generación de armónicos a altas intensidades láseres, más allá del régimen túnel, donde habitualmente tiene lugar el proceso de generación de armónicos. Esta situación a penas ha sido estudiada en la literatura. Mediante un estudio detallado de la la dinámica que tiene lugar en los primeros ciclos de determinados pulsos láser, concluimos que la pérdida de eficiencia debido al efecto de la saturación puede ser evitada. Al mismo tiempo se aborda la posibilidad de sintetizar pulsos de duración temporal en el rango de los attosegundos mediante el abrupto vaciamiento del átomo usando la técnica conocida como *puerta*

de ionización

Índice general

1. Introducción	6
1.1. Interacción láser-átomo	6
1.2. Generación de armónicos de orden alto	7
1.3. Modelos para el estudio de la generación de armónicos de orden alto	7
1.3.1. Resolución directa de la ecuación de Schrödinger con dependencia temporal	8
1.3.2. El modelo clásico de tres etapas	11
1.3.3. Aproximación de Campo Fuerte para HHG: modelo de Lewenstein	13
1.4. Pulsos de attosegundo	16
2. Formalismo de la SFA+	18
2.1. Derivación de la SFA+: Proyecciones P y Q	18
2.2. Test de la SFA+ con respecto de la SFA y la 3D TDSE	25
2.2.1. Espectro de armónicos de la SFA+ versus la SFA y la 3D TDSE	25
2.2.2. Escalado de la eficiencia del espectro de armónicos con la longitud de onda	28
2.2.3. Fase y descripción temporal del espectro de radiación de armónicos	30
2.3. Aspectos puramente cuánticos de la SFA+	31
2.3.1. Descripción espectral mediante el espacio de momentos	31
2.3.2. Aspectos semiclásicos y cuánticos de la generación de armónicos via la SFA+. Deslocalización del paquete de ondas	33
2.4. Resultados para otras especies químicas: He	33

3. HHG y síntesis de pulsos de Attosegundo más allá del límite de saturación	35
3.1. Retos, objetivos y el problema de la saturación en la generación de armónicos	35
3.2. Extensión del <i>cut-off</i> en el espectro de armónicos mediante la superposición dos pulsos de la misma frecuencia retrasados temporalmente	36
3.3. Potenciales aplicaciones y conclusiones	38
3.4. HHG en régimen de ultra-alta intensidad: pulsos NAT	39
3.4.1. Análisis clásico	39
3.4.2. Descripción cuántica: análisis cuántico mediante la 3D TDSE .	40
3.4.3. Puerta de ionización con pulsos NAT	43
3.5. Síntesis de pulsos de Attosegundo mediante pulsos NAT	45
3.5.1. Extracción de la fase intrínseca de los armónicos	45
4. Conclusiones	48
A. Derivación I	51
A.1. De las Eqs.(2.4),(2.5) a las Eqs.(2.8),(2.9), respectivamente	51
B. Derivación II	54
B.1. De las Eqs.(2.8),(2.9) a la Eq. (2.14)	54
C. Derivación III	55
C.1. Ensanchamiento del paquete de ondas: Derivación de la Eq. (2.17) . .	55
D. Derivación IV	56
D.1. Derivación del desplazamiento del nivel de energía (level shift) (Eq.(2.18)).	56
E. Derivación V	58
E.1. Derivación de la Eq. (2.19)	58
F. Derivación VI	61
F.1. Derivación de la Eq. (2.20)	61

Capítulo 1

Introducción

1.1. Interacción láser-átomo

Cuando un láser intenso interactúa con un átomo, o un conjunto de átomos, se producen múltiples procesos, de los cuales, un gran número de ellos son de naturaleza altamente no lineal. En esta tesis nos centraremos en el estudio de uno de estos procesos no lineales, conocido como Generación de Armónicos de Orden Alto o HHG (de sus siglas en inglés High-order Harmonic Generation¹).

Desde la construcción del primer láser (el láser de Rubí) en 1960 [1] la tecnología láser ha progresado vertiginosamente permitiendo el desarrollo de lo que se conoce como tecnología de *láseres de sobremesa* (*table-top laser sources*), basados principalmente en la tecnología CPA (Chirp Pulse Amplification)[2]. Este tipo de láseres proporciona pulsos cuyas longitudes de onda están centradas en el infrarrojo y también en el visible. En este punto, la generación de armónicos de orden alto constituye el *punto de partida* para trasladar la coherencia desde el infrarrojo y visible hasta la región del ultravioleta extremo (XUV) y los rayos X. Además, respecto al dominio temporal la generación de armónicos constituye un método único para sintetizar pulsos ultra-cortos de duración del orden de varios attosegundos.

¹Algunos términos que se utilizarán a lo largo de esta memoria no tienen una traducción literal al castellano. Cuando esto ocurra, se utilizará el término en inglés, aunque siempre se intentará dar una explicación lo más detallada posible de su significado en castellano. De igual forma, en algunas figuras que se presentarán en la memoria, las etiquetas y el texto incluido en la figura aparecerán en inglés. Análogamente, se intentará explicitar, bien en el texto o bien en el pie de página de cada figura su significado en castellano.

1.2. Generación de armónicos de orden alto

Un aspecto fascinante de la interacción láser-átomo en régimen de campos intensos es la interconexión entre dos campos de la Física aparentemente disjuntos: la física atómica y la óptica no lineal.

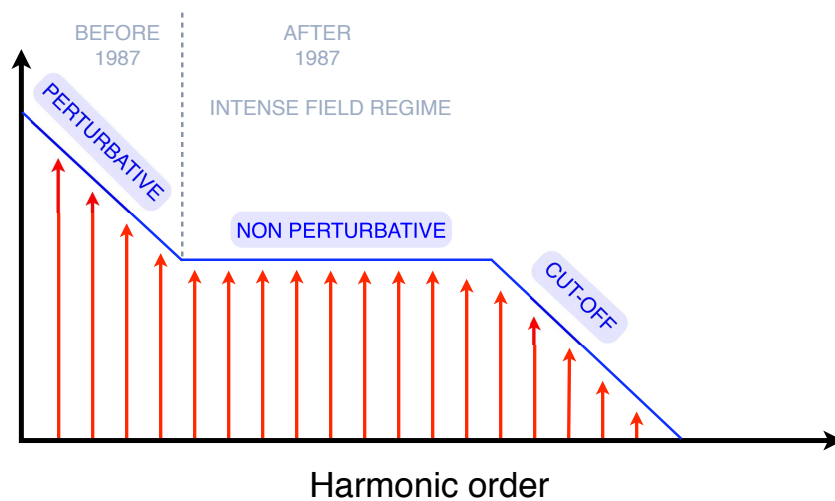


Figura 1.1: Representación esquemática de un espectro típico de armónicos de orden alto generado por la interacción de un pulso láser intenso con átomos, moléculas o iones

HHG fué observado experimentalmente en 1977, primero en plasmas por Burnett *et al.* [3] y diez años más tarde en gases por McPherson *et al.* [4] y por Ferray *et al.* [5]. Cuando un láser intenso es focalizado en un gas de átomos (gases nobles, por ejemplo), se genera un espectro de armónicos impares debido a la interacción no lineal, cuyas amplitudes son aproximadamente iguales a lo largo de una amplia zona del espectro, esta zona se la conoce como *plateau*, seguida por una caída abrupta en la eficiencia, conocido como *cut-off* (ver Fig. 1.1). Este perfil espectral es radicalmente diferente al que predecían las teorías perturbativas. Este hecho confirma que para el estudio de la generación de armónicos son necesarios formalismos no perturbativos que serán expuestos en el siguiente apartado.

1.3. Modelos para el estudio de la generación de armónicos de orden alto

En las tres siguientes secciones vamos a exponer brevemente los principales modelos que existen para el estudio de la generación de armónicos, que son: la resolución exacta de la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo, el modelo de las tres etapas y la Aproximación de Campo Fuerte o SFA (*Strong Field Approximation*) para la generación de armónicos.

1.3.1. Resolución directa de la ecuación de Schrödinger con dependencia temporal

La interacción de un átomo aislado con campo electromagnético viene dada, en el régimen no relativista, por la ecuación de Schrödinger tridimensional dependiente del tiempo o 3D TDSE (3-dimensional time dependent Schrödinger equation) [6–9]. En el contexto de la generación de armónicos se pueden hacer varias aproximaciones. Una de ellas es considerar al núcleo con masa infinita (esto implica que permanece quieto en el tiempo que dura la interacción). También, por estar en el régimen no relativista podemos asumir que el spin no se acopla con el campo, considerando así al electron como una partícula sin spin. Por otro lado la generación de armónicos es considerada generalmente como un proceso a un sólo electron, aunque actualmente procesos a más de un electron están siendo considerados [10]. La aproximación dipolar también puede aplicarse al estudio de HHG a intensidades moderadas, es decir la dependencia espacial del campo electromagnético puede despreciarse (ver Fig. 1.2),

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \simeq \mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 f(t) \sin(\omega_0 t + \phi). \quad (1.1)$$

donde ω_0 es la frecuencia del láser, \mathbf{E}_0 es la amplitud pico, $f(t)$ es la envolvente del pulso y ϕ es la fase del pulso o CEP (de sus siglas en inglés *Carrier Envelope Phase*).

Por último, el *drift* (o deriva) magnético que experimenta el electrón ionizado debido a la fuerza de Lorentz también puede ser despreciado siempre que estemos en régimen no relativista (see Fig. 1.3), ya que la componente magnética de la fuerza

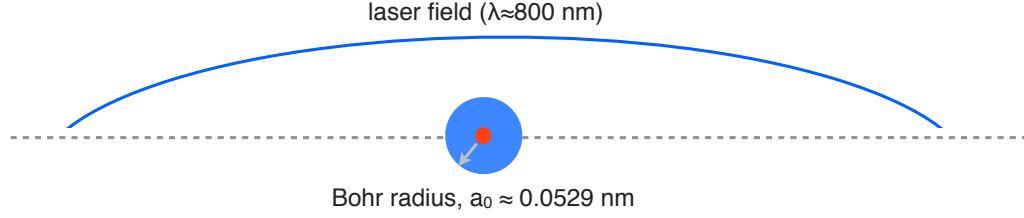


Figura 1.2: Representación esquemática de la aproximación dipolar. La longitud de onda típica de un láser de Titanio-Zafiro (Ti-Sapphire) es de aproximadamente ~ 800 nm, que resulta ser mucho mayor que las dimensiones atómicas. Bajo estas condiciones el campo láser puede ser considerado espacialmente constante en las inmediaciones del átomo, donde tiene lugar la interacción. Así pues la Eq. (1.1) puede ser considerada como una aproximación realista.

de Lorentz es proporcional a $(1/c)$.

$$\mathbf{F}(\mathbf{t})_{Lorentz} = q\mathbf{E}(t) + \frac{q}{c} [\mathbf{V} \times \mathbf{B}] \equiv \mathbf{F}_{Electric} + \mathbf{F}_{Magnetic} \simeq \mathbf{F}_{Electric} \quad (1.2)$$

El límite de esta aproximación aparece cuando el valor del drift magnético excede al ensanchamiento del paquete de ondas del electrón. Para longitudes de onda de 800 nm, este límite corresponde, aproximadamente, a intensidades láser en torno a la unidad atómica (esto se estudia en detalle en [11]).

Teniendo en cuenta estas aproximaciones, la 3D TDSE puede escribirse como,

$$i\hbar \frac{d}{dt} \psi(\mathbf{r}, t) = [H_a(\mathbf{r}) + V_{int}(\mathbf{r}, t)] \psi(\mathbf{r}, t) \quad (1.3)$$

En la Eq. (1.3), $\psi(\mathbf{r}, t)$ es la función de onda tridimensional y el Hamiltoniano ha sido dividido en dos partes: el Hamiltoniano atómico H_0 ,

$$H_a(\mathbf{r}) = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V(r) \quad (1.4)$$

siendo para el átomo de hidrógeno, $V(r) = -1/r$. El otro término, V_{int} corresponde

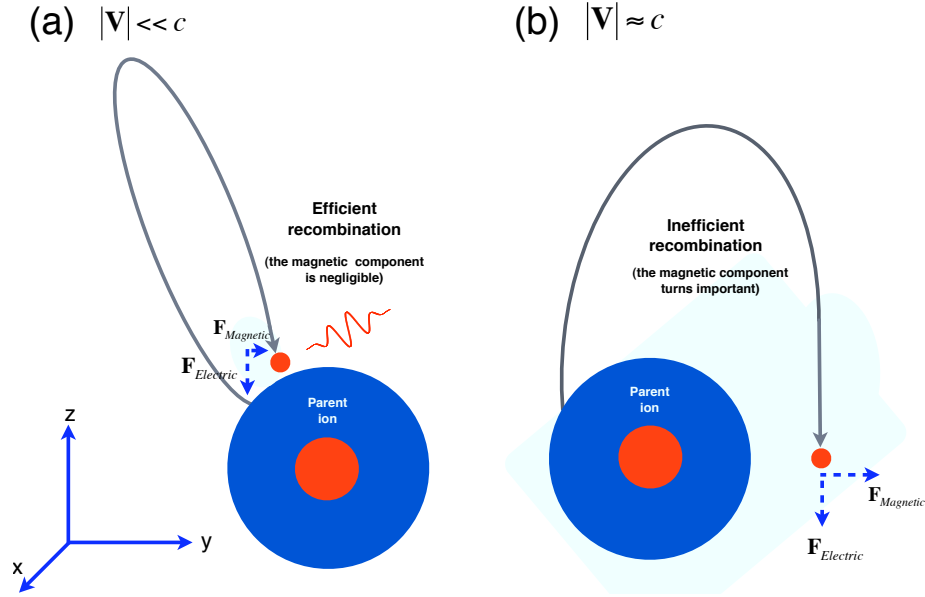


Figura 1.3: Efecto que ejerce el campo magnético de la fuerza de Lorentz sobre el electrón ionizado y en su posterior recombinación con el ión. Como se muestra en el panel (a), cuando la velocidad del electrón es baja comparada con c , la Eq. (1.2) es una aproximación razonable. Sin embargo en el caso de que la velocidad del electrón sea cercana a c , la componente magnética ejerce un importante efecto sobre el electrón ionizado desviándolo de la trayectoria óptima de recombinación como se ve en el panel (b).

al Hamiltoniano de interacción, el cual, en el *gauge de velocidad* [12] tiene la forma,

$$V_{int}(\mathbf{r}, t) = -q \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t) \quad (1.5)$$

También, vamos a considerar que el láser está linealmente polarizado a lo largo del eje z , $\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}_0 = zE_0 = rE_0 \cos\theta$, siendo θ el ángulo azimutal. Con esta consideración, el sistema tiene simetría cilíndrica, reduciéndose así la dinámica del proceso a sólo dos dimensiones efectivas. Para hacer la integración numérica de la TDSE, normalmente se expande la función de onda en función de la base del momento angular,

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \sum_{\ell=0}^{\infty} \frac{1}{r} \chi_{\ell}(r, t) Y_{\ell}^0(\theta) \quad (1.6)$$

Asumiremos que el átomo de hidrógeno está inicialmente en el estado $1s$, así sólo los armónicos esféricos con $m = 0$ están acoplados por estar el campo linealmente polarizado. Substituyendo la función de onda así definida en la ecuación de Schrödinger, y proyectando sobre los armónicos esféricos, se llega a un sistema de ecuaciones diferenciales acopladas, una para cada ℓ [13, 14],

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \chi_\ell(r, t) = \left[-\frac{1}{2m} \frac{\partial^2}{\partial r^2} - \frac{1}{r} + \frac{\ell(\ell+1)}{2r^2} \right] \chi_\ell(r, t) + rE(t) \left[C_\ell^+ \chi_{\ell+1}(r, t) + C_\ell^- \chi_{\ell-1}(r, t) \right] \quad (1.7)$$

para $\ell > 0$, and for $\ell = 0$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \chi_0(r, t) = \left[-\frac{1}{2m} \frac{\partial^2}{\partial r^2} - \frac{1}{r} \right] \chi_0(r, t) + rE(t) C_0^+ \chi_\ell(r, t) \quad (1.8)$$

Donde los coeficientes C_ℓ^\mp designan el acoplamiento entre las componentes de los diferentes armónicos esféricos, que a su vez están estrechamente relacionados con los coeficientes de Clebsch-Gordan,

$$C_{\ell-1}^+ = C_\ell^- = \left[\frac{\ell^2}{(2\ell+1)(2\ell-1)} \right]^{1/2} \quad (1.9)$$

La resolución numérica requiere truncar la expansión de los armónicos esféricos para un valor máximo del momento angular, ℓ_{max} . Por lo tanto, así llegamos a un sistema de ecuaciones en derivadas parciales (en t y en r). Así pues las Eqs.(1.7) y (1.8) se pueden propagar en el tiempo usando, por ejemplo, el esquema de Crank-Nicholson. También, cabe resaltar que para asegurar la convergencia numérica, cada situación específica dependiendo de los parámetros del láser, requerirá diferentes parámetros de red, tales como la densidad de puntos condicionada por el tamaño de los correspondientes pasos espaciales y temporales. De igual modo, la evolución de la población con el tiempo se puede calcular proyectando la función de onda sobre el estado fundamental,

$$P(t) = |\langle \psi_0 | \psi(\mathbf{r}, t) \rangle|^2 \quad (1.10)$$

A través de la la aceleración se calcula el espectro de armónicos de un átomo aislado como,

$$|a(\omega_0)|^2 = \int_0^T \ddot{d}(t) e^{-i\omega_0 t} dt \quad (1.11)$$

donde T es el período del pulso láser incidente. $\ddot{d}(t)$ es la aceleración del momento dipolar que se puede calcular por el teorema de Ehrenfest,

$$\ddot{d}(t) = -\frac{d^2}{dt^2} \langle \psi(\mathbf{r}, t) | z | \psi(\mathbf{r}, t) \rangle = \frac{1}{m} \langle \psi(\mathbf{r}, t) | \frac{\partial}{\partial z} [V(r) + qV_{int}] | \psi(\mathbf{r}, t) \rangle \quad (1.12)$$

Cuando tratemos átomos multielectrónicos, tales como el helio, se necesitarán aproximaciones adicionales como veremos más adelante en la sección 2.4.

1.3.2. El modelo clásico de tres etapas

El modelo de tres etapas o más conocido por su nombre en inglés, the *three step model* (TSM) es un modelo, fenomenológico podríamos decir, desarrollado a principios de los años 90 [15–17] que nos da una descripción cualitativa y muy intuitiva del proceso de generación de armónicos. De acuerdo al TSM (see Fig. 1.4(a)), en una primera etapa (ionización) el electrón atraviesa por efecto túnel la barrera de potencial apareciendo en el continuo con velocidad inicial nula. En una segunda etapa (aceleración), el electrón evoluciona bajo el efecto del láser, adquiriendo energía cinética. En la tercera y última etapa (recombinación), que tiene lugar cuando en cada ciclo del pulso láser el campo cambia de signo, el electrón recombina con el ión y se emite un fotón. La energía asociada a cada fotón es la suma del potencial de ionización del átomo en cuestión y la energía cinética acumulada por el electrón en el continuo. Hay que tener en cuenta que este modelo no considera los efectos cuánticos, tales como el ensanchamiento que el paquete de ondas experimenta en el continuo. No obstante, las predicciones del TSM (tales como la estimación del cut-off en el espectro de armónicos) son confirmadas tanto por la TDSE como por los modelos basados en el formalismo SFA.

De acuerdo con el TSM, la máxima energía que un fotón puede alcanzar, $E_{cut-off}$,

en el espectro de armónicos viene dada por la ley del cut-off [15],

$$E_{cut-off} = I_p + 3.17U_p \quad (1.13)$$

donde I_p es el potencial de ionización del átomo correspondiente y $U_p = q^2 E_0^2 / 4m\omega_0^2$ es la energía ponderomotriz. Vamos a deducir la ley del cut-off para el caso de un

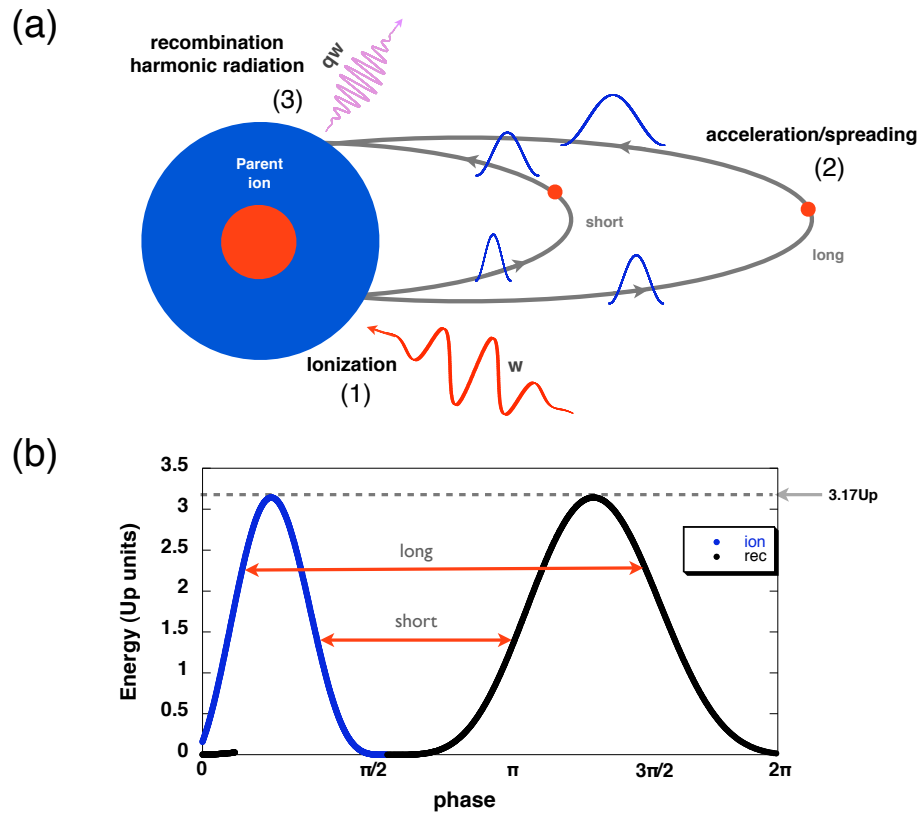


Figura 1.4: (a) Representación esquemática del proceso de generación de armónicos mediante el modelo de tres etapas (TSM). (b) Energía cinética de recombinación (en unidades de U_p) como función de la fase del campo (ϕ) en el instante de la ionización. Las líneas azules y negras representan, respectivamente, los eventos de ionización y recombinación.

láser linealmente polarizado² en el eje z ,

$$E(t) = E_0 \cos(\omega_0 t) \quad (1.14)$$

y considerando que el electrón será ionizado en algún instante de tiempo, t_i . Así las condiciones iniciales serán $z(t_i) = 0$ y $\dot{z}(t_i) = 0$. Resolviendo la ecuación de movimiento de Newton-Lorentz para el electrón libre, tenemos,

$$z(\phi) = \frac{qE_0}{m\omega_0^2} \left[\cos\phi - \cos\phi_i + (\phi - \phi_i) \sin\phi_i \right] \quad (1.15)$$

donde hemos denotado como $\phi \equiv \omega_0 t$. También podemos calcular la energía cinética,

$$E_{kin}(\phi) = 2U_p (\sin\phi - \sin\phi_i)^2 \quad (1.16)$$

La fase del campo en el momento de la recombinación, ϕ_r , puede ser obtenida calculando las raíces de la ecuación $z(\phi_r) = 0$. Por lo tanto, la energía de un fotón emitido tras la recombinación viene dada por $E_{kin}(\phi) + I_p$. En la Fig. 1.4(b) representamos la energía cinética (en unidades de U_p) en función de la fase de ionización del campo ϕ_i y de la fase de recombinación ϕ_r que tiene lugar aproximadamente para $0 < \phi_i < \pi$. La recombinación sólo ocurre si $0 < \phi_i < \pi/2$ y el electrón nunca se recombina con el ión si $\pi/2 < \phi_i < \pi$. $E_{kin}(\phi)$ alcanza su máximo valor en $3.17U_p$ para $\phi_i = 0.094\pi$ y $\phi_r = 1.416\pi$. Estas trayectorias son las responsables de la emisión de las frecuencias en la parte alta del espectro de armónicos y vienen dadas por la ley del cut-off Eq. (1.13). De hecho, en el instante de ionización de estas trayectorias, el campo láser está cerca del máximo, por lo tanto, la probabilidad de ionización túnel es alta. Por esta razón la generación de armónicos es altamente eficiente en la zona cercana al cut-off.

Para ciertos valores particulates de la E_{kin} , podemos encontrar valores de ϕ_i y ϕ_r como soluciones del siguiente conjunto de ecuaciones acopladas:

$$(\cos\phi - \cos\phi_i + (\phi - \phi_i) \sin\phi_i) = 0 \quad (1.17)$$

²Para simplificar los cálculos vamos a usar para la deducción un campo monocromático (sin envolvente). Este hecho no afectará al resultado final que sigue teniendo validez general

$$(\sin\phi_r - \sin\phi_i)^2 = \frac{E_{kin}}{2U_p} \quad (1.18)$$

Resaltamos que para rescatterings con energías inferiores a $3.17U_p$ existen siempre dos trayectorias con la misma energía cinética de recombinación (ver Fig. 1.4(b)). Una de ellas para $0.094\pi < \phi_i < \pi/2$, $\pi/2 < \phi_r < 1.416\pi$ que es conocida como *trayectoria corta* (*short trajectory*), y la otra, $0 < \phi_i < 0.094\pi$, $1.416\pi < \phi_r < 2\pi$ conocida como *trayectoria larga* (*long trajectory*).

1.3.3. Aproximación de Campo Fuerte para HHG: modelo de Lewenstein

Como ha quedado puesto de manifiesto anteriormente el TSM es enteramente clásico. Lewenstein y colaboradores desarrollaron el primer modelo cuántico para la generación de armónicos basado en la aproximación de campo fuerte o SFA (Strong Field Approximation) la cual aparece por primera vez en la literatura a principios de los años 90 [18]. Desde el punto de vista cuántico, la descripción basada en trayectorias es substituída por una función de onda, inicialmente ligada al átomo o molécula, que es fuertemente deformada por el campo externo. Parte de la función de onda es expelida del potencial que la mantiene ligada, a través de la barrera clásicamente prohibida y eventualmente puede interferir con la parte izquierda del estado ligado.

El modelo de Lewenstein se fundamenta en las bases de la SFA,

- (i) La contribución de los estados ligados se puede despreciar.
- (ii) El efecto que ejerce el potencial atómico sobre el electrón una vez que éste está en el continuo puede despreciarse. (i.e. en el continuo el electrón puede ser tratado como una partícula libre)

Asumiendo estas aproximaciones, el valor esperado del momento dipolar dependiente del tiempo $x(t) = \langle \psi(\mathbf{r}, t) | z | \psi(\mathbf{r}, t) \rangle$ viene dado por,

$$x(t) = i \int_{-\infty}^t dt' \int d^3p d^* (p + qA(t)/c) e^{-iS(p,t,t')/\hbar} E(t') d(p + qA(t')/c) + c.c., \quad (1.19)$$

siendo $p + qA(t)/c$ el momento cinético y $d(p)$ el elemento de matriz de la transición dipolar, $A(t) = -c \int E(t) dt$ el potencial vector y $S(p, t, t')$ la acción semiclásica,

$$S(p, t, t') = \int_{t'}^t dt'' \left(\frac{[p + qA(t'')/c]^2}{2m} + I_p \right) \quad (1.20)$$

La interpretación física de la Eq. (1.19) puede ser abordada en consistencia con el TSM. El término $E(t') d(p + qA(t')/c)$ representa el evento de ionización a tiempo t' , el término $e^{-iS(p,t,t')}$ corresponde a la evolución de t' a t y $d^*(p + qA(t)/c)$ describe la recombinación a tiempo t . Aquí se asume que en un intervalo de tiempo de t' a t el electrón evoluciona como una partícula libre sin el efecto del potencial atómico. La transformada de Fourier de la ecuación Eq. (1.19) puede ser escrita como,

$$\hat{x}(\omega_h) = i \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\infty}^t dt' \int d^3p d^* (p + qA(t)/c) e^{[i\omega_h t - iS(p,t,t')]/\hbar} E(t') d(p + qA(t')/c) + c.c., \quad (1.21)$$

La Eq. (1.21) incluye integrales acopladas que pueden hacer el cálculo extremadamente complejo. Por esta razón el formalismo SFA standard recurre a la aproximación de fase estacionaria. Las condiciones de fase estacionaria pueden ser encontradas igualando a cero las primeras derivadas del exponente $[\omega_h t - iS(p, t, t')]/\hbar$ con respecto a p , t y t' , dando lugar a las siguientes ecuaciones,

$$p(t - t') + \frac{q}{c} \int_{t'}^t A(t'') dt'' = 0 \quad (1.22)$$

$$\frac{[p + qA(t')/c]^2}{2m} = -I_p \quad (1.23)$$

$$\frac{[p + qA(t)/c]^2}{2m} = \omega_h - I_p \quad (1.24)$$

La Eq. (1.23) puede ser escrita como $\int_{t'}^t (p + qA(t'')/c) = 0$ la cual nos indica que el electrón aparece en el continuo y recombina posteriormente en el mismo punto del que salió. Reescribiendo la Eq. (1.24) junto con la Eq. (1.24) como $(p + qA(t)/c)^2/2m - (p + qA(t')/c)^2/2m = \omega_h$ obtenemos las ecuaciones que representan la conservación de la energía en el proceso de generación de radiación armónica. La Eq. (1.23) no es fácil de interpretar debido al signo negativo en la parte derecha, el cual implica que las soluciones de la aproximación de fase estacionaria son complejas. El tiempo complejo, t' , es interpretado normalmente como el *tiempo de túnel* [18]. Si sustituímos en estas ecuaciones I_p por cero y $\omega_h - I_p$ por E_{kin} recuperamos la Eq. (1.17) y la Eq. (1.18) del TSM. Como se expone en [18] el modelo de Lewenstein predice una energía del cut-off sensiblemente mayor que el TSM,

$$E_{cut-off} = 3.17U_p + gI_p \quad (1.25)$$

siendo $g \sim 1.3$. Esto puede estar justificado por el hecho de que hay una distancia finita entre el núcleo y la salida de la barrera túnel. El electrón que ha regresado a la posición de la salida túnel se acelera aún más hasta llegar a la posición del núcleo.

Más adelante veremos que la aproximación de fase estacionaria se puede evitar, haciendo así el cálculo más exacto. Este es una de las aportaciones de nuestro formalismo SFA+, pero puede ser igualmente aplicado al formalismo standard SFA.

1.4. Pulsos de attosegundo

De acuerdo al análisis de Fourier, la duración temporal de un pulso τ , depende recíprocamente de su ancho de banda espectral $\Delta\omega_0$ en el dominio de la frecuencia. Por lo tanto, el pulso más corto (en tiempo) para un espectro dado, está limitado por el conocido límite de Fourier,

$$\tau \geq \frac{2\pi c_B}{\Delta\omega_0} \quad (1.26)$$

donde c_B es un factor constante que, dependiendo del tipo de envolvente, puede tomar diferentes valores. En el caso de envolventes *Gaussianas* $c_B=0.441$ y en el caso de envolventes tipo *secante Hiperbólica* $c_B=0.315$. De la Eq. (1.26) se deduce que

para producir pulsos ultracortos se necesita un espectro muy ancho. Por lo tanto, el proceso de generación de armónicos constituye un óptimo candidato para conseguir sintetizar pulsos en el rango de varios attosegundos ($1 \text{ attosegundo} = 10^{-18} \text{ s}$). A principios de los años 90, Farkas y Tóth, en un trabajo teórico (considerado pionero), sugirieron la posibilidad de sintetizar pulsos cuya duración temporal estaba cercana a los attosegundos. Su estudio tomaba como base el utilizar armónicos de orden alto generados en gases [19]. En este artículo los autores concluyen:

“... the described idea and technique seems to be realizable in all nonlinear processes, where high harmonic generation takes place, e.g., in the case of collinear harmonic generation on metal surfaces - in which case both odd and even harmonics appear - observed by us recently, in the case of multiphoton light scattering by free electrons, etc.

Por lo tanto, si los armónicos emitidos están en fase, el correspondiente perfil temporal consistirá en un tren de pulsos separados cada medio ciclo del láser cuya duración está dentro del rango de los attosegundos. Es decir, la suma coherente de los armónicos del plateau dará lugar a un tren de attosegundos como consecuencia de la síntesis de Fourier del espectro de armónicos. Sin embargo, los armónicos de orden alto no suelen estar en fase debido a la interferencia de las trayectorias que están energéticamente permitidas que son las que generan la emisión de los armónicos. Las características de la emisión de los pulsos de attosegundo (longitud de onda, anchura y dispersión) dependen de la relación entre la fase y las amplitudes entre los respectivos armónicos. La emisión de cada armónico está asociada con su correspondientes trayectorias (cortas y largas). El tiempo de emisión $t_e = \frac{\partial \phi}{\partial \omega}$, siendo ϕ la fase armónica, da una estimación a cerca de la sincronización de los armónicos cuando éstos son emitidos. De acuerdo con el TSM, t_e varía casi linealmente con el orden armónico (con pendiente positiva para las trayectorias cortas y negativa para las largas). Este hecho ha sido confirmado experimentalmente, ver por ejemplo [20, 21]. En las inmediaciones del cut-off, los tiempos de emisión asociados con las trayectorias cortas y largas colapsan en una única traza con pendiente nula [20].

Actualmente, trenes de pulsos de varios attosegundos son y han sido generados experimentalmente [20, 22–25]. En principio, los esquemas basados en la generación de armónicos requieren un filtrado de los armónicos de orden bajo. Sin embargo, en

el capítulo 3, al final, estudiaremos una técnica diferente para conseguir pulsos de attosegundo aislados. Esta técnica, como veremos, se basa en una abrupta y total despoblación del átomo mediante el uso de formas particulares de pulsos láser.

Capítulo 2

Formalismo de la SFA+

2.1. Derivación de la SFA+: Proyecciones P y Q

Como hemos expuesto anteriormente la interacción de campos intensos con átomos debe ser tratada en un contexto no perturbativo. Por lo tanto, vamos a estudiar la modelización teórica del fenómeno de la generación de armónicos como consecuencia de la interacción de átomos con campos intensos. Para ello, vamos a extender el formalismo standard SFA, evitando hacer aproximaciones semiclásicas obteniendo así una descripción completamente cuántica e incluyendo el efecto que ejerce el campo externo en la dinámica interna del estado fundamental del átomo. A lo largo de toda esta tesis nos referiremos a esta extensión del formalismo standard SFA, como SFA+.

Al comparar los resultados obtenidos con la SFA+ con los resultados obtenidos mediante la resolución directa de la 3D TDSE se pone de manifiesto una mejor coincidencia cuantitativa que cuando se usa la SFA. También, como veremos, la SFA+ describe correctamente la dependencia de la eficiencia del espectro de armónicos con el incremento de la longitud de onda del pulso láser incidente. Así pues en esta sección vamos a derivar matemáticamente la SFA+ a partir del formalismo conocido como la matriz de *scattering* (S-matrix).

La interacción de un átomo aislado con un campo electromagnético externo, asumiendo las aproximaciones expuestas en el capítulo anterior, viene dada por la evolución de la función de onda del electrón de acuerdo con la ecuación de Schrödin-

ger.

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle = [H_a + V_i(t)] |\psi(t)\rangle \quad (2.1)$$

siendo $H_a = \frac{p^2}{2m} - V_c(r)$ el Hamiltoniano atómico (donde $V_c(r)$ representa el potencial del átomo) y $V_i(t) = -(q/mc)A(t)p_z + q^2/(2mc^2)A^2(t)$ representa el término de interacción en el gauge de velocidad.

En términos de los propagadores de Green la evolución temporal del electrón viene dada por,

$$G^+(t, t_0) = G_a^+(t, t_0) + \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t G^+(t, t_1) V_i(t_1) G_a^+(t_1, t_0) dt_1 \quad (2.2)$$

donde G_a^+ es el propagador del electrón libre de campo. La función de onda para un tiempo dado, puede ser representada como $\psi(t) = iG^+(t, t_0)\psi(t_0)$. De esta forma la solución integral exacta de la Eq. (2.1) viene dada por,

$$-i|\psi(t)\rangle = G_a^+(t, t_0)|\psi(t_0)\rangle + \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 G^+(t, t_1) V_i(t_1) G_a^+(t_1, t_0) |\psi(t_0)\rangle \quad (2.3)$$

De esta manera podemos dividir el espacio de Hilbert en dos subespacios, Q que representaría a los estados ligados y por completitud P a los subespacios del continuo (ver Fig. 2.1). Definimos a \hat{Q} y \hat{P} como los correspondientes proyectores. Por definición, estos operadores satisfacen las siguientes identidades matemáticas: $\hat{Q} + \hat{P} = 1$, $\hat{Q}\hat{P} = \hat{P}\hat{Q} = 0$, $\hat{Q}^2 = \hat{Q}$ y $\hat{P}^2 = \hat{P}$, también $|\psi(t_0)\rangle = \hat{Q}|\psi(t_0)\rangle$, ya que $|\psi(t_0)\rangle$ representa un estado inicial y de acuerdo a estas definiciones, la Eq. (2.3) se transforma en dos ecuaciones acopladas representando la parte de la función de onda del estado fundamental,

$$\begin{aligned} -i\hat{Q}|\psi(t)\rangle &= G_a^+(t, t_0)\hat{Q}|\psi(t_0)\rangle \\ &+ \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 \hat{Q}G^+(t, t_1)(\hat{P} + \hat{Q})V_i(t_1)(\hat{P} + \hat{Q})G_a^+(t_1, t_0)|\psi(t_0)\rangle \\ &= G_a^+(t, t_0)|\psi(t_0)\rangle \\ &+ \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 \hat{Q}G^+(t, t_1)\hat{Q}V_i(t_1)\hat{Q}G_a^+(t_1, t_0)|\psi(t_0)\rangle \end{aligned} \quad (2.4)$$

y la parte del continuo

$$-i\hat{P}|\psi(t)\rangle = \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 \hat{P}G^+(t, t_1)\hat{P}V_i(t_1)\hat{Q}G_a^+(t_1, t_0)|\psi(t_0)\rangle \quad (2.5)$$

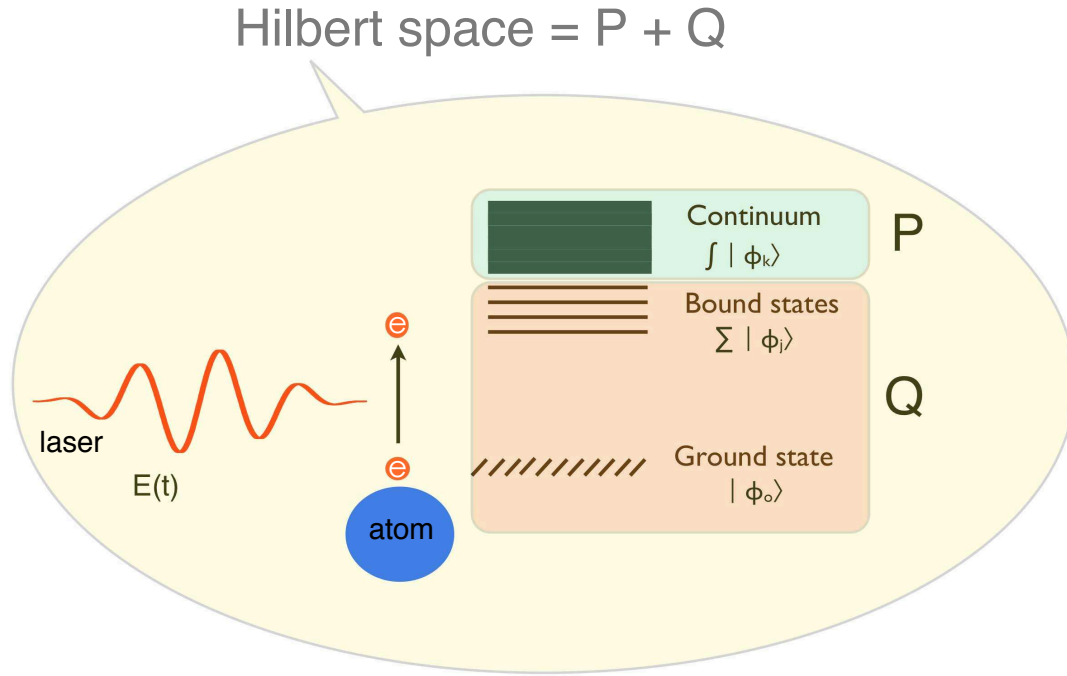


Figura 2.1: Representación de la interacción láser-átomo mediante el formalismo de los operadores P y Q.

El segundo término de la parte derecha de la Eq. (2.4) describe la excitación no ionizada del estado fundamental a tiempo t_1 , y su evolución hasta t bajo la influencia de ambos, del átomo y del campo externo. Así pues la Eq. (2.4) describe la evolución de la parte ligada de la función de onda como superposición de evolución la excitación *desnuda* (libre de campo) y de las excitaciones de los estados ligados (*vestidos* por el campo). El formalismo standard de la SFA consiste en ajustar $\hat{Q}V_i(t_1)\hat{Q} = 0$ en la Eq. (2.4), considerando que la acción del campo externo deja invariante la ionización, junto con el continuo $[H, \hat{P}] = 0$, el cual evita la recombinación con un estado ionizado. De esta forma, considerando $\hat{Q}V_i(t_1)\hat{Q} \neq 0$ en la Eq. (2.4), quedan superadas ciertas restricciones que presentaba el formalismo standard SFA. Como ya hemos dicho anteriormente, en adelante, nos referiremos a este formalismo como SFA+.

Como hemos mencionado en el capítulo anterior la radiación generada por un átomo aislado via HHG es proporcional a la transformada de Fourier del valor esperado de la aceleración dipolar, $a(t) = \langle \psi(t) | \hat{a} | \psi(t) \rangle$, que puede ser calculada a través del teorema de Ehrenfest, $\hat{a} = -(q/m)\partial V_c/\partial z$ (V_c representa la el potencial atómico). La parte de frecuencias altas en el espectro de armónicos se corresponde con los fotones de más alta energía, implicando las transiciones más energéticas (transiciones desde estados libres a estados ligados). Teniendo en cuenta ésto es razonable aproximar,

$$a(t) \simeq \langle \psi(t) | \hat{Q} \hat{a} \hat{P} | \psi(t) \rangle + c.c. \quad (2.6)$$

donde a_b and a_d son dos contribuciones que contribuyen (interfiriendo) a la aceleración total, asociadas con las transiciones entre el continuo y el estado fundamental del átomo *desnudo* o al estado *vestido* por el campo (este último efecto no está considerado en la SFA standard). Partiendo de las Eqs.(2.4),(2.5) y después de un desarrollo algebraico (ver Apéndice A¹) obtenemos,

$$a(t) = a_b(t) + a_d(t) + c.c. \quad (2.7)$$

siendo

$$a_b(t) = \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t) \hat{a} \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle \quad (2.8)$$

$$a_d(t) = \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_0}^t dt_2 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) \hat{Q} V_i(t_2) \hat{Q} G^-(t_2, t) \hat{Q} \hat{a} \int_{t_0}^{t_2} dt_1 \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle \quad (2.9)$$

donde hemos tomado el estado ligado inicial como el estado fundamental, $|\psi(t)\rangle \equiv |\phi_0\rangle$ y haciendo $t_2 > t_1$. Ahora vamos a describir los operadores $\hat{P} V_i(t_1) \hat{Q}$, $\hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P}$, $\hat{Q} V_i(t_2) \hat{Q}$ y $\hat{Q} G^-(t, t_2) \hat{Q}$. Los operadores $\hat{P} V_i(t_1) \hat{Q}$ y $\hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P}$ en las Eqs. (2.5), (2.8) y (2.9) pueden ser evaluados de acuerdo al procedimiento standard de la SFA: Primero consideramos una base de ondas planas, $\{\mathbf{k}\}$, del subespacio definido por

¹Al final de esta tesis se adjuntan una serie de apéndices en los que se expone un desarrollo detallado de los pasos algebraicos que se han omitido en el cuerpo principal de la tesis. En la versión electrónica, haciendo "doble click" sobre el la letra que denota al apéndice en el texto, será redirigido al apéndice deseado.

\hat{P} , así pues,

$$\hat{P} \simeq \int d\mathbf{k} |\mathbf{k}\rangle \langle \mathbf{k}| \quad (2.10)$$

Cada onda plana evoluciona como una onda de Volkov $\mathbf{p} = \hbar\mathbf{k}$ bajo la influencia del campo electromagnético. Por lo tanto,

$$\hat{P}V_i(t_1)\hat{Q} \simeq \int d\mathbf{k} V_i(\mathbf{k}, t_1) |\mathbf{k}\rangle \langle \mathbf{k}| \frac{C_F}{r^n} \quad (2.11)$$

siendo $V_i(\mathbf{k}, t_1) = -(q/mc)A(t_1)k_z + q^2/(2mc^2)A^2(t_1)$. Resaltamos que hemos incluido en la Eq. (2.11) el factor de Coulomb introducido por primera vez en la literatura por Krainov [26], cuya forma general es $C_F/r^n = (2Z^2/n^2 E_0 r)^n$ (para el caso del átomo de hidrógeno $n = 1$ y $Z = 1$).

Además, tenemos

$$\hat{P}G^+(t, t_1)\hat{P} = -i \exp \left[-(i/\hbar) \int_{t_1}^t d\tau \hat{P}H(\tau)\hat{P} \right] \quad (2.12)$$

con

$$\hat{P}H(\tau)\hat{P} \simeq \int d\mathbf{k} \epsilon(\mathbf{k}, \tau) |\mathbf{k}\rangle \langle \mathbf{k}| \quad (2.13)$$

donde $\epsilon(\mathbf{k}, \tau) = \hbar^2 k^2/2m - (q/mc)A(\tau)k_z + q^2/(2mc^2)A^2(\tau)$. Con estas definiciones y un poco de álgebra (ver Apéndice B) la contribución del estado *desnudo* a la aceleración total, Eq. (2.8), puedes ponerse como $a_b(t) = \int d\mathbf{k} a_b(\mathbf{k}, t)$ donde

$$a_b(\mathbf{k}, t) = -\frac{i}{\hbar} C_F \int_{t_0}^t dt_1 e^{i\epsilon_0(t-t_1)/\hbar} e^{-i\frac{1}{\hbar} \int_{t_1}^t \epsilon(\mathbf{k}, \tau) d\tau} \langle \phi_0 | \hat{a} | \mathbf{k} \rangle V_i(\mathbf{k}, t_1) \langle \mathbf{k} | r^{-n} | \phi_0 \rangle \quad (2.14)$$

Hay que resaltar que la evaluación de los operadores de la parte *vestida* por el campo, Eq. (2.9), no es trivial. No obstante, para el caso particular de la generación de armónicos se pueden asumir, sin cometer demasiado error, algunas simplificaciones/aproximaciones. Como es sabido los armónicos de orden alto se generan por transiciones del continuo a los estados ligados durante el proceso de recombinación de un electrón previamente ionizado. En vez de asumir que este proceso es instantáneo, nosotros aquí vamos a considerar que la generación de armónicos a tiempo, t es causada por la recoliación de un electrón ionizado, teniendo lugar este proceso en un corto espacio de tiempo, de $t - \delta t_s$ a t . Asumiendo que la función de onda del estado liga-

do es el estado fundamental al comienzo de este intervalo, la Eq. (2.4) predice esta evolución durante este lapso temporal del rescattering, ajustando el límite inferior de la integral temporal, t_0 al tiempo inicial $t - \delta t_s$,

$$\begin{aligned}
 -i\hat{Q}|\psi(t)\rangle &\simeq G_a^+(t, t_0)|\phi_0\rangle \\
 &+ \frac{1}{\hbar} \int_{t-\delta t_s}^t dt_1 \hat{Q}G^+(t, t_1)\hat{Q}V_i(t_1)\hat{Q}G_a^+(t_1, t_0)|\phi_0\rangle \quad (2.15)
 \end{aligned}$$

además

$$\begin{aligned}
 a_d(t) &\simeq \frac{1}{\hbar^2} \int_{t-\delta t_s}^t dt_2 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) \hat{Q}V_i(t_2) \hat{Q}G^-(t_2, t) \hat{Q} \hat{a} \\
 &\int_{t_0}^{t_2} dt_1 \hat{P}G^+(t, t_1) \hat{P}V_i(t_1) \hat{Q}G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle \quad (2.16)
 \end{aligned}$$

La dinámica de las excitaciones de los estados ligados durante el lapso de tiempo δt_s viene dado por $\hat{Q}G^-(t_2, t)\hat{Q}$ que es a su vez una función del Hamiltoniano $H(t) = H_a + V_i(t)$. El evento de recombinación está definido por el solapamiento del paquete de ondas del electrón libre con el origen de coordenadas, donde el potencial tiene la singularidad. De esta forma para los electrones más energéticos el lapso temporal del scattering puede ser evaluado como,

$$\delta t_s \simeq (3\pi/2\omega_0) \sqrt{|\epsilon_0|/3.17U_p} \quad (2.17)$$

siendo U_p la energía ponderomotriz (ver Apéndice C para más detalles). Para grandes valores de U_p , este lapso de tiempo es suficientemente breve como para aproximar el operador dependiente del tiempo $V_i(t)$ en las Eqs. (2.15) y en (2.16) por este tiempo promediado sobre δt_s (ver Apéndice D)

$$\Delta_s = \langle V_i(t) \rangle = (1/\delta t_s) \int_{t-\delta t_s}^t \left[-(q\hbar/mc)A(\tau)k_z + (q^2/2mc^2)A^2(\tau) \right] d\tau \quad (2.18)$$

donde $\hbar k_z$ es un momento particular del estado, que puede ser aproximado como

(ver Appendix E)

$$k_z = -\frac{2}{\hbar} \sqrt{mU_p} \frac{\sin \omega_0 \delta t_s}{\omega_0 \delta t_s} \left[1 - \sqrt{1 - \frac{1}{6} \left(1 + \frac{\epsilon_0}{U_p} + \frac{\sin 2\omega_0 \delta t_s}{2\omega_0 \delta t_s} \right) \left(\frac{\sin \omega_0 \delta t_s}{\omega_0 \delta t_s} \right)^{-2}} \right] \quad (2.19)$$

Utilizando la Eq. (2.18) y la Eq. (2.19) el Hamiltoniano total durante el evento de colisión puede ser aproximado como $H = H_a + V_i \simeq |\epsilon_0 + \Delta_s|$ siendo ϵ_0 la energía del estado ligado. Por lo tanto $\hat{Q}G^-(t_2, t)\hat{Q}$ puede ser aproximado por $i \exp [i(\epsilon_0 + \Delta_s)(t - t_2)]$.

Por otro lado, es aconsejable buscar una forma simplificada para el operador $\hat{Q}V_i(t_2)\hat{Q}$. Una primera elección podría ser reemplazarla por su forma promediada en el tiempo Δ_s , pero esta no parece resultar una aproximación apropiada. Entonces deberíamos considerar la factorización $V_i(t) = H(t) - H_a \simeq p^2/2m + \Delta_s - H_a$. Es importante darse cuenta que en esta factorización el término de Coulomb en $H(t)$ se considera despreciable asumiendo que las excitaciones del estado fundamental son muy poco probables cerca del origen. Con estas aproximaciones y después de un poco de álgebra la contribución del estado *vestido* por el campo externo puede ser representada en función de la contribución del estado *desnudo* (ver Apéndice F) como,

$$a_d(\mathbf{k}, t) \simeq - \left[1 + \frac{k^2/2m - \epsilon_0}{\Delta_s} \right] a_b(\mathbf{k}, t) \quad (2.20)$$

Por lo tanto la aceleración total viene dada por,

$$a(t) = - \int d\mathbf{k} \frac{\hbar^2 k^2/2m - \epsilon_0}{\Delta_s} a_b(\mathbf{k}, t) + c.c. \quad (2.21)$$

Es importante resaltar que el signo de a_d relativo a a_b (ver Eq. (2.20)) genera la interferencia entre las dos contribuciones, *vestida* y *desnuda*, a la aceleración total. Este es un resultado exclusivo del formalismo SFA+, ya que el formalismo standard SFA, sólo considera la contribución de la parte *desnuda*. El balance de esta interferencia cambia con los parámetros del láser y tiene un efecto importante sobre la eficiencia del espectro de armónicos. En particular la SFA+ describe el correcto escudo de la eficiencia de los armónicos con la longitud de onda [27]. Esto será estudiado en

detalle en 2.3.1 y en 2.3.2.

Por último, es importante resaltar que la integral temporal que conduce a $a_b(\mathbf{k})$ puede ser calculada numéricamente de forma efectiva sin recurrir a la aproximación de fase estacionaria, preservando de esta forma, toda la información desde el punto de vista cuántico. Esto puede hacerse integrando el conjunto de ecuaciones unidimensionales desacopladas, asociadas cada una de ellas, con una onda de Volkov, \mathbf{k} , que resulta de la diferenciación de la ecuación Eq. (2.14)

$$\frac{d}{dt}a_b(\mathbf{k}, t) = \frac{i}{\hbar} [\epsilon_0 - \epsilon(\mathbf{k}, t)] a_b(\mathbf{k}, t) - \frac{i}{\hbar} C_F \langle \phi_0 | \hat{a} | \mathbf{k} \rangle V_i(\mathbf{k}, t) \langle \mathbf{k} | r^{-n} | \phi_0 \rangle \quad (2.22)$$

Desde el punto de vista práctico la ecuación anterior es fácilmente paralelizable lo que hace disminuir considerablemente el tiempo de cómputo, parámetro crucial cuando se quiere estudiar la respuesta macroscópica en la que intervienen un gran número de átomos.

2.2. Test de la SFA+ con respecto de la SFA y la 3D TDSE

Una vez que hemos desarrollado matemáticamente el formalismo SFA+ el siguiente paso es comparar los resultados obtenidos con la SFA+ con los resultados de la SFA standard y con los resultados de la integración directa de la 3D TDSE (que consideraremos como referencia). A continuación exponemos un breve resumen.

2.2.1. Espectro de armónicos de la SFA+ versus la SFA y la 3D TDSE

Antes de todo, decir que los pulsos que utilizaremos en nuestras simulaciones vienen dados analíticamente por la Eq. (1.1) donde $f(t)$ es la envolvente del pulso. Usaremos dos tipos de envolventes, por un lado envolventes tipo \sin^2 siendo $f(t) = \sin^2(\omega_0 t / 2N)$, donde ω_0 es la frecuencia del láser y N el número total de ciclos del láser. El otro tipo de pulsos que usaremos serán pulsos con envolvente trapezoidal.

A continuación vamos a comparar los espectros de armónicos calculados con la SFA+ con los obtenidos mediante la resolución numérica de la 3D TDSE y con el formalismo SFA *standard* (o SFA). Empezaremos comparando los espectros en dos regímenes

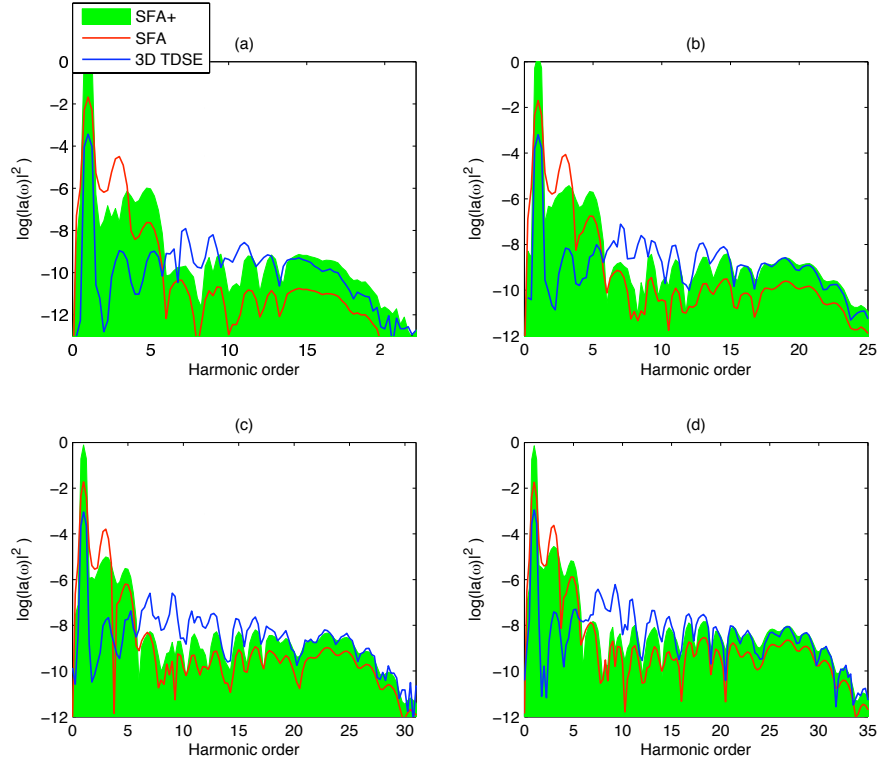


Figura 2.2: Espectro de armónicos en hidrógeno calculado con la SFA+ (en verde), SFA (en rojo) y con la 3D TDSE (en azul), (éste será el esquema de colores que utilizaremos en esta sección) para cuatro intensidades láser diferentes, (a) $5.06 \times 10^{13} W/cm^2$, (b) $8.77 \times 10^{13} W/cm^2$, (c) $1.26 \times 10^{14} W/cm^2$ y (d) $1.57 \times 10^{14} W/cm^2$. Todos ellos están calculados a $800nm$. Los paneles (a) y (b) representan los dos casos de régimen multifotónico ($\Gamma_K = 1.5$ and $\Gamma_K = 1.14$ respectivamente) y los casos (c) $\Gamma_K = 0.95$ and (d) $\Gamma_K = 0.85$, pertenecen al régimen túnel. Aquí hemos usado un pulso de 4-ciclos con envolvente sin^2 .

distintos de ionización: régimen multifotónico y régimen túnel. De acuerdo con el criterio de Keldysh [28], $\Gamma_K = \sqrt{I_P/2U_P}$, hay dos formas de pasar de multifotón a túnel: incrementando la intensidad o incrementando la longitud de onda. En la Fig. 2.2 se

muestra la transición de multifotón a túnel incrementando la intensidad del láser (ver pie de página de las figura para más detalle). Los paneles (a) y (b) correspon-

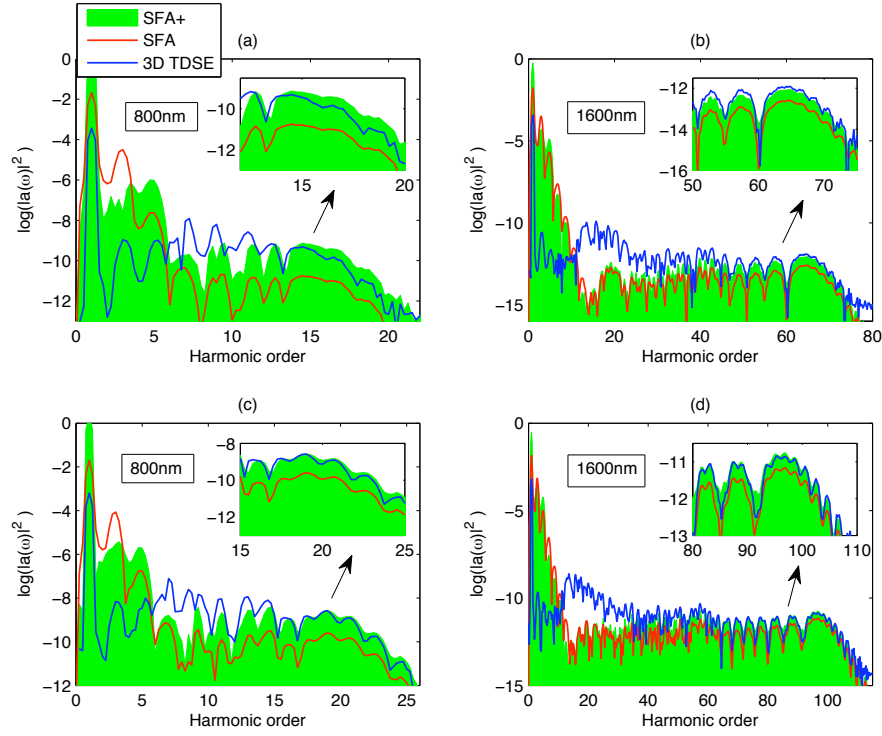


Figura 2.3: Espectros de armónicos para dos intensidades diferentes y dos longitudes de onda diferentes. Los paneles (a) y (b) están calculados ambos a la misma intensidad, $5.06 \times 10^{13} W/cm^2$. Y los paneles (c) y (d) ambos a $8.77 \times 10^{13} W/cm^2$. Al mismo tiempo los paneles (a) y (c) la longitud de onda es 800nm y los paneles (b) y (d) la longitud de onda es 1600nm. En (a) $\Gamma_K = 1.5$, en (b) y $\Gamma_K = 0.75$, en (c) $\Gamma_K = 0.95$ and en (d) $\Gamma_K = 0.57$. Aquí hemos usado un pulso de 4 ciclos de envolvente \sin^2 .

den a los casos multifotónicos y los paneles (c) y (d) a los casos túnel. Mediante un simple chequeo de la esta figura podemos concluir que la SFA+ reproduce con un alto grado coincidencia la parte alta del espectro de armónicos (paneles (a) y (b)) donde la SFA presenta fuertes discordancias con la 3D TDSE. No obstante, en régimen túnel (paneles (c) y (d)) hay perfecta concordancia con la 3D TDSE cerca del cut-off. No obstante no es de extraar que la SFA y la SFA+ fallan cuando intentan reproducir cuantitativamente la parte de bajas frecuencias en el espectro de armóni-

cos. Es decir, considerando el cut-off localizado en la parte baja del plateau, que corresponde al primer estado excitado del hidrógeno ($I_p = 0.125a.u.$) El correspondiente cut-off aparece en torno a $0.375a.u.$ del cut-off del estado fundamental. Para $\lambda = 800nm$ esta energía corresponde aproximadamente al armónico 7 (see Fig. 2.2). Por lo tanto el grado de discordancia con respecto a la 3D TDSE depende del grado de excitación del estado excitado. Es importante resaltar que cuando la intensidad

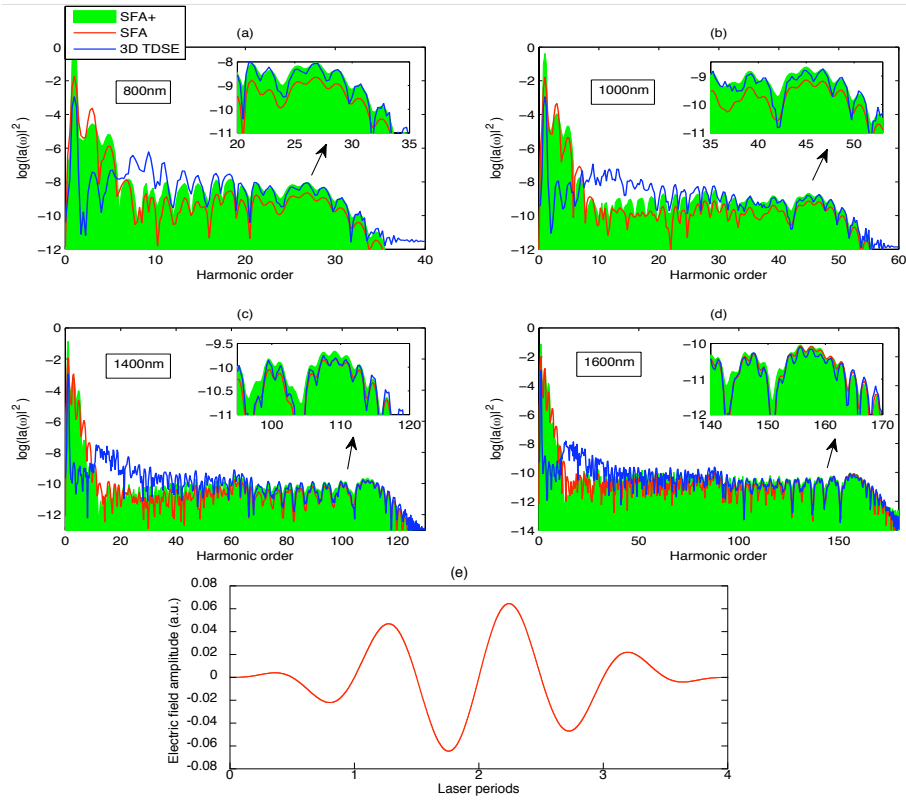


Figura 2.4: Espectros armónicos en hidrógeno calculados a cuatro longitudes de onda diferentes, (a) $800nm$, (b) $1000nm$, (c) $1400nm$ and (d) $1600nm$. En todos los casos se utiliza la misma intensidad $I = 1.57 \times 10^{14}W/cm^2$. Además, en estos casos, en (a) $\Gamma_K = 0.85$, en (b) $\Gamma_K = 0.68$, en (c) $\Gamma_K = 0.48$ y en (d) $\Gamma_K = 0.42$. Los respectivos zooms representan una ampliación de la parte alta del cut-off. Aquí hemos usado un ciclo de 4 ciclos con envolvente \sin^2 que hemos representado en el panel (e).

aumenta la barrera túnel disminuye y como consecuencia la ionización túnel crece exponencialmente. Por esta razón por ejemplo en el panel (c) de la Fig. 2.2 el grado

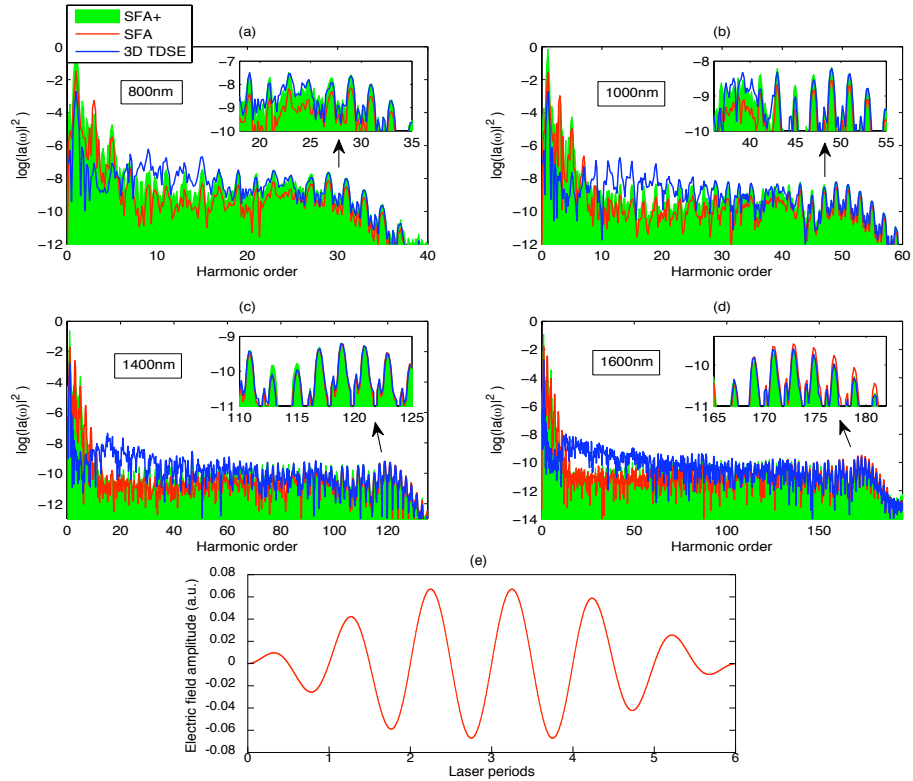


Figura 2.5: Idénticos parámetros que en la Fig. 2.4 pero en este caso usando un pulso trapezoidal de 6 ciclos con dos ciclos de subida (turn-on) y dos ciclos de bajada (turn-off). El pulso está representado en el panel (e).

de coincidencia con la 3D TDSE por los armónicos de orden bajo en mejor que en el panel (b) de esta misma figura. El mismo efecto ocurre cuando la longitud de onda es incrementada por encima de 1600nm debido a que el grado de excitación es menor. En estas condiciones se requiere el doble de fotones para obtener la resonancia atómica.

El próximo paso es testar la SFA+ en el paso de multifotón a túnel pero incrementando la longitud de onda en lugar de la intensidad. En la Fig. 2.3 representamos el espectro de armónicos correspondiente a longitudes de onda que van desde el infrarrojo cercano (800nm) hasta el infrarrojo medio (1600nm). El incremento de la longitud de onda del láser causará la transición del régimen multifotónico (paneles (a) y (c)) al régimen túnel (b) y (d). En estos casos la SFA+ reproduce correctamente los

resultados de la 3D TDSE en la parte alta del espectro. A continuación vamos a testar los espectros de armónicos en régimen túnel a diferentes longitudes de onda y usando pulsos con diferente envolvente. La Fig. 2.4 muestra el espectro de armónicos en régimen túnel (ver pie de página de esta figura), a diferentes longitudes de onda. En este caso la SFA tiende a converger con la SFA+ y la 3D TDSE en el caso de

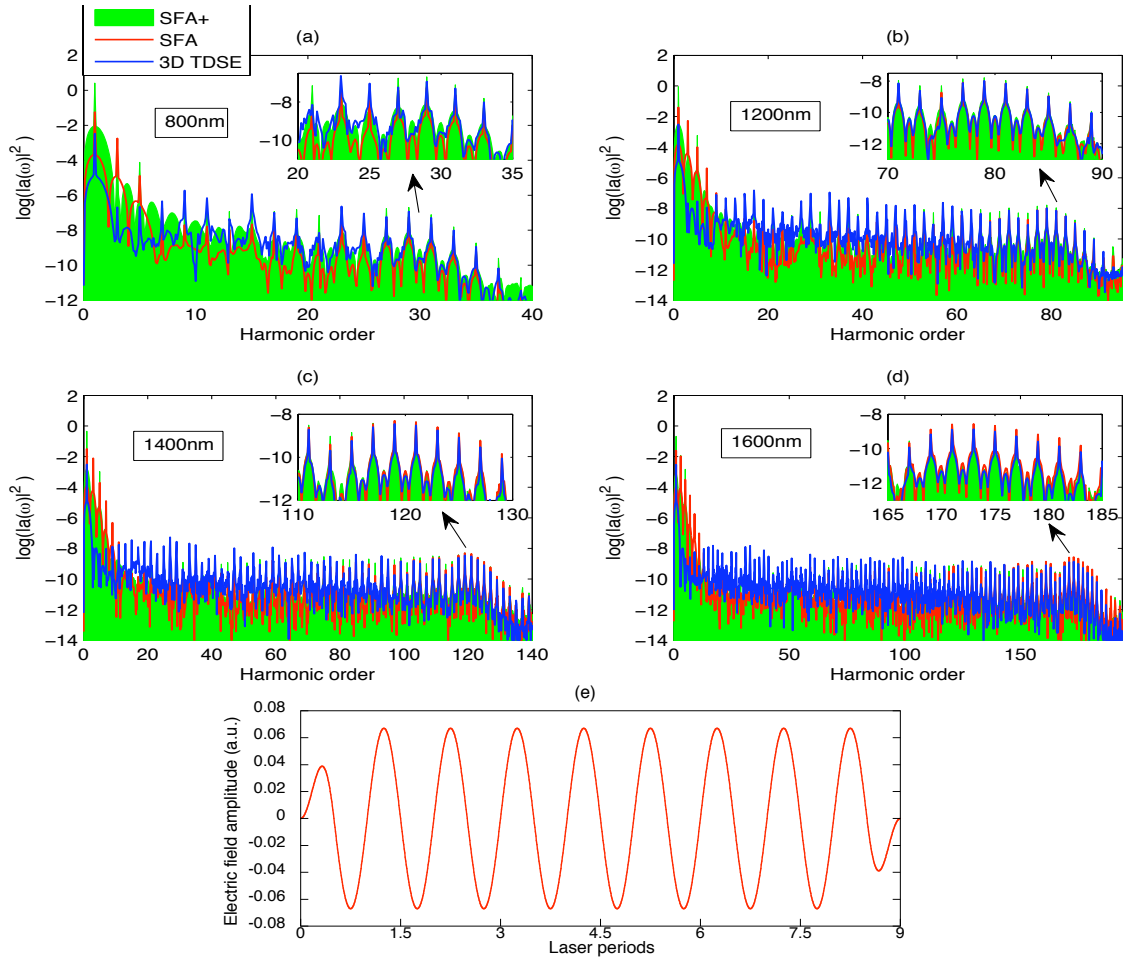


Figura 2.6: Idem que en la Fig. 2.4 y Fig. 2.5 pero aquí hemos usado un pulso trapezoidal de 9 ciclos, con 1/2 de turn-on, 8 ciclos de envolvente constante y 1/2 de turn-off (panel (e))

1600nm. Ésto está en consistencia con el hecho de que la SFA funciona mejor en el régimen túnel. No obstante en este caso la SFA funciona bien justo en el cut-off

en el caso de longitudes de onda largas (ver paneles (c) y (d) en la Fig. 2.4), pero falla justo antes del cut-off (ver los zooms) a diferencia de la SFA+ que reproduce correctamente una zona amplia del plateau. Las dos figuras siguientes, Fig. 2.5 y la Fig. 2.6 representan la misma situación que la Fig. 2.4 pero con pulsos con diferentes envolventes. En el espectro de la Fig. 2.5 usamos un pulso trapezoidal de 6 ciclos con dos ciclos de turn-on, dos ciclos de envolvente constante y dos ciclos de turn-off. Así podemos concluir que la SFA+ no se ve alterada por el tipo de perfil temporal que pueda tener el láser incidente. Resultados similares se obtienen en la Fig. 2.6 donde se ha utilizado un turn-on y turn-off más abruptos.

2.2.2. Escalado de la eficiencia del espectro de armónicos con la longitud de onda

El estudio de la generación de armónicos en el la región SWI (short-wave infrared) constituye actualmente un importante campo de investigación debido al rápido desarrollo de los láseres de alta potencia en este rango de longitudes de onda. Por lo tanto, tiene sentido explorar el comportamiento de la eficiencia del espectro de armónicos cuando se incrementa la longitud de onda. Aunque en un experimento real, las medidas de la eficiencia están sujetas a otros factores como los efectos de propagación [29], pero en el caso simple de un sólo átomo se pueden extraer algunas conclusiones útiles con carácter general. Por lo tanto el estudio de la respuesta de un átomo aislado puede proporcionarnos información valiosa sobre la dependencia de la eficiencia armónica con la longitud de onda. Estudios teóricos previos sobre el escalado de la eficiencia muestran una divergencia entre la 3D TDSE y las predicciones de la SFA [30, 31]. Desde el punto de vista de esta tesis, este hecho es de crucial interés ya que esta divergencia importante entre las predicciones de la SFA y la 3D TDSE puede ser explicada mediante la SFA+. Además, desde un punto de vista práctico, una descripción correcta del escalado de la eficiencia es fundamental para una descripción cuantitativa de la generación de armónicos a largas longitudes de onda que pueden ser usadas para generar pulsos de attosegundos aislados. A continuación vamos a mostrar abreviadamente que la SFA+ reproduce mejor el escalado de la eficiencia del espectro con la longitud de onda, ajustándose mejor a los resultados de la 3D TDSE, que la SFA.

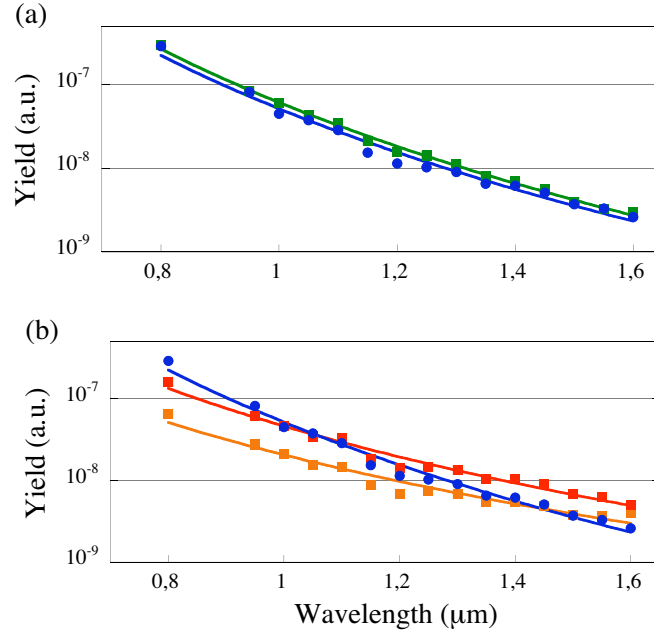


Figura 2.7: Eficiencia del espectro de armónicos calculada usando una ventana temporal al final del plateau para un pulso de 6 ciclos de intensidad $I = 1.58 \times 10^{14}$ y para un rango de longitudes de onda desde 800 a 1600 nm. (a) Comparación entre los resultados de la 3D TDSE (en azul) y los de la SFA+ (en verde), (b) comparación entre la 3D TDSE (en azul) con la SFA en el gauge de longitud (en rojo) y en el gauge de velocidad (naranja).

La Fig. 2.7 muestra una mejor descripción del escalado de la eficiencia, al menos en el rango entre 800 y 1600nm. El panel (a) de esta figura muestra la eficiencia del espectro calculada mediante la 3D TDSE (en azul) y la SFA+ (en verde), mientras que la parte (b) muestra la comparación entre la 3D TDSE (en azul) y la SFA en el gauge de longitud (en rojo) y en el de velocidad (naranja). Como se aprecia en esta figura la SFA+ reproduce con un alto grado de coincidencia con la 3D TDSE el escalado en la eficiencia. Por lo tanto, en base a esto podemos asegurar que la causa de la discrepancia entre el escalado que predice la SFA y la 3D TDSE se puede atribuir a la influencia del campo electromagnético sobre el estado fundamental del átomo. Es importante resaltar que el término de *dressing* en la Eq. (2.16) impone una nueva restricción que interfiere con la standard. Un escalado mayor implica una

interferencia destructiva entre las dos contribuciones a la aceleración total.

En la tabla 2.1 se muestran los exponentes del escalado calculados mediante la SFA+, la SFA (en los dos gauges, velocidad y longitud) y mediante la 3D TDSE para tres pulsos con diferente perfil temporal. Las eficiencias están calculadas usando la ventana cerca del cut-off y por lo tanto, son bastante estables en cuanto a las variaciones del perfil temporal del pulso. Es importante resaltar que los exponentes calculados mediante la SFA ($n = 3.61 \pm 0.16$ y $n = 3.06 \pm 0.06$) discrepan con los calculados con la 3D TDSE ($n = 5.63 \pm 0.22$), y con los de la SFA+ ($n = 5.41 \pm 0.21$).

Cuadro 2.1: Exponentes de λ^{-n} correspondientes a la eficiencia armónica calculados en la parte final del plateau mediante la SFA+, la SFA (en los dos gauges, velocidad y longitud) y la 3D TDSE. Los casos de 6 ciclos corresponden a los resultados mostrados en la Fig. 2.7.

envolvente	SFA $\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}$	SFA $\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}$	SFA+	3DTDSE
4 ciclos	3.68	3.10	5.12	5.38
6 ciclos	3.76	3.10	5.62	5.59
9 ciclos	3.39	2.97	5.49	5.92

Por lo tanto, hemos demostrado que la SFA+ reproduce con un alto grado de precisión el escalado en la eficiencia del espectro evaluado en la parte de frecuencias altas. Y concluimos que la causa de esta discrepancia en el escalado entre el modelo SFA (basado en la aproximación de fase estacionaria) y los resultados de la 3D TDSE expuestos en [30] es la influencia del campo electromagnético en la dinámica del estado fundamental del átomo.

2.2.3. Fase y descripción temporal del espectro de radiación de armónicos

Como hemos visto anteriormente la SFA+ describe adecuadamente la parte alta del espectro. A continuación vamos a analizar el comportamiento de la SFA+ para describir la fase del espectro de armónicos. Esto puede hacerse comparando las fases espectrales mediante diferentes métodos, mediante la representación tiempo-frecuencia (o espectrograma) o comparando la transformada de Fourier inversa del espectro, i.e. $a_b(t)$ de la Eq. (2.14) (SFA), con $a(t)$ en la Eq. (2.21) (SFA+) y con los

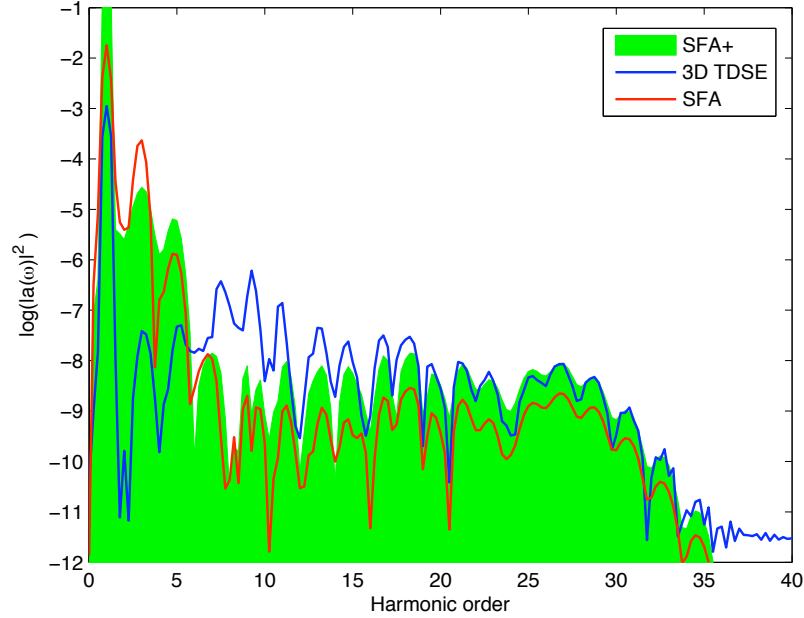


Figura 2.8: Espectro de armónicos en hidrógeno correspondiente a un pulso de 4 ciclos de envolvente \sin^2 e intensidad $1.57 \times 10^{14} W/cm^2$ at $800nm$, calculados con la SFA+ (en verde), SFA (en rojo) y 3D TDSE (en azul).

resultados de la resolución numérica de la 3D TDSE. Consideraremos como test la interacción con un pulso de 4 ciclos de envolvente \sin^2 e intensidad $1.57 \times 10^{14} W/cm^2$ a $800nm$. El espectro obtenido en este caso está representado en la Fig. 2.8. Para explorar con detalle el comportamiento espectral y temporal del espectro de armónicos la Fig. 2.9 representa el análisis frecuencia-tiempo, que nos da una estimación del momento en que se emiten los armónicos a lo largo del pulso. De esta forma es posible identificar los eventos de recombinación o, en otras palabras, el instante cuando los armónicos son emitidos a lo largo del pulso y su correspondiente energía de recombinación.

Para una mejor comparación, en el panel (c) of Fig. 2.9 los resultados de la SFA han sido escalados en un factor 5 para comparar con los casos de la 3D TDSE y la SFA+ (paneles (a) and (b) respectivamente). Los armónicos inferiores al armónico 15 no han sido incluidos en el eje y ya que corresponden a la región de bajas frecuencias,

donde ni la SFA ni la SFA+ reproducen bien el espectro. Los resultados de la 3D TDSE muestran que los armónicos están generados en tres *bursts*, correspondientes al rescattering de los electrones que recombinan cerca del máximo del campo, apro-

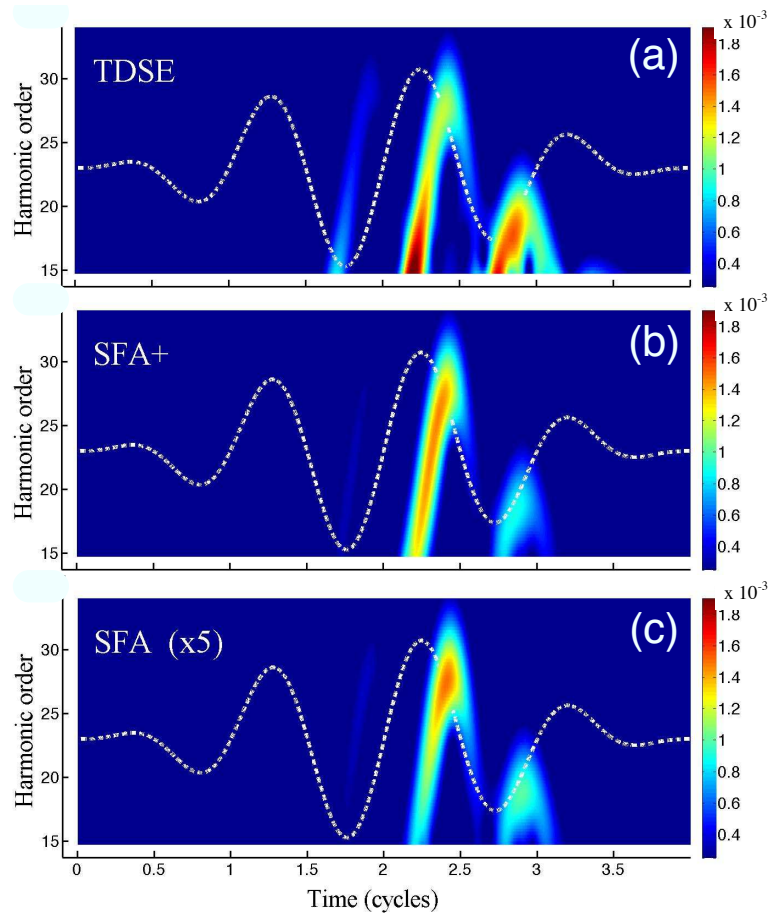


Figura 2.9: Análisis frecuencia-tiempo o espectrograma correspondiente al espectro de la Fig. 2.8: (a) 3D TDSE (b) SFA+ (sin reescalar), (c) SFA (reescalado al mismo nivel de intensidad que en los casos previos). La línea discontinua representa el pulso láser incidente.

ximadamente a $1.25T$, $1.75T$ y $2.25T$, siendo T el período del láser. Los armónicos más altos corresponden al segundo *burst* para el cual los electrones ionizados acumulan la energía cinética máxima antes del rescattering. Los modelos standard SFA también reproducen estos procesos, no obstante la intensidad del primer *burst* parece ser más débil en estos casos. La razón de este hecho no está clara, pero sugiere que

la ionización a bajas intensidades es menos eficiente en los modelos SFA comparados con la 3D TDSE.

2.3. Aspectos puramente cuánticos de la SFA+

2.3.1. Descripción espectral mediante el espacio de momentos

Como hemos estudiado anteriormente, si prescindimos de la aproximación de fase estacionaria preservamos toda la información cuántica del proceso. A continuación vamos a demostrar que el hecho de que la SFA+ no utilice esta aproximación va a constituir una herramienta muy útil para hacer un estudio en detalle y puramente cuántico de la naturaleza de la radiación armónica. Hay que tener en cuenta que la SFA+ calcula el espectro de radiación mediante la superposición de contribuciones independientes de cada onda de Volkov. Por el contrario la SFA utiliza la aproximación de fase estacionaria, que considera sólo las contribuciones más relevantes a la integral en el espacio de momentos, dando una descripción semiclásica en términos de las trayectorias cuánticas. Por lo tanto es interesante analizar el papel que juegan las diferentes contribuciones en el espacio de momentos al proceso de generación de armónicos. Para ello consideramos la transformada de Fourier de $a_b(\mathbf{k}, \mathbf{t})$, dada por la Eq. (2.22). Definimos la contribución total de los estados del continuo con momento axial k_z como la integral sobre el plano transversal.

$$a(k_z, \omega) = - \int dk_\rho k_\rho d\phi \frac{\hbar^2 k^2 / 2m - \epsilon_0}{\Delta_s} a_b(\mathbf{k}, \omega) \quad (2.23)$$

La figura 2.10 muestra estas contribuciones para dos casos de régimen de intensidad diferentes en hidrógeno. El panel (a) representa el régimen multifotónico ($I = 5.0 \times 10^{13} W/cm^2$) y el panel (b) corresponde al régimen túnel ($I = 3.50 \times 10^{14} W/cm^2$). Un hecho relevante en esta gráfica es que es la presencia de contribuciones al espectro más allá del límite del cut-off impuesto por la Eq. (1.13), que es marcado por líneas verticales. En ambos casos (multifotónico y túnel) los armónicos altos pueden ser

generados con frecuencias más allá del límite semiclásico, pudiendo llegar a valores próximos a $I_p + 8.0U_p$. [32, 33]. Por lo tanto, cada momento puede contribuir con

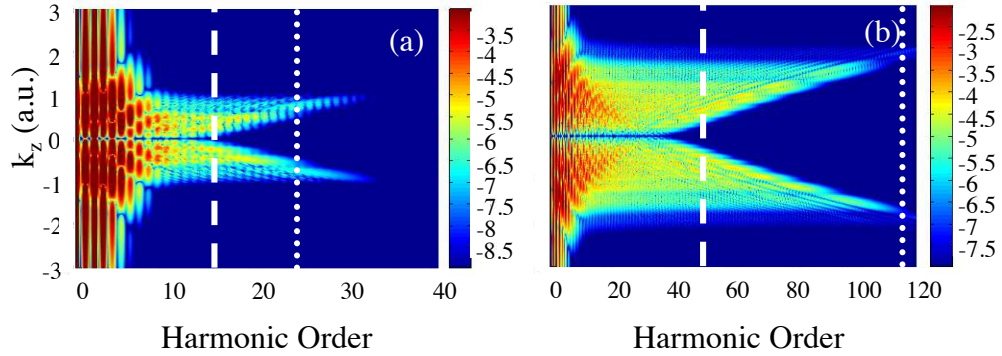


Figura 2.10: Contribuciones espectrales, k_z a la radiación armónica total correspondientes a dos intensidades láser diferentes, (a) $5.0 \times 10^{13} W/cm^2$ y (b) $3.50 \times 10^{14} W/cm^2$ ambas a $800nm$, calculadas con la SFA+. Las líneas discontinuas verticales representan la máxima frecuencia del cut-off ($I_p + 3.17U_p$) del espectro total integrado que corresponde a electrones que regresan al átomo. Las líneas de puntos verticales denotan el máximo de energía cinética de las trayectorias de los electrones que no retornan, $I_p + 8U_p$. La intensidad armónica esta representada en escala logarítmica

frecuencias bastante mayores que el límite semiclásico, $I_p + 3.17U_p$. No obstante, estas contribuciones a alta energía se cancelan cuando la integral se lleva a cabo en el espacio de momentos, y esta cancelación mútua hace converger el espectro final al límite semiclásico. Esta cancelación se produce directamente si se aplica la aproximación de fase estacionaria. Las frecuencias más allá del $I_p + 3.17U_p$ no contribuyen al espectro total debido al rápido cambio de las fases de $a(k_z, \omega)$ con k_z , dando así una interferencia destructiva.

2.3.2. Aspectos semiclásicos y cuánticos de la generación de armónicos via la SFA+. Deslocalización del paquete de ondas

Como venimos exponiendo a lo largo de esta tesis, la SFA+ nos está permitiendo hacer un análisis mas fino que el que podríamos hacer mediante la SFA convencional. En este sentido combinando la SFA+ con un análisis puramente clásico de trayectorias hemos identificado dos procesos radiativos de nuevo en dos regímenes distintos de ionización (túnel y multifotónico). Estas dos nuevas formas de radiación que hemos denominado como *close up* y *out* se dan en situaciones clásicamente prohibidas y se producen como consecuencia de la deslocalización del paquete de ondas en el continuo.

2.4. Resultados para otras especies químicas: He

Todo los resultados expuestos anteriormente han sido desarrollados en hidrógeno. Sin embargo, los experimentos en generación de armónicos se llevan a cabo en otras especies químicas. Los gases nobles son los más utilizados. Por lo tanto, el próximo paso es extender la SFA+ al estudio de estos gases. Para ello es necesario calcular los elementos de matriz correspondientes en la Eq. (2.14) a partir de un potencial atómico que describa bien estos átomos, (por ejemplo el que aparece en [34]). También se necesitan las funciones de onda correspondientes, que están tabuladas en [35]. En la Fig. 2.11 se han representado los espectros de armónicos en helio a dos intensidades láser diferentes y a dos longitudes de onda tambien distintas calculados con la SFA+ y con la 3D TDSE. El panel (a) de esta figura representa el caso multifotónico ($\Gamma_K = 1.14$) y los paneles (b), (c) y (d) respectivamente, los casos en régimen túnel. Como queda reflejado en la Fig. 2.11, los espectros obtenidos con la SFA+ reproducen con bastante exactitud los espectros obtenidos con la 3D TDSE. Este hecho demuestra que es factible la extensión de la SFA+ al estudio de otras especies químicas, como pueden ser los gases nobles.

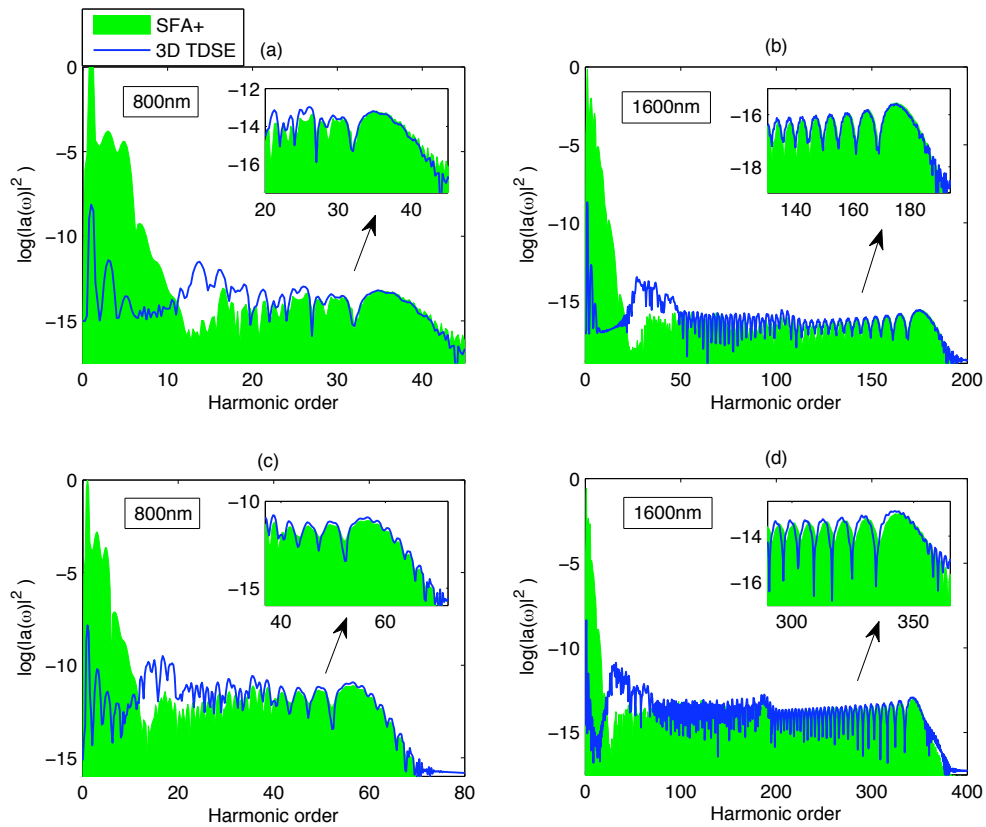


Figura 2.11: Espectros de armónicos en helio para dos longitudes de onda y dos intensidades diferentes. Los paneles (a) y (b) representan dos espectros calculados a la misma intensidad, $5.0 \times 10^{13} W/cm^2$. Los paneles (c) y (d) están calculados ambos a $3.50 \times 10^{14} W/cm^2$. Al mismo tiempo, los espectros en (a) y (c) están calculados para 800nm y los espectros de (b) y (d) están calculados a 1600nm. En (a) $\Gamma_K = 1.14$, en (b) $\Gamma_K = 0.57$, en (c) $\Gamma_K = 0.76$ y en (d) $\Gamma_K = 0.38$. Hemos usado un pulso de 4 ciclos de envolvente \sin^2

Capítulo 3

HHG y síntesis de pulsos de Attosegundo más allá del límite de saturación

3.1. Retos, objetivos y el problema de la saturación en la generación de armónicos

Como venimos poniendo de manifiesto a lo largo de esta tesis la generación de armónicos de orden alto constituye un método elegante y directo para obtener radiación coherente en el rango del ultravioleta y los rayos X blandos usando como fuente los láseres *table top*.

De acuerdo con la Eq. (1.13), existen dos formas de extender el *cut-off* en el espectro de armónicos (i.e. obtener fotones de alta energía). Bien aumentando la intensidad del láser incidente o bien aumentando la longitud de onda (o ambas). Estos dos caminos están limitados, en el primer caso por la pérdida de eficiencia impuesta por el límite de saturación [38, 39], que depende del átomo o molécula utilizado. En el segundo caso, al aumentar la longitud de onda del láser, la eficiencia en el espectro cae exponencialmente como $\lambda^{-5.5}$ debido a que el ensanchamiento del paquete de ondas es mayor, al ser mayor el tiempo que el electrón está en el continuo [30, 31, 36, 37]. Aunque recientemente algunos trabajos [40, 41] han demostrado

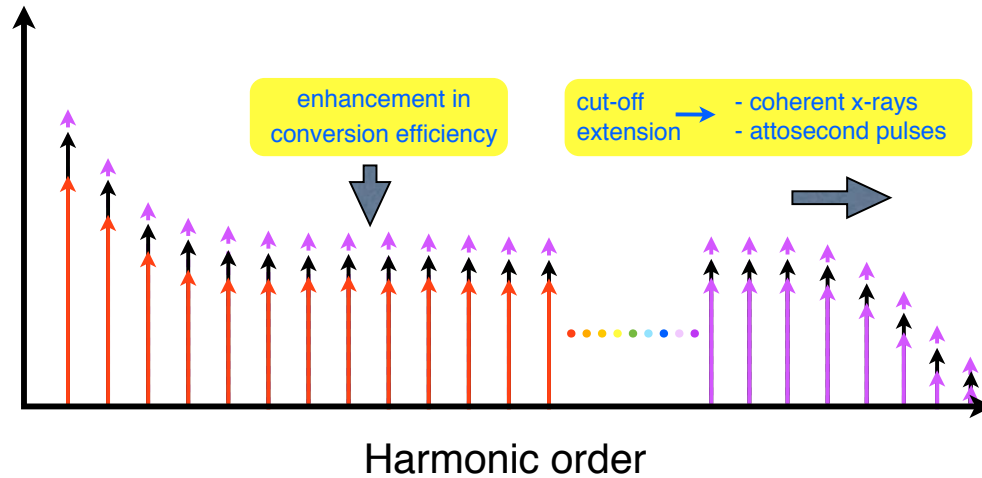


Figura 3.1: Espectro típico de armónicos donde se representan esquemáticamente los principales retos que actualmente se plantean para su optimización.

compensar la pérdida de eficiencia optimizando el ajuste de fases en fibras, siempre que la intensidad no sea demasiado alta, es interesante explorar nuevos métodos para extender el espectro de armónicos sin aumentar la longitud de onda.

En las dos próximas secciones vamos estudiar dos nuevas técnicas para extender el espectro de armónicos intentando, de alguna manera, superar o evitar las dos limitaciones mencionadas anteriormente. El primer método (section 3.2) consiste en hacer una síntesis temporal del pulso láser incidente justo antes de interactuar con el átomo, obteniendo así una forma de pulso que haga más eficiente la recombinación. La segunda técnica radica en el estudio y aplicación de la dinámica electrónica que tiene lugar la parte inicial (primeros ciclos) de determinados pulsos láser y sus efectos en la generación de armónicos a ultra-alta intensidad

3.2. Extensión del *cut-off* en el espectro de armónicos mediante la superposición dos pulsos de la misma frecuencia retrasados temporalmente

A continuación vamos a estudiar cómo sintetizar el pulso láser antes de interactuar con el átomo, para hacer más eficiente la recombinación de los electrones, y de esta forma aumentar el orden armónico en el espectro. Nuestra técnica [42] consiste en utilizar dos réplicas de un mismo pulso y superponerlas después con un retraso adecuado entre ambas y cambiando la fase (CEP) de una de ellas en un valor de π (esta situación es similar a una reflexión especular de una de las réplicas).

La expresión analítica de la forma de pulso resultante viene dada por,

$$E(t, \tau) = \epsilon(t + \tau/2) - \epsilon(t - \tau/2) \quad (3.1)$$

siendo

$$\epsilon(t) = \begin{cases} E_0 f(t) \sin(\omega_0 t) & \text{if } 0 < t < NT \\ 0 & \text{en cualquier otro caso} \end{cases}$$

donde E_0 es la amplitud máxima, $f(t) = \sin^2\left(\frac{\omega_0 t}{2N}\right)$ es la envolvente, ω_0 es la frecuencia central correspondiente a $\lambda = 800 \text{ nm}$, T es el período, τ es el retraso entre ambos pulsos, N es el número total de ciclos del pulso que corresponde, en intensidad, a una envolvente de anchura a media altura o FWHM (Full Width Half Maximum) de $0.36NT$. En este caso, $N = 2$ que equivale a 0.72-cycle de FWHM ($\simeq 1.87 \text{ fs}$ FWHM for $\lambda = 800 \text{ nm}$). Este valor está cerca de las duraciones temporales recientemente obtenidas [43]. La Fig. 3.2 representa los pulsos descritos en la Eq. (3.1). En la Fig. 3.2 se muestran las dos réplicas cuya superposición con un retraso, en este caso de $\tau = 0.81T$, da lugar a la Fig. 3.2(b). De acuerdo a nuestras simulaciones, este valor concreto del retraso relativo ($\tau = 0.81T$) es el óptimo para este caso. Es importante resaltar que la amplitud (y por tanto la intensidad) máxima del pulso resultante siempre es igual o menor que las amplitudes de las réplicas, como denota la línea de puntos en la Fig. 3.2. Este hecho cobrará importancia cuando se esté cerca

de la intensidad de saturación.

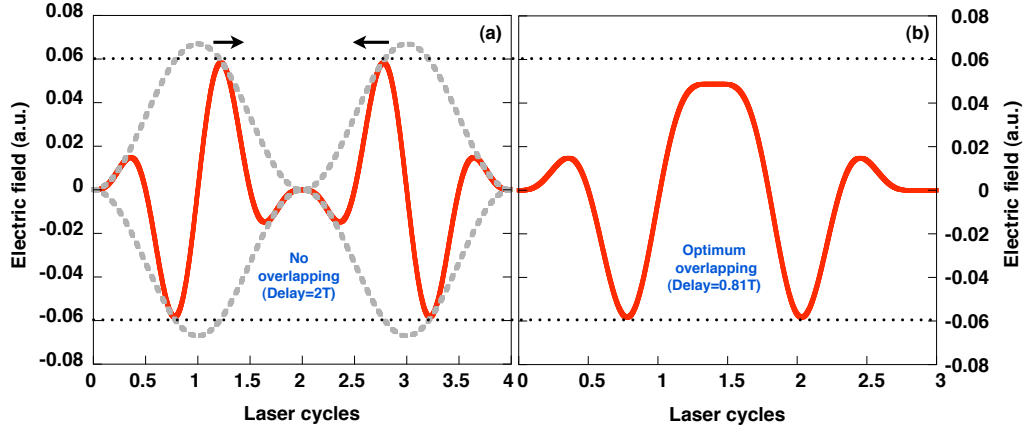


Figura 3.2: Esquema de la síntesis temporal del pulso. (a) para un retraso $\tau = 2T$ donde los pulsos no están superpuestos. (b) superposición para el retraso óptimo $\tau \approx \pm 0.81T$. Es importante darse cuenta que la amplitud pico del pulso resultante en (b) es siempre igual o menor que la amplitud pico de las respectivas réplicas.

Resolviendo numéricamente la TDSE en hidrógeno para el perfil de pulso de la Fig. 3.2 obtenemos el espectro de armónicos de la Fig. 3.3. El espectro en color amarillo corresponde al generado por un pulso normal (cualquiera de las dos réplicas de la Fig. 3.2(a)) y el de color verde corresponde al espectro generado por el pulso de la Fig. 3.2(b). Claramente se observa una extensión considerable, en torno a valores de $I_p + 5.5U_p$ frente al $I_p + 3.17U_p$ obtenido con un pulso normal. Es importante enfatizar que la intensidad de este pulso es menor o igual que el de sus respectivas réplicas.

Además de la TDSE, estos resultados han sido confirmados mediante dos formalismos complementarios, el estudio clásico basado en las trayectorias y cuántico, mediante la representación tiempo-frecuencia o espectrograma. También, ha sido confirmada la misma extensión en simulaciones llevadas a cabo en argon. En cuanto a la duración del pulso, de acuerdo a nuestros resultados, esta extensión disminuye a medida que aumenta la duración temporal del pulso. Para $N=4$ aún se observan extensiones importantes en torno a $I_p + 4.5U_p$. El otro aspecto importante es que esta extensión del espectro escala con la longitud de onda de las réplicas.

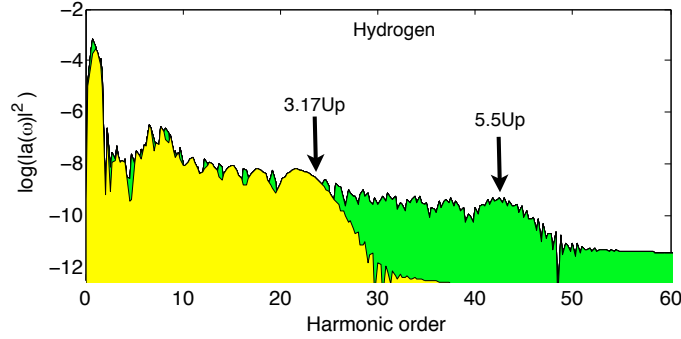


Figura 3.3: Espectro de armónicos en hidrógeno calculado mediante la 3D TDSE a una intensidad de 1.57×10^{14} W/cm² para un pulso normal $N = 2$ (amarillo) y para el pulso sintetizado (verde). Se observa una extensión considerable del espectro, $5.5U_p + I_p$ siendo éste el caso óptimo, $\tau \approx \pm 0.81T$.

En la Fig. 3.4 hemos resumido las extensiones que potencialmente podrían obtenerse en el espectro de armónicos mediante esta técnica en función de la longitud de onda para dos pulsos con distinta duración temporal ($N=2$ y $N=4$) obteniéndose extensiones de $I_p + 5.5U_p$ and $I_p + 4.5U_p$ respectivamente.

3.3. Potenciales aplicaciones y conclusiones

En cuanto a potenciales aplicaciones, esta técnica podría proporcionar aún mayores extensiones en el espectro de armónicos si se pudiera implementar en moléculas diatómicas en vez de en átomos, ya que en moléculas han sido obtenidas considerables extensiones con un pulso normal [32, 33].

Es importante enfatizar que esta extensión es extrapolable, en principio, a todas las longitudes de onda manteniéndose las mismas extensiones en U_p ya que esta cantidad escala cuadráticamente con λ .

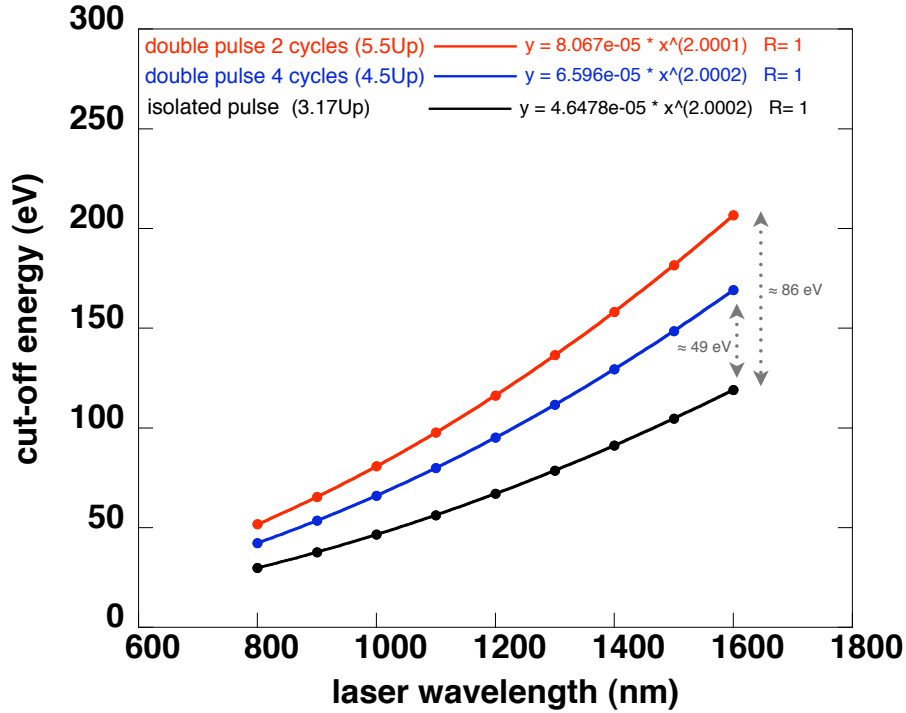


Figura 3.4: Escalado de la extensión del espectro de armónicos en función de la longitud de onda para el pulso sintetizado para ($N = 2$ rojo) y ($N = 4$ azul) y para un pulso normal (negro). La intensidad en este caso es $1.57 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

3.4. HHG en régimen de ultra-alta intensidad: pulsos NAT

En esta sección vamos a explorar las posibilidades de generar armónicos más allá de la ventana del agua (2nm-4nm) mediante un tipo de pulsos con los que se alcanzan el límite de saturación prácticamente en su primer ciclo. En adelante, nos referiremos a este tipo de pulsos como *pulsos con turn-on no adiabático* o abreviadamente, pulsos NAT (Non Adiabatic Turn-on). Para conseguir esta situación, la parte inicial de estos pulsos, sus primeros ciclos (lo que se conoce como *turn-on*) ha de ser abrupto, tal y como muestra el análisis que haremos a continuación.

3.4.1. Análisis clásico

Comenzaremos con el análisis clásico en base al TSM expuesto en la sección 1.

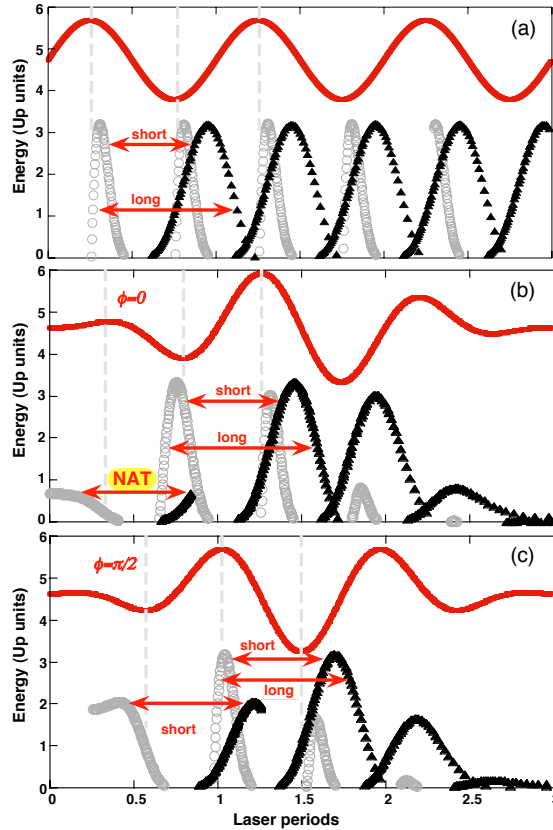


Figura 3.5: Energías clásicas de recombinación de los electrones previamente ionizados, en función del tiempo de ionización (en gris) y del tiempo de recombinación (en negro) para tres tipos de pulsos con diferente envolvente: (a) envolvente constante, (b) y (c) vienen descritas por la Eq. (3.2) con (b) $\phi = 0$ and (c) $\phi = \pi/2$. El perfil temporal del pulso en cada caso está representado en rojo. Resaltamos en amarillo que para el caso $\phi = 0$ (panel b), emerge un nuevo conjunto de trayectorias en el turn-on, denominadas trayectorias NAT.

En la Fig. 3.5 se representan las energías clásicas de recombinación para tres tipos diferentes de envolventes. En la Fig. 3.5(a) para un campo monocromático, en las Fig. 3.5(b) y (c) para dos pulsos ultracortos (1.5 cycles FWHM) con la misma

envolvente y diferente CEP, cuya forma analítica viene dada por,

$$E(t) = E_0 \sin^2\left(\frac{\omega_0 t}{6}\right) \sin(\omega_0 t + \phi) \quad (3.2)$$

donde, E_0 es la amplitud de campo, y ϕ es la CEP. Mediante el análisis de la Fig. 3.5

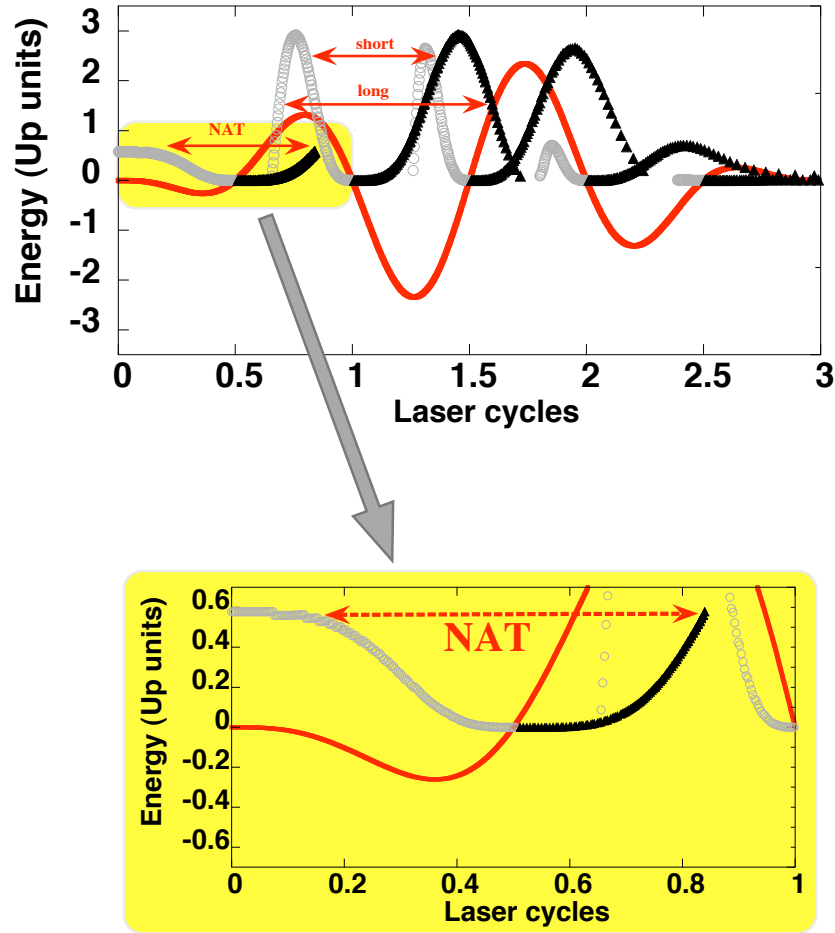


Figura 3.6: Esta figura representa un zoom de la Fig. 3.5(b) ($\phi = 0$). Es importante darse cuenta que los electrones ionizados en esta zona (*turn-on*) recombinan durante el primer ciclo con energías cercanas a $0.5U_p$.

es posible identificar las trayectorias *cortas* y *largas* convencionales. Sin embargo, para el caso $\phi = 0$ (Fig. 3.5(b)) un nuevo tipo de trayectorias emerge en el *turn-on*, diferente a las trayectorias convencionales. Este segundo tipo de trayectorias corresponde a electrones ionizados en la parte inicial del pulso, en el *turn-on* (ver Fig. 3.6).

Cuando se alcanzan altas intensidades con pulsos convencionales, la eficiencia del espectro se degrada. Este efecto está relacionado con el hecho de que en estos casos los armónicos son generados por los electrones que recombinan siguiendo las trayectorias convencionales. A altas intensidades ocurre que cuando tiene lugar la recombinación, el estado fundamental del átomo se despuebla casi en su totalidad cuando se alcanza el máximo del pulso, que es cuando tienen efecto las trayectorias cortas y largas. Esto se traduce en una disminución del valor de la amplitud dipolar y por lo tanto, en una caída en la eficiencia del espectro.

3.4.2. Descripción cuántica: análisis cuántico mediante la 3D TDSE

Vamos a hacer una estimación de las contribuciones relativas al espectro de armónicos de las diferentes trayectorias. Para ello consideramos el valor absoluto de la amplitud dipolar compleja (asumiendo constantes los elementos de matriz de transición)

$$|d(t)| \propto |a_0^*(t)| |a_v(t)| \quad (3.3)$$

donde $a_0(t)$ es la amplitud de probabilidad del estado ligado y $a_v(t)$ es la amplitud de probabilidad del estado correspondiente al electrón libre que se mueve con velocidad v , en el instante de recombinación, t . Estas amplitudes de probabilidad podemos extraerlas de la resolución numérica de la 3D TDSE: $|a_0(t)|$ se obtiene proyectando la función de ondas total sobre el estado fundamental, y $|a_v(t)|$ se puede estimar calculando el decaimiento del estado fundamental durante un pequeño intervalo temporal en torno al instante de ionización t_0 (i.e. es el tiempo inicial de la trayectoria que recombina a tiempo t). Analíticamente,

$$|a_v(t)|^2 \simeq \left. \frac{d}{dt} |a_0|^2 \right|_{t_0} \Delta t \quad (3.4)$$

siendo Δt un pequeño intervalo de tiempo, cuyo valor no es relevante para la comparación relativa entre las diferentes trayectorias, siempre que permanezca más o menos constante. Los valores de los tiempos de ionización y recombinación (t_0 and t) para cada trayectoria concreta son calculados a través del análisis clásico de la

Fig. 3.5. Esto nos permite asociar a cada par (t_0, t) de una trayectoria bien definida, pudiendo ser NAT, larga o corta. Para comparar el comportamiento de la eficiencia

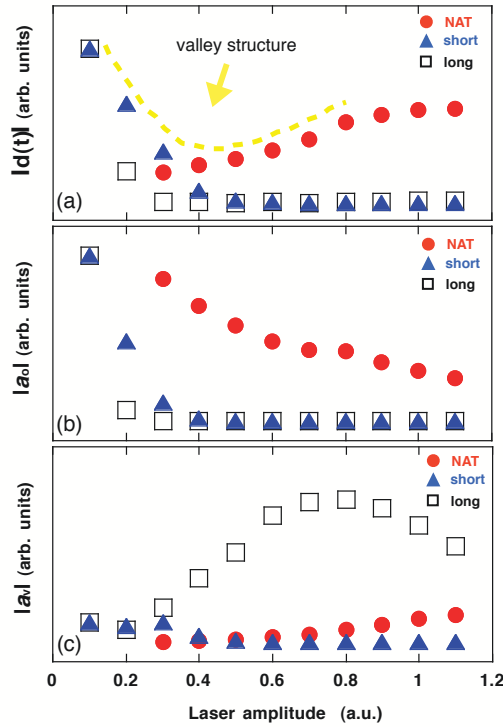


Figura 3.7: Estimaciones de (a) contribuciones relativas a la intensidad espectral a la energía $W_0 = 73$ eV, (b) amplitud de probabilidad del estado fundamental, y (c) para el correspondiente estado del continuo en el momento de la recoliación para el conjunto de trayectorias señaladas en la Fig. 3.5(b). Las contribuciones de las trayectorias NAT están en representadas en círculos rojos, las trayectorias largas como cuadrados y las cortas como triángulos azules. La línea discontinua en (a) es un sketch de la estructura en forma de valle resultante de la intensidad espectral neta (suma de todas las contribuciones, corta, larga y NAT). La amplitud del láser E está dada en unidades atómicas (a.u.), equivalente a una intensidad de $E^2 \times 3.5 \times 10^{16} W/cm^2$.

a diferentes intensidades vamos a tomar como referencia un valor fijo de energía, W_0 , en el espectro de armónicos. En la Fig. 3.7(a) se representan los resultados para la intensidad espectral calculados con la Eq. (3.4) relativos a la energía de recoliación en el *cut-off*, para diferentes intensidades. Por lo tanto, procederemos como sigue: para cada valor de intensidad, usaremos la Fig. 3.5 para determinar el tiempo de ioniza-

ción, t_0 , y el tiempo de recombinación t , correspondientes a trayectorias electrónicas que recombinan con energía cinética, $W_0 - I_p$. Tomamos el valor $W_0=73$ eV, que corresponde a la energía del cut-off del espectro de armónicos en hidrógeno calculado a la intensidad de saturación [39]. En la Fig. 3.7(a) las curvas correspondientes a las trayectorias cortas y largas presentan un comportamiento descendente al incrementarse la amplitud del campo, hecho que está conectado con la degradación de la intensidad espectral para este tipo de trayectorias. La explicación de este hecho se puede encontrar en las amplitudes de probabilidad que componen la amplitud dipolar en la Eq. (3.3). Las Fig. 3.7(b) y la Fig. 3.7(c) muestran las amplitudes de probabilidad del estado fundamental y los estados del continuo en el rescattering, $|a_0(t)|$ y $|a_v(t)|$, respectivamente. Resulta evidente que el descenso en la eficiencia en el espectro de armónicos generada por las trayectorias corta y larga convencionales está relacionado con la rápida ionización del estado fundamental para intensidades superiores al límite de saturación, y por lo tanto, con el descenso de $|a_0|$. A pesar de que el decaimiento de la población en el estado fundamental hace que se incremente la población de electrones en el continuo, i.e. $|a_v|$ aumenta cuando $|a_0|$ disminuye, el producto neto de ambas amplitudes disminuye al aumentar la amplitud del láser, y este hecho se traduce en una caída en la eficiencia del dipolo de la transición. Por el contrario en el caso de las trayectorias NAT, el comportamiento es a la inversa: como éstas se originan en la primera parte del turn-on, la ionización es moderada para intensidades dos órdenes de magnitud por encima de saturación. Por lo tanto, en el momento del rescattering, aún queda población suficiente en el estado fundamental, y el producto neto de las amplitudes no disminuye. De esta forma la amplitud dipolar se incrementa gradualmente con la amplitud de campo. Así, la intensidad espectral experimenta una evolución en forma de valle como muestra la Fig. 3.7(a): Primero, un descenso como consecuencia de la degradación de la eficiencia de las trayectorias cortas y largas, seguido de un aumento de la misma cuando las trayectorias NAT empiezan a tener una contribución relevante a la amplitud dipolar. Las trayectorias NAT se degradarán eventualmente para campos ultraintensos superiores a la unidad atómica de intensidad (3.5×10^{16} W/cm²). No obstante, a estas intensidades, habrá que tener en cuenta otros efectos que también podrían contribuir a la degradación de la eficiencia, tales como el efecto que el *drift* magnético puede ejercer sobre los

electrones [44], desviándolos de la de la trayectoria óptima de recombinación , como se expuso en la introducción.

Espectros de armónicos

Para confirmar nuestras predicciones, en la Fig. 3.8 se muestra el espectro de armónicos calculado mediante la 3D TDSE para intensidades diferentes, correspondientes al umbral de saturación (en gris), saturación (en azul) y saturación extrema (en rojo), para el hidrógeno. Por debajo del límite de saturación ($I \leq 3.5 \times 10^{14}$

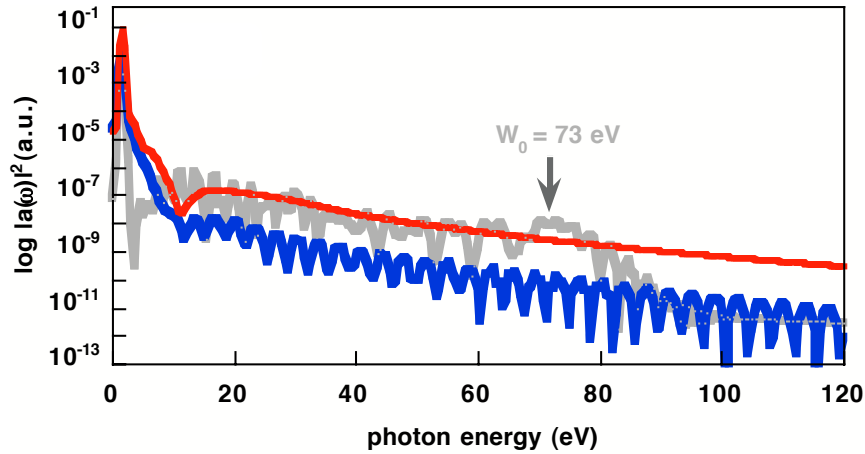


Figura 3.8: Espectros de armónicos, calculados mediante la 3D TDSE para el pulso láser descrito en la Eq. (3.2) con $\phi = 0$ (Fig. 3.5(b)), para tres regímenes diferentes de intensidad: umbral de saturación ($I = 3.5 \times 10^{14}$ W/cm², en gris), saturación ($I = 5.6 \times 10^{15}$ W/cm², en azul) y saturación extrema ($I = 4.2 \times 10^{16}$ W/cm², en rojo).

W/cm²) el incremento de la intensidad láser no tiene un efecto importante sobre la eficiencia del espectro, aunque se incremente el cut-off de acuerdo a la Eq. 1.13. Por encima del límite de saturación la eficiencia comienza a disminuir, hasta un valor mínimo en torno a un valor de $I \simeq 5.6 \times 10^{15}$ W/cm², que corresponde al mínimo del valle de la Fig. 3.7(a). Para altas intensidades la eficiencia del espectro aumenta, como consecuencia de que la contribución de las trayectorias NAT comienza a ser importante. La Fig. 3.9 representa el espectro 3D TDSE completo en hidrógeno para el caso de saturación extrema. Es importante darse cuenta que de acuerdo con

la predicción clásica que aporta la Fig. 3.5(a) en base a las trayectorias NAT, el cut-off aumenta como $\simeq I_p + 0.5U_p$. En términos de energía, el espectro excede la ventana del agua (en amarillo) aproximándose a valores del kilo-electronvoltio (keV). También enfatizamos que el hecho de que el pulso utilizado esté centrado en 800nm, hace que esta técnica sea factible, en principio, con cualquier laser CPA *table-top* convencional.

También es importante resaltar que la estructura que presenta el espectro de armóni-

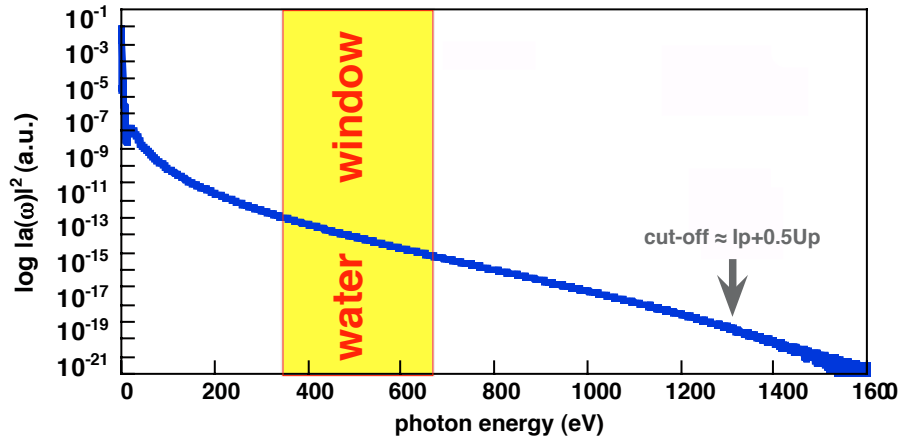


Figura 3.9: Espectro de armónicos completo calculado mediante la 3D TDSE para el caso de saturación extrema en hidrógeno. La ventana del agua (283 eV-583 eV) está delimitada por la zona amarilla. La flecha indica el valor estimado del cut-off, $\simeq I_p + 0.5U_p$, asociado a las trayectorias NAT.

cos en el caso de saturación extrema constituye un *continuo*, con casi total ausencia de modulaciones. Esto está en perfecta concordancia con el hecho de que la radiación sólo se genera por las trayectorias NAT, en la que no intervienen ni (y por lo tanto tampoco interfieren) las trayectorias cortas ni largas. El espectro así obtenido, extenso y sin modulaciones resultará crucial, como veremos, para la síntesis de attosegundos mediante pulsos NAT.

3.4.3. Puerta de ionización con pulsos NAT

De acuerdo con lo expuesto anteriormente, el incremento de la eficiencia en régimen de alta intensidad es una consecuencia directa del carácter no adiabático del

turn-on del pulso láser incidente. Por lo tanto, debe esperarse que pulsos con diferentes perfiles temporales y diferentes duraciones, pero con idéntico turn-on, deberían de generar espectros de armónicos muy similares debido a que el estado fundamen-

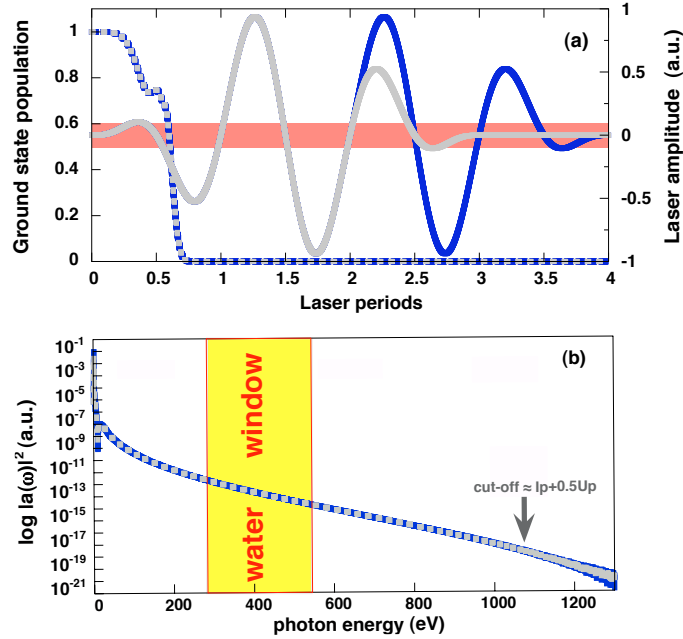


Figura 3.10: (a) Pulsos NAT con el mismo turn-on y diferente duración temporal. La línea conínua gris representa el pulso descrito por la Eq. (3.2) con $\phi = 0$. La línea conínua azul representa un pulso con el mismo tur-on pero con dos ciclos de amplitud constante. La línea discontínua gris representa la poblaci3n del estado fundamental correspondiente al pulso representado por la línea conínua gris y la línea discontínua azul representa la poblaci3n del del pulso de duraci3n mayor representado por la línea conínua azul. La banda horizontal en color rojo representa el valor de la supresi3n de barrera estimado para el hidr3geno. En el panel (b) est3n representados los espectros de arm3nicos 3D TDSE que generan los pulsos representados en el panel (a). La línea discontínua gris representa el espectro generado por el pulso representado por la línea conínua gris en el panel (a). El espectro representado por la línea conínua azul corresponde al pulso representado en línea conínua azul en el panel (a).

tal se ioniza pr3cticamente en el los primeros ciclos del pulso. Para confirmar esta predici3n, calculamos v3a 3D TDSE dos espectros de arm3nicos con dos pulsos con diferente duraci3n temporal pero id3ntico turn-on. Un pulso es el descrito por la Eq. (3.2) y el otro pulso con el mismo turn-on que 3ste, pero seguido de dos ciclos

de amplitud constante. Ambos pulsos están representados en la Fig. 3.10(a). Como se muestra en la Fig. 3.10(b) para intensidades en el caso de saturación extrema, el espectro generado por el pulso de mayor duración (en azul en la Fig. 3.10(a)), coincide (prácticamente está superpuesto) al espectro del otro pulso representado por la línea discontinua azul. Es importante darse cuenta en la Fig. 3.10(a) que el estado fundamental se despuebla idénticamente en los dos casos, y este rápido decaimiento ocurre en el turn-on, en régimen de saturación extrema.

Por lo tanto queda confirmado que la duración del pulso es irrelevante siempre que el turn-on coincida. Como hemos visto en la sección 1.4 el procedimiento convencional para obtener pulsos aislados de attosegundo viene dado por la síntesis de Fourier de la parte alta del espectro, cercana al cut-off. Como veremos en la próxima sección, una consecuencia directa del espectro de armónicos generado por pulsos NAT es la posibilidad de obtener pulsos aislados de attosegundo pudiendo obtenerse éstos sin tener que restringirse a la parte alta del espectro, incluyendo los armónicos de orden bajo. Además otra consecuencia no menos importante es que esta síntesis de pulsos aislados de attosegundo puede ser llevada a cabo a partir de pulsos incidentes de duración temporal arbitraria (siempre que el turn-on se idéntico), ya que toda los procesos físicos relevantes ocurren en el turn-on.

3.5. Síntesis de pulsos de Attosegundo mediante pulsos NAT

En conexión con la sección anterior, aquí vamos a estudiar la posibilidad de obtener pulsos aislados de attosegundo a partir de los pulsos NAT.

3.5.1. Extracción de la fase intrínseca de los armónicos

Para hacer un estudio de la estructura temporal del espectro generado por los pulsos NAT, aplicamos un filtro espectral para a la aceleración dipolar compleja (en tiempo) que genera el espectro y mediante la transformada de Fourier inversa obtenemos la estructura temporal. Además también calculamos los tiempos de emisión, $t_e = \frac{\partial \phi}{\partial \omega}$, que como comentamos en la sección 1.4 nos proporcionan el grado de

sincronización de los armónicos cuando éstos son emitidos. En la Fig. 3.11 están representados los espectros de armónicos (en rojo) generados por los pulsos NAT y los correspondientes tiempos de emisión (en azul) en dos regímenes diferentes de inten-

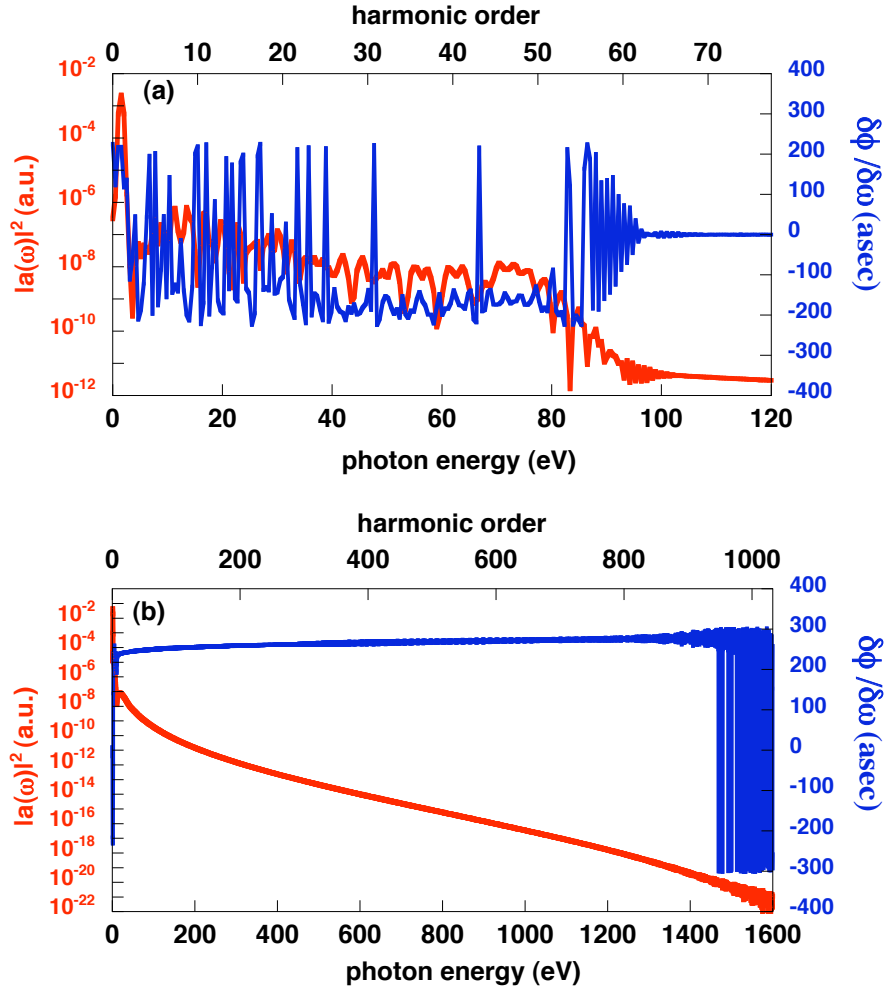


Figura 3.11: Espectros de armónicos (in red) generados por pulsos NAT y los correspondientes tiempos de emisión (en azul) para el umbral de saturación (a) y saturación extrema (b).

sidad, para el umbral de ionización (panel (a)) y para el caso de saturación extrema (b), en hidrógeno. Es importante darse cuenta del comportamiento diferente de los tiempos de emisión entre ambos casos. En el caso de saturación extrema (panel (b)), la pendiente de los tiempos de emisión es casi plana a lo largo de todo el espectro. Este hecho hace posible seleccionar una gran anchura de banda en el espectro ya

que la totalidad del espectro presenta ausencia de modulaciones. En base a ésto, podemos pensar que un attosegundo aislado y bastante intenso podría ser obtenido. La Fig. 3.12 muestra el filtrado espectral hecho en hidrógeno para dos intensidades

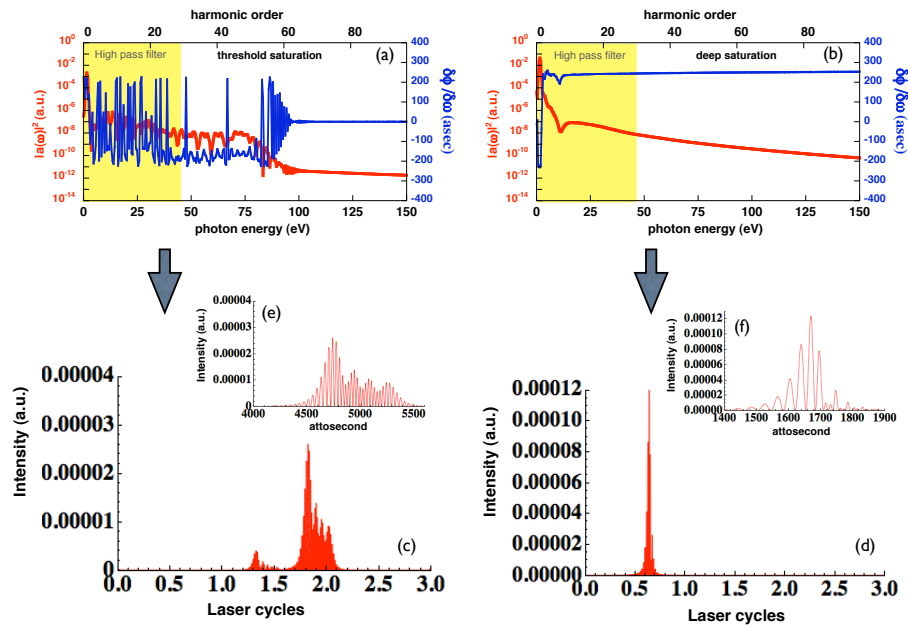


Figura 3.12: Síntesis temporal de los espectros de armónicos en hidrógeno. El panel (a) representa el espectro correspondiente al umbral de ionización y el panel (b) representa el caso de saturación extrema (mismos parámetros que la Fig. 3.10(b)). En ambos casos el espectro de armónicos está representado en rojo y los tiempos de ionización en azul. El área amarilla delimita el filtro *pasa alta* que hemos usado (idéntico en ambos casos, del armónico 0 al armónico 30 aproximadamente). Los paneles (c) y (d) representan las correspondientes estructuras temporales obtenidas mediante el filtrado. Los gráficos (e) y (f), representan un zoom de estas estructuras temporales. Para una mejor estimación el eje x en (e) y (f) ha sido cambiado a unidades de attosegundo

de la Fig. 3.11. Hemos simulado un filtro *pasa alta* similar a un filtro de Zirconio. La ausencia de modulaciones presentado que presenta el el espectro generado por pulsos NAT hace posible un filtrado de una amplia zona del espectro. Es importante darse cuenta que el límite del filtro lo hemos puesto igual para los dos casos (en torno a 47 eV) en la Fig. 3.12. Por el contrario, en en espectro *standard* de armónicos, generado por las interferencias de las trayectorias cortas y largas, sólo es posible conseguir

un pulso de attosegundo aislado haciendo el filtrado cerca del cut-off. Este hecho

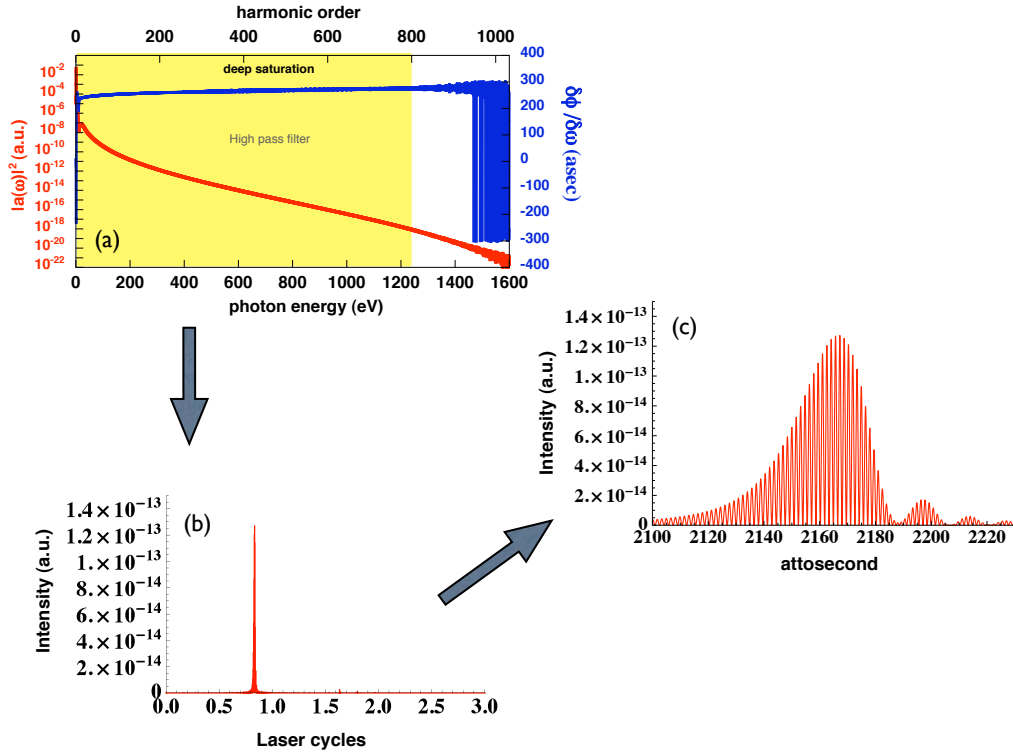


Figura 3.13: Síntesis temporal para el caso de saturación extrema en hidrógeno (los parámetros son los mismos que en la Fig. 3.10(b)). En este caso hemos filtrado (zona en amarillo) una gran parte del espectro (del armónico 0 al 800 aproximadamente). En este caso el attosegundo es mucho mas estrecho (temporalmente) como se puede ver en detalle en el panel (c) en comparación con los casos de la Fig. 3.12(d-f). Sin embargo la intensidad es varios órdenes de magnitud menor en este caso.

confirma que en régimen de saturación extrema todos los armónicos están generados únicamente por un único evento gobernado por las trayectorias NAT.

De acuerdo con la Fig. 3.12 se puede concluir que el pulso de attosegundo sintetizado en el caso de saturación extrema (panel (d)) es más corto (en tiempo) y el perfil temporal contiene menos ruido (panel (c)). Es importante darse cuenta que en el caso de saturación extrema el pulso de attosegundo es más intenso, lo cual es una consecuencia directa de poder aprovechar casi toda la totalidad del espectro (desde 47 eV hasta el final) Los paneles (e) y (f) en la Fig. 3.12 representan una ampliación de los pulsos de attosegundo representados en (c) y (d) respectivamente.

Para concluir, la Fig. 3.13(a) muestra el filtrado espectral moviendo el filtro *pasa alta* a la zona del cut-off (como el procedimiento convencional) en el caso de saturación extrema (panel (b)). En este caso, como se ve en la figura, el pulso de attosegundo es mucho más corto (temporalmente), en torno a 40 attosegundos FWHM (ver panel (c)) si comparamos con el caso anterior en el que poníamos el filtro en 47 eV. No obstante, en este caso la intensidad del attosegundo cae varios órdenes de magnitud respecto del caso de la Fig. 3.12(d).

Queda demostrado por tanto, que los pulsos NAT son particularmente resistentes a los efectos de saturación, pudiendo jugar un papel fundamental en la generación de armónicos y en la obtención de pulsos aislados de attosegundo en régimen de ultra-alta intensidad.

Capítulo 4

Conclusiones

En esta tesis ha sido llevada a cabo una investigación teórica del proceso de generación de armónicos de orden alto, en un contexto diferente a los que se encuentran habitualmente en la literatura. En la primera parte de este trabajo hemos desarrollado una extensión del formalismo *standard* de la Aproximación de Campo Fuerte (SFA), al que hemos denominado SFA+ la cual hemos formulado en base a los operadores P y Q . Esto nos ha permitido desarrollar un formalismo algebraicamente compacto, y por lo tanto, con un alto grado de operabilidad matemática.

Los dos aspectos novedosos en los que se basa el formalismo SFA+, son, por un lado que la SFA+ incluye el efecto que ejerce el campo electromagnético externo sobre el estado fundamental durante el proceso de interacción. Este efecto no está incluido en el formalismo de la SFA convencional y como hemos comprobado, tiene importantes implicaciones, por ejemplo en el escalado de la eficiencia del espectro de armónicos cuando se incrementa la longitud de onda del láser que interacciona con el átomo. Por otro lado, la otra novedad en la que se basa la SFA+ es que no recurre a la aproximación de fase estacionaria como lo hace la SFA convencional. Este hecho hace que el análisis mediante la SFA+ nos proporcione una descripción totalmente cuántica y no semiclásica a diferencia de la SFA convencional del proceso de generación de armónicos. Todos los resultados obtenidos mediante la SFA+ han sido contrastados, en un gran número de situaciones (pulsos con diferentes intensidades, envolventes, longitudes de onda y diferente duración temporal, interaccionando a su vez con diferentes átomos), con los resultados obtenidos mediante la resolución

exacta de la 3D TDSE obteniéndose un alto grado de coincidencia en la zona de altas frecuencias del espectro de armónicos.

De esta manera la SFA+ proporciona una descripción cuantitativa en la zona cercana al cut-off tanto en régimen túnel como en régimen multifotónico. El hecho de que la SFA+ no use la aproximación de fase estacionaria hace posible una descripción bastante precisa de la fase y la evolución temporal del proceso de generación de armónicos, tales como las contribuciones de diferentes componentes del momento a la aceleración total. También han sido identificados dos mecanismos radiativos denominados como radiación *way-out* y radiación *close-up* que tienen lugar en situaciones clásicamente prohibidas y que están asociados a la deslocalización que experimenta el paquete de ondas en el continuo. También se ha demostrado el éxito de la SFA+ para la descripción de la generación de armónicos en otras especies químicas distintas del hidrógeno, tales como el helio. En base a esto, consideramos que una extensión de la SFA+ para el estudio de moléculas sencillas puede constituir una futura línea de investigación a considerar.

En la segunda parte de esta tesis se han investigado dos nuevos métodos para conseguir fotones de alta energía en el espectro de armónicos evitando la limitación impuesta por la intensidad de saturación, que es característica de cada átomo, molécula o ión con los que potencialmente pueda interactuar el pulso láser. El primer método, que como hemos visto, consiste en retrasar temporalmente dos réplicas del pulso inicial y superponerlas después con un retraso adecuado entre ambas, ha confirmado ser un método eficiente para incrementar el orden armónico más allá del límite de $3.17U_p$ llegando hasta valores de $5.5U_p$. La ventaja de esta técnica radica en que este incremento escala con la longitud de onda y es posible obtener importantes incrementos en el orden armónico sin aumentar la intensidad ni la longitud de onda del láser incidente.

Respecto a nuestro segundo método, ha sido llevado a cabo el estudio de la generación de armónicos en régimen de ultra-alta intensidad, más allá de la intensidad túnel, en el régimen de saturación de cada especie química particular, donde como es sabido, la eficiencia del espectro de armónicos se degrada significativamente. La convergencia de nuestros resultados, tanto clásicos como los puramente cuánticos, pone de manifiesto que esta pérdida de eficiencia puede evitarse si se usa un determinado

tipo de pulsos láser, que hemos denominado como pulsos NAT. Nuestras simulaciones han confirmado que este tipo de pulsos pueden llegar a generar fotones más allá de la ventana del agua, pudiendo llegar a alcanzarse valores cercanos al kilo-electronvoltio. También ha quedado probado que los pulsos NAT constituyen una ruta alternativa para sintetizar pulsos de duración temporal extremadamente corta, en el rango de los attosegundos, a partir de pulsos láser incidentes de duración temporal arbitraria. Esto es debido a la rápida despoblación que experimenta el átomo con este tipo de pulsos. Este técnica se conoce como puerta de ionización. No obstante, es importante enfatizar que la confirmación experimental de estas predicciones, representa a día de hoy, un reto importante para la Física de láseres intensos.

Apéndice A

Derivación I

A.1. De las Eqs.(2.4),(2.5) a las Eqs.(2.8),(2.9), respectivamente

Substituyendo las Eqs.(2.4) y (2.5) en la Eq (2.6),

$$\begin{aligned}\langle\psi(t)|\hat{Q}\hat{a}\hat{P}|\psi(t)\rangle &= \left[\langle\phi_0|G_a^-(t_0,t) + \frac{1}{\hbar}\int_{t_0}^t\langle\phi_0|G_a^-(t_0,t_1)\hat{Q}V_i(t_1)\hat{Q}G^-(t_1,t)\hat{Q}dt_1\right]\hat{a} \\ &\quad \left[\frac{1}{\hbar}\int_{t_0}^t\hat{P}G^+(t,t_1)\hat{P}V_i(t_1)\hat{Q}G_a^+(t_1,t_0)|\phi_0\rangle dt_1\right] \\ &= \frac{1}{\hbar}\int_{t_0}^t\langle\phi_0|G_a^-(t_0,t)\hat{a}\hat{P}G^+(t,t_1)\hat{P}V_i(t_1)\hat{Q}G_a^+(t_1,t_0)|\phi_0\rangle dt_1 \\ &\quad + \frac{1}{\hbar^2}\int_{t_0}^t dt_2\langle\phi_0|G_a^-(t_0,t_2)\hat{Q}V_i(t_2)\hat{Q}G^-(t_2,t)\hat{Q}\hat{a} \\ &\quad \int_{t_0}^t\hat{P}G^+(t,t_1)\hat{P}V_i(t_1)\hat{Q}G_a^+(t_1,t_0)|\phi_0\rangle dt_1\end{aligned}\tag{A.1}$$

Es importante resaltar que el primer término en la Eq.(A.1) es en realidad la Eq.(2.8). Ahora vamos a desarrollar el proceso algebraico para llegar a la Eq.(2.9) partiendo del último término de la Eq.(A.1),

$$\begin{aligned}&\frac{1}{\hbar^2}\int_{t_0}^t dt_2\langle\phi_0|G_a^-(t_0,t_2)\hat{Q}V_i(t_2)\hat{Q}G^-(t_2,t)\hat{Q}\hat{a} \\ &\int_{t_0}^t\hat{P}G^+(t,t_1)\hat{P}V_i(t_1)\hat{Q}G_a^+(t_1,t_0)|\phi_0\rangle dt_1\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 &= \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_0}^t \int_{t_0}^t dt_2 dt_1 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) \hat{Q} V_i(t_2) \hat{Q} G^-(t_2, t) \hat{Q} \hat{a} \\
 &\quad \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle
 \end{aligned} \tag{A.2}$$

y considerando la identidad,

$$\int_{t_0}^t \int_{t_0}^t dt_2 dt_1 f(t_2, t_1) = \int_{t_0}^t dt_2 \int_{t_0}^{t_2} dt_1 f(t_2, t_1) + \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 f(t_2, t_1) \tag{A.3}$$

llegamos a,

$$\begin{aligned}
 &\frac{1}{\hbar^2} \int_{t_0}^t \int_{t_0}^t dt_1 dt_2 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) \hat{Q} V_i(t_2) \hat{Q} G^-(t_2, t) \hat{Q} \hat{a} \\
 &\quad \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle \\
 &= \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_0}^t dt_2 \int_{t_0}^{t_2} dt_1 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) \hat{Q} V_i(t_2) \hat{Q} G^-(t_2, t) \hat{Q} \hat{a} \\
 &\quad \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle \\
 &+ \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) \hat{Q} V_i(t_2) \hat{Q} G^-(t_2, t) \hat{Q} \hat{a} \\
 &\quad \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle \\
 &\equiv I_1 + I_2^\dagger
 \end{aligned} \tag{A.4}$$

donde,

$$\begin{aligned}
 I_2 &\equiv \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_1) \hat{Q} V_i(t_1) \hat{P} G^-(t_1, t) \hat{P} \hat{a} \\
 &\quad \hat{Q} G^+(t, t_2) \hat{Q} V_i(t_2) \hat{Q} G_a^+(t_2, t_0) | \phi_0 \rangle
 \end{aligned} \tag{A.5}$$

intercambiando t_2 por t_1 ,

$$\begin{aligned}
 I_2 &\equiv \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_0}^t dt_2 \int_{t_0}^{t_2} dt_1 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) \hat{Q} V_i(t_2) \hat{P} G^-(t_2, t) \hat{P} \hat{a} \\
 &\quad \hat{Q} G^+(t, t_1) \hat{Q} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle
 \end{aligned} \tag{A.6}$$

I_2 representa un proceso en el cual el estado en $t_2 > t_1$ tiene mayor energía que en t_1 . Por lo tanto este término representa la absorción de fotones por el campo armónico.

De esta manera llegamos a la Eq.(2.9),

$$a_d(t) = I_2 = \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_0}^t dt_2 \int_{t_0}^{t_2} dt_1 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) \hat{Q} V_i(t_2) \hat{Q} G^-(t_2, t) \hat{Q} \hat{a} \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle$$

(A.7)

Apéndice B

Derivación II

B.1. De las Eqs.(2.8),(2.9) a la Eq. (2.14)

Partiendo de la Eq.(2.8) e incluyendo la identidad $\int dk |k\rangle\langle k| \equiv 1$,

$$\begin{aligned} a_b(t) &= \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t) \hat{a} \left[\int dk |k\rangle\langle k| \right] \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle dt_1 \\ &= \int dk \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t) \hat{a} | k \rangle \langle k | \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle dt_1 \\ &= \int dk \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t) \hat{a} | k \rangle \langle k | G^+(t, t_1) | k \rangle \langle k | V_i(t_1) \frac{C_F}{r^n} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle dt_1 \\ &= \int dk \left[-\frac{i}{\hbar} C_F \int_{t_0}^t dt_1 e^{i\epsilon_0(t-t_1)/\hbar} e^{-i\frac{1}{\hbar} \int_{t_1}^t \epsilon(\mathbf{k}, \tau) d\tau} \langle \phi_0 | \hat{a} | \mathbf{k} \rangle V_i(\mathbf{k}, t_1) \langle \mathbf{k} | r^{-n} | \phi_0 \rangle \right] \\ &= \int d\mathbf{k} a_b(\mathbf{k}, t) \end{aligned} \tag{B.1}$$

Apéndice C

Derivación III

C.1. Ensanchamiento del paquete de ondas: Derivación de la Eq. (2.17)

Vamos a calcular el ensanchamiento (spreading) del paquete de ondas durante el tiempo de excursión $3T/4$. La energía cinética del electrón en el estado fundamental es $K = |\epsilon_0| = 1/2mv^2$. Así pues $v = \sqrt{\frac{2|\epsilon_0|}{m}}$ el paquete se ensanchará,

$$\Delta x = v \frac{3}{4}T = \frac{3}{4}T \sqrt{\frac{2|\epsilon_0|}{m}} = \frac{3}{4} \frac{2\pi}{\omega_0} \sqrt{\frac{2|\epsilon_0|}{m}} = \frac{3\pi}{2\omega_0} \sqrt{\frac{2|\epsilon_0|}{m}} \quad (\text{C.1})$$

En base al modelo semiclásico, durante la recombinación, la energía del electrón es $K = 3.17U_p$. De esta manera, la velocidad de recombinación $v_r = \sqrt{\frac{2(3.17U_p)}{m}}$ y el tiempo empleado por el paquete de ondas que recolisiona en atravesar el origen de coordenadas es,

$$\delta_s = \frac{\Delta x}{v_r} = \frac{\frac{3\pi}{2\omega_0} \sqrt{\frac{2|\epsilon_0|}{m}}}{\sqrt{\frac{2(3.17U_p)}{m}}} = \frac{3\pi}{2\omega_0} \sqrt{\frac{|\epsilon_0|}{3.17U_p}} \quad (\text{C.2})$$

Apéndice D

Derivación IV

D.1. Derivación del desplazamiento del nivel de energía (level shift) (Eq.(2.18)).

La Eq.(2.18) describe el desplazamiento del nivel evaluado en el tiempo promedio de la interacción $V_i(\tau)$ durante el tiempo de recoliación, δt_s ,

$$\langle V_i(t) \rangle = (1/\delta t_s) \int_{t-\delta t_s}^t \left[-(q\hbar/mc)A(\tau)k_z + (q^2/2mc^2)A^2(\tau) \right] d\tau \quad (\text{D.1})$$

donde k_z es un momento determinado del estado (Eq.(2.19)). Asumiendo un pulso monocromático,

$$A(t) = \frac{E_0}{\omega_0} \cos(\omega t) = (2c/q) \sqrt{mU_p} \cos(\omega_0 t + \phi) \quad (\text{D.2})$$

y para intervalos de tiempo particulares, cuando la máxima energía de recombinación tiene lugar (campo cercano a 0, i.e. $(\omega_0 t + \phi) \simeq n\pi$), tenemos $\langle \cos(\omega_0 t + \phi) \rangle \simeq \sin(\omega_0 \delta t_s)/\omega_0 \delta t_s$ and $\langle \cos^2(\omega_0 t + \phi) \rangle \simeq 1/2 + \sin(2\omega_0 \delta t_s)/4\omega_0 \delta t_s$, así pues,

$$\Delta t_s \simeq U_p + \frac{2\hbar}{\omega_0 \delta t_s} \sqrt{\frac{U_p}{m}} k_z \sin(\omega_0 \delta t_s) + \frac{U_p}{2\omega_0 \delta t_s} \sin(2\omega_0 \delta t_s) \quad (\text{D.3})$$

Partiendo de

$$\begin{aligned}
 & \frac{1}{\delta t_s} \left(-\frac{q\hbar}{mc} \right) k_z \int_{t-\delta t_s}^t A(\tau) d\tau = \frac{1}{\delta t_s} \left(-\frac{q\hbar}{mc} \right) k_z \frac{2c}{|q|} \sqrt{mU_p} \int_{t-\delta t_s}^t \cos(\omega_0 \tau) d\tau \\
 &= \frac{1}{\delta t_s} \left(-\frac{q\hbar}{mc} \right) k_z \frac{2c}{|q|} \sqrt{mU_p} \frac{1}{\omega_0} [\sin(\omega_0 \tau)]_{t-\delta t_s}^t \\
 &= -\text{sign}(q) \frac{2\hbar}{\omega_0 \delta t_s} k_z \sqrt{\frac{U_p}{m}} [\sin(\omega_0 t) - \sin(\omega_0(t - \delta t_s))] \\
 &= -\text{sign}(q) \frac{2\hbar}{\omega_0 \delta t_s} k_z \sqrt{\frac{U_p}{m}} [\sin(\omega_0 t) - \sin(\omega_0 t) \cos(\omega_0 \delta t_s) - \cos(\omega_0 t) \sin(\omega_0 \delta t_s)] \\
 &\approx -\text{sign}(q) \frac{2\hbar}{\omega_0 \delta t_s} k_z \sqrt{\frac{U_p}{m}} \sin(\omega_0 \delta t) \tag{D.4}
 \end{aligned}$$

Por lo tanto,

$$\begin{aligned}
 & \frac{q^2}{2mc^2} \frac{4c^2}{|q|^2} mU_p \frac{1}{\delta t_s} \int_{t-\delta t_s}^t \cos^2(\omega_0 \tau) \\
 &= \frac{q^2}{2mc^2} \frac{4c^2}{|q|^2} mU_p \frac{1}{2} + \frac{q^2}{2mc^2} \frac{4c^2}{|q|^2} mU_p \frac{1}{2\delta t_s} \int_{t-\delta t_s}^t \cos(2\omega_0 \tau) \\
 &= U_p + \frac{U_p}{2\omega_0 \delta t_s} [\sin(2\omega_0 \tau)]_{t-\delta t_s}^t \approx U_p + \frac{U_p}{2\omega_0 \delta t_s} \sin(2\omega_0 \delta t_s) \tag{D.5}
 \end{aligned}$$

donde t es asumido como un instante de recolisi3n y por esta raz3n se puede aproximar sin cometer demasiado error, $\sin(\omega t) \approx 0$

Apéndice E

Derivación V

E.1. Derivación de la Eq. (2.19)

Comenzamos calculando el valor esperado del hamiltoniano en el estado fundamental,

$$\langle H(t) \rangle_{|\phi_0\rangle} = \epsilon_0 \left\langle \frac{-q\hbar}{mc} Ap \right\rangle + \left\langle \frac{q^2}{2mc^2} A^2 \right\rangle = \epsilon_0 + 2U_p \cos^2(\omega t) \quad (\text{E.1})$$

Asumiendo el teorema del virial para el átomo de hidrógeno, sin campo, la energía cinética es $K = -\epsilon_0$. Luego asumimos que la energía cinética en presencia de campo es $K = -\epsilon_0 + 2U_p \cos^2(\omega t)$,

$$\frac{1}{2m} \left(\hbar k_z - 2 \text{sign}(q) \sqrt{mU_p} \cos(\omega t) \right)^2 + K_x + K_y = -\epsilon_0 + 2U_p \cos^2(\omega t) \quad (\text{E.2})$$

donde K_x y K_y son las energías cinéticas en las coordenadas transversales. Asumiendo equipartición de la energía, la energía total en cada coordenada transversal es,

$$H_{x,y} = \frac{1}{3}(\epsilon_0 + 2U_p \cos^2(\omega t)) \quad (\text{E.3})$$

Si asumimos que las perturbaciones transversales son pequeñas, por tanto armónicas, el teorema del virial nos dice que la energía cinética asociada a la perturbación es la

mitad de la energía total. Por tanto,

$$K_{x,y} = \frac{1}{3}(\epsilon_0 + 2U_p \cos(\omega t)) \quad (\text{E.4})$$

substituyendo la Eq.(E.4) en la Eq.(E.2),

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2m} \left(\hbar k_z - \text{sign}(q) 2\sqrt{mU_p} \cos(\omega_0 t) \right)^2 + \frac{2}{3} (-\epsilon_0 + U_p \cos^2(\omega_0 t)) \\ &= -\epsilon_0 + 2U_p \cos^2(\omega_0 t) \end{aligned} \quad (\text{E.5})$$

por lo tanto

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2m} \left(\hbar k_z - \text{sign}(q) 2\sqrt{mU_p} \cos(\omega_0 t) \right)^2 - \frac{4}{3} U_p \cos^2(\omega_0 t) + \frac{\epsilon_0}{3} = 0 \\ & \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m} - \text{sign}(q) 2\hbar k_z \sqrt{\frac{U_p}{m}} \cos(\omega_0 t) + \frac{3}{3} U_p \cos^2(\omega_0 t) + \frac{\epsilon_0}{3} = 0 \end{aligned} \quad (\text{E.6})$$

Substituyendo por los promedios temporales (que hemos visto anteriormente),

$$\left\langle 2\hbar k_z \sqrt{\frac{U_p}{m}} \cos(\omega t) \right\rangle = -\text{sign}(q) 2\hbar k_z \sqrt{\frac{U_p}{m}} \frac{\sin(\omega \delta t_s)}{\omega \delta t_s} \quad (\text{E.7})$$

$$\langle 2U_p \cos^2(\omega t) \rangle = U_p + \frac{U_p \sin(\omega \delta t_s)}{2 \omega \delta t_s} \quad (\text{E.8})$$

tenemos,

$$\frac{\hbar^2 k_z^2}{2m} + 2\hbar k_z \sqrt{\frac{U_p}{m}} \frac{\sin(\omega_0 \delta t_s)}{\omega_0 \delta t_s} + \frac{U_p \sin(2\omega_0 \delta t_s)}{6 \omega_0 \delta t_s} + \frac{\epsilon_0}{3} + \frac{U_p}{3} = 0 \quad (\text{E.9})$$

$$\begin{aligned} k_z &= \frac{2\sqrt{mU_p} \frac{\sin(\omega_0 \delta t_s)}{\omega_0 \delta t_s}}{\hbar} + \frac{m}{\hbar^2} \sqrt{\left(2\hbar \sqrt{\frac{U_p}{m}} \frac{\sin(\omega_0 \delta t_s)}{\omega_0 \delta t_s} \right)^2 - 4 \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{U_p \sin(2\omega_0 \delta t_s)}{6 \omega_0 \delta t_s} + \frac{\epsilon_0}{3} + \frac{U_p}{3} \right)} \\ &= -2/\hbar \sqrt{mU_p} \frac{\sin(\omega_0 \delta t_s)}{\omega_0 \delta t_s} \\ &+ \left(2\hbar \frac{m}{\hbar^2} \sqrt{\frac{U_p}{m}} \left| \frac{\sin(\omega_0 \delta t_s)}{\omega_0 \delta t_s} \right| \right) \sqrt{1 - \frac{1}{6} \left(\frac{\sin(2\omega_0 \delta t_s)}{\omega_0 \delta t_s} + \frac{\epsilon_0}{U_p} + 1 \right) \frac{1}{\left(\frac{\sin(\omega_0 \delta t_s)}{\omega_0 \delta t_s} \right)^2}} = \end{aligned}$$

$$-2/\hbar\sqrt{mU_p}\frac{\sin(\omega_0\delta t_s)}{\omega_0\delta t_s}\left[1+\text{sign}(\sin(\omega_0\delta t))\sqrt{1-\frac{1}{6}\left(\frac{1}{2}\frac{\sin(2\omega_0\delta t_s)}{\omega_0\delta t_s}+\frac{\epsilon_0}{U_p}+1\right)\frac{1}{\left(\frac{\sin(\omega_0\delta t_s)}{\omega_0\delta t_s}\right)^2}}\right]$$

(E.10)

De los dos posibles resultados nosotros hemos seleccionado el de signo positivo ya que reproduce mejor los resultados de la 3D TDSE.

Apéndice F

Derivación VI

F.1. Derivación de la Eq. (2.20)

Partimos de la ecuación Eq. (2.16) que puede ser reescrita como

$$a_d(t) = I_1 = \frac{1}{\hbar^2} \int_{t-\delta t_s}^t dt_2 \int_{t_0}^{t_2} dt_1 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) \hat{Q} V_i(t_2) \hat{Q} G^-(t_2, t) \hat{Q} \hat{a} \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle \quad (\text{F.1})$$

Tenemos que aproximar los operadores $\hat{Q} G^-(t_2, t) \hat{Q}$ and $\hat{Q} V_i(t_2) \hat{Q}$. Empezamos por el segundo,

$$\hat{Q} G^-(t_2, t) \hat{Q} = i \hat{Q} e^{\frac{i}{\hbar} \int_{t_2}^t H(\tau) d\tau} \hat{Q} \approx i \hat{Q} e^{\frac{i}{\hbar} (\epsilon_0 + \Delta_s)(t-t_2)} \hat{Q} \quad (\text{F.2})$$

ya que

$$\hat{Q} H(\tau) \hat{Q} \approx \hat{Q} H_a + V_i \hat{Q} \approx \hat{Q} \langle H_a \rangle_{|\phi_0\rangle} + \Delta_s \hat{Q} = \hat{Q} \epsilon_0 + \Delta_s \hat{Q} \quad (\text{F.3})$$

El primero,

$$\hat{Q} V_i(t_2) \hat{Q} = \hat{Q} H - H_a \hat{Q} \approx \hat{Q} \frac{p^2}{2m} + \Delta_s - H_a \hat{Q} \quad (\text{F.4})$$

Substituyendo (F.2) y (F.4) en (F.1),

$$\begin{aligned}
 a_d(t) &= \frac{1}{\hbar^2} \int_{t-\delta t_s}^t dt_2 \int_{t_0}^{t_2} dt_1 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) \hat{Q} \left(\frac{p^2}{2m} + \Delta_s - H_a \right) i \hat{Q} e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_0 + \Delta_s)(t-t_2)} \hat{Q} \hat{a} \\
 &\quad \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle \\
 &= \frac{1}{\hbar^2} \int_{t-\delta t_s}^t dt_2 \int_{t_0}^{t_2} dt_1 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_0 + \Delta_s)(t-t_2)} \hat{Q} \left(\frac{p^2}{2m} + \Delta_s - H_a \right) \hat{Q} \hat{a} \\
 &\quad \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle
 \end{aligned} \tag{F.5}$$

Desarrollando el paréntesis en la Eq.(F.5), éste queda dividido en dos términos. Por un lado,

$$\begin{aligned}
 &\frac{1}{\hbar^2} \int_{t-\delta t_s}^t dt_2 \int_{t_0}^{t_2} dt_1 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_0 + \Delta_s)(t-t_2)} \hat{Q} (\Delta_s - H_a) \hat{Q} \hat{a} \\
 &\quad \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle
 \end{aligned} \tag{F.6}$$

$$\begin{aligned}
 &= \frac{1}{\hbar^2} \int_{t-\delta t_s}^t dt_2 \int_{t_0}^{t_2} dt_1 \langle \phi_0 | i e^{\frac{i}{\hbar}\epsilon_0(t_2-t_0)} e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_0 + \Delta_s)(t-t_2)} \hat{Q} (\Delta_s - H_a) \hat{Q} \hat{a} \\
 &\quad \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle
 \end{aligned} \tag{F.7}$$

$$\begin{aligned}
 &= \frac{-1}{\hbar^2} \int_{t-\delta t_s}^t dt_2 e^{\frac{i}{\hbar}\epsilon_0(t-t_0)} e^{\frac{i}{\hbar}\Delta_s(t-t_2)} (\Delta_s - \epsilon_0) \\
 &\quad \int_{t_0}^{t_2} dt_1 \langle \phi_0 | \hat{a} \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle
 \end{aligned} \tag{F.8}$$

$$\begin{aligned}
 &= \frac{i}{\hbar} \int_{t-\delta t_s}^t dt_2 e^{\frac{i}{\hbar}\Delta_s(t-t_2)} (\Delta_s - \epsilon_0) \\
 &\quad \int_{t_0}^{t_2} dt_1 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) \hat{a} \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle
 \end{aligned} \tag{F.9}$$

$$\approx \frac{i}{\hbar} \int_{t-\delta t_s}^t dt_2 e^{\frac{i}{\hbar}\Delta_s(t-t_2)} (\Delta_s - \epsilon_0) a_b(t) \tag{F.10}$$

$$= (\Delta_s - \epsilon_0) a_b(t) \frac{i e^{-\frac{i}{\hbar} \Delta_s \delta t_s} - 1}{\frac{i}{\hbar} \Delta_s} \approx - \left(1 - \frac{\epsilon_0}{\Delta_s} \right) a_b(t) \quad (\text{F.11})$$

Hemos hecho 0 el valor de la integral en el extremo $t - \delta t_s$. Esta aproximación es realista ya que el solapamiento de la función en el continuo con la del estado fundamental es, en este momento justo antes del rescattering, muy pequeña. El otro término de la Eq.(F.5) sería,

$$\frac{1}{\hbar^2} \int_{t-\delta t_s}^t dt_2 \int_{t_0}^{t_2} dt_1 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_0 + \Delta_s)(t-t_2)} \frac{p^2}{2m} \hat{Q} \hat{a} \hat{P} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle \quad (\text{F.12})$$

Aquí lo que hacemos es conmutar $\frac{p^2}{2m} \hat{Q} \hat{a} \rightarrow \hat{Q} \hat{a} \frac{p^2}{2m}$. Esto es aproximadamente correcto por la misma razón esgrimida antes: no conmuta cerca del origen, donde la función excitada es prácticamente nula.

$$\frac{1}{\hbar^2} \int_{t-\delta t_s}^t dt_2 \int_{t_0}^{t_2} dt_1 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_0 + \Delta_s)(t-t_2)} \hat{Q} \hat{a} \hat{P} \frac{p^2}{2m} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle \quad (\text{F.13})$$

Usando el proyector, $\int dk |k\rangle \langle k| \equiv 1$,

$$\frac{1}{\hbar^2} \int_{t-\delta t_s}^t dt_2 \int dk \int_{t_0}^{t_2} dt_1 \langle \phi_0 | G_a^-(t_0, t_2) e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_0 + \Delta_s)(t-t_2)} \hat{Q} \hat{a} |k\rangle \langle k| \hat{P} \frac{p^2}{2m} G^+(t, t_1) \hat{P} V_i(t_1) \hat{Q} G_a^+(t_1, t_0) | \phi_0 \rangle \quad (\text{F.14})$$

En la parte de la derecha se procede como antes y la parte de la izquierda puede ponerse en función de $a_b(k, t)$, de la forma,

$$- \int dk \frac{\hbar^2 k^2 / 2m}{\Delta_s} a_b(k, t) \quad (\text{F.15})$$

Por tanto,

$$\begin{aligned} a_d(t) &= - \int dk \left[1 - \frac{\epsilon_0}{\Delta_s} + \frac{\hbar^2 k^2 / 2m}{\Delta_s} \right] a_b(k, t) \\ &= - \int dk \left[1 + \frac{\hbar^2 k^2 / 2m - \epsilon_0}{\Delta_s} \right] a_b(k, t) \end{aligned} \tag{F.16}$$

Referencias

- [1] T. H. Maiman, *Nature*, **187**, 493 (1960)
- [2] D. Stickland and G. Mourou, *Opt. Commun.* **56**, 219 (1985)
- [3] N. H. Burnett, H. A. Baldis, M. C. Richardson, and G. D. Enright, *Appl. Phys. Letters* **31**, 172 (1977)
- [4] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, and C. K. Rhode, *J. Opt. Soc. Am. B* **21**, 595-601 (1987)
- [5] M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **21**, L31-L35 (1998)
- [6] J. L. Krause, K. J. Schafer and K. C. Kulander, *Phys. Rev. A* **45**, 4998 (1992)
- [7] K. C. Kulander, K. J. Schafer and J. L. Krause, M. Gavrilu, (Ed.), 247300, Academic Press, ISBN 0-12-003901-X, New York, (1992)
- [8] H. G. Muller, *Laser Phys.* **9**, 138148 (1999)
- [9] D. Bauer and P. Koval, *Comp. Phys. Comm.* **174**, 396-421 (2006)
- [10] S. Pabst and R. Santra, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 233005 (2013)
- [11] J. Rodríguez Vázquez de Aldana PhD Thesis, *Interaction of atoms with intense laser fields: theoretical study and numerical models*, Universidad de Salamanca (2001)
- [12] M. Göppert-Mayer, *Ann. Phys.* **9**, 273 (1931)
- [13] P. L. DeVries, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 517 (1990)
- [14] K. J. LaGattuta, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 639 (1990)
- [15] J. L. Krause, K. J. Schafer and K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3535-3538 (1992)
- [16] K. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro, and K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1599-1602 (1993)
- [17] P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994-1997 (1993)
- [18] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L'Huillier, P. B. Corkum, *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994)
- [19] Gy. Farkas and Cs. Tóth, *Phys. Lett. A* **168**, 447-450 (1992)
- [20] Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovačev, R. Taïeb, B. Carré, H. G. Muller, P. Agostini, and P. Salières, *Science* **302**, 1540-1543 (2003)
- [21] A. Zaïr, M. Holler, A. Guandalini, F. Schapper, J. Biegert, L. Gallmann, U. Keller, A. S. Wyatt, A. Monmayrant, and I. A. Walmsley, E. Cormier, T. Auguste, J. P. Caumes, and P. Salières, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 143902 (2008)

- [22] M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher and F. Krausz, *Nature* **414**, 509 (2001)
- [23] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Aug, Ph. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini, *Science* **292**, 1689 (2001)
- [24] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker, V. Yakovlev, A. Scrinzi, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann and F. Krausz, *Nature* **419**, 803 (2002)
- [25] E. Goulielmakis, V. S. Yakovlev, A. L. Cavalieri, M. Uiberacker, V. Pervak, A. Apolonski, R. Kienberger, U. Kleineberg, and F. Krausz, *Science* **10**, 769-775 (2007)
- [26] V.P. Krainov, *J. Opt. Soc. Am. B*, **14**, 425 (1997)
- [27] J. A. Pérez-Hernández, L. Roso and L. Plaja, *Opt. Express* **17**, 9891-9903 (2009)
- [28] L.V. Keldysh, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **47**, 1945 (1964) [*Sov. Phys. JETP* **20**, 1307 (1965)]
- [29] P. Colosimo, G. Doumy, C. I. Blaga, J. Wheeler, C. Hauri, F. Catoire, J. Tate, R. Chirla, A. M. March, G. G. Paulus, H. G. Muller, P. Agostini, and L. F. Di Mauro, *Nature Phys.* **4**, 386-389 (2008)
- [30] J. Tate, T. Augustine, H. G. Muller, P. Salières, P. Agostini and L. F. Di Mauro, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 013901 (2007)
- [31] K. Schiessl, K. L. Ishikawa, E. Persson, J. Burgdöfer, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 253903 (2007)
- [32] P. Moreno, L. Plaja and L. Roso, *Laser Phys.* **7**, 602 (1997)
- [33] R. Numico, P. Moreno, L. Plaja and L. Roso, *J. Opt. Soc. Am. B* **31**, 4163 (1998)
- [34] X. M. Tong and C. D. Lin, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **38**, 25932600 (2005)
- [35] E. Clementi and C. Roetti, *Atomic data and nuclear data tables* **14**, 177-478 (1974)
- [36] J. A. Pérez-Hernández, L. Roso, A. Zaïr and L. Plaja, *Opt. Express* **19**, 19430-19439 (2011)
- [37] M.V. Frolov N. L. Manakov, T. S. Sarantseva, M.Yu. Emelin, M.Yu. Ryabikin, and Anthony F. Starace, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 243901 (2009)
- [38] P. Moreno, L. Plaja, V. Malyshev, and L. Roso, *Phys. Rev. A* **51**, 4746-4753 (1995)
- [39] V. V. Strelkov, A. F. Sterjantov, N. Yu Shubin, and V. T. Platonenko, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39**, 577-589 (2006)
- [40] T. Popmintchev, M.C. Chen, A. Bahabad, M. Gerrity, P. Sidorenko, O. Cohen, I. P. Christov, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **106**, 10516 (2009)
- [41] T. Popmintchev *et al.*, *Science* **336**, 1287 (2012)
- [42] J. A. Pérez-Hernández, D. J. Hoffmann, A. Zair, L. E. Chipperfield, L. Plaja, C. Ruiz, J. P. Marangos and L. Roso, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **42**, 134004 (2009)
- [43] M. Th. Hassan, A. Wirth, I. Grguras, A. Moulet, T. T. Luu, J. Gagnon, V. Pervak, and E. Goulielmakis, *Rev. of Scientific Instruments* **83**, 111301 (2012)
- [44] J. Vazquez de Aldana and L. Roso, *Opt. Express* **5**, 144-148 (1999)