



VNiVERSiDAD  
D SALAMANCA

---

# ¿Cómo es la respuesta óptica no lineal de láseres ultrarrápidos?

How is the nonlinear optical response to  
ultrafast lasers?

Sergio Martín Domene

*Trabajo de Fin de Grado*  
*Facultad de Ciencias - Grado en Física*

*Curso 2021-2022*

Tutores:

Carlos Hernández García  
Luis Plaja Rustein

Salamanca, 6 de Julio de 2022



D. Carlos Hernández García, investigador Ramón y Cajal, y D. Luis Plaja Rustein, catedrático de universidad, del Departamento de Física Aplicada de la Universidad de Salamanca, autorizan la presentación del Trabajo de Fin de Grado titulado *¿Cómo es la respuesta óptica no lineal de láseres ultrarrápidos?*, realizado bajo su dirección por Sergio Martín Domene.

En Salamanca, a 6 de Julio de 2022

A handwritten signature in black ink, enclosed in a hand-drawn oval. The signature appears to read 'Sergio Martín Domene'.

Fdo.: Sergio Martín Domene

Fdo.: Carlos Hernández García

Fdo.: Luis Plaja Rustein



# Agradecimientos

En primer lugar, he de agradecer sin ninguna duda a mis dos tutores, Carlos y Luis, sin los que desde luego no habría podido terminar ese trabajo con el que tanto he aprendido y con el he podido finalizar los estudios de este grado tan exigente pero tan bonito al mismo tiempo. Gracias por enseñarme y guiarme por todo el recorrido desde el título de este TFG hasta la última de las conclusiones. Y también, gracias a todos los profesores del departamento por iniciarme en el mundo de la óptica y despertar mi pasión por ella.

Por supuesto, gracias a mis compañeros, pero sobre todo a mis amigos, que me han dado tantos ánimos y que me han acompañado durante cuatro años que no habrían sido lo mismo sin ellos. Espero que esto solo sea el comienzo de un montón de andaduras más.

Por último, a mis padres, que me han visto tropezar y levantarme para lograr todos los objetivos que me he ido proponiendo con su ayuda.



## Resumen

Cuando un campo eléctrico interactúa con un sistema de cargas, induce una polarización en el medio, la cual constituye la base de su respuesta al campo externo. En caso de que dicho campo forme parte de una onda electromagnética, estaremos hablando de su respuesta óptica. Sin embargo, en función de la escala de tiempos considerada y de cómo sea la respuesta en términos de la frecuencia de la onda incidente (respuesta dispersiva del medio), ésta puede ser tremendamente compleja. Además, en función de la intensidad del campo aplicado, la fenomenología será muy variada, pudiendo el sistema responder de manera lineal (con la misma frecuencia de la onda) o no lineal. Dentro incluso de la respuesta no lineal, se puede distinguir cuando el campo no es demasiado intenso (órdenes bajos de no-linealidad) o cuando sí lo es. Estudiaremos por tanto la respuesta óptica tanto lineal, en términos de la evolución temporal de la susceptibilidad eléctrica, como no lineal, a través del proceso de generación de armónicos de orden alto, para el átomo de hidrógeno cuando interactúa con un pulso láser ultraintenso. Dados los avances de los últimos años en el ámbito de los láseres pulsados de femto y attosegundo, resulta muy atractivo comprender y caracterizar la respuesta temporal de un sistema en estas escalas de tiempos.

A través de la descripción cuántica del átomo hidrogenoide en términos de la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo, desarrollaremos un marco teórico para obtener la función de onda que describe al electrón, así como los valores esperados de observables como la aceleración y el momento dipolar. Resolviendo numéricamente las ecuaciones deducidas, los resultados para la aceleración del electrón y el dipolo nos permitirán derivar la respuesta en el dominio temporal y en frecuencia del átomo. Este estudio lo haremos tanto partiendo de la descripción exacta como introduciendo la aproximación de campo fuerte. Con ella, simplificaremos el problema, interpretándola físicamente y analizando sus posibles inconvenientes. Estudiando y comparando con ambos métodos los resultados para los espectros de armónicos, los análisis tiempo-frecuencia a través de los espectrogramas y la evolución temporal de la susceptibilidad a primer orden, comprenderemos cómo se comporta el átomo frente al campo intenso aplicado y bajo qué circunstancias es válido o no usar la aproximación de campo fuerte.

**Palabras clave:** aceleración dipolar, aproximación de campo fuerte, generación de armónicos de orden alto, óptica no lineal, pulsos láser de femto y attosegundo, susceptibilidad no lineal.



## Abstract

When an electric field interacts with a system of charges, it induces a polarization in the medium, which is the basis of its response to the external field. If this field forms part of an electromagnetic wave, we are talking about the optical response of the medium. However, depending on the time scale considered, and on how the response is in terms of the frequency of the incident wave (medium's dispersive response), it can be extremely complex. Moreover, depending on the intensity of the applied field, the associated phenomenology will be very diverse, and the system may respond in a linear (with the same frequency of the incident field) or non-linear way. Even within the non-linear framework, the response depends strongly on the intensity of the incident field. Therefore, we shall study both the linear, in terms of the time evolution of the electrical susceptibility, and the nonlinear optical response through the process of high order harmonics generation, for the hydrogen atom interacting with an intense laser pulse. Given the very attractive recent advances in the fields of femto and attosecond pulsed lasers, it is very attractive to understand and characterize the temporal response of a system on this time scales.

Through the quantum description of the hydrogenic atom in terms of the time-dependent Schrödinger equation, we will develop a theoretical framework to derive the temporal evolution of the electronic wave function, as well as the expected values of observables such as the acceleration and the dipole moment. By solving numerically the derived equations, the results for the electron acceleration and the dipole will allow us to analyze the atomic response in the time and frequency domains. We will do this study both starting from the exact description, and through the strong field approximation, which gives us insight of the physics beyond the analyzed process. By studying and comparing the results for the harmonic spectra, the time-frequency analysis, and the time evolution of the first order susceptibility obtained with both methods, we will understand the ultrafast response of the atom to the applied strong field, which shall allow us to study the validity of the strong field approximation.

**Keywords:** attosecond and femtosecond laser pulses, dipole acceleration, high-order harmonic generation, non-linear optics, non-linear susceptibility, strong field approximation.



# Índice

|  |           |
|--|-----------|
| <b>Resumen</b>   | <b>6</b>  |
| <b>Abstract</b>  | <b>8</b>  |
| <b>1. Introducción</b>   | <b>12</b> |
| 1.1. Motivación . . . . .  | 12        |
| 1.1.1. Efectos no lineales para campos intensos: régimen perturbativo . . . . .          | 12        |
| 1.1.2. Efectos no lineales para campos ultra-intensos: óptica extrema . . . . .          | 14        |
| 1.2. Objetivos . . . . .   | 16        |
| <b>2. Fundamento Teórico</b>   | <b>18</b> |
| 2.1. Respuesta del medio dieléctrico al campo EM, la susceptibilidad eléctrica . . . . . | 18        |
| 2.1.1. Susceptibilidad lineal . . . . .  | 19        |
| 2.1.2. Susceptibilidad no lineal . . . . .   | 20        |
| 2.1.3. Problema de la causalidad . . . . .   | 21        |
| 2.2. Interacción del átomo de hidrógeno con un campo EM. . . . .                         | 22        |
| 2.2.1. Electrón atómico interaccionando con un campo EM . . . . .                        | 24        |
| 2.2.2. Dispersión coulombiana del electrón libre en un campo EM . . . . .                | 26        |
| 2.3. Ionización y aproximación de campo fuerte SFA . . . . .                             | 28        |
| 2.3.1. Expansión perturbativa . . . . .  | 29        |
| 2.3.2. Expansión SFA . . . . .   | 31        |
| 2.3.3. Función de onda SFA . . . . .   | 31        |
| 2.3.4. Problemas que plantea la SFA . . . . .  | 33        |
| 2.4. Enfoque SFA para la generación de armónicos de orden alto . . . . .                 | 34        |
| 2.4.1. Aceleración SFA . . . . .   | 34        |
| 2.4.2. Radiación y espectro de armónicos . . . . .                                       | 37        |
| 2.4.3. Dipolo SFA . . . . .  | 38        |
| <b>3. Desarrollo y Análisis de los Resultados</b>  | <b>40</b> |
| 3.1. Pulso láser . . . . .   | 41        |
| 3.2. Emisión de armónicos: aproximación SFA . . . . .                                    | 41        |
| 3.2.1. Ecuaciones y parámetros de simulación . . . . .                                   | 41        |
| 3.2.2. Aceleración SFA . . . . .   | 45        |
| 3.2.3. Espectro de armónicos . . . . .   | 47        |
| 3.2.4. Análisis tiempo-frecuencia . . . . .  | 48        |
| 3.3. Emisión de armónicos: comparación con la TDSE . . . . .                             | 52        |
| 3.3.1. Aceleración TDSE . . . . .  | 52        |
| 3.3.2. Espectro de armónicos . . . . .   | 52        |
| 3.3.3. Análisis tiempo-frecuencia . . . . .  | 53        |
| 3.4. Susceptibilidad dependiente del tiempo: aproximación SFA . . . . .                  | 54        |
| 3.4.1. Ecuaciones y parámetros de simulación . . . . .                                   | 54        |

---

|  |           |
|--|-----------|
| 3.4.2. Dipolo SFA . . . . .  | 57        |
| 3.4.3. Susceptibilidad dependiente del tiempo . . . . .                        | 60        |
| 3.5. Susceptibilidad dependiente del tiempo: comparación con la TDSE . . . . . | 62        |
| 3.5.1. Dipolo TDSE . . . . .   | 63        |
| 3.5.2. Susceptibilidad dependiente del tiempo . . . . .                        | 65        |
| <b>Discusión y Conclusiones</b>  | <b>70</b> |
| <b>Discussion and Conclusions</b>  | <b>74</b> |
| <b>Apéndice A: Libertad Gauge y Hamiltoniano de interacción</b>                | <b>78</b> |
| <b>Apéndice B: Deducción de la ecuación (2.3.16)</b>                           | <b>82</b> |
| <b>Apéndice C: Código fuente desarrollado</b>                                  | <b>84</b> |
| <b>Bibliografía</b>  | <b>90</b> |
| <b>Índice de figuras</b>   | <b>92</b> |

# 1. Introducción

## 1.1. Motivación

Una de las maneras más directas que tienen los campos eléctricos de alterar y modificar un medio o sistema dieléctrico no magnético es induciendo en ellos una polarización. Cuando el campo eléctrico interactúa con los átomos o moléculas que constituyen el sistema, estos responden redistribuyendo las densidades de carga positivas y negativas (dispuestas en principio según establecen los orbitales atómicos) creando una densidad de polarización inducida, o simplemente polarización<sup>1</sup>. Si el campo eléctrico forma parte de una onda electromagnética (EM), entonces la densidad de polarización no es estática, sino que cambiará continuamente dando lugar a una dependencia temporal. Macroscópicamente, la polarización es un campo vectorial del medio que se relaciona con el campo eléctrico a través de una magnitud denominada susceptibilidad eléctrica. Por lo tanto, una forma en principio inmediata de caracterizar la respuesta óptica de un material dieléctrico ante la presencia de ondas EM, consiste en estudiar dicha susceptibilidad. Como se mostrará en el fundamento teórico, existen ciertas dificultades a la hora de definirla en el dominio del tiempo (consecuencia de que la respuesta de los materiales depende de la frecuencia de la onda incidente; respuesta dispersiva). De ahí que sea tremendamente útil desarrollar nuevas teorías y procedimientos dedicados al estudio de este parámetro, a partir del cual se pueden definir otros más familiares como la permitividad eléctrica o el índice de refracción, clave para el estudio de las propiedades ópticas de cualquier medio. Dado que la respuesta de un sistema ante un estímulo externo, en nuestro caso la luz, no es instantánea, este análisis de la dependencia de la susceptibilidad con el tiempo se vuelve tanto más complicado cuanto menor sea la escala de tiempos considerada.

Por todo esto, resulta muy atractivo comprender y poder caracterizar la respuesta temporal de un sistema, especialmente en el ámbito de la óptica no lineal, ante la interacción de la materia con láseres intensos y ultrarrápidos. En particular, es aún más interesante gracias al desarrollo de los láseres pulsados en el rango espectral desde el infrarrojo hasta los rayos X, con periodos de femto,  $\sim 10^{-15}$  s, y attosegundos,  $\sim 10^{-18}$  s.

### 1.1.1. Efectos no lineales para campos intensos: régimen perturbativo

Hasta la invención del láser (*Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*) en la década de los 60 por el físico Theodore H. Maiman [1], era impensable la observación de los fenómenos no lineales predichos teóricamente debido a la intensidad de la luz necesaria (intensidades<sup>2</sup>  $\sim 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>, ver Figura 1). Como se desarrollará más adelante, si los electrones que se encuentran en los átomos del sistema son desplazados lo suficiente del equilibrio

<sup>1</sup>No confundir la polarización que adquiere un medio cuando interactúa con un campo eléctrico con la dirección de polarización de un haz de luz (dirección en la que oscila el campo eléctrico asociado).

<sup>2</sup>Dentro de las magnitudes radiométricas para la medida de la energía radiante, se define la irradiancia (magnitud geométrica) como el flujo radiante recibido por un área receptora en todas direcciones, siendo sus unidades W/cm<sup>2</sup>. Aunque es la irradiancia la que hace referencia a la densidad superficial de radiación recibida por un receptor, normalmente se suele hablar de ella en términos de intensidad simplemente.

cuando interaccionan con un láser intenso, la aproximación armónica del potencial atómico deja de cumplirse, de manera que pueden responder al campo oscilando con frecuencias distintas de la de la luz incidente (múltiplos de ella; son los armónicos). La relación de proporcionalidad entre la polarización que adquiere el medio y las distintas potencias del campo eléctrico constituye la susceptibilidad no lineal a distintos órdenes. Para estas intensidades en las que la fuerza de ligadura que ejerce el núcleo sobre el electrón es mucho mayor que la fuerza ejercida por la onda EM (lejos de la energía de ionización), todo este estudio puede hacerse considerando un tratamiento perturbativo, de manera que cada orden sucesivo de no linealidad es menos relevante que el anterior.

Existe una fenomenología muy variada que puede explicarse bajo este marco, como la generación de segundo armónico (SHG, por sus siglas en inglés *Second Harmonic Generation*), rectificación óptica, mezcla de frecuencias, oscilaciones paramétricas, generación de tercer armónico (THG, *Third Harmonic Generation*), el efecto Kerr óptico (con la auto-focalización y la auto-modulación de fase), el scattering Brillouin y Raman estimulados... Para todo ello, es clave conocer la susceptibilidad no lineal del medio a distintos órdenes.

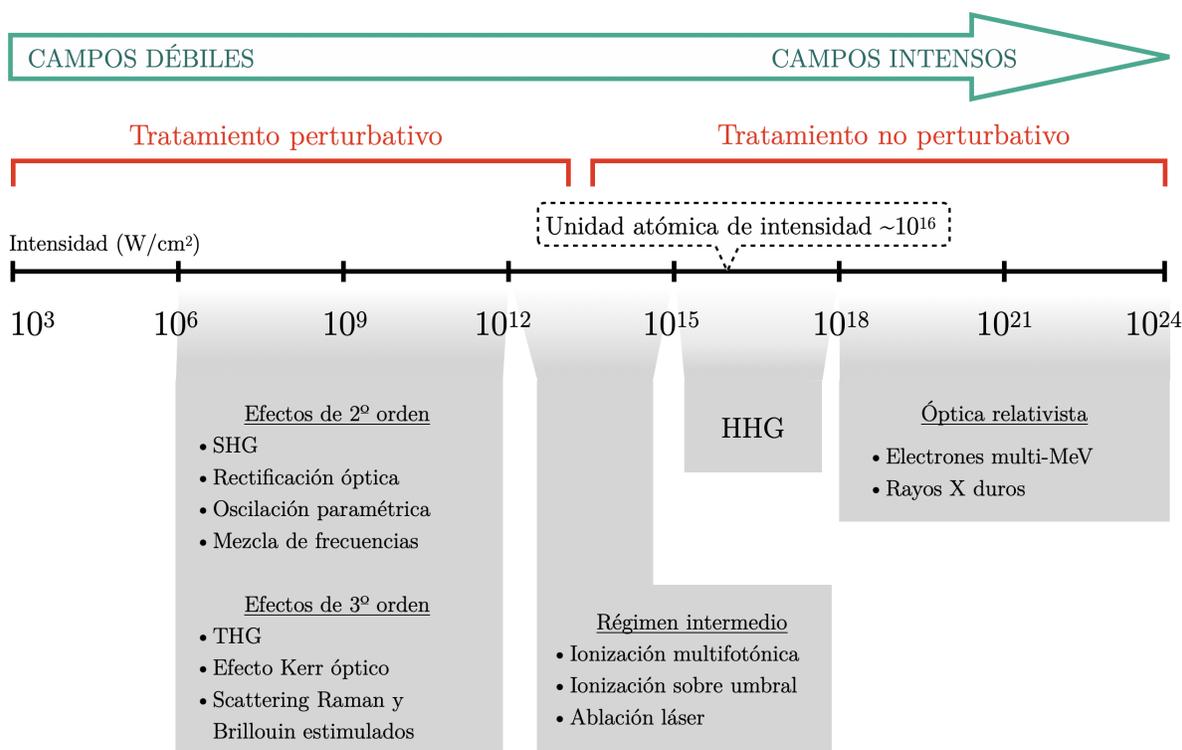


Figura 1: Escala de intensidades en  $\text{W/cm}^2$  del régimen no lineal para las que es válido o no el tratamiento perturbativo. Para campos débiles tenemos los distintos órdenes perturbativos con su correspondiente fenomenología. Para campos intensos se empieza a tener el proceso de generación de armónicos de orden alto (HHG, *High Harmonic Generation*) y el régimen de la óptica relativista. Esquema adaptado de [2].

### 1.1.2. Efectos no lineales para campos ultra-intensos: óptica extrema

En la década de los 80, con el nacimiento del láser de Ti:Zafiro a manos de Peter F. Moulton [3], se abrieron las puertas a la óptica no lineal en el límite no perturbativo. La capacidad de estos láseres de emitir radiación electromagnética en pulsos de femtosegundo, junto con técnicas como la amplificación de pulsos con gradiente de frecuencia (CPA, por sus siglas en inglés *Chirped Pulse Amplification*; esta técnica fue desarrollada en la misma década por Donna Strickland y Gérard Mourou en la Universidad de Rochester, por lo cual recibieron el Premio Nobel de Física de 2018 [4]), han revolucionado muchos campos de la ciencia en los últimos años por sus extraordinarias aplicaciones.

Cuando el campo eléctrico tiene una amplitud en torno al 1 % del campo de ligadura del electrón al núcleo atómico (a partir de  $\sim 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>, ver Figura 1), el tratamiento perturbativo anterior deja de ser válido, y es necesario desarrollar nuevas teorías. En este trabajo nos centraremos en la descripción cuántica que proporciona la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo (TDSE, *Time-Dependent Schrödinger Equation*) junto con la aproximación de campo fuerte, SFA (*Strong Field Approximation*). Sin embargo, existen otros muchos métodos como la teoría del funcional de la densidad dependiente del tiempo (TDDFT), pseudo-potenciales, análisis de Bloch-Floquet, etc.

En estas condiciones, uno de los fenómenos relevantes que tiene lugar es la generación de armónicos de orden alto, HHG (*High Harmonic Generation*); es decir, la emisión de frecuencias múltiplos de orden elevado de la frecuencia del láser incidente. Este proceso puede explicarse a nivel conceptual de una manera sencilla usando un modelo semi-clásico de 3 pasos, Figura 2 (modelo propuesto por K. J. Schafer [5] y P. B. Corkum [6]):

- Ionización túnel: el campo eléctrico intenso del láser linealmente polarizado distorsiona el potencial atómico (corrección lineal de tipo dipolar) creando una barrera de potencial, de manera que aumenta la probabilidad de efecto túnel, quedando el electrón libre.
- Aceleración en el continuo: una vez que el electrón (en forma de paquete de ondas electrónico) se encuentra en el continuo, se acelera como respuesta al campo, ganando energía.
- Recombinación: cuando el electrón regresa al átomo, se recombina y emite toda la energía en forma de fotones con la frecuencia de los distintos armónicos.

Este proceso de 3 pasos se repite cíclicamente con cada oscilación del campo electromagnético, de manera que la radiación de armónicos se emite en forma de pulsos cada medio periodo del campo.

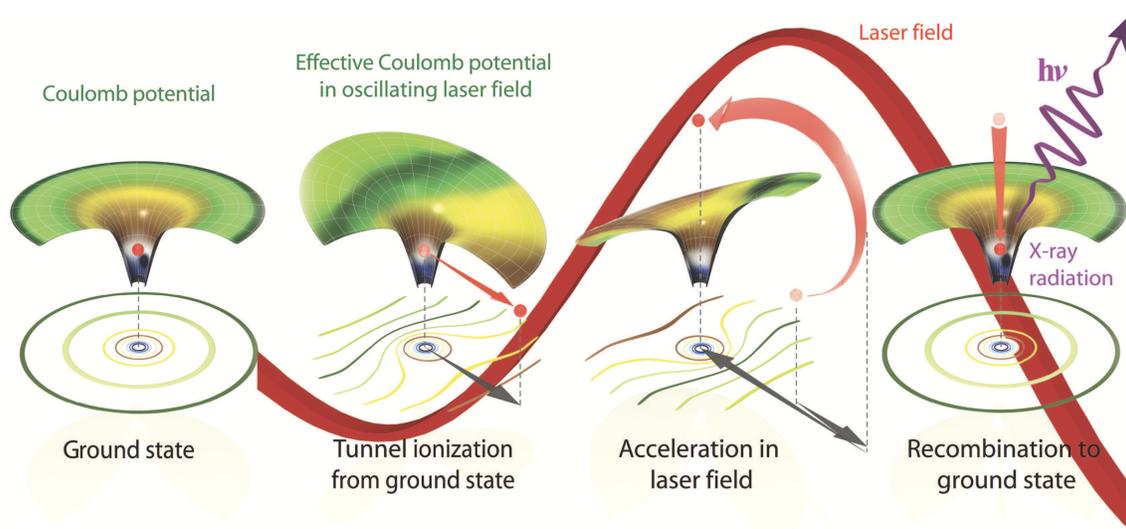


Figura 2: Modelo de 3 pasos para la generación de armónicos de orden alto, imagen tomada de [7].

Un aspecto relevante del proceso HHG es que el espectro armónico de radiación emitido tiene algunas características universales, indicadas en la Figura 3. Como se puede ver, en la primera parte del espectro tenemos la zona perturbativa en la que cada armónico tiene una intensidad relativa menor que el de orden anterior. Le sigue una meseta (*plateau*) que corresponde al proceso HHG (zona no perturbativa) en la que la intensidad relativa de los armónicos de orden alto es similar. Esta se extiende hasta la zona de corte (*cut-off*), con una frecuencia de corte que obedece a la siguiente ecuación empírica:  $\hbar\omega_{cutoff} = I_p + 3,17 U_p$  con  $I_p$  la energía de ionización del átomo y  $U_p$  la energía ponderomotriz (energía promedio que adquiere el electrón libre oscilando durante su interacción con el campo).

Además, en los sistemas centrosimétricos, solo se emiten los armónicos de orden impar (relacionado con que una recombinación idéntica y de signo opuesto tiene lugar cada medio ciclo del campo).

Con estos espectros tan anchos en frecuencia, se pueden conseguir los pulsos ultracortos de attosegundo que mencionábamos al principio (se ha llegado hasta los 43 as de duración [9]), siendo importante la caracterización de la susceptibilidad resuelta en esa misma escala de tiempos.

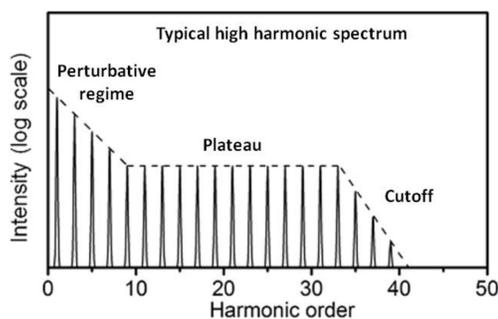


Figura 3: Espectro típico de HHG. Imagen tomada de [8].

## 1.2. Objetivos

Dado el carácter de simulación teórica de este trabajo, resumidamente, se puede estructurar en dos partes principales:

1. Desarrollo teórico necesario para llevar a cabo una simulación numérica del problema.
2. Post-procesado y análisis de los resultados para extraer las conclusiones y observaciones más relevantes sobre la evolución temporal de la susceptibilidad del átomo de hidrógeno ante la interacción con un pulso láser intenso.

Para la primera parte se usará el lenguaje de programación FORTRAN de alto nivel, mientras que para el post-procesado de datos se empleará el software MATHEMATICA de cálculo simbólico, así como para la elaboración de los gráficos.

A continuación enumeramos por orden los objetivos del presente trabajo:

- Presentar e introducir el concepto de susceptibilidad eléctrica, junto con sus definiciones en el dominio de la frecuencia y el tiempo [10].
- Desarrollar un marco teórico *ab initio* para la solución de la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo junto con la SFA, para la interacción de un pulso láser intenso con el átomo de hidrógeno [11] [12]. Con esto, se pretende obtener una ecuación diferencial que permita obtener la función de onda del electrón de dicho átomo, junto con una expresión para la aceleración que experimenta y el dipolo generado a medida que se propaga el pulso.
- Resolver numéricamente tanto la ecuación para la función de onda como la aceleración y el dipolo en el contexto SFA, obteniendo la dinámica del electrón.
- Obtener a partir de la aceleración el espectro de armónicos de orden alto emitido (proceso HHG), e identificar sus distintas partes.
- Observar la evolución temporal de la emisión de los distintos armónicos a través de un análisis tiempo-frecuencia. Esto lo haremos filtrando la aceleración con una máscara gaussiana a distintos tiempos durante la duración del pulso y observando el espectro resultante. El resultado consistirá en un gráfico 3D, denominado espectrograma, que nos informará sobre cómo se van emitiendo los distintos armónicos a medida que transcurre el tiempo.
- Obtener a partir del dipolo la evolución temporal de la susceptibilidad en tiempos del orden de attosegundos. Para ello llevaremos a cabo un método similar al del punto anterior, incluyendo el campo eléctrico del pulso láser en el filtrado con la misma máscara. Se obtendrá así información sobre la respuesta temporal del sistema ante la interacción con el pulso.

- Por último, comparar los resultados obtenidos bajo el marco SFA con los obtenidos resolviendo directamente la TDSE de forma numérica. Estos datos han sido proporcionados por el Grupo de Investigación en Aplicaciones de los Láseres y Fotónica (ALF) de la Universidad de Salamanca.

A parte de la bibliografía específica indicada al final del documento, este Trabajo de Fin de Grado posee un carácter transversal, aunando conocimientos de distintas áreas. Para su realización se han utilizado conceptos estudiados a lo largo del Grado en Física, a través de asignaturas como Óptica I, Óptica II, Fotónica, Óptica Coherente, Física Cuántica, Mecánica Cuántica, Electrodinámica Clásica, Métodos Numéricos y Física Computacional.

## 2. Fundamento Teórico

### 2.1. Respuesta del medio dieléctrico al campo EM, la susceptibilidad eléctrica

Según la teoría clásica del electromagnetismo, la dinámica de los campos eléctrico  $\mathbf{E}$  y magnético  $\mathbf{H}$  viene dada por las ecuaciones de Maxwell. En el sistema gaussiano de unidades (CGS), toman la forma

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = 4\pi\rho \quad (2.1.1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H} = 0 \quad (2.1.2)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \quad (2.1.3)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{4\pi}{c} \mathbf{J} + \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}. \quad (2.1.4)$$

En orden, (2.1.1) es la ley de Gauss del campo eléctrico (establece que las densidades de carga  $\rho$  son las que crean los campos eléctricos), (2.1.2) es la ley de Gauss del campo magnético (las líneas de campo magnético son siempre cerradas, no existen los monopolos magnéticos), (2.1.3) es la ley de Faraday (campos magnéticos variables en el tiempo inducen campos eléctricos que se oponen a la variación que los ha generado, es el signo menos dado por la ley de Lenz) y (2.1.4) es la ley de Ampère-Maxwell (tanto las densidades de corriente  $\mathbf{J}$  como las variaciones de campo eléctrico inducen campos magnéticos). La velocidad de la luz en el vacío es  $c = 1/\sqrt{\mu_0\epsilon_0} = 3 \cdot 10^8$  m/s, con  $\epsilon_0 = 8.85 \cdot 10^{-12}$  F/m la permitividad eléctrica del vacío y  $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7}$  H/m su permeabilidad magnética.

En el vacío,  $\rho = 0$  y  $\mathbf{J} = 0$ , las ecuaciones de Maxwell anteriores son homogéneas (sin los términos de fuentes).

Si consideramos ahora un medio distinto del vacío, también sin fuentes, es necesario definir dos nuevos campos: el vector desplazamiento eléctrico  $\mathbf{D}$  y la inducción magnética  $\mathbf{B}$ . Entonces, las ecuaciones de Maxwell quedan

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 0 \quad (2.1.5)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (2.1.6)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2.1.7)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}. \quad (2.1.8)$$

La relación entre los campos eléctrico  $\mathbf{E}$  y desplazamiento  $\mathbf{D}$  depende de las características eléctricas del medio, al igual que la relación entre los campos magnético  $\mathbf{H}$  e inducción magnética  $\mathbf{B}$ , que dependerá de sus propiedades magnéticas. En cualquier caso, estas relaciones se engloban dentro de las denominadas relaciones constitutivas del medio

$$\mathbf{D} = \mathbf{E} + 4\pi\mathbf{P} \quad \text{y} \quad \mathbf{B} = \mathbf{H} + 4\pi\mathbf{M}, \quad (2.1.9)$$

con  $\mathbf{P}$  la polarización y  $\mathbf{M}$  la magnetización del medio, ambas por unidad de volumen (densidades). En lo que nos ocupa, no nos interesa la respuesta magnética del medio, es decir, trabajaremos con medios no magnéticos<sup>3</sup> para los que  $\mathbf{M} = 0$ .

Nos restringiremos a medios dieléctricos, además de isótropos (la respuesta del medio es la misma en todas direcciones, es decir, los vectores de campo eléctrico y densidad de polarización son paralelos) y homogéneos (la relación entre esas dos magnitudes es independiente de la posición  $\mathbf{r}$  dentro del medio). Los materiales dieléctricos se caracterizan por no presentar cargas libres (son aislantes, tienen conductividad  $\sigma$  nula, por lo que no nos preocuparemos de las corrientes  $\mathbf{J}$ ), de manera que responden modificando sus dipolos internos ante la presencia de un campo eléctrico, creando una densidad de polarización inducida  $\mathbf{P}$ .

### 2.1.1. Susceptibilidad lineal

Para medios dieléctricos lineales, la densidad de polarización  $\mathbf{P}$  se relaciona linealmente con el campo eléctrico aplicado  $\mathbf{E}$  (respuesta lineal). En el caso de que el medio sea también no dispersivo (su respuesta al campo externo es instantánea), entonces la relación entre  $\mathbf{P}$  y  $\mathbf{E}$  es muy simple

$$\mathbf{P} = \chi\mathbf{E}, \quad (2.1.10)$$

donde  $\chi$  es la constante de proporcionalidad y se denomina susceptibilidad lineal eléctrica instantánea (magnitud escalar). Usando esto junto con la primera ecuación constitutiva (2.1.9) podemos escribir  $\mathbf{D} = \varepsilon\mathbf{E}$  donde  $\varepsilon = 1 + 4\pi\chi$  representa la permitividad del medio. Si este medio lineal es también isótropo y homogéneo, entonces  $\varepsilon$  es una magnitud escalar constante.

Sin embargo, esto es una idealización ya que la respuesta de un sistema a un estímulo no es instantánea. Lo natural es que los medios sean dispersivos. En estas condiciones, ya no se puede establecer una relación tan simple como (2.1.10) entre  $\mathbf{P}(t)$  y  $\mathbf{E}(t)$ , sino que la relación debe ser dinámica, por ejemplo en términos de una ecuación diferencial con el tiempo como variable independiente.

En este momento, es interesante considerar el caso de campos monocromáticos. Esto no implica una pérdida de generalidad, pues según el teorema de Fourier los campos definidos en el dominio del tiempo se pueden expresar como superposición o suma de funciones armónicas de frecuencia  $\omega$  definida según

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \equiv \mathcal{F}^{-1}[\mathbf{E}_\omega(\mathbf{r}); t] = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}_\omega(\mathbf{r}) e^{-i\omega t} d\omega. \quad (2.1.11)$$

La expresión (2.1.11) se conoce como transformada de Fourier inversa de  $\mathbf{E}_\omega(\mathbf{r})$ . Es decir, como somos capaces de expresar cualquier campo como superposición de campos monocromáticos, podemos centrarnos en estudiar qué ocurre con la dinámica de cada onda monocromática de frecuencia  $\omega$  (componentes de Fourier).

---

<sup>3</sup>Normalmente se trabaja con medios no magnéticos, de ahí que se suele denominar al campo  $\mathbf{B}$  como campo magnético directamente en vez de inducción magnética, ya que para este tipo de medios  $\mathbf{B} = \mathbf{H}$  (en el sistema CGS).

Si introducimos entonces campos armónicos de la forma<sup>4</sup>  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_\omega(\mathbf{r}) e^{-i\omega t}$  y  $\mathbf{H}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{H}_\omega(\mathbf{r}) e^{-i\omega t}$  en las ecuaciones de Maxwell, obtenemos

$$\nabla \cdot \mathbf{D}_\omega(\mathbf{r}) = 0 \quad (2.1.12)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}_\omega(\mathbf{r}) = 0 \quad (2.1.13)$$

$$\nabla \times \mathbf{E}_\omega(\mathbf{r}) = i\frac{\omega}{c}\mathbf{B}_\omega(\mathbf{r}) \quad (2.1.14)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}_\omega(\mathbf{r}) = -i\frac{\omega}{c}\mathbf{D}_\omega(\mathbf{r}), \quad (2.1.15)$$

junto con las relaciones constitutivas (2.1.9) que se cumplen para cada componente de Fourier de los campos.

En consonancia con lo visto en la ecuación (2.1.10), como ahora los campos están definidos para una frecuencia  $\omega$  dada, podemos escribir la relación lineal entre la densidad de polarización y el campo eléctrico como

$$\mathbf{P}_\omega(\mathbf{E}) = \chi(\omega)\mathbf{E}_\omega, \quad (2.1.16)$$

de nuevo con  $\chi(\omega)$  la susceptibilidad eléctrica lineal del medio a la frecuencia  $\omega$  (relación de proporcionalidad entre  $\mathbf{P}_\omega$  y  $\mathbf{E}_\omega$ ). Como esperábamos, la respuesta lineal del medio dispersivo depende de la frecuencia del campo monocromático incidente. Más adelante veremos las implicaciones que esto tiene cuando se quiere estudiar la evolución temporal de la respuesta del medio dispersivo.

### 2.1.2. Susceptibilidad no lineal

Para medios dieléctricos no lineales, la densidad de polarización  $\mathbf{P}$  ya no se relaciona linealmente con el campo eléctrico aplicado  $\mathbf{E}$  (respuesta no lineal).

Una manera de entender de dónde procede este tipo de respuesta consiste en recurrir al modelo microscópico que nos da la respuesta del medio; se trata del modelo de Lorentz. En este modelo clásico simplificado<sup>5</sup>, los electrones permanecen ligados al átomo por fuerzas restauradoras lineales. Dicho de otra manera, el potencial que mantiene ligados los electrones al átomo puede expandirse en serie de Taylor y aproximarse hasta segundo orden por una función cuadrática de la posición al ser estos desplazados muy poco del equilibrio (campos no muy intensos). Es decir, el problema es equivalente al del oscilador armónico y de aquí procede la respuesta lineal que hemos tratado hasta ahora para la polarización del medio. Sin embargo, cuando los campos son intensos, los electrones se desplazan mucho más de la posición de equilibrio y la asimetría del potencial atómico real empieza a evidenciarse (ver Figura 4), repercutiendo en su dinámica; se trata de un potencial anarmónico.

<sup>4</sup>Estrictamente, deberíamos sumar a cada campo el término complejo-conjugado, *+c.c.*, ya que los campos EM son magnitudes físicas reales.

<sup>5</sup>Además, estamos suponiendo que el campo es uniforme (igual en todo el medio) y que los electrones no interactúan entre ellos, solo con el campo.

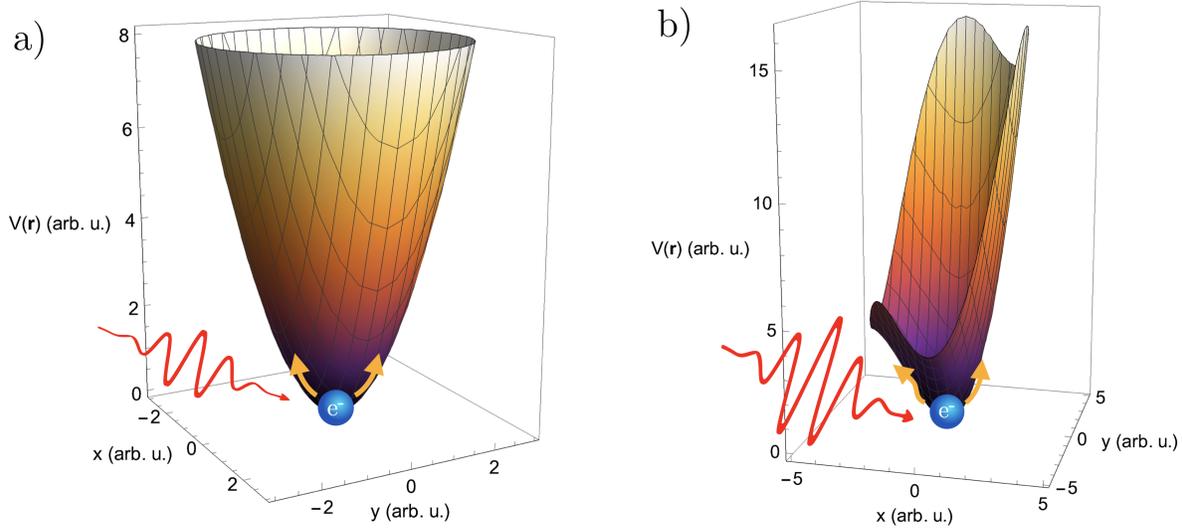


Figura 4: **a)** Potencial bidimensional cuadrático simétrico por el que puede aproximarse el potencial atómico real para pequeños desplazamientos del electrón inducidos por campos poco intensos. | **b)** Potencial bidimensional asimétrico (contribución cúbica al término cuadrático) del desarrollo de Taylor del potencial atómico.

Bajo estas hipótesis, cuando se escribe la ecuación de movimiento para el electrón, esta no posee solución analítica, pero si consideramos el término no cuadrático del potencial (y los sucesivos órdenes) mucho más débil que el término armónico, el problema puede estudiarse en teoría de perturbaciones. Proponiendo una solución perturbativa para el desplazamiento del electrón del tipo  $x(t) = x^{(1)}(t) + x^{(2)}(t) + \dots + c.c.$ , con  $|x^{(i)}(t)| \gg |x^{(i+1)}(t)|$ , resolviendo iterativamente para los distintos órdenes y recordando que la polarización macroscópica viene dada por  $P(t) = N\mu(t)$  con  $N$  el número de cargas y  $\mu(t) = -ex(t)$  el momento dipolar eléctrico inducido por el campo, se llega a una expresión de la forma

$$P(t) = P_{\omega}^{(1)} e^{-i\omega t} + P_0^{(2)} + P_{\omega}^{(2)} e^{-i2\omega t} + \dots + c.c. \quad (2.1.17)$$

Es decir, el medio no solo responde al campo externo monocromático de frecuencia  $\omega$  oscilando con esa misma frecuencia, sino que aparecen componentes que oscilan a frecuencia doble  $2\omega$  o frecuencia cero. Estos términos (junto con los de orden cada vez mayor) constituyen la polarización no lineal del sistema. Si reescribimos la expresión (2.1.17) en términos del campo incidente siguiendo el ejemplo de (2.1.16)

$$P(t) = \chi^{(1)}(\omega) E_{\omega} e^{-i\omega t} + \chi^{(2)}(0) E_{\omega} E_{\omega}^* + \chi^{(2)}(2\omega) E_{\omega} E_{\omega} e^{-i2\omega t} + \dots + c.c., \quad (2.1.18)$$

aparece la susceptibilidad no lineal a distintos órdenes,  $\chi^{(i)}(\omega)$ .

Por simplicidad, no hemos considerado el carácter vectorial de los campos en las expresiones (2.1.17) y (2.1.18). De hacerlo, las cantidades  $\chi^{(i)}(\omega)$  serían tensores de rango  $i + 1$ .

### 2.1.3. Problema de la causalidad

Hemos visto que para los medios dispersivos, la susceptibilidad tanto lineal como no lineal queda bien definida para cada componente de Fourier de los campos. El problema se presenta

cuando regresamos al dominio del tiempo. Mientras que en el dominio de la frecuencia tenemos una relación tan simple para la polarización, para el dominio temporal esto no es trivial. Por simplicidad desarrollamos para el caso lineal, si bien ocurre lo mismo para los términos no lineales. Usando el teorema de convolución<sup>6</sup>, puede verse que (2.1.16) no se transforma en un producto instantáneo sino en un producto de convolución al hacer la transformada de Fourier inversa según (2.1.11):

$$P(t) = \int_{-\infty}^{\infty} P(\omega) e^{-i\omega t} d\omega = \int_{-\infty}^{\infty} \chi(\omega) E_{\omega} e^{-i\omega t} d\omega = \int_{-\infty}^{\infty} \chi(t - \tau) E(\tau) d\tau. \quad (2.1.19)$$

En general, la materia no responde de forma instantánea al estímulo del campo externo (no se polariza instantáneamente). Sin embargo, aunque (2.1.19) es matemáticamente correcta, el hecho de que la integral llegue hasta  $+\infty$  implicaría que la respuesta del medio en el instante  $t$  depende del valor del campo en tiempos futuros, violando el principio de causalidad. Esto no tiene sentido físico y puede arreglarse definiendo  $\chi(t - \tau) = 0$  para  $\tau > t$  (esta redefinición de la susceptibilidad deriva en las relaciones de Kramers-Kronig que permiten conocer la función compleja completa si solo se conoce la parte real o imaginaria de la misma). Por esto se habla siempre de  $\chi(\omega)$  como función de la frecuencia, siendo complicado el estudio de su evolución temporal instantánea tanto en el contexto de la óptica lineal como de la no lineal.

Una vez comprendemos cómo se puede caracterizar la respuesta dieléctrica lineal y no lineal de un medio a un campo externo a través de la susceptibilidad, nos planteamos qué tipo de respuesta proporciona el material más simple posible ante un campo intenso (régimen no lineal). Trabajaremos entonces con el átomo de hidrógeno, el cual posee un solo electrón, desarrollando un marco teórico *ab initio* basado en la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo (TDSE), para obtener finalmente la evolución temporal de la susceptibilidad no lineal. Esto supondrá estudiar en primer lugar el Hamiltoniano cuántico del sistema que nos permitirá extraer información a cerca de los autovalores y autoestados del electrón en el átomo. Con esto, estaremos en disposición de simplificar el problema introduciendo algunas aproximaciones (la SFA), obteniendo en última instancia la dinámica temporal del electrón a lo largo de la propagación de un pulso, junto con el espectro emitido por la carga en movimiento (los distintos armónicos emitidos).

## 2.2. Interacción del átomo de hidrógeno con un campo EM.

Si bien los resultados que vamos a presentar son válidos para cualquier átomo hidrogenoide, basaremos nuestro estudio en el átomo de hidrógeno con un solo electrón como hemos mencionado anteriormente. Para el modelo cuántico del sistema, partimos entonces de la

---

<sup>6</sup>Este teorema nos dice que la transformada de Fourier del producto de convolución es igual al producto de las transformadas de Fourier de cada función por separado.

TDSE con  $\mathcal{H}$  el Hamiltoniano del sistema, siendo el objetivo final su integración en el tiempo para conocer la función de onda que describe el comportamiento del electrón en el átomo de H cuando interacciona con un campo eléctrico intenso:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = \mathcal{H}(t) |\Psi(t)\rangle \quad \text{con} \quad \mathcal{H}(t) = \frac{p^2}{2m} + V_C(\mathbf{r}) + V_F(t), \quad (2.2.1)$$

siendo  $\hbar$  la constante reducida de Planck,  $m$  la masa del electrón y  $p$  el operador momento cinético. En cuanto a los potenciales,  $V_C(\mathbf{r})$  representa el potencial Coulombiano atractivo que ejerce el núcleo sobre el electrón (independiente del tiempo) y  $V_F(t)$  el potencial de interacción con el campo externo aplicado, que sí dependerá del tiempo. Vemos entonces que el hamiltoniano depende explícitamente del tiempo, por lo que el sistema no conservará la energía. Como consecuencia, no existen estados estacionarios para la función de onda del electrón; los autoestados de  $\mathcal{H}(t)$  dependerán del tiempo.

Tal y como se expone en el APÉNDICE A, existe cierta libertad a la hora de elegir los potenciales que describen el campo electromagnético. Aquí usaremos los siguientes gauges:

Gauge de longitud: en este marco,  $\mathbf{p}$  es el momento cinético del electrón (definición clásica de masa por velocidad), que obviamente dependerá del tiempo. Se puede demostrar<sup>7</sup> que, en este gauge, el potencial de interacción con el campo EM toma la forma

$$V_F(t) = -q \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t), \quad (2.2.2)$$

con  $q = -e$  la carga del electrón y  $\mathbf{r}$  su vector de posición. Vemos que se trata de una interacción de tipo dipolar (supondremos que la amplitud del campo eléctrico  $\mathbf{E}(t)$  depende únicamente del tiempo, no de la posición, en la aproximación dipolar,  $\lambda \rightarrow \infty$ ).

Gauge de velocidad: el momento cinético  $\mathbf{p}$  debe sustituirse por el momento canónico  $\mathbf{P}$ , que en forma de operador cuántico viene dado en términos del operador diferencial vectorial  $\nabla$  (derivadas espaciales) por  $\mathbf{P} = -i\hbar\nabla$ . El momento canónico así definido es entonces independiente del tiempo. Ambos momentos se relacionan a través de

$$\mathbf{p}(t) = \mathbf{P} - \frac{q}{c} \mathbf{A}(t), \quad (2.2.3)$$

siendo el campo eléctrico la derivada temporal del potencial vector  $\mathbf{E}(t) = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}(t)}{\partial t}$ . De nuevo, puede demostrarse<sup>8</sup> que en este gauge

$$V_F(t) = -\frac{q}{mc} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{P} + \frac{q^2}{2mc^2} A(t)^2. \quad (2.2.4)$$

<sup>7</sup>Usando  $\Lambda = -\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r}$  en la función escalar arbitraria para la definición de los potenciales que describen el campo electromagnético, ver APÉNDICE A.

<sup>8</sup>Usando  $\Lambda = -\frac{r}{2m} \int_{-\infty}^t A(t)^2 dt$  en la función escalar arbitraria, ver de nuevo APÉNDICE A.

Como la ecuación (2.2.1) describe el comportamiento de un único electrón, puede integrarse numéricamente, si bien en la mayoría de los casos esto lleva mucho tiempo de computación y no es práctico. Esto nos conduce al uso de modelos aproximados para simplificar y estudiar el problema.

Lo primero que se nos puede ocurrir si alguno de los dos potenciales que aparecen en el Hamiltoniano –denotaremos genéricamente como  $V_i$  (puede tratarse de  $V_C(\mathbf{r})$  o de  $V_F(t)$ )– es lo suficientemente débil frente al resto de términos, es usar un tratamiento perturbativo. En nuestro caso, consideraremos campos intensos, ya que nos interesa inducir la no linealidad en el sistema, por lo que este tipo de aproximaciones no serán válidas. Sin embargo, como veremos más adelante, la aproximación SFA en la que sustentaremos todo el estudio guarda cierta similitud formal con el método de perturbaciones.

Muchos de estos métodos perturbativos se basan en una separación o desdoblamiento conveniente del Hamiltoniano (2.2.1) en la forma  $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + V_i$ , donde  $\mathcal{H}_0$  es un Hamiltoniano cuya solución es bien conocida (disponemos de sus autoestados y autovalores) y describe los aspectos más relevantes de la dinámica del sistema. En contraposición, el término  $V_i$  es mucho menos relevante y solo introduce algunas correcciones. En general, esto no tiene por qué ser siempre cierto, pero nos ayudará a entender la fenomenología involucrada.

En nuestro caso, estamos interesados en dos desdoblamientos del hamiltoniano, como veremos a continuación.

### 2.2.1. Electrón atómico interactuando con un campo EM

En primer lugar, consideramos  $\mathcal{H}_0 = p^2/2m + V_C(\mathbf{r})$  con  $V_i = V_F(t)$  (en cualquier gauge).

Entonces el problema se interpreta como el de un electrón atómico interactuando con un campo electromagnético. Para el caso de un átomo hidrogenoide, el potencial de Coulomb toma la forma  $V_C(r) = -Zq^2/r$  con  $Z$  el número atómico ( $Z|q|$  representa la carga del núcleo).

El Hamiltoniano  $\mathcal{H}_0$  es conocido, tenemos determinados sus autovalores y autofunciones. De hecho, existen dos clases de autofunciones para el átomo de H:

- Un conjunto infinito, pero contable, con autovalores o energías negativas: los estados ligados. Estos estados se pueden etiquetar según los números cuánticos  $(n, l, m)$ . Para el átomo hidrogenoide estas energías vienen dadas por  $E_n = -13.6 Z^2/n^2$  eV, de manera que existe degeneración de los distintos niveles atómicos al depender únicamente del número cuántico principal  $n$  ( $l$  hace referencia al momento angular orbital y  $m$  a su proyección, normalmente la 3<sup>o</sup> componente).
- Un conjunto infinito y continuo, incontable, con energías positivas: los estados ionizados o continuos. Se pueden etiquetar atendiendo a  $(\epsilon, l, m)$ , con  $\epsilon$  la energía correspondiente.

En lo que nos ocupa, la diferente naturaleza de estos posibles estados es irrelevante, al igual que los números cuánticos que los caracterizan. Podemos hacer un pequeño abuso del

lenguaje y usar una notación abreviada que nos permita identificar a todos los estados posibles según un único índice variable  $\nu$ , de manera que tenemos entonces para  $\mathcal{H}_0$  el conjunto de autoestados  $\{|\phi_0\rangle, \dots, |\phi_\nu\rangle, \dots\}$  con sus correspondientes autovalores  $\{\epsilon_0, \dots, \epsilon_\nu, \dots\}$ . El conocimiento de estos estados propios de  $\mathcal{H}_0$  nos permite conocer la dinámica de cualquier función de onda (combinación lineal de los elementos de la base) sin tener que resolver explícitamente la TDSE para ese Hamiltoniano.

Si un electrón parte en un tiempo  $t_0$  de un estado inicial que coincide con uno de los autoestados,  $|\Psi(t_0)\rangle = |\phi_\nu\rangle$ , entonces la evolución de dicha autofunción vendrá dada por

$$|\Psi(t)\rangle = iG(t, t_0)|\Psi(t_0)\rangle = e^{-i\mathcal{H}_0(t-t_0)/\hbar}|\Psi(t_0)\rangle = e^{-i\epsilon_\nu(t-t_0)/\hbar}|\phi_\nu\rangle, \quad (2.2.5)$$

donde hemos introducido la evolución temporal en términos del propagador de Green  $G(t, t_0)$  (lo desarrollaremos más adelante) que hace aparecer la energía cuando actúa sobre un autoestado del hamiltoniano con ese autovalor.

Si en el instante inicial  $t_0$  el electrón parte de una superposición de estados propios de  $\mathcal{H}_0$ ,  $|\Psi(t_0)\rangle = \sum_\nu c_\nu |\phi_\nu\rangle$  entonces la evolución de la función de onda tendrá la misma forma, sin más que sumar sobre todos los elementos de la base que formen parte de la combinación lineal:

$$|\Psi(t)\rangle = iG(t, t_0)|\Psi(t_0)\rangle = \sum_\nu c_\nu e^{-i\epsilon_\nu(t-t_0)/\hbar}|\phi_\nu\rangle. \quad (2.2.6)$$

De hecho, observando la forma de (2.2.5) y (2.2.6), podemos construir el operador de evolución temporal que evoluciona una función de onda arbitraria  $\Psi(t)$  escribiendo

$$|\Psi(t)\rangle = iG(t, t_0)|\Psi(t_0)\rangle = \left[ \sum_\nu e^{-i\epsilon_\nu(t-t_0)/\hbar} |\phi_\nu\rangle \langle \phi_\nu| \right] |\Psi(t_0)\rangle. \quad (2.2.7)$$

Efectivamente, podemos comprobar que la expresión (2.2.7) es equivalente a (2.2.5) y (2.2.6) sin más que introducir la forma explícita para  $|\Psi(t_0)\rangle$ :

$$\begin{aligned} |\Psi(t)\rangle &= \left[ \sum_\nu e^{-i\epsilon_\nu(t-t_0)/\hbar} |\phi_\nu\rangle \langle \phi_\nu| \right] \sum_\mu c_\mu |\phi_\mu\rangle \\ &= \sum_{\nu, \mu} e^{-i\epsilon_\nu(t-t_0)/\hbar} c_\mu \langle \phi_\nu | \phi_\mu \rangle |\phi_\nu\rangle \\ &= \sum_{\nu, \mu} e^{-i\epsilon_\nu(t-t_0)/\hbar} c_\mu \delta_{\nu\mu} |\phi_\nu\rangle \\ &= \sum_\nu e^{-i\epsilon_\nu(t-t_0)/\hbar} c_\nu |\phi_\nu\rangle. \end{aligned} \quad (2.2.8)$$

□

Hemos supuesto la base  $\{|\phi_\nu\rangle\}$  ortonormalizada, de manera que  $\langle \phi_\nu | \phi_\mu \rangle = \delta_{\nu\mu}$  selecciona el término del sumatorio con  $\mu = \nu$ , recuperando (2.2.6).

Nótese que en nuestro caso  $\mathcal{H}_0$  es solo una parte del Hamiltoniano total  $\mathcal{H}$ , por lo que el operador  $iG(t, t_0)$  así definido no evoluciona la función de onda completamente. Sin embargo, nos será útil más adelante.

### 2.2.2. Dispersión coulombiana del electrón libre en un campo EM

En segundo lugar, consideramos  $\mathcal{H}_0 = p^2/2m + V_F(t)$  con  $V_i = V_C(\mathbf{r})$ .

Entonces, ahora el problema se interpreta como el de un electrón libre oscilando en un campo electromagnético que se dispersa con un ión (interacción tipo *scattering*).

Mientras que en el planteamiento de la sección anterior el potencial de interacción  $V_F(t)$  no pertenecía a  $\mathcal{H}_0$ , ahora sí lo hace; por lo que debemos especificar en todo momento el gauge en el que trabajamos para poder dar correctamente los autoestados de este Hamiltoniano. Desarrollamos para ambos gauges:

Gauge de velocidad: en este caso utilizamos el momento canónico  $\mathbf{P}$  dado por (2.2.3), de manera que el potencial  $V_F(t)$  toma la forma (2.2.4),

$$V_F(t) = -\frac{q}{mc} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{P} + \frac{q^2}{2mc^2} A(t)^2. \quad (2.2.4)$$

Atendiendo a esto, el Hamiltoniano  $\mathcal{H}_0$  también será función solamente de  $\mathbf{P}$ ; es decir, sus autoestados son ondas planas que denotaremos como  $|\mathbf{P}\rangle$ . Ahora no basta con aplicar el operador de evolución temporal para obtener la dependencia temporal explícita, sino que tenemos que resolver la TDSE.

Partimos de la siguiente forma para la función de onda en la que englobamos la dependencia temporal a través de una fase (por analogía con el apartado anterior):

$$|\mathbf{P}(t)\rangle = e^{-i\phi_{\mathbf{P}}(t)} |\mathbf{P}\rangle. \quad (2.2.9)$$

Para obtener la forma de  $\phi_{\mathbf{P}}(t)$ , sustituimos (2.2.9) en la TDSE. Primero necesitamos la derivada temporal

$$\frac{\partial}{\partial t} |\mathbf{P}(t)\rangle = \frac{\partial}{\partial t} (e^{-i\phi_{\mathbf{P}}(t)} |\mathbf{P}\rangle) = -i e^{-i\phi_{\mathbf{P}}(t)} |\mathbf{P}\rangle \frac{\partial \phi_{\mathbf{P}}(t)}{\partial t} = -i \frac{\partial \phi_{\mathbf{P}}(t)}{\partial t} |\mathbf{P}(t)\rangle. \quad (2.2.10)$$

Sustituimos en la TDSE (2.2.1) con el Hamiltoniano  $\mathcal{H}_0$  y operamos

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\mathbf{P}(t)\rangle &= \mathcal{H}_0(t) |\mathbf{P}(t)\rangle = \left( \frac{P^2}{2m} + V_F(t) \right) |\mathbf{P}(t)\rangle \Rightarrow \\ &\Rightarrow i\hbar \left( -i \frac{\partial \phi_{\mathbf{P}}(t)}{\partial t} |\mathbf{P}(t)\rangle \right) = \left( \frac{P^2}{2m} - \frac{q}{mc} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{P} + \frac{q^2}{2mc^2} A(t)^2 \right) |\mathbf{P}(t)\rangle \Rightarrow \\ &\Rightarrow \hbar \frac{\partial \phi_{\mathbf{P}}(t)}{\partial t} = \frac{1}{2m} \left( \mathbf{P} - \frac{q}{c} \mathbf{A}(t) \right)^2 = \frac{p(t)^2}{2m} \Rightarrow \frac{\partial \phi_{\mathbf{P}}(t)}{\partial t} = \frac{p(t)^2}{2m\hbar}. \end{aligned} \quad (2.2.11)$$

Nos queda una ecuación diferencial lineal para  $\phi_{\mathbf{P}}(t)$  (la derivada parcial se puede sustituir por la total al ser función solo de  $t$ ). Integrando, obtenemos finalmente la forma de  $\phi_{\mathbf{P}}(t)$ ,

$$\phi_{\mathbf{P}}(t) = \frac{1}{2m\hbar} \int_{t_0}^t p(t')^2 dt' \equiv -\frac{1}{\hbar} S(\mathbf{P}, t, t_0). \quad (2.2.12)$$

Llevando (2.2.12) a (2.2.9) tenemos la forma completa de los autoestados de  $\mathcal{H}_0$

$$|\mathbf{P}(t)\rangle = e^{iS(\mathbf{P}, t, t_0)/\hbar} |\mathbf{P}\rangle, \quad (2.2.13)$$

donde hemos definido la función  $S(\mathbf{P}, t, t_0)$  a veces denominada acción por sus dimensiones (la acción correctamente definida debería incluir la energía de interacción).

Vemos que la fase temporal no es más que la integral de la energía cinética del electrón  $p(t)^2/2m$  mientras se encuentra oscilando en el campo. A estos estados (2.2.13) se les conoce como estados de Volkov y son la representación cuántica del electrón libre que interactúa con un campo EM.

Gauge de longitud: para encontrar la forma de los estados de Volkov en este gauge, denotamos con el subíndice  $L$ , podemos partir de los encontrados en el gauge de velocidad y aplicarles el operador de transformación gauge visto en el APÉNDICE A<sup>9</sup>,

$$|\mathbf{P}(t)\rangle_L = e^{i\frac{q}{\hbar c} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r}} |\mathbf{P}(t)\rangle_V = e^{i[S(\mathbf{P}, t, t_0) + \frac{q}{c} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r}]/\hbar} |\mathbf{P}\rangle. \quad (2.2.14)$$

Estrictamente hablando, las ondas o estados de Volkov en este gauge no son autofunciones del Hamiltoniano, pero sí forman una base matemática de funciones ortonormales y podemos representar entonces cualquier función de onda como una combinación lineal única de ellas. En cualquier caso, seguiremos trabajando en el marco del gauge de velocidad en el que las ondas de Volkov sí son autofunciones.

Siguiendo el razonamiento del apartado anterior, podemos calcular la evolución temporal de cualquier paquete de ondas del electrón (bajo la única influencia del campo EM, sin considerar el potencial Coulombiano) haciendo la integral a todos los posibles momentos del electrón

$$|\Psi(t)\rangle = iG(t, t_0) |\Psi(t_0)\rangle = \left[ \int e^{iS(\mathbf{P}, t, t_0)/\hbar} |\mathbf{P}\rangle \langle \mathbf{P}| d\mathbf{P} \right] |\Psi(t_0)\rangle. \quad (2.2.15)$$

De nuevo, nótese que  $\mathcal{H}_0$  es solo una parte del Hamiltoniano total  $\mathcal{H}$ , por lo que el operador evolución temporal  $iG(t, t_0)$  no evoluciona tampoco la función de onda completamente.

Una vez disponemos de los autoestados del electrón para distintos desdoblamientos del Hamiltoniano total, podemos pasar a considerar aproximaciones que ayuden a interpretar y

<sup>9</sup>Para el gauge de longitud escogíamos como función arbitraria  $\Lambda = -\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r}$ .

resolver el problema completo de la dinámica del electrón en el átomo de H interaccionando con un campo intenso.

### 2.3. Ionización y aproximación de campo fuerte SFA

Introducimos en este punto una herramienta matemática útil para la interpretación del problema en el contexto de la evolución temporal de la función de onda del electrón. Definimos entonces la función de Green (retardada) como una función  $G$  que tiene la siguiente propiedad<sup>10</sup>

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = i \int G(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t') \Psi(\mathbf{r}', t') d\mathbf{r}'. \quad (2.3.1)$$

Usando la notación *bra-ket* de Dirac, podemos escribir la ecuación (2.3.1) de forma más compacta como

$$|\Psi(t)\rangle = iG(t, t')|\Psi(t')\rangle. \quad (2.3.2)$$

Nótese la similitud con la forma de las ecuaciones (2.2.7) y (2.2.15) en las que introducimos la evolución temporal de una función de onda.

Una observación importante es que la función de Green no depende del estado del electrón, sino que depende únicamente del Hamiltoniano. Por lo tanto, existe una única función de Green para cada forma de las ecuaciones de Schrödinger. Si somos capaces de encontrar la función  $G(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t')$ , tendremos una potente herramienta que nos permitirá conocer cómo evoluciona cualquier paquete de ondas electrónico sin necesidad de integrar la TDSE.

Sin embargo, encontrar la función de Green exacta es prácticamente igual de complicado o más que integrar la TDSE completa. Por ello, buscaremos aproximaciones razonables a la función exacta de manera que, dependiendo de la aproximación que queramos utilizar, encontraremos una solución perturbativa o una función aproximada de campo fuerte no perturbativa. Aunque estamos especialmente interesados en esta última, desarrollaremos ambos enfoques para hacer algunas deducciones que nos ayudarán con la interpretación física.

Para ver entonces cómo podemos desarrollar sistemáticamente aproximaciones a la función de Green  $G(t, t')$ , partimos de una definición más formal de la misma en términos de cualquiera de los desdoblamientos del Hamiltoniano total  $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + V_i$ :

$$G(t, t_0) = G_0(t, t_0) + \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t G(t, t_1) V_i(t_1) G_0(t_1, t_0) dt_1, \quad (2.3.3)$$

donde  $G_0$  representa la función de Green de la evolución dada por el Hamiltoniano  $\mathcal{H}_0$  solamente y  $G$  la función de Green de la evolución dada por el Hamiltoniano total  $\mathcal{H}$ .

<sup>10</sup>Formalmente, una función de Green consiste en una función matemática que actúa como núcleo o *kernel* de un operador lineal integral.

La relación (2.3.3) se conoce como ecuación de Lippmann-Schwinger<sup>11</sup>. Esta expresión es exacta en el sentido de que todavía no hemos llevado a cabo ninguna aproximación al obtenerla a partir de la ecuación de Schrödinger. Es por ello que continúa siendo poco útil para alcanzar nuestro objetivo, ya que la función  $G$  aparece definida en términos de ella misma (aparece en ambos miembros de la ecuación). Sin embargo, es un buen punto de partida para empezar a hacer las aproximaciones mencionadas anteriormente.

### 2.3.1. Expansión perturbativa

En este caso, el término  $V_i$  en la separación del Hamiltoniano  $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + V_i$  es pequeño en comparación con  $\mathcal{H}_0$  (este domina en la dinámica del sistema), de manera que el segundo término en (2.3.3) es también pequeño frente al primero. Podemos entonces aproximar la ecuación de Lippmann-Schwinger y hablar de distintos órdenes:

**Orden 0:** para  $V_i \ll \mathcal{H}_0$  podemos escribir

$$G^{(0)}(t, t_0) = G_0(t, t_0). \quad (2.3.4)$$

A este nivel de aproximación, el electrón se comporta como si solo estuviera bajo la influencia de  $\mathcal{H}_0$ , sin que  $V_i$  juegue ningún papel en su dinámica.

**Orden 1:** hacemos una primera iteración sustituyendo la función de Green  $G$  en el integrando de (2.3.3) por la aproximación anterior a orden cero (2.3.4); se trata de la aproximación a primer orden en la expansión perturbativa,

$$\begin{aligned} G^{(1)}(t, t_0) &= G_0(t, t_0) + \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t G^{(0)}(t, t_1) V_i(t_1) G_0(t_1, t_0) dt_1 \\ &= G_0(t, t_0) + \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t G_0(t, t_1) V_i(t_1) G_0(t_1, t_0) dt_1. \end{aligned} \quad (2.3.5)$$

**Orden 2:** hacemos una segunda iteración sustituyendo la función de Green en el integrando de (2.3.3) por la aproximación anterior a primer orden (2.3.5); es la aproximación a segundo orden en la expansión perturbativa (la última que consideraremos),

$$\begin{aligned} G^{(2)}(t, t_0) &= G_0(t, t_0) + \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t G^{(1)}(t, t_1) V_i(t_1) G_0(t_1, t_0) dt_1 \\ &= G_0(t, t_0) + \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t G_0(t, t_1) V_i(t_1) G_0(t_1, t_0) dt_1 + \\ &\quad + \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_0}^t \int_{t_1}^t G_0(t, t_2) V_i(t_2) G_0(t_2, t_1) V_i(t_1) G_0(t_1, t_0) dt_2 dt_1. \end{aligned} \quad (2.3.6)$$

<sup>11</sup>Esta ecuación aparece en el estudio de colisiones y efectos dispersivos dentro de la óptica, física molecular y atómica, física nuclear, física de partículas, etc.; donde es más cómodo su uso en lugar de la ecuación de Schrödinger. Esencialmente, relaciona la función de onda dispersada con el potencial que produce la dispersión (el equivalente a  $V_i$  en nuestro caso).

Vemos que la expansión perturbativa se basa únicamente en la definición de  $V_i$  y de  $\mathcal{H}_0$ , ya que este solo aparece la función de Green  $G_0$  en los miembros a la derecha de la igualdad.

Exploremos estos resultados obtenidos para los dos desdoblamientos del Hamiltoniano total tratados en las secciones 2.2.1. y 2.2.2.; y considerando solo hasta el primer orden (2.3.5) en la expansión, es decir,  $G \simeq G^{(1)}$ .

Primer desdoblamiento: electrón atómico interaccionando con un campo EM. En este caso identificábamos  $\mathcal{H}_0 \equiv \mathcal{H}_A$  con  $\mathcal{H}_A = p^2/2m + V_C(\mathbf{r})$  el Hamiltoniano atómico (átomo hidrogenoide) y  $V_i \equiv V_F(t)$  la perturbación externa (interacción con el campo EM). Entonces, la aproximación perturbativa a 1<sup>er</sup> orden queda

$$G(t, t_0) \approx G_A(t, t_0) + \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t G_A(t, t_1) V_F(t_1) G_A(t_1, t_0) dt_1. \quad (2.3.7)$$

La ecuación (2.3.7) describe la evolución cuántica como suma o superposición de dos situaciones: el primer término  $G_A(t, t_0)$  describe el caso en el que el electrón no interactúa con el campo externo durante todo el intervalo de tiempo desde el instante inicial  $t_0$  hasta  $t$ . El segundo término representa todas las posibilidades en las que el electrón evoluciona a partir de  $t_0$  bajo la única influencia del átomo hasta un tiempo  $t_1$  intermedio,  $G_A(t_1, t_0)$ , en el que tiene una interacción repentina con el campo (potencial  $V_F(t_1)$ ), para después evolucionar en algún estado excitado del átomo pero sin interactuar de nuevo con el campo externo,  $G_A(t, t_1)$ .

Segundo desdoblamiento: dispersión coulombiana del electrón libre en un campo EM. Ahora,  $\mathcal{H}_0 \equiv \mathcal{H}_F$  con  $\mathcal{H}_F = P^2/2m + V_F(t)$  el Hamiltoniano que describe al electrón libre interaccionando con un campo EM (con las ondas de Volkov como autoestados) y  $V_i \equiv V_C$  el potencial de Coulomb iónico que provoca el scattering de dicho electrón (independiente de  $t$ ). La expansión perturbativa a 1<sup>er</sup> orden queda

$$G(t, t_0) \approx G_F(t, t_0) + \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t G_F(t, t_1) V_C G_F(t_1, t_0) dt_1. \quad (2.3.8)$$

La evolución cuántica como suma de dos situaciones ahora se interpreta como sigue: el primer término  $G_F(t, t_0)$  describe la evolución del electrón en el campo sin redistribución (dispersión) durante todo el intervalo de tiempo desde  $t_0$  hasta  $t$ ; mientras que el segundo término da todas las posibilidades en las que el electrón es dispersado en algún momento intermedio<sup>12</sup>  $t_1$ .

<sup>12</sup>De hecho, en el marco de la teoría cuántica de scattering, se trata del primer término de la aproximación de Born de la dispersión de un electrón libre, con la diferencia de que en nuestro caso el electrón se encuentra oscilando en un campo EM.

### 2.3.2. Expansión SFA

La expansión perturbativa tiene sentido cuando el término de interacción  $V_i$  es pequeño. Sin embargo, como hemos visto, para despertar efectos no lineales en el sistema se necesitan campos intensos y este tratamiento deja de ser válido. Para definir nuestra aproximación de campo fuerte, representaremos el hecho de que el campo externo es intenso mezclando ambos desdoblamientos del Hamiltoniano total  $\mathcal{H}$  en la expansión a primer orden.

Partimos de la ecuación de Lippmann-Schwinger (2.3.3) usando el desdoblamiento  $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + V_i = \mathcal{H}_A + V_F(t)$ . Entonces

$$G(t, t_0) = G_A(t, t_0) + \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t G(t, t_1) V_F(t_1) G_A(t_1, t_0) dt_1. \quad (2.3.9)$$

Ahora, en vez de reemplazar la función de Green  $G(t, t_1)$  del integrando por la aproximación de orden cero  $G^{(0)}(t, t_1) = G_A(t, t_1)$ , utilizamos en su lugar el término de orden cero que correspondería al otro desdoblamiento  $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + V_i = \mathcal{H}_F + V_C(\mathbf{r})$ , luego

$$G(t, t_0) \approx G_A(t, t_0) + \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t G_F(t, t_1) V_F(t_1) G_A(t_1, t_0) dt_1. \quad (2.3.10)$$

Se trata del término a primer orden en la expansión SFA. La interpretación física en este caso es más interesante y guarda una mayor relación con la no linealidad inducida por una interacción fuerte. El primer término de la evolución cuántica (2.3.10) describe la situación en la que el electrón permanece en el átomo sin ninguna interacción con el campo externo; mientras que el segundo representa al electrón evolucionando en el átomo sin notar al campo EM hasta algún tiempo intermedio  $t_1$  en el que sufre una interacción con él. Tras esto, el electrón evoluciona como una partícula libre en el seno de dicho campo.

Como podemos ver, la principal aproximación que se ha introducido respecto de lo anterior es suponer que el electrón, una vez ionizado (arrancado del átomo), no vuelve a interactuar con el potencial coulombiano del ión; de ahí el nombre de aproximación de campo fuerte.

### 2.3.3. Función de onda SFA

Una vez tenemos definida la SFA para la función de Green, podemos aplicarla a la función de onda inicial  $|\Psi(t_0)\rangle$  para evolucionarla según (2.3.2). Por simplicidad, asumiremos que el estado inicial del electrón en el átomo es propio del Hamiltoniano atómico  $\mathcal{H}_A$ , por ejemplo el fundamental:  $|\Psi(t_0)\rangle \equiv |\phi_0\rangle$ . Entonces, aplicando (2.3.10),

$$\begin{aligned} |\Psi(t)\rangle_{SFA} &= iG(t, t_0)|\phi_0\rangle \\ &= iG_A(t, t_0)|\phi_0\rangle + \frac{i}{\hbar} \int_{t_0}^t G_F(t, t_1) V_F(t_1) G_A(t_1, t_0) |\phi_0\rangle dt_1 \\ &= |\phi_0(t)\rangle + |\delta\Psi(t)\rangle, \end{aligned} \quad (2.3.11)$$

donde hemos definido  $|\phi_0(t)\rangle \equiv iG_A(t, t_0)|\phi_0\rangle$  como la función de onda del estado inicial que evoluciona en el átomo sin interactuar con el campo EM y  $|\delta\Psi(t)\rangle$  la parte de la función de onda resultante de la interacción con el campo (función de onda ionizada).

Nuestro objetivo es entonces encontrar la forma explícita de las funciones de Green  $G_A$  y  $G_F$ . Pero esto ya lo hemos hecho en los apartados 2.2.1. y 2.2.2. Si recordamos la expresión (2.2.7), vemos que esta representa la evolución del electrón bajo la única influencia del potencial atómico. Comparando y despejando,

$$G_A(t, t_0) = -i \sum_{\nu} e^{-i\epsilon_{\nu}(t-t_0)/\hbar} |\phi_{\nu}\rangle \langle \phi_{\nu}|. \quad (2.3.12)$$

Luego, aplicando (2.3.12) al estado fundamental,

$$\begin{aligned} |\phi_0(t)\rangle &= iG_A(t, t_0)|\phi_0\rangle \\ &= i \left( -i \sum_{\nu} e^{-i\epsilon_{\nu}(t-t_0)/\hbar} |\phi_{\nu}\rangle \langle \phi_{\nu}| \right) |\phi_0\rangle \\ &= e^{-i\epsilon_0(t-t_0)/\hbar} |\phi_0\rangle \end{aligned} \quad (2.3.13)$$

con  $\epsilon_0$  la energía del estado fundamental del átomo hidrogenoide.

Recordando ahora (2.2.15) y despejando

$$G_F(t, t_0) = -i \int e^{iS(\mathbf{P}, t, t_0)/\hbar} |\mathbf{P}\rangle \langle \mathbf{P}| d\mathbf{P}. \quad (2.3.14)$$

Usando (2.3.14) junto con la definición de  $|\delta\Psi(t)\rangle$  en (2.3.11), obtenemos la función de onda ionizada

$$\begin{aligned} |\delta\Psi(t)\rangle &= \frac{i}{\hbar} \int_{t_0}^t \left[ -i \int e^{iS(\mathbf{P}, t, t_1)/\hbar} |\mathbf{P}\rangle \langle \mathbf{P}| d\mathbf{P} \right] V_F(t_1) [-ie^{-i\epsilon_0(t_1-t_0)/\hbar} |\phi_0\rangle] dt_1 \\ &= \int \left[ -\frac{i}{\hbar} \int_{t_0}^t e^{iS(\mathbf{P}, t, t_1)/\hbar} e^{-i\epsilon_0(t_1-t_0)/\hbar} \langle \mathbf{P}| V_F(t_1) |\phi_0\rangle dt_1 \right] |\mathbf{P}\rangle d\mathbf{P} \\ &= \int \Psi(\mathbf{P}, t) |\mathbf{P}\rangle d\mathbf{P}, \end{aligned} \quad (2.3.15)$$

donde hemos cambiado el orden de las integrales en el tiempo y en los momentos, y hemos definido la amplitud de probabilidad de cada onda de Volkov  $|\mathbf{P}\rangle$ ,  $\Psi(\mathbf{P}, t)$  (amplitudes SFA), que dependen del elemento de matriz del potencial de interacción con el campo externo entre estados fundamental atómico y de Volkov.

Si bien no tienen solución analítica, existen diferentes métodos para calcular numéricamente las amplitudes SFA definidas en (2.3.15). La integración directa no es un buen método, ya que tenemos dos integrales anidadas en el tiempo y en los momentos, y esto conlleva mucho tiempo de computación. En nuestro caso, optamos por hallar una ecuación diferencial cuya

solución sean precisamente las amplitudes SFA,  $\Psi(\mathbf{P}, t)$ , para después resolverla numéricamente; ver APÉNDICE B. La ecuación diferencial obtenida es

$$\boxed{\frac{d\Psi(\mathbf{P}, t)}{dt} = -i \frac{p(t)^2}{2m\hbar} \Psi(\mathbf{P}, t) - \frac{i}{\hbar} e^{-i\epsilon_0(t-t_0)/\hbar} \langle \mathbf{P} | V_F(t) | \phi_0 \rangle}. \quad (2.3.16)}$$

Vemos que se trata de un conjunto de ecuaciones diferenciales ordinarias desacopladas (una para cada onda de Volkov), que pueden integrarse fácilmente de forma numérica.

#### 2.3.4. Problemas que plantea la SFA

Una vez tenemos definidas las amplitudes SFA, podemos expresar la población ionizada como

$$\rho(t) = \int |\Psi(\mathbf{P}, t)|^2 d\mathbf{P}, \quad (2.3.17)$$

la cual presenta algunos inconvenientes. Por un lado, durante la evolución temporal, puede ocurrir que  $\rho(t) > 1$  (la función de onda puede dejar de estar normalizada), lo cual no tiene mucho sentido si entendemos (2.3.17) como una densidad de probabilidad. Para este problema de la ionización dependiente del tiempo no se ha encontrado una solución satisfactoria. Por otro lado, tras la interacción con el campo externo, la población ionizada se encuentra órdenes de magnitud por debajo de la esperada cuando se resuelve numéricamente la TDSE directamente. Estos dos problemas surgen de que lo que hemos hecho aquí no deja de ser una aproximación, en la que hemos ignorado los posibles efectos del potencial iónico una vez el electrón es ionizado por el campo. Esto puede solventarse introduciendo un factor de corrección multiplicativo (corrección coulombiana)  $C_F/r^n$  en el elemento de matriz del potencial de interacción con el campo EM que aparece en (2.3.15),

$$\left\langle \mathbf{P} \left| V_F(t) \frac{C_F}{r^n} \right| \phi_0 \right\rangle \quad \text{con} \quad C_F = \left( \frac{4|\epsilon_0|}{|q|E_0} \right)^n, \quad n = \sqrt{\frac{mZ^2q^4}{2\hbar^2|\epsilon_0|}}. \quad (2.3.18)$$

Siendo  $|\epsilon_0|$  la energía del estado fundamental del átomo en valor absoluto,  $q$  y  $m$  la carga y masa del electrón,  $Z$  el número atómico del átomo y  $E_0$  la amplitud del campo externo aplicado. Para el potencial  $V_F(t)$  usamos su forma en el gauge de velocidad dada por (2.2.4). Además, como solo depende del tiempo, puede salir de la integral del elemento de matriz, quedando solamente  $\langle \mathbf{P} | 1/r^n | \phi_0 \rangle$ . A  $n$  se le denomina número cuántico principal efectivo (nosotros trabajaremos con el átomo de hidrógeno para el que  $n = 1$ ).

Entonces, como para el átomo de H la función de onda del estado fundamental no tiene dependencia angular, solo radial:  $\phi_0(r) = e^{-r/a_0}/\sqrt{\pi}a_0^{3/2}$  ( $a_0 = \hbar^2/q^2m$  es el radio de Bohr); queda

$$\boxed{\langle \mathbf{P} | r^{-n} | \phi_0 \rangle = \frac{\sqrt{2}}{\pi} \left( \frac{1}{a_0} \right)^{3/2} \frac{1}{k^2 + (1/a_0)^2}}, \quad (2.3.19)$$

con  $\mathbf{k} \equiv \mathbf{P}/\hbar$  el momento reducido del electrón.

## 2.4. Enfoque SFA para la generación de armónicos de orden alto

En este último apartado del fundamento teórico, estableceremos la conexión entre la función de onda SFA obtenida que describe el comportamiento del electrón en el átomo de H y su dinámica, es decir, la aceleración que experimenta al interactuar con el campo intenso y el dipolo generado.

Para finalizar, a partir de la evolución temporal obtenida para la aceleración, podremos extraer también el espectro de armónicos de orden alto radiado por el electrón; mientras que la evolución temporal del dipolo nos permitirá conocer la susceptibilidad en función del tiempo.

### 2.4.1. Aceleración SFA

Cuando un campo eléctrico interactúa con los electrones atómicos, estos se aceleran. De acuerdo con la electrodinámica clásica, podemos obtener el campo generado por una carga puntual en movimiento a partir de los potenciales de Lienard-Wiechert. Este puede separarse en dos contribuciones: el campo de Coulomb generalizado o campo velocidad y el campo de radiación o campo aceleración. Nosotros estamos interesados en el campo lejano radiado que, en el caso no relativista, viene dado por

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{c^2} \frac{\mathbf{n} \times \mathbf{n} \times \mathbf{a}(t')}{R} \Bigg|_{t'=t-R/c} \quad (2.4.1)$$

con  $R$  la distancia del punto fuente (carga puntual) al punto campo,  $\mathbf{n}$  el vector unitario en la dirección de  $R$  y  $\mathbf{a}(t')$  la aceleración de la carga en el tiempo retardado  $t'$  (el campo EM no se propaga instantáneamente, la información viaja a la velocidad de la luz  $c$  en el vacío).

La potencia total instantánea radiada por la carga puntual acelerada puede obtenerse a partir del campo radiado (2.4.1) y viene dada por la fórmula de Larmor clásica (no relativista) en la que  $P_{rad} \propto a^2$ ,

$$P_{rad}(t) = \frac{2q^2}{3c^3} |\mathbf{a}(t)|^2. \quad (2.4.2)$$

Nuestro objetivo es entonces encontrar esta aceleración en el marco de la SFA para obtener la potencia radiada. Mientras que la ecuación (2.4.2) es clásica, cuánticamente la aceleración es un operador que actúa sobre la función de onda del electrón, de manera que su valor real en cualquier instante de tiempo es una cantidad indeterminada en torno a una media dada por el valor medio o esperado del operador. Podemos escribir esto como

$$\mathbf{a}(t) = \langle \hat{\mathbf{a}} \rangle(t) + \Delta \mathbf{a}(t), \quad (2.4.3)$$

donde  $\langle \hat{\mathbf{a}} \rangle(t) \equiv \langle \Psi(t) | \hat{\mathbf{a}} | \Psi(t) \rangle$  según la interpretación de Schrödinger y  $\Delta \mathbf{a}(t)$  representa las fluctuaciones cuánticas (cantidad aleatoria) que provienen del principio de incertidumbre de Heisenberg.

Si consideramos un conjunto  $N$  de átomos en un elemento de volumen microscópico del blanco o *target* sobre el que va a incidir el campo externo, entonces la potencia total instantánea radiada vendrá dada según (2.4.2) por

$$P_{rad}(t) \propto \left| \sum_{i=1}^N \langle \hat{\mathbf{a}}_i \rangle(t) + \sum_{i=1}^N \Delta \mathbf{a}_i(t) \right|^2. \quad (2.4.4)$$

Como las fluctuaciones son aleatorias para cada átomo, podemos suponer que su suma a todo el volumen es nula (no existen direcciones privilegiadas para los vectores  $\Delta \mathbf{a}_i$ ). Solamente contribuye a la radiación la parte *coherente* de la suma,

$$P_{rad}(t) \propto \left| \sum_{i=1}^N \langle \hat{\mathbf{a}}_i \rangle(t) \right|^2. \quad (2.4.5)$$

Por último, como el elemento de volumen considerado es microscópico, la dinámica de cada átomo es la misma para todos ellos (salvo las fluctuaciones), de manera que

$$P_{rad}(t) \propto N^2 |\langle \hat{\mathbf{a}} \rangle(t)|^2. \quad (2.4.6)$$

En lo que sigue, supondremos que solo el electrón más externo de cada átomo contribuye de manera efectiva a la radiación emitida y que su evolución es independiente del resto de electrones de los átomos contiguos; se trata de la aproximación de un solo electrón activo<sup>13</sup> o SAE (*Single Active Electron*).

Existen diferentes maneras de definir el valor esperado del operador aceleración,  $\langle \hat{\mathbf{a}} \rangle$ . Aquí usaremos la definición dada en términos del teorema de Ehrenfest<sup>14</sup> aplicado al operador momento  $\mathbf{P}$ :

$$\frac{d}{dt} \langle \mathbf{P} \rangle = -\frac{i}{\hbar} \langle [\mathbf{P}, \mathcal{H}] \rangle. \quad (2.4.7)$$

Usando que  $\mathcal{H} = P^2/2m + V_C(\mathbf{r}) + V_F(t)$  (en cualquiera de los dos gauges debe dar el mismo resultado) podemos calcular el conmutador en (2.4.7) de manera que

$$[\mathbf{P}, P^2/2m] = 0 \quad [\mathbf{P}, V_C(\mathbf{r})] = -i\hbar \nabla V_C(\mathbf{r}) \quad [\mathbf{P}, V_F(t)] = i\hbar q \mathbf{E}(t). \quad (2.4.8)$$

Llevando los resultados (2.4.8) a (2.4.7) tenemos que

$$\frac{d}{dt} \langle \mathbf{P} \rangle = -\langle \nabla V_C(\mathbf{r}) \rangle + q \mathbf{E}(t), \quad (2.4.9)$$

<sup>13</sup>Aunque es importante introducir la aproximación SAE para la deducción teórica que se expone, en nuestro caso práctico no es necesario puesto que estudiaremos un único átomo de H con un solo electrón en su capa de valencia.

<sup>14</sup>El teorema de Ehrenfest da la variación temporal del valor esperado de un operador cuántico cualquiera  $\hat{Q}$  en términos del valor esperado del conmutador con el Hamiltoniano del sistema más el valor esperado de su variación temporal:  $d\langle \hat{Q} \rangle/dt = i\langle [\hat{Q}, \mathcal{H}] \rangle/\hbar + \langle \partial \hat{Q} / \partial t \rangle$ . En el caso de que el operador no dependa explícitamente del tiempo, el segundo término es nulo y solo queda el conmutador con  $\mathcal{H}$ . Si además conmuta con el Hamiltoniano, entonces  $d\langle \hat{Q} \rangle/dt = 0$  y  $\langle \hat{Q} \rangle$  es una cantidad conservada por el sistema.

donde se aprecia la analogía con la segunda ley de Newton clásica. Usando que la derivada del momento es la fuerza, la aceleración viene dada entonces por

$$\langle \hat{\mathbf{a}} \rangle(t) = -\frac{\langle \nabla V_C(\mathbf{r}) \rangle}{m} + \frac{q \mathbf{E}(t)}{m}. \quad (2.4.10)$$

El inconveniente de esta expresión para el operador aceleración es que requiere un conocimiento detallado del potencial coulombiano, el cual no siempre es posible.

Una vez sabemos cómo calcular el valor medio de la aceleración, podemos regresar al marco de la SFA para ver qué forma toma usando las amplitudes de probabilidad SFA definidas anteriormente.

Retomamos la separación de la función de onda SFA dada en la ecuación (2.3.11). Entonces, el valor esperado de la aceleración entre estos estados es

$$\begin{aligned} \langle \hat{\mathbf{a}} \rangle(t) &= {}_{SFA} \langle \Psi(t) | \hat{\mathbf{a}} | \Psi(t) \rangle_{SFA} \\ &= \left( \langle \phi_0(t) | + \langle \delta \Psi(t) | \right) \hat{\mathbf{a}} \left( | \phi_0(t) \rangle + | \delta \Psi(t) \rangle \right) \\ &= \langle \phi_0(t) | \hat{\mathbf{a}} | \phi_0(t) \rangle + \langle \phi_0(t) | \hat{\mathbf{a}} | \delta \Psi(t) \rangle + \langle \delta \Psi(t) | \hat{\mathbf{a}} | \phi_0(t) \rangle + \langle \delta \Psi(t) | \hat{\mathbf{a}} | \delta \Psi(t) \rangle \\ &= \langle \phi_0(t) | \hat{\mathbf{a}} | \phi_0(t) \rangle + \langle \delta \Psi(t) | \hat{\mathbf{a}} | \delta \Psi(t) \rangle + 2 \operatorname{Re} \left[ \langle \phi_0(t) | \hat{\mathbf{a}} | \delta \Psi(t) \rangle \right]. \end{aligned} \quad (2.4.11)$$

Si estamos interesados en la emisión de armónicos de orden alto (alta frecuencia), la energía proporcionada a los electrones por parte del campo externo debe ser mayor que el potencial de ionización, por lo que el primer término en (2.4.11) no es relevante (además, al considerar el estado atómico fundamental, dicho término es nulo por argumentos de paridad). Lo mismo ocurre con el segundo término que puede interpretarse como la contribución a la emisión de radiación por parte de las transiciones entre estados ionizados (estados del continuo). La parte relevante para los armónicos de orden alto son entonces las emisiones radiativas debidas a transiciones entre los estados ligados y los ionizados,

$$\langle \hat{\mathbf{a}} \rangle(t) \simeq 2 \operatorname{Re} \left[ \langle \phi_0(t) | \hat{\mathbf{a}} | \delta \Psi(t) \rangle \right]. \quad (2.4.12)$$

Luego, dentro del enfoque SFA, la aceleración media  $\langle \hat{\mathbf{a}} \rangle(t)$  corresponde al doble de la parte real de la siguiente aceleración compleja:

$$\tilde{\mathbf{a}}(t) = \frac{1}{m} \langle \phi_0(t) | (-\nabla V_C) | \delta \Psi(t) \rangle + \frac{q}{m} \mathbf{E}(t). \quad (2.4.13)$$

Siguiendo la definición que hicimos en (2.3.15) para las amplitudes SFA, podemos descomponer la aceleración (2.4.13) en una suma o superposición de contribuciones independientes, una por cada onda de Volkov,

$$\tilde{\mathbf{a}}(t) = \int \tilde{\mathbf{a}}(\mathbf{P}, t) d\mathbf{P} + \frac{q}{m} \mathbf{E}(t). \quad (2.4.14)$$

Donde, usando (2.3.13), hemos definido

$$\tilde{\mathbf{a}}(\mathbf{P}, t) = \frac{1}{m} \langle \phi_0 | (-\nabla V_C) | \mathbf{P} \rangle e^{i\epsilon_0(t-t_0)/\hbar} \Psi(\mathbf{P}, t). \quad (2.4.15)$$

Para el átomo de H, las componentes del elemento de matriz en (2.4.15) vienen dadas por

$$\langle \mathbf{P} | (-\nabla_i V_C) | \phi_0 \rangle = ie^2 \frac{\sqrt{2}}{\pi} \left( \frac{1}{a_0} \right)^{3/2} \frac{k_i}{k^2} \left( 1 - \frac{\arctan(ka_0)}{ka_0} \right), \quad (2.4.16)$$

donde  $\nabla_i \equiv \partial/\partial x_i$  con  $i = x, y, z$  en coordenadas cartesianas.

### 2.4.2. Radiación y espectro de armónicos

Conocida la aceleración en el contexto de la SFA, es posible obtener el espectro de radiación o espectro de armónicos emitido por los electrones cuando interactúan con el campo externo intenso. Este espectro no es más que la potencia radiada en un intervalo de frecuencias  $\Delta\omega$  dado, por lo que basta calcular la transformada de Fourier (FT) de la aceleración definida en el tiempo. Si consideramos la aceleración  $\mathbf{a}(t)$  como una variable discreta, tenemos que

$$\mathbf{a}(t) = \sum_{\omega} \mathbf{a}(\omega) e^{-i\omega t}; \quad (2.4.17)$$

se trata de la DFT (*Discrete Fourier Transform*) inversa. Llevando (2.4.17) a la fórmula de Larmor (2.4.2),

$$\begin{aligned} P_{rad}(t) &= \frac{2q^2}{3c^3} \left| \sum_{\omega} \mathbf{a}(\omega) e^{-i\omega t} \right|^2 \\ &= \frac{2q^2}{3c^3} \left( \sum_{\omega} \mathbf{a}(\omega) e^{-i\omega t} \right) \left( \sum_{\omega'} \mathbf{a}^*(\omega') e^{i\omega' t} \right) \\ &= \frac{2q^2}{3c^3} \sum_{\omega, \omega'} \mathbf{a}^*(\omega') \mathbf{a}(\omega) e^{-i(\omega - \omega')t}. \end{aligned} \quad (2.4.18)$$

Hallemos la potencia media radiada, es decir, hagamos el promedio temporal de (2.4.18):  $\langle P_{rad} \rangle = \frac{1}{T} \int_0^T P_{rad}(t) dt$ , donde  $T$  representa un ciclo o periodo del campo eléctrico incidente. Como la dependencia temporal solo aparece en la exponencial compleja, basta hacer el promedio de este factor. Además, al tener la diferencia de frecuencias  $\omega - \omega'$ , debemos distinguir dos casos. Si  $\omega = \omega'$  el promedio de dicho factor da uno, mientras que si  $\omega \neq \omega'$  es nulo. Esto quiere decir que en el sumatorio doble solo queda el término para el que  $\omega = \omega'$ :

$$\langle P_{rad} \rangle = \frac{4q^2}{3c^3} \sum_{\omega} \mathbf{a}^*(\omega) \mathbf{a}(\omega) = \frac{4q^2}{3c^3} \sum_{\omega} |\mathbf{a}(\omega)|^2. \quad (2.4.19)$$

Podemos definir finalmente

$$P_{rad}(\omega) = \frac{4q^2}{3c^3} |\mathbf{a}(\omega)|^2, \quad (2.4.20)$$

la potencia radiada en el dominio de la frecuencia, que queda de nuevo proporcional al cuadrado de la aceleración. La expresión (2.4.20) nos da el espectro de radiación (normalmente se ignoran los factores constantes y se considera el espectro de radiación equivalente al espectro de la aceleración).

Precisamente, esta expresión será la que nos dé el espectro de armónicos típico de la interacción con láseres intensos visto en la Figura 3 con la zona perturbativa, la meseta correspondiente al proceso HHG y la frecuencia de corte o *cut-off*.

### 2.4.3. Dipolo SFA

De la misma manera, cuando el campo eléctrico intenso interacciona con los electrones atómicos, induce un dipolo o momento dipolar. Si consideramos directamente el átomo de H, el dipolo será una magnitud vectorial  $\boldsymbol{\mu}$  dada por el producto escalar de la carga del electrón por la distancia al núcleo. Si esta distancia varía a lo largo del tiempo, el dipolo también lo hará. Supongamos que el campo eléctrico está polarizado linealmente en la dirección del eje  $z$ , por lo que el desplazamiento solamente tiene lugar en esta dirección. Entonces

$$\boldsymbol{\mu}(t) = -e z(t) \hat{\mathbf{u}}_z. \quad (2.4.21)$$

Igual que con la aceleración, nuestro objetivo es hallar el dipolo en el contexto SFA. Cuánticamente, el dipolo será un operador y su valor esperado vendrá dado por el elemento de matriz entre autoestados del electrón (función de onda). Suponiendo de nuevo que las fluctuaciones dadas por el principio de incertidumbre de este valor medio se anulan al hacer la suma a todo el volumen, podemos escribir, usando (2.4.21), que

$$\mu(t) = \langle \hat{\mu} \rangle(t) = -e \langle \Psi(t) | \hat{z} | \Psi(t) \rangle, \quad (2.4.22)$$

con  $\hat{z}$  el operador posición en la coordenada  $z$ . Si se tratara de otro átomo distinto del de hidrógeno, se aplicaría también la aproximación SAE, es decir, solo el electrón más externo de cada átomo hidrogenoide contribuye de manera efectiva al dipolo y su evolución es independiente del resto de electrones (el estudio de efectos multielectrónicos queda fuera de los objetivos de este trabajo).

Usando la separación de la función de onda SFA (2.3.11), el valor esperado (2.4.22) queda

$$\begin{aligned} \langle \hat{z} \rangle(t) &= {}_{SFA} \langle \Psi(t) | \hat{z} | \Psi(t) \rangle_{SFA} \\ &= \langle \phi_0(t) | \hat{z} | \phi_0(t) \rangle + \langle \delta \Psi(t) | \hat{z} | \delta \Psi(t) \rangle + 2 \operatorname{Re} [\langle \phi_0(t) | \hat{z} | \delta \Psi(t) \rangle]. \end{aligned} \quad (2.4.23)$$

El primer término vuelve a ser cero por la paridad de la función de onda del estado fundamental, y el segundo hace referencia al dipolo entre estados ionizados del continuo, por lo que nos quedamos solo con el último término:  $\langle \hat{\mu} \rangle(t) = -e \langle \hat{z} \rangle(t) \simeq -e 2 \operatorname{Re} [\langle \phi_0(t) | \hat{z} | \delta \Psi(t) \rangle]$ . Entonces, en el marco de la SFA, el valor medio de  $\langle \hat{z} \rangle(t)$  es el doble de la parte real de la siguiente cantidad compleja

$$\tilde{z}(t) = \langle \phi_0(t) | \hat{z} | \delta \Psi(t) \rangle. \quad (2.4.24)$$

Siguiendo la definición (2.3.15) para las amplitudes SFA, podemos descomponer (2.4.24) en las contribuciones de cada onda de Volkov,

$$\tilde{z}(t) = \int \tilde{z}(\mathbf{P}, t) d\mathbf{P}; \quad (2.4.25)$$

donde, usando (2.3.13), definimos

$$\tilde{z}(\mathbf{P}, t) = \langle \phi_0 | z | \mathbf{P} \rangle e^{i\epsilon_0(t-t_0)/\hbar} \Psi(\mathbf{P}, t). \quad (2.4.26)$$

Conocemos el resultado del producto de estados  $\langle \mathbf{P} | \phi_0 \rangle$ , y necesitamos  $\langle \mathbf{P} | z | \phi_0 \rangle$  (más concretamente su complejo-conjugado tal y como aparece en (2.4.26)). Dado que el estado  $|\mathbf{P}\rangle$  va como una onda plana,  $|\mathbf{P}\rangle \sim e^{\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ , podemos usar que

$$\langle \mathbf{P} | z | \phi_0 \rangle = i \frac{\partial}{\partial k_z} \langle \mathbf{P} | \phi_0 \rangle \quad \text{con} \quad \langle \mathbf{P} | \phi_0 \rangle = \frac{1}{\pi} \left( \frac{2a_0}{Z} \right)^{3/2} \frac{1}{[1 + (ka_0/Z)^2]^2}. \quad (2.4.27)$$

Finalmente, particularizando en (2.4.27) para el átomo de hidrógeno, el elemento de matriz en (2.4.26) es

$$\langle \mathbf{P} | z | \phi_0 \rangle = -i \frac{(2a_0)^{7/2}}{\pi} \frac{k_z}{[1 + (ka_0)^2]^3}. \quad (2.4.28)$$

### 3. Desarrollo y Análisis de los Resultados

En primer lugar, en esta sección comenzaremos presentando el sistema de unidades en el que trabajaremos en adelante. Por convención y simplicidad, emplearemos el sistema de unidades atómicas para las simulaciones (a.u., *atomic units*<sup>15</sup>), de manera que tendremos que manipular las expresiones introducidas en el fundamento teórico (expresiones recuadradas). Del mismo modo, todos los resultados se obtendrán también en estas unidades, especificando siempre que sea necesario la equivalencia en el SI. Seguidamente, introduciremos la expresión del campo eléctrico que caracterizará nuestro pulso láser intenso. Este constituirá siempre el punto de partida para estudiar la respuesta del átomo de hidrógeno durante la interacción.

Podemos dividir nuestro estudio dentro de la aproximación SFA en dos grandes bloques. En el primero, nos centraremos en obtener la aceleración que experimenta el electrón del átomo de hidrógeno como consecuencia del campo externo. Con ella, procederemos a estudiar el espectro de armónicos radiado y su evolución temporal a través de un análisis tiempo-frecuencia. En el segundo bloque, partiremos del dipolo inducido en el mismo átomo como consecuencia del pulso para extraer la evolución temporal de su susceptibilidad eléctrica, objetivo final del presente trabajo.

A lo largo de todo este desarrollo, iremos comparando simultáneamente con los resultados proporcionados con la resolución numérica de la TDSE directamente.

Introducimos primeramente las unidades atómicas bajo las que trabajaremos en la simulación. En este sistema natural de unidades, seis magnitudes físicas se hacen igual a la unidad: longitud (radio de Bohr,  $a_0 = 1$ ), masa (la del electrón,  $m_e = 1$ ), carga eléctrica (también la del electrón  $e = -1$ ), momento angular (es decir, la constante reducida de Planck,  $\hbar = 1$ ), energía (es la denominada energía de Hartree, se define como  $E_h = \hbar^2/m_e a_0^2$ , luego  $E_h = 1$ ) y constante de fuerza electrostática ( $1/4\pi\epsilon_0 = 1$ ). En realidad, basta considerar cuatro de estas magnitudes iguales a la unidad, saliendo las otras dos de manera automática. Como consecuencia, en unidades atómicas tenemos que  $c = 137.037$  para la velocidad de la luz en el vacío (coincide con el inverso de la constante de estructura fina). Para poder hacer las conversiones entre el sistema de unidades atómicas y el sistema internacional de unidades, damos en el Cuadro 1 el valor de estas constantes fundamentales en el SI:

| Magnitud física    | Valor en el SI                                      |
|--------------------|---|
| $a_0$              | $5.2918 \cdot 10^{-11}$ m                           |
| $m_e$              | $9.1094 \cdot 10^{-31}$ kg                          |
| $e$                | $-1.6022 \cdot 10^{-19}$ C                          |
| $\hbar$            | $1.0546 \cdot 10^{-34}$ Js                          |
| $E_h$              | $4.3597 \cdot 10^{-18}$ J                           |
| $1/4\pi\epsilon_0$ | $8.9876 \cdot 10^9$ Nm <sup>2</sup> /C <sup>2</sup> |

Cuadro 1: Magnitudes físicas fundamentales.

<sup>15</sup>Concretamente, el sistema natural de unidades que usamos aquí son las unidades atómicas de Hartree. Denotaremos abreviadamente como a.u. (no confundir con la abreviatura para unidades arbitrarias, arb.u.).

### 3.1. Pulso láser

La expresión para el campo eléctrico escalar (eliminamos el carácter vectorial del campo ya que suponemos polarizado linealmente en la dirección del eje  $z$ , es decir,  $\mathbf{E}(t) \parallel \hat{\mathbf{u}}_z$ ) del pulso láser intenso que usaremos viene dada por

$$E(t) = E_0 \sin^2\left(\frac{\pi t}{T_{max}}\right) \sin(\omega_0 t) \quad 0 \leq t \leq T_{max}, \quad (3.1.1)$$

de manera que la onda portadora  $\sin(\omega_0 t)$  se encuentra modulada por una envolvente de la forma  $\sin^2(\pi t/T_{max})$ . El parámetro  $T_{max}$  representa el tiempo de duración del pulso,  $\omega_0$  es la frecuencia de la portadora (frecuencia central del pulso) y  $E_0$  la amplitud del campo. La ventaja de usar una envolvente de tipo seno cuadrado es que nos aseguramos de que antes y después del pulso este se hace completamente cero.

A partir del campo eléctrico (3.1.1) se obtiene el vector potencial asociado integrando en el tiempo,  $A(t) = -c \int_0^t E(\tau) d\tau$ . En este caso es posible tanto la integración numérica como la analítica. En nuestro caso hemos optado por la forma analítica para ahorrar tiempo de cálculo y no propagar errores derivados de la aproximación numérica:

$$A(t) = cE_0 \frac{\pi T_{max} \omega_0 \sin\left(\frac{2\pi t}{T_{max}}\right) \sin(\omega_0 t) + \left[2\pi^2 - \left(T_{max} \omega_0 \sin\left(\frac{\pi t}{T_{max}}\right)\right)^2\right] \cos(\omega_0 t) - 2\pi^2}{T_{max}^2 \omega_0^2 - 2\pi^2 \omega_0}. \quad (3.1.2)$$

En lo que sigue, usaremos estas expresiones para  $E(t)$  y  $A(t)$ , aunque estudiaremos qué ocurre para diferentes valores de la amplitud del campo eléctrico  $E_0$ . En otras palabras, veremos la dependencia en la respuesta del átomo de H con la intensidad del campo externo (no linealidad),  $I_0 = \varepsilon_0 c |E_0|^2 / 2$  ( $I_0 = |E_0|^2$  en unidades atómicas). Además, exploraremos también la posibilidad de cambiar la forma de la onda portadora de tipo seno a coseno, o lo que es equivalente, introducir un desfase envolvente-portadora (CEP, *Carrier-Envelope Phase*) de  $\pi/2$ :  $\sin(\omega_0 t + \pi/2) = \cos(\omega_0 t)$ .

## 3.2. Emisión de armónicos: aproximación SFA

### 3.2.1. Ecuaciones y parámetros de simulación

Reescribimos primeramente la ecuación diferencial (2.3.16) de la evolución de la función de onda SFA del electrón el átomo de H en unidades atómicas. Sustituimos ya el momento cinético  $p(t)$  por su expresión (2.2.3) en el gauge de velocidad:

$$\frac{d\Psi(\mathbf{P}, t)}{dt} = -\frac{i}{2} \left( \mathbf{P} + \frac{\mathbf{A}(t)}{c} \right)^2 \Psi(\mathbf{P}, t) - i e^{it/2} \langle \mathbf{P} | V_F(t) \frac{C_F}{r^n} | \phi_0 \rangle. \quad (3.2.1)$$

Hemos usado que  $\epsilon_0 = -0.5$  a.u. para la energía del estado fundamental del átomo de hidrógeno. Recordamos que  $n = 1$  para dicho átomo según lo visto en (2.3.18). Además, siempre tomaremos el origen de tiempos en  $t_0 = 0$  (comienzo del pulso).

Como el potencial de interacción  $V_F(t)$  solo depende del tiempo, podemos sacarlo fuera del elemento de matriz, así como la constante  $C_F$  de la corrección coulombiana vista en (2.3.18). Recordando la forma del potencial de interacción (2.2.4), la expresión (2.3.19) para el elemento de matriz  $\langle \mathbf{P} | r^{-n} | \phi_0 \rangle$  y escribiendo todo en unidades atómicas (en estas unidades el momento canónico  $\mathbf{P}$  y el reducido  $\mathbf{k}$  son equivalentes), tenemos

$$\langle \mathbf{P} | V_F(t) \frac{C_F}{r^n} | \phi_0 \rangle = \left[ \frac{\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{P}}{c} + \frac{A(t)^2}{2c^2} \right] \cdot \frac{2\sqrt{2}}{\pi E_0} \frac{1}{P^2 + 1}. \quad (3.2.2)$$

Como hemos visto anteriormente, la función de onda del estado fundamental del átomo de H solo tiene dependencia radial en coordenadas esféricas,  $\phi_0(r)$ . Por otro lado, hemos escogido el campo eléctrico del pulso linealmente polarizado a lo largo del eje  $z$ , con lo que  $\mathbf{E}(t), \mathbf{A}(t) \parallel \hat{\mathbf{u}}_z$ . Aprovechando que nuestro sistema es centrosimétrico, una buena opción es usar la simetría cilíndrica  $(\rho, \varphi, z)$  para resolver el problema, dado que todo es isótropo en la dirección azimutal (simetría  $2\pi$ ) tal y como se esquematiza en la Figura 5. Entonces, los vectores tendrán solamente componentes en la dirección radial  $\rho$  y del eje  $z$ :  $\mathbf{p}(t) = (p_\rho, 0, p_z) = (P_\rho, 0, P_z + A(t)/c)$ , usando de nuevo (2.2.3); mientras que para el módulo cuadrado tenemos  $p(t)^2 = p_\rho^2 + p_z^2$ . Sustituyendo en (3.2.1) y (3.2.2) obtenemos la ecuación diferencial final a implementar en el código (ver APÉNDICE C)

$$\boxed{\frac{d\Psi(\mathbf{P}, t)}{dt} = -\frac{i}{2} \left[ P_\rho^2 + \left( P_z + \frac{A(t)}{c} \right)^2 \right] \Psi(\mathbf{P}, t) - i \frac{e^{it/2}}{\pi E_0} \left[ \frac{A(t) \cdot P_z}{c} + \frac{A(t)^2}{2c^2} \right] \frac{2\sqrt{2}}{P_\rho^2 + P_z^2 + 1}}. \quad (3.2.3)$$

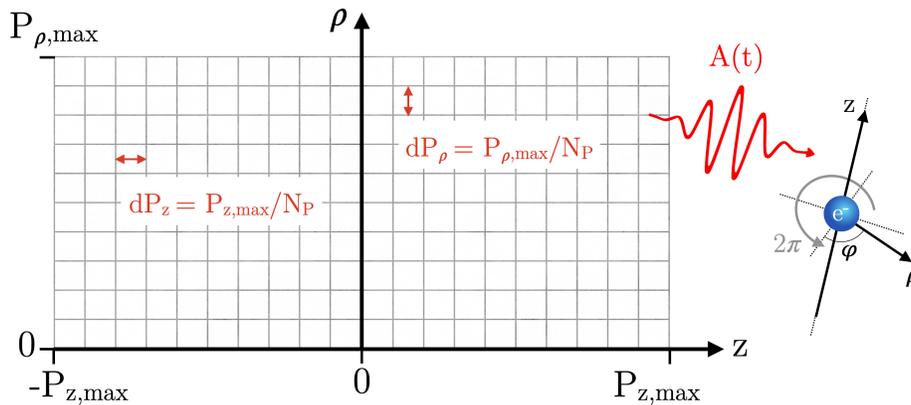


Figura 5: Mallado del espacio de momentos en las direcciones radial  $\rho$  y axial  $z$ . Por cada pareja de puntos  $(P_\rho, P_z)$  en el espacio de momentos tendremos un valor de la función de onda SFA del electrón  $\Psi(\mathbf{P}, t)$  evolucionada en el tiempo. No consideramos la coordenada acimutal  $\varphi$  por ser el problema isótropo en ella (campo linealmente polarizado en  $z$ ).

Resolveremos la ecuación (3.2.3) numéricamente con el método de **Runge-Kutta de orden 4 (RK4)**. Para usar este método iterativo, discretizamos el tiempo según  $t_i = i dt$  con  $dt = T_{max}/N_t$  el paso temporal definido por el número de puntos  $N_t$  usado ( $i = 1, \dots, N_t$ ). Con esto, podemos resolver una ecuación diferencial ordinaria del tipo  $dy(t)/dt = f(t, y(t))$  con la condición inicial  $y_0 = y(t_0)$  según la siguiente fórmula recursiva:

$$\begin{cases} k_1 = f(t_i, y_i) \\ k_2 = f(t_i + dt/2, y_i + k_1 dt/2) \\ k_3 = f(t_i + dt/2, y_i + k_2 dt/2) \\ k_4 = f(t_i + dt, y_i + k_3 dt) \end{cases} \implies y_{i+1} = y_i + (k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4) \frac{dt}{6}. \quad (3.2.4)$$

En nuestro caso, identificamos la función  $y(t)$  con la función de onda SFA,  $\Psi(\mathbf{P}, t)$ , y la función  $f(t, y(t))$  con todo el segundo miembro de (3.2.3) (vemos que tenemos una dependencia adicional en los momentos).

**Parámetros de simulación:** para la discretización del tiempo usamos  $N_t = 4096$  puntos (conviene usar una potencia de dos para tratar más adelante con las transformadas de Fourier discretas). Mientras que para el espacio de momentos definimos un mallado de la forma  $P_\rho \in [0, P_{\rho, max}]$  y  $P_z \in [-P_{z, max}, P_{z, max}]$ , y tomamos  $P_{\rho, max} = P_{z, max} = 3$ . Usamos un número de puntos  $N_P = 300$  para las dos coordenadas radial y axial (Figura 5).

Una vez obtenida la función de onda SFA  $\Psi(\mathbf{P}, t)$  a partir de la solución de (3.2.3), podemos obtener las contribuciones a la aceleración SFA total,  $\tilde{\mathbf{a}}(t)$ , de cada onda de Volkov  $\tilde{\mathbf{a}}(\mathbf{P}, t)$ . Usando de nuevo que  $\epsilon_0 = -0.5$  a.u. para la energía del estado fundamental del átomo de H y que  $t_0 = 0$ , escribimos la ecuación (2.4.15) en unidades atómicas y eliminamos el carácter vectorial (la aceleración también tendrá componente solamente en la dirección del eje  $z$ ):

$$\tilde{a}(\mathbf{P}, t) = \langle \phi_0 | -\partial V_C / \partial z | \mathbf{P} \rangle e^{-it/2} \Psi(\mathbf{P}, t), \quad (3.2.5)$$

done hemos sustituido el gradiente en el elemento de matriz por la derivada parcial respecto de la coordenada  $z$  directamente. La aceleración SFA (2.4.14) queda entonces

$$\tilde{a}(t) = \int \tilde{a}(\mathbf{P}, t) d\mathbf{P} - E(t). \quad (3.2.6)$$

Mientras que el elemento de matriz (2.4.16) toma la forma

$$\langle \mathbf{P} | -\partial V_C / \partial z | \phi_0 \rangle = i \frac{\sqrt{2}}{\pi} \frac{P_z}{P_\rho^2 + P_z^2} \left( 1 - \frac{\arctan(\sqrt{P_\rho^2 + P_z^2})}{\sqrt{P_\rho^2 + P_z^2}} \right). \quad (3.2.7)$$

Numéricamente, la integral en el espacio de momentos en (3.2.6) se convierte en un sumatorio doble para los momentos  $P_\rho$  y  $P_z$ , desde 0 hasta  $P_{\rho,max}$  y desde  $-P_{z,max}$  hasta  $P_{z,max}$  respectivamente. Además, en coordenadas cilíndricas, el diferencial de volumen en el espacio de momentos viene dado por  $d\mathbf{P} = 2\pi P_\rho dP_\rho dP_z$  (integrando en  $d\varphi$ ). Finalmente, la aceleración SFA vendrá dada por la parte real de la expresión

$$\tilde{a}(t) = -i \frac{2\sqrt{2}}{\pi} e^{-it/2} \left[ \sum_{P_\rho} \sum_{P_z} \Psi(\mathbf{P}, t) \left( 1 - \frac{\arctan(\sqrt{P_\rho^2 + P_z^2})}{\sqrt{P_\rho^2 + P_z^2}} \right) \frac{P_z \cdot 2\pi P_\rho dP_\rho dP_z}{P_\rho^2 + P_z^2} \right] - E(t). \quad (3.2.8)$$

**Parámetros de simulación del pulso láser:** en este primer bloque centrado en el proceso HHG, trabajaremos con cuatro ciclos completos de la onda portadora, por lo que la duración del pulso será  $T_{max} = 4T$ , con  $T = 2\pi/\omega_0$  el periodo del campo eléctrico. Simularemos con láser emitiendo en el infrarrojo cercano (NIR, *near-infrared*), con una longitud de onda central de  $\lambda = 800$  nm. Esto implica una frecuencia central asociada de  $\omega_0 = 2.36 \cdot 10^{15}$  rad/s, o  $\omega_0 = 0.057$  a.u. en unidades atómicas<sup>16</sup>. El periodo de la portadora es de 110.23 a.u., equivalente a unos 2.67 fs<sup>17</sup>, lo que implica una duración total del pulso de 10.68 fs aproximadamente (440.93 a.u.).

Para la amplitud del campo eléctrico intenso tomamos  $E_0 = 0.067$  a.u., equivalente a  $3.45 \cdot 10^{10}$  V/m<sup>18</sup>. Esto implica una intensidad o irradiancia de  $I_0 = 1.58 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> = 158 TW/cm<sup>2</sup> (0.025 a.u.<sup>19</sup>). En base a este valor de la amplitud  $E_0$ , simularemos también para valores  $E_0/\sqrt{2}$ ,  $E_0/\sqrt{3}$  y  $E_0/2$ . En total, estudiaremos la emisión de armónicos para cuatro valores de intensidad del campo incidente  $I_0 = 158$  TW/cm<sup>2</sup>,  $I_0/2 = 79$  TW/cm<sup>2</sup>,  $I_0/3 = 52.7$  TW/cm<sup>2</sup> y  $I_0/4 = 39.5$  TW/cm<sup>2</sup>.

En la Figura 6 se muestra tanto la forma del pulso (3.1.1) como la del vector potencial (3.1.2) obtenido a partir de la integración del campo para las cuatro amplitudes y ambos tipos de onda portadora.

<sup>16</sup>Por un lado, tenemos que  $\omega_0 = 2\pi c/\lambda$ . En unidades atómicas, la unidad de longitud viene dada por  $a_0 = 1$ ; normalizando la longitud de onda al valor del radio de Bohr (Cuadro 1), tenemos que  $\lambda = 15094.3 a_0$ . Entonces  $\omega_0 = 2\pi \cdot 137.037/15094.3 = 0.057$  a.u.

<sup>17</sup>La equivalencia para la unidad atómica de tiempo viene dada por  $\hbar/E_h = 2.4189 \cdot 10^{-17}$  s.

<sup>18</sup>Las unidades de la amplitud de campo eléctrico son  $[E_0] = \text{V/m} = \text{J}/(\text{C} \cdot \text{m})$ . Entonces, usando los valores del Cuadro 1, tenemos que  $E_0 = 0.067 \cdot E_h/(a_0 \cdot |e|) = 3.45 \cdot 10^{10}$  V/m. De manera general, la equivalencia para la unidad atómica de campo eléctrico viene dada por  $E_h/(a_0|e|) = 5.1422 \cdot 10^{11}$  V/m.

<sup>19</sup>La equivalencia para la unidad atómica de irradiancia viene dada por  $E_h^2/(a_0^2\hbar) = 6.4364 \cdot 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>.

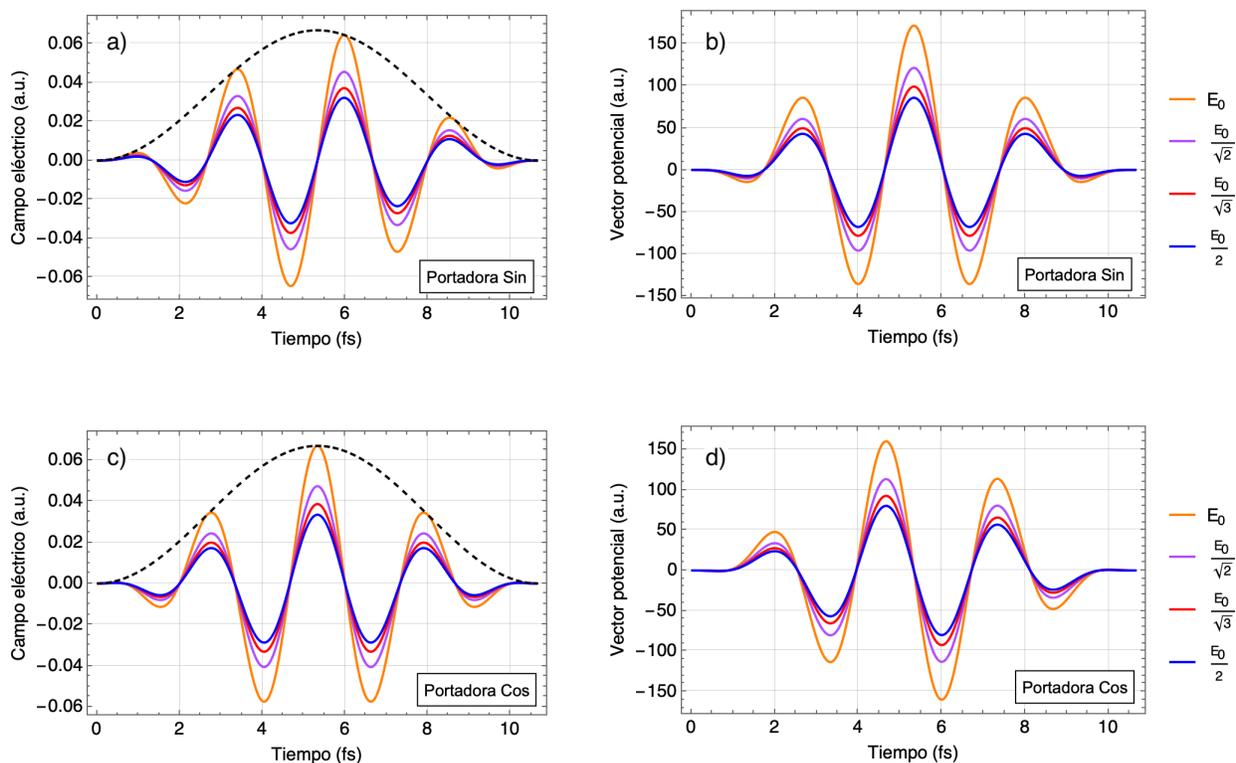


Figura 6: Campos eléctricos del pulso láser y vector potencial asociados usados para la simulación, para los cuatro valores de intensidad. **a)** Campo eléctrico con onda portadora tipo seno. Distinguimos la forma de la envolvente para el campo de mayor amplitud (línea discontinua) con cuatro oscilaciones completas de la portadora (línea continua). | **b)** Vector potencial asociado al campo eléctrico del pulso con onda portadora tipo seno. | **c)** Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno. | **d)** Vector potencial asociado al campo eléctrico del pulso con onda portadora tipo coseno.

### 3.2.2. Aceleración SFA

Una vez resueltas numéricamente las ecuaciones (3.2.3) y (3.2.8) con el código incluido en el APÉNDICE C para todos los casos, obtenemos las aceleraciones SFA  $a(t)$  mostradas en la Figura 7 (parte real de la aceleración compleja  $\tilde{a}(t)$ ).

Además, tal y como se muestra en la Figura 8, hemos llevado a cabo otra simulación con una duración total de seis ciclos completos del campo eléctrico, de manera que podemos apreciar cómo el electrón continúa oscilando en el átomo de H aún cuando el campo se hace cero tras el tiempo  $4T$  (ver imagen ampliada de la esquina superior derecha en la Figura 8). Si bien el orden de magnitud de estas oscilaciones es mucho menor, a la hora de manipular la aceleración deberemos tenerlo en cuenta, filtrando de alguna manera la cola oscilante para no considerar esta emisión de fluorescencia (durante la interacción con campo el electrón no solo se acelera sino que almacena energía, liberándola posteriormente tras la finalización del pulso y emitiendo radiación EM).

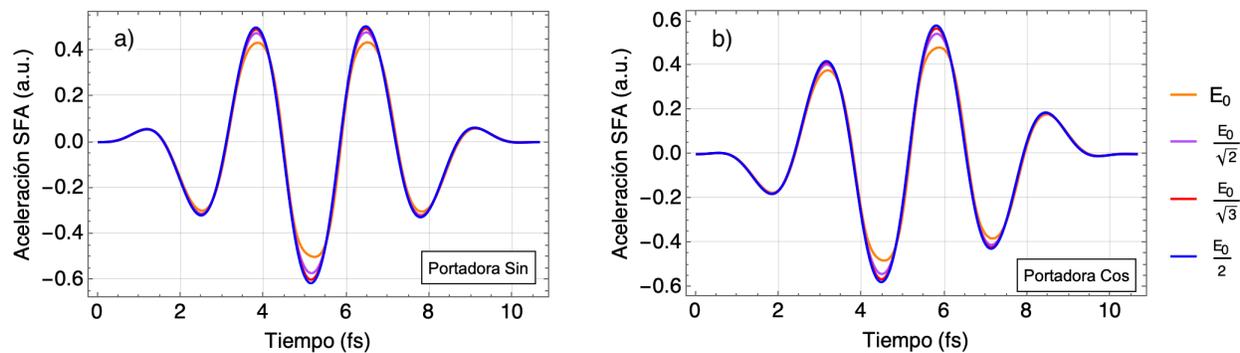


Figura 7: Aceleraciones SFA que experimenta en electrón en el átomo de H durante la duración del pulso. a) Campo eléctrico con onda portadora tipo seno. | b) Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno.

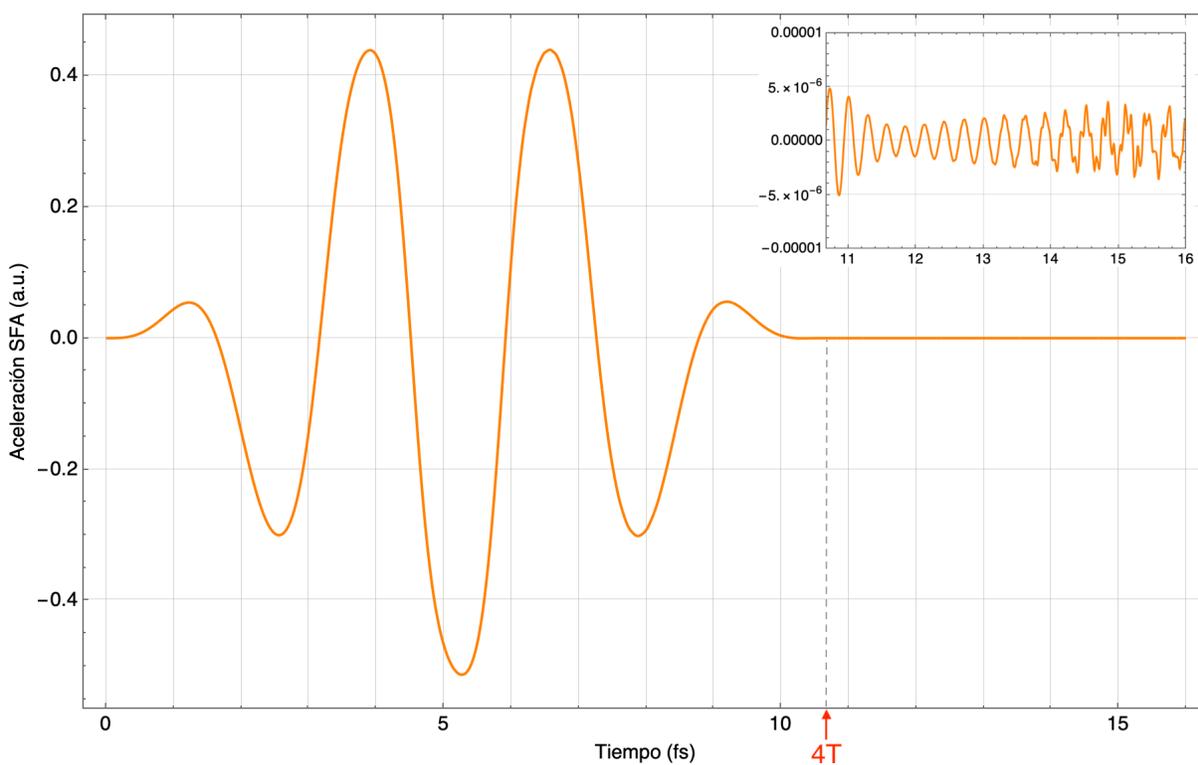


Figura 8: Aceleración que experimenta el electrón del átomo de H en la interacción con un pulso láser intenso de amplitud  $E_0$  y portadora tipo seno bajo el marco SFA. Como puede apreciarse en el cuadro de la esquina superior derecha, quedan algunas oscilaciones residuales tras la finalización del pulso en el tiempo  $4T$ , generando emisión de fluorescencia (cuatro órdenes de magnitud por debajo de las amplitudes típicas durante la duración del pulso).

### 3.2.3. Espectro de armónicos

Para obtener el espectro de la radiación emitida por el electrón en movimiento acelerado, recuperamos la expresión (2.4.20) para la potencia radiada. Consideraremos directamente  $P_{rad}(\omega) \equiv |a(\omega)|^2$  sin tener en cuenta los prefactores; es decir, el espectro de radiación igual al espectro de aceleración.

El dominio en frecuencia viene definido por su recíproco, el eje de tiempos, según los parámetros definidos anteriormente  $T_{max}$ ,  $N_t$  y  $dt$ . La frecuencia máxima viene dada por  $\omega_{max} = \pi/dt$ , mientras que el incremento es  $d\omega = 2\pi/T_{max}$ . Así, el eje de frecuencias queda  $\omega \in [-\omega_{max}, \omega_{max}]$ . Con nuestros valores, esto supone una frecuencia máxima de  $\omega_{max} \approx 29,2$  a.u., correspondiente al armónico de orden 512. Sin embargo, veremos que no nos interesa todo este rango de frecuencias, sino solo hasta la zona *cutoff* del espectro, donde la potencia radiada empieza a decaer varios órdenes de magnitud. Igualmente, solo nos interesa la región de frecuencias positivas (los espectros son simétricos).

Calculando la transformada de Fourier (FT) de las aceleraciones SFA anteriores en el dominio del tiempo, reordenando el espectro correctamente y representando frente al eje de frecuencias normalizado a la frecuencia central del pulso  $\omega_0$ , obtenemos los espectros de armónicos del proceso HHG de la Figura 9.

Distinguimos en primer lugar la zona correspondiente al régimen perturbativo en el que la potencia radiada es máxima para la radiación emitida de frecuencia igual a la del pulso,  $\omega_0$  (armónico de orden 1, H1), disminuyendo para órdenes cada vez mayores (escala logarítmica). Para ambos tipos de portadora y para los cuatro valores de intensidad, la meseta del proceso HHG comienza en torno al H9. En ella la potencia radiada es aproximadamente la misma para los armónicos de orden alto. Finalmente, para las amplitudes de campo de mayor a menor, la zona de *cutoff* comienza en torno al H27, H19, H15 y H13 respectivamente (tanto para portadora seno como coseno).

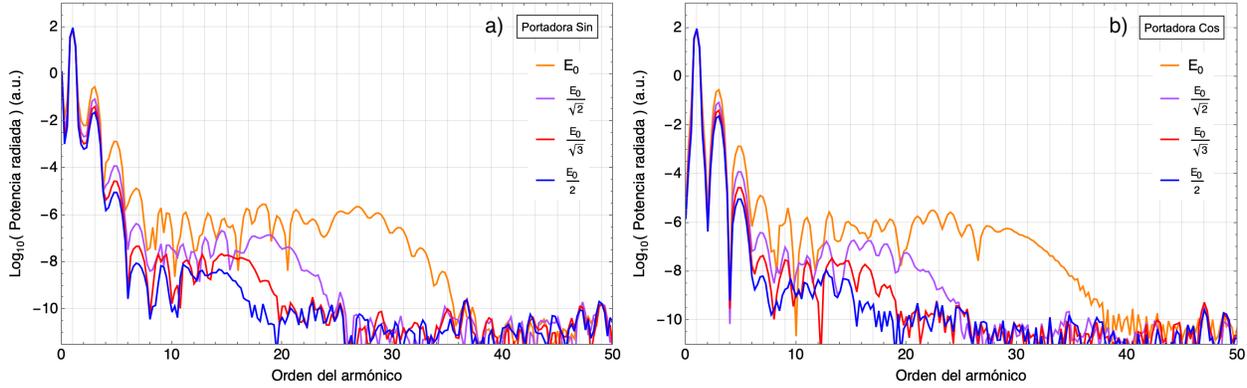


Figura 9: Espectro de armónicos para la radiación emitida por el electrón atómico, obtenido bajo el marco SFA para los cuatro valores de amplitud del campo. Se representa el eje vertical en escala logarítmica frente al eje de frecuencias normalizado al valor de la frecuencia central del pulso,  $\omega_0 = 0,057$  a.u. Apreciamos en todos ellos las tres partes principales del espectro: zona perturbativa, meseta o *plateau* y región de corte o *cutoff*. Véase la analogía con Figura 3. **a)** Campo eléctrico con onda portadora tipo seno. | **b)** Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno.

En orden decreciente de intensidades, esto supone unas frecuencias de corte de 1.653 a.u. ( $1.09 \cdot 10^{16}$  Hz en el SI), 1.083 a.u. ( $7.13 \cdot 10^{15}$  Hz), 0.855 a.u. ( $5.63 \cdot 10^{15}$  Hz) y 0.741 a.u. ( $4.89 \cdot 10^{15}$  rad/s). O lo que es lo mismo, longitudes de onda de 27.6 nm, 42.1 nm, 53.2 nm y 61.4 respectivamente, todas ellas en el rango del ultravioleta extremo (XUV) del espectro electromagnético. Podemos comparar con la fórmula empírica del principio (sección 1.1.2. de la Introducción),  $\hbar\omega_{cutoff} = I_p + 3.17U_p$ , siendo  $I_p$  la energía de ionización del átomo y  $U_p = e^2E_0^2/4m_e\omega_0^2$  la energía ponderomotriz del electrón. Tenemos que  $I_p = 13.6$  eV = 0.5 a.u. para el átomo de H. Para nuestros campos eléctricos, de mayor a menor intensidad y en unidades atómicas,  $U_p = 0.345, 0.173, 0.115$  y  $0.086$  a.u. respectivamente. Sustituyendo en la fórmula y dividiendo entre  $\omega_0 = 0.057$  a.u. obtenemos aproximadamente los armónicos 28, 18, 15 y 13, prácticamente idéntico a lo que observamos en los espectros.

Vemos también que la diferencia entre la potencia de la radiación emitida de primer armónico y la de la emitida en armónicos de orden alto (zona de la meseta) es de unos ocho órdenes de magnitud. Además, como estamos trabajando con pulsos de pocos ciclos, la CEP influye notablemente en los espectros de armónicos tal y como puede verse al comparar las Figuras 9a y 9b. Otra apreciación es el hecho de que dominan los armónicos de orden impar tal y como mencionábamos en la introducción (sistema centrosimétrico).

### 3.2.4. Análisis tiempo-frecuencia

Una vez obtenido el espectro armónico de la aceleración SFA, pasamos a hacer un análisis tiempo-frecuencia [13] de la emisión de armónicos del electrón en el átomo de H, obteniendo un espectrograma que nos informará a cerca de la evolución temporal de la emisión de radiación.

Hemos visto que por medio de la TF de una señal temporal, en nuestro caso la aceleración SFA, se puede obtener información a cerca de las frecuencias que componen dicha señal

(análisis espectral). Sin embargo, este tipo de análisis no ofrece ninguna información sobre el instante temporal en el que aparecen esas frecuencias. La solución consiste en usar la transformada de tiempo corto de Fourier (STFT, *Short-Time Fourier Transform*). La STFT consiste en tener en cuenta solamente cierto intervalo temporal de la señal total y hacer su TF. Esto se consigue multiplicando la señal original en el dominio temporal por una función ventana o máscara  $M(t - \tau)$  que se anula en sus extremos, centrada en un determinado tiempo  $\tau$ , de manera que en vez de hacer la TF de la función  $a(t)$  la hacemos del producto  $a(t)M(t - \tau)$  para obtener información sobre la aparición de las distintas frecuencias en el tiempo  $\tau$  en el que se centra la máscara. En este trabajo usaremos una máscara tipo gaussiana sin el factor de normalización de la amplitud

$$M(t - \tau) = e^{-\frac{(t-\tau)^2}{2\sigma^2}}, \quad (3.2.9)$$

con  $\tau$  el tiempo en el que está centrada la gaussiana y  $\sigma$  el parámetro que nos da su anchura. Este se relaciona con la anchura a media altura (FWHM, *Full Width at Half Maximum*) a través de  $\text{FWHM} = 2\sqrt{2 \ln 2} \sigma \approx 2.3548 \sigma$ .

Realizando la operación descrita para distintas posiciones de la máscara  $\tau$  a lo largo de todo el eje de tiempos de la duración del pulso, obtenemos un gráfico 3D llamado espectrograma. Este normalmente se representa en términos de un mapa de colores con el tiempo en el eje de abscisas y la frecuencia en el eje de ordenadas. El espectrograma puede interpretarse entonces como una proyección en dos dimensiones de una sucesión de transformadas de Fourier de fragmentos temporales consecutivos, de manera que el contenido en frecuencias de la señal cambia a lo largo del tiempo.

La pregunta que nos queda hacernos es cómo de estrecha se puede elegir esta ventana temporal. Para ello, recordamos que los dominios de tiempo y frecuencia son recíprocos entre sí, de forma que obedecen al principio de incertidumbre: cuanto más estrecha sea esta ventana, mejor resolvemos la señal temporalmente, pero más anchos serán los espectros asociados y peor podremos determinar sus frecuencias. En nuestro caso, el mejor compromiso entre la resolución temporal y espectral lo hemos obtenido para un valor de  $\sigma = T/16$ . Esto es, un FWHM de la ventana temporal de unos 0.4 fs (estamos por tanto resolviendo la emisión de armónicos en tiempos del orden de centenas de attosegundos).

El procedimiento entonces es el que sigue: muestreamos la ventana temporal  $M(t - \tau)$  para todo el eje temporal, centrada en el tiempo inicial  $\tau = 0$ . Multiplicamos por la aceleración SFA obtenida en la Figura 8 y hallamos la TF. Así, obtenemos información sobre las frecuencias en las que está emitiendo el electrón en  $t = 0$ . Repetimos para distintas posiciones de la ventana,  $\tau \in [0, T_{max}]$ , y representamos en un mapa de colores frente al tiempo y la frecuencia. Además, como vimos al obtener la aceleración, tenemos algunas oscilaciones residuales una vez finaliza el pulso. Por ello, introducimos también una máscara fija con forma de exponencial decreciente que haga cero a la aceleración una vez pase el tiempo  $t = 4T$ .

El espectrograma así obtenido para el caso de amplitud  $E_0$  y onda portadora tipo seno es el que se muestra en la Figura 10. Para el resto de amplitudes con portadora seno y coseno se incluyen en la Figura 11.

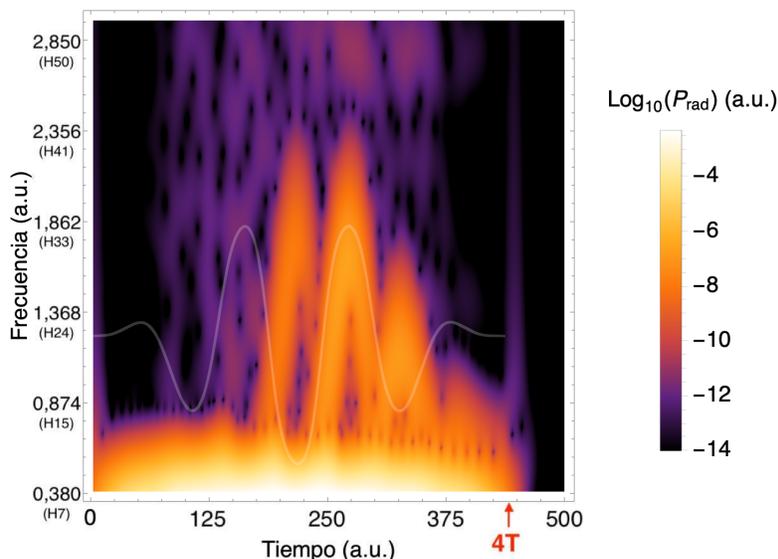


Figura 10: Espectrograma del proceso HHG para el campo de amplitud  $E_0$  y portadora seno en el que se observa la evolución temporal de la emisión de armónicos. En el eje horizontal se representa el tiempo y en el vertical las frecuencias correspondientes desde el armónico de orden 7 hasta el de orden 51. De nuevo, la potencia radiada se da en escala logarítmica. Encima de la imagen se ha superpuesto (sin escala vertical) la aceleración SFA anterior de la Figura 8 (amplitud  $E_0$  y portadora seno) para evidenciar la relación cualitativa de forma visual en el eje temporal.

Como es de esperar, la potencia radiada (módulo al cuadrado de la aceleración en el dominio frecuencial) para los armónicos de orden más bajo en la región perturbativa del espectro supera en varios órdenes de magnitud a la radiada para los armónicos de orden alto. Por ello, representamos a partir del armónico de orden 7 en la Figura 10 (para la Figura 11 hemos representado desde el primer armónico). Efectivamente, es en la parte baja del espectrograma donde aparecen intensidades mayores durante toda la duración del pulso, hasta el orden 11 aproximadamente. Esto encaja con los espectros armónicos de la Figura 9, en los que la meseta de armónicos de orden alto comienza en torno armónico de orden 9. Sin embargo, para estos armónicos, su emisión no es regular a lo largo de la simulación, sino que empiezan a emitirse con mayor intensidad aproximadamente tras ciclo y medio del campo eléctrico en el caso de las amplitudes de campo  $E_0$  y  $E_0/\sqrt{2}$  y tras dos ciclos para los casos  $E_0/\sqrt{3}$  y  $E_0/2$ .

Estos análisis tiempo-frecuencia se interpretan en términos del modelo de 3 pasos explicado en la introducción (Figura 2): ionización, aceleración en el continuo y recombinación. Desde la ionización en el máximo del campo eléctrico hasta la recombinación (momento en el que se emiten los armónicos de orden alto que observamos), típicamente transcurren entre 0.4 y 0.8 ciclos del pulso, de manera que en cada medio ciclo existen dos posibles trayectorias de los electrones, que recombinan con la misma energía cinética, dando lugar a la emisión del mismo armónico (de ahí las estructuras de picos que se aprecian en los espectrogramas con una subida y una bajada).

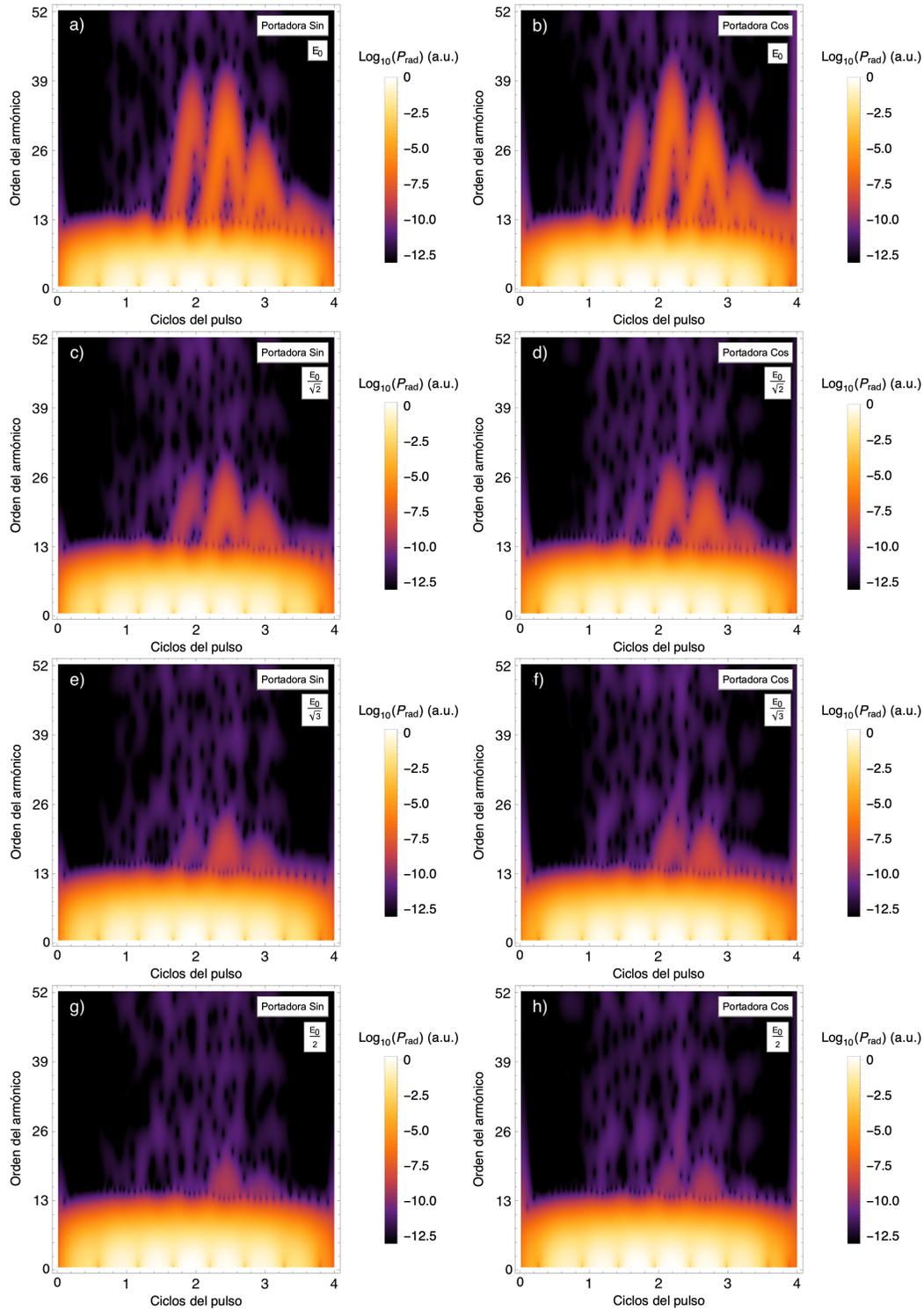


Figura 11: Espectrogramas SFA. **a)** Campo de amplitud  $E_0$  y portadora seno. | **b)** Campo de amplitud  $E_0$  y portadora coseno. | **c)** Campo de amplitud  $E_0/\sqrt{2}$  y portadora seno. | **d)** Campo de amplitud  $E_0/\sqrt{2}$  y portadora coseno. | **e)** Campo de amplitud  $E_0/\sqrt{3}$  y portadora seno. | **f)** Campo de amplitud  $E_0/\sqrt{3}$  y portadora coseno. | **g)** Campo de amplitud  $E_0/2$  y portadora seno. | **h)** Campo de amplitud  $E_0/2$  y portadora coseno.

### 3.3. Emisión de armónicos: comparación con la TDSE

La manera exacta de obtener la aceleración que experimenta el electrón en el átomo de H es por medio de la integración directa de la TDSE (requiere más tiempo de cálculo que introduciendo la SFA). Los resultados usados en este trabajo han sido proporcionados por el Grupo de Investigación en Aplicaciones de los Láseres y Fotónica (ALF) de la Universidad de Salamanca.

Los pulsos de campo eléctrico y parámetros de simulación para la TDSE son los mismos que los usados anteriormente con la SFA.

#### 3.3.1. Aceleración TDSE

Mostramos en la Figura 12 las aceleraciones obtenidas para los cuatro valores de la amplitud del campo eléctrico y para los dos tipos de onda portadora. El tiempo de simulación que se muestra es de  $T_{max} = 6T$  (seis ciclos del campo), para apreciar de nuevo la emisión de fluorescencia por parte del electrón atómico una vez finaliza el pulso tras el tiempo  $4T$ . Vemos que ahora este efecto es mucho más notorio, superando en varios órdenes de magnitud a las oscilaciones residuales del caso SFA (incluso es más relevante en el caso de la portadora coseno). Esto ocurre porque el cálculo TDSE tiene en cuenta todas las posibles transiciones atómicas, mientras que la SFA únicamente considera las transiciones del estado fundamental a los estados del continuo.

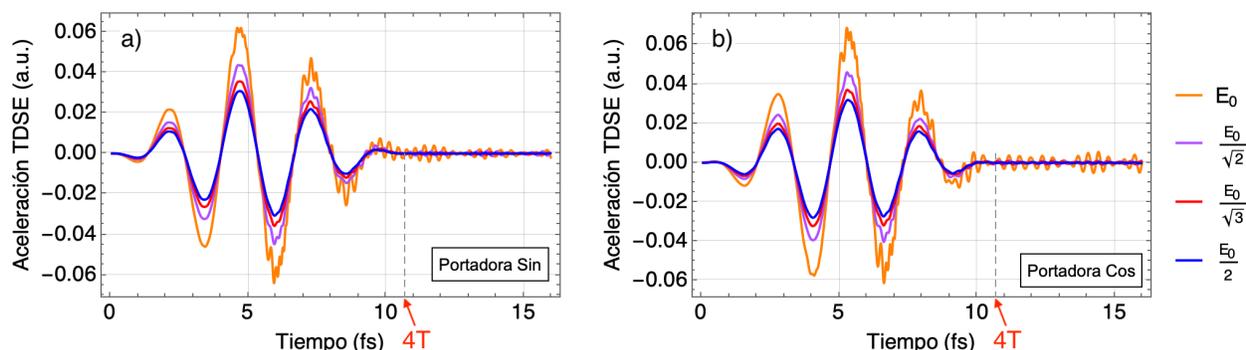


Figura 12: Aceleraciones que experimenta en electrón en el átomo de H durante la duración del pulso de diferentes amplitudes, obtenidas con la integración numérica de la TDSE. **a)** Campo eléctrico con onda portadora tipo seno. | **b)** Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno.

Son evidentes las diferencias con la aceleración SFA de la Figura 7, sobre todo en lo que se refiere a la suavidad de la función. En este caso, la aceleración comienza de la misma manera pero a partir de aproximadamente ciclo y medio del campo eléctrico empiezan a aparecer oscilaciones irregulares en el movimiento acelerado del electrón.

#### 3.3.2. Espectro de armónicos

Haciendo la TF y representando frente al eje de frecuencias, obtenemos el espectro de armónicos generado mostrado en la Figura 13.

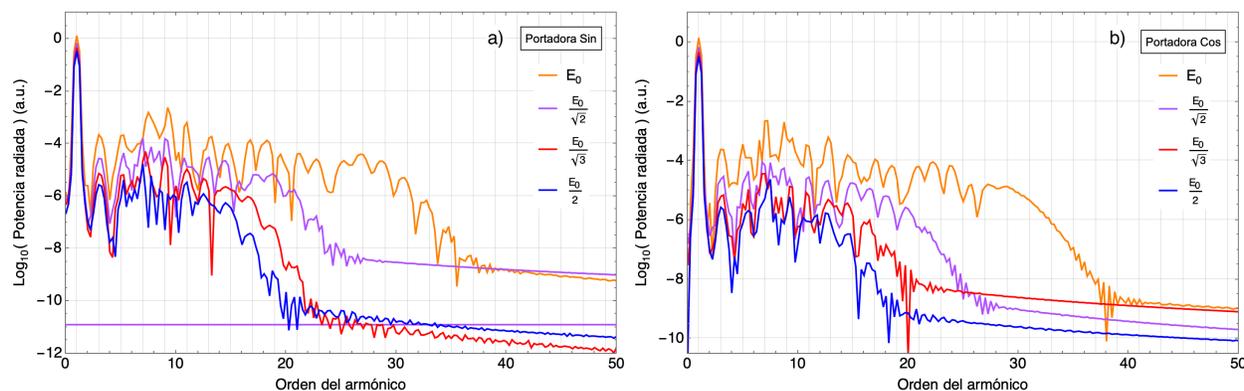


Figura 13: Espectro de armónicos para la radiación emitida por el electrón atómico, obtenido con la integración de la TDSE para los cuatro valores de amplitud del campo. Se representa el eje vertical en escala logarítmica frente al eje de frecuencias normalizado al valor de la frecuencia central del pulso,  $\omega_0 = 0.057$  a.u. a) Campo eléctrico con onda portadora tipo seno. | b) Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno.

En este caso, no se distingue de forma tan evidente el paso de la región perturbativa a la *plateau*, teniendo una potencia radiada menor para los armónicos de orden más bajo y una mayor para los primeros armónicos de orden alto que en el caso SFA. Para la zona de corte o *cutoff* la forma es bastante similar, comenzando también a partir de los H27, H19, H15 y H13 para amplitudes de campo decrecientes respectivamente. De nuevo, observamos que domina la emisión de los armónicos de orden impar como era de esperar. Como conclusión, comparando las Figuras 9 y 13, extraemos que existe un muy buen acuerdo cualitativo entre los resultados que proporciona la TDSE y la SFA en la región de los armónicos de orden alto y la zona de corte (no tanto en la zona perturbativa), lo cual justifica el uso de dicha aproximación en el contexto del proceso HHG.

### 3.3.3. Análisis tiempo-frecuencia

Los espectrogramas correspondientes a la resolución de la TDSE se muestran en la Figura 15. En la Figura 14 se muestra ampliado el espectrograma para el campo de amplitud  $E_0$  y onda portadora tipo seno. Mientras que en los primeros se representa para todos los órdenes, en este último representamos a partir del armónico de orden 7 para evitar la saturación debida a la parte baja del espectro (zona perturbativa).

Vemos que con la TDSE, el contraste de la emisión de los distintos armónicos es mayor que el caso SFA, con más picos de emisión que antes. En consonancia con el espectro de armónicos de la Figura 13, ahora no tenemos unos valores tan altos en la parte baja del espectrograma debido a que la zona perturbativa es menos apreciable que en el caso SFA como mencionábamos anteriormente.

De nuevo, la interpretación se hace en términos del modelo de 3 pasos, apareciendo otra vez las estructuras de pico que reflejan las trayectorias dobles del electrón.

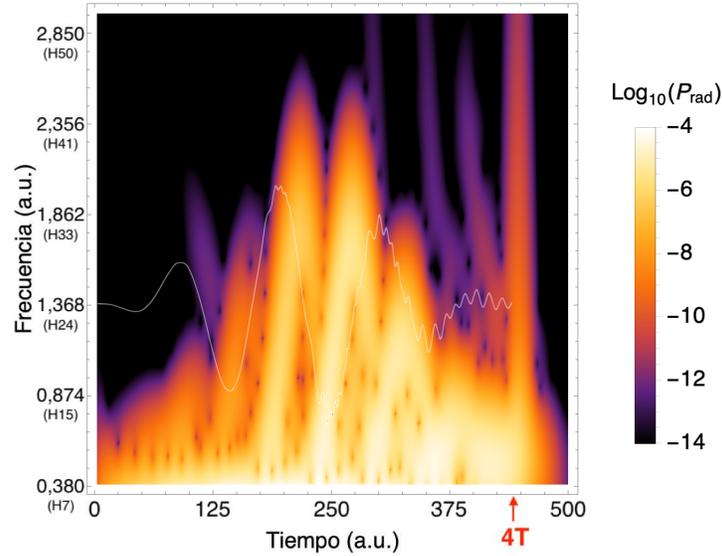


Figura 14: Espectrograma del proceso HHG obtenido mediante la integración de la TDSE en el que se observa la evolución temporal de la emisión de armónicos. La potencia radiada se da en escala logarítmica. Encima de la imagen se ha superpuesto (sin escala vertical) la aceleración TDSE de la Figura 12 para amplitud  $E_0$  y portadora tipo seno.

### 3.4. Susceptibilidad dependiente del tiempo: aproximación SFA

Una vez hemos visto cómo comparan la resolución de la TDSE y la aproximación de campo fuerte SFA en lo relativo al proceso de generación de armónicos de orden alto, nos preguntamos lo mismo en lo referente al cálculo de la susceptibilidad dependiente del tiempo para el átomo de H en interacción con pulsos láser intensos.

#### 3.4.1. Ecuaciones y parámetros de simulación

Al igual que para la aceleración, partimos de la ecuación diferencial (3.2.3) implementada en el código para el cálculo de la función de onda SFA del electrón en el átomo de H.

**Parámetros de simulación:** para la discretización del tiempo usamos un número mayor de puntos que antes,  $N_t = 16384$  (el cuádruple). Para el espacio de momentos usamos el mismo mallado (Figura 5) con  $P_\rho \in [0, P_{\rho,max}]$  y  $P_z \in [-P_{z,max}, P_{z,max}]$ , siendo  $P_{\rho,max} = P_{z,max} = 3$ . Usamos un número de puntos  $N_P = 300$  para las dos coordenadas radial y axial.

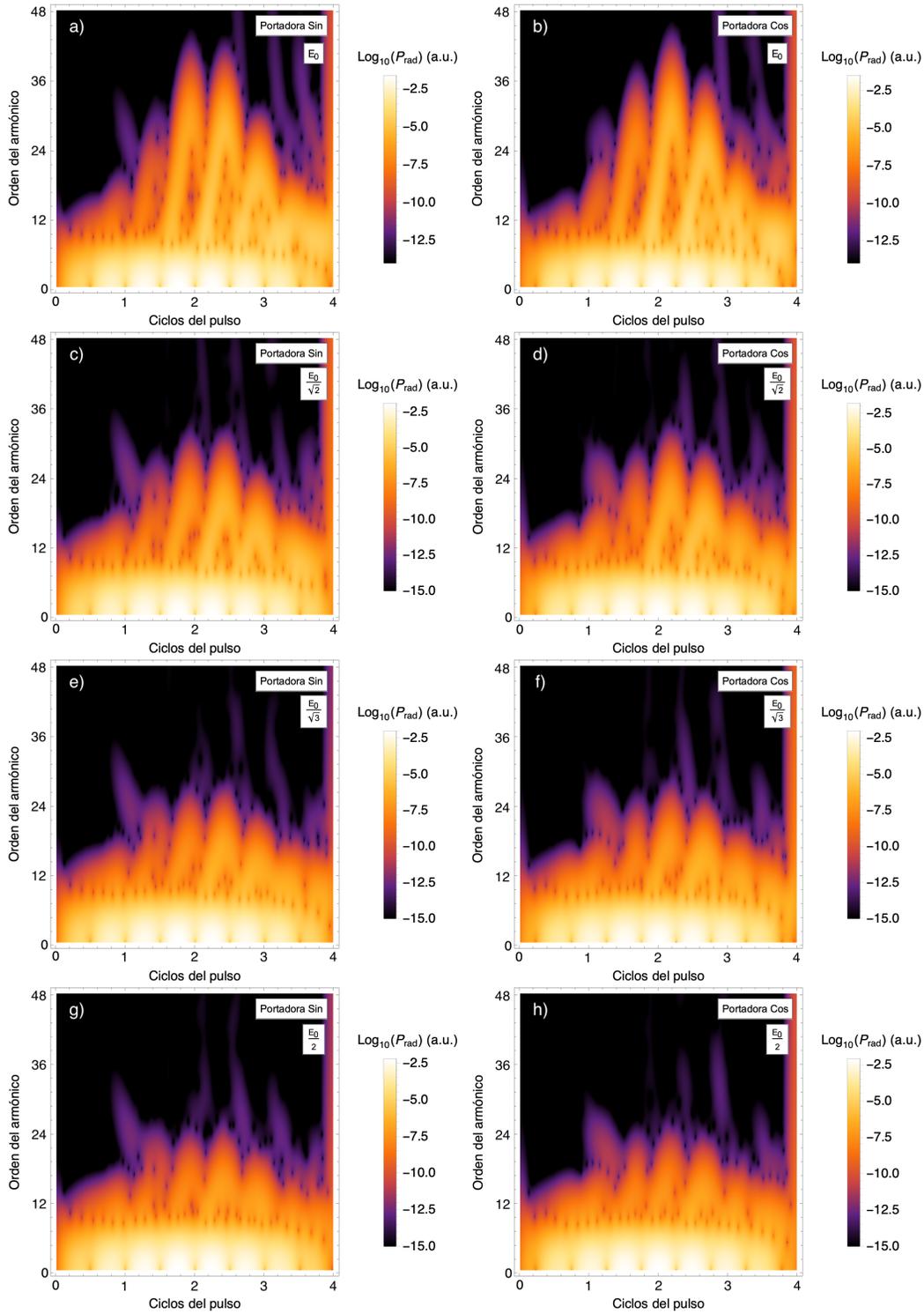


Figura 15: Espectrogramas TDSE. **a)** Campo de amplitud  $E_0$  y portadora seno. | **b)** Campo de amplitud  $E_0$  y portadora coseno. | **c)** Campo de amplitud  $E_0/\sqrt{2}$  y portadora seno. | **d)** Campo de amplitud  $E_0/\sqrt{2}$  y portadora coseno. | **e)** Campo de amplitud  $E_0/\sqrt{3}$  y portadora seno. | **f)** Campo de amplitud  $E_0/\sqrt{3}$  y portadora coseno. | **g)** Campo de amplitud  $E_0/2$  y portadora seno. | **h)** Campo de amplitud  $E_0/2$  y portadora coseno.

Con este resultado para  $\Psi(\mathbf{P}, t)$ , obtenemos las contribuciones al dipolo SFA total,  $\tilde{z}(t)$  (2.4.25), de cada onda de Volkov,  $\tilde{z}(\mathbf{P}, t)$ . Para ello, reescribimos la ecuación (2.4.26) en unidades atómicas usando  $\epsilon_0 = -0.5$  a.u. para la energía del estado fundamental del átomo de H,  $t_0 = 0$  (comienzo del pulso) y la expresión (2.4.28) para el elemento de matriz del operador  $\hat{z}$  (de nuevo, expresamos en coordenadas cilíndricas):

$$\tilde{z}(\mathbf{P}, t) = i \frac{4\sqrt{8}}{\pi} \frac{P_z}{(1 + P_\rho^2 + P_z^2)^3} e^{-it/2} \Psi(\mathbf{P}, t). \quad (3.4.1)$$

Numéricamente, la integral en el espacio de momentos (2.4.25) se convierte en un sumatorio doble en los momentos radial  $P_\rho$  y axial  $P_z$  desde 0 hasta  $P_{\rho, max}$  y desde  $-P_{z, max}$  hasta  $P_{z, max}$  respectivamente, con  $d\mathbf{P} = 2\pi P_\rho dP_\rho dP_z$  el diferencial de volumen en coordenadas cilíndricas. Entonces, usando (3.4.1) y recordando que en unidades atómicas el dipolo es  $\tilde{\mu}(t) = -\tilde{z}(t)$ , este vendrá dado por la parte real de la expresión

$$\tilde{\mu}(t) = -i \frac{4\sqrt{8}}{\pi} e^{-it/2} \left[ \sum_{P_\rho} \sum_{P_z} \Psi(\mathbf{P}, t) \frac{P_z \cdot 2\pi P_\rho dP_\rho dP_z}{(1 + P_\rho^2 + P_z^2)^3} \right]. \quad (3.4.2)$$

**Parámetros de simulación del pulso láser:** para este segundo bloque basado en la obtención de la dependencia temporal de la susceptibilidad del átomo de H, trabajaremos con un pulso cuatro veces más largo que antes; es decir, con dieciséis ciclos completos del campo eléctrico,  $T_{max} = 16T$  (de ahí multiplicar por cuatro el número de puntos  $N_t$  del mallado temporal<sup>20</sup>; en la sección 3.5.1 veremos por qué ahora el pulso lo escogemos más largo). Consideraremos la misma frecuencia central del pulso anterior,  $\omega_0 = 0.057$  a.u. (equivalente a un láser pulsado emitiendo en la parte NIR del espectro con  $\lambda = 800$  nm). Ahora el pulso durará aproximadamente 42.72 fs (1766.10 a.u.).

Para las cuatro amplitudes distintas de campo eléctrico, consideraremos<sup>21</sup>  $E_0 = 0.067$  a.u. ( $3.45 \cdot 10^{10}$  V/m) igual que antes y los valores  $0.9 E_0$ ,  $0.8 E_0$  y  $0.5 E_0$ . Por lo tanto, estudiaremos la dependencia en intensidad de la respuesta temporal de la susceptibilidad para valores  $158 \text{ TW/cm}^2$ ,  $128 \text{ TW/cm}^2$ ,  $101.1 \text{ TW/cm}^2$  y  $39.5 \text{ TW/cm}^2$ .

En la Figura 16 se muestra tanto la forma del pulso como la del vector potencial obtenido a partir de la integración del campo para las cuatro amplitudes descritas y ambos tipos de onda portadora seno y coseno (CEP de 0 y  $+\pi/2$  respectivamente).

<sup>20</sup>De no ampliar el número de puntos respecto a la simulación anterior para la aceleración SFA, al evolucionar en el tiempo con el algoritmo RK4 la solución hasta un tiempo cuatro veces mayor, el paso temporal  $dt = T_{max}/N_t$  quedaría muy grande, haciendo que la solución numérica no converja.

<sup>21</sup>Más adelante lo veremos; el motivo principal ha sido para poder ver bien la dependencia en intensidad, ya que para los dos campos intermedios más bajos anteriores de amplitudes  $E_0/\sqrt{2}$  y  $E_0/\sqrt{3}$  los resultados para la susceptibilidad eran prácticamente idénticos y se superponían.

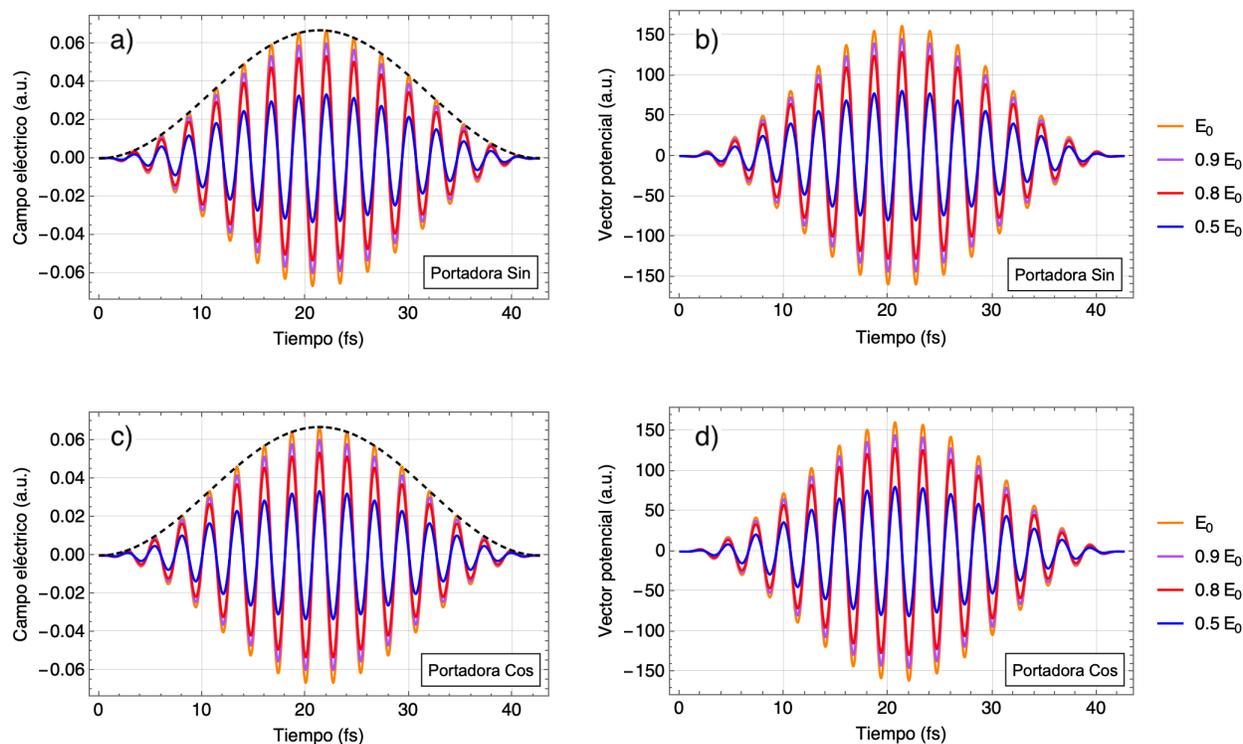


Figura 16: Campos eléctricos del pulso láser y vector potencial asociados usados para la simulación del dipolo SFA, para los cuatro valores de intensidad. **a)** Campo eléctrico con onda portadora tipo seno. Distinguimos la forma de la envolvente para el campo de mayor amplitud (línea discontinua) con 16 oscilaciones completas de la portadora (línea continua). | **b)** Vector potencial asociado al campo eléctrico del pulso con portadora tipo seno. | **c)** Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno. | **d)** Vector potencial asociado al campo eléctrico del pulso con onda portadora tipo coseno.

### 3.4.2. Dipolo SFA

Una vez resueltas numéricamente las ecuaciones (3.2.3) y (3.4.2) con el código incluido en el APÉNDICE C para todos los casos, obtenemos los dipolos SFA  $\mu(t)$  mostrados en la Figura 17.

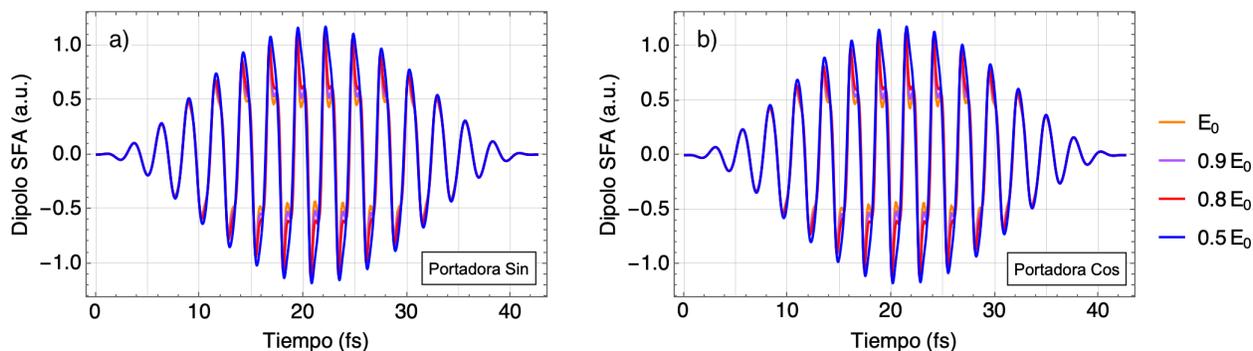


Figura 17: Dipolos SFA obtenidos con los cuatro campos eléctricos de distinta intensidad. **a)** Campo eléctrico con onda portadora tipo seno. | **b)** Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno.

Vemos que, en general, el dipolo generado por el movimiento del electrón en el átomo de H sigue la forma suave y progresiva del campo eléctrico, con algunas irregularidades en su trayectoria cuando la intensidad se hace máxima (centro del pulso), que son más evidentes cuanto mayor es la amplitud del campo. Así, para el campo más bajo de  $0.5 E_0$ , la forma del dipolo es suave a lo largo de toda la duración del pulso. Este comportamiento es común para ambos tipos de onda portadora.

De cara a la obtención de la susceptibilidad, puede ser interesante hacer un análisis en términos del dipolo de los armónicos generados (estudio equivalente al realizado con la aceleración). Así, podremos comparar no sólo con la TDSE como hemos venido haciendo hasta ahora, sino también con el proceso HHG estudiado a partir de la aceleración del electrón.

Si hacemos la TF de los dipolos (Figura 17) y representamos frente al eje de frecuencias (recíproco del tiempo) normalizado a la frecuencia central del pulso  $\omega_0$ , obtenemos los espectros armónicos de la Figura 18 asociados a la *potencia radiada*<sup>22</sup> por el dipolo. Como se puede ver, se distinguen perfectamente las tres zonas de antes de los espectros de la Figura 9 obtenidos con el pulso de cuatro ciclos a partir de la aceleración SFA. Para el campo de amplitud  $E_0$  vemos que la frecuencia de corte se encuentra también para el armónico de orden 29. Para el otro valor común de  $0.5 E_0$  ahora ya no es tan apreciable la transición entre la *plateau* y la zona de corte. Además, al ser el pulso ahora más largo, los efectos de la CEP son menores, como se puede apreciar en las Figuras 18a y 18b.

Nos llama la atención los picos tan definidos para los armónicos de orden impar del espectro para la amplitud  $0.5 E_0$  más baja del campo eléctrico. Esto probablemente se deba a ruido introducido en la integración numérica.

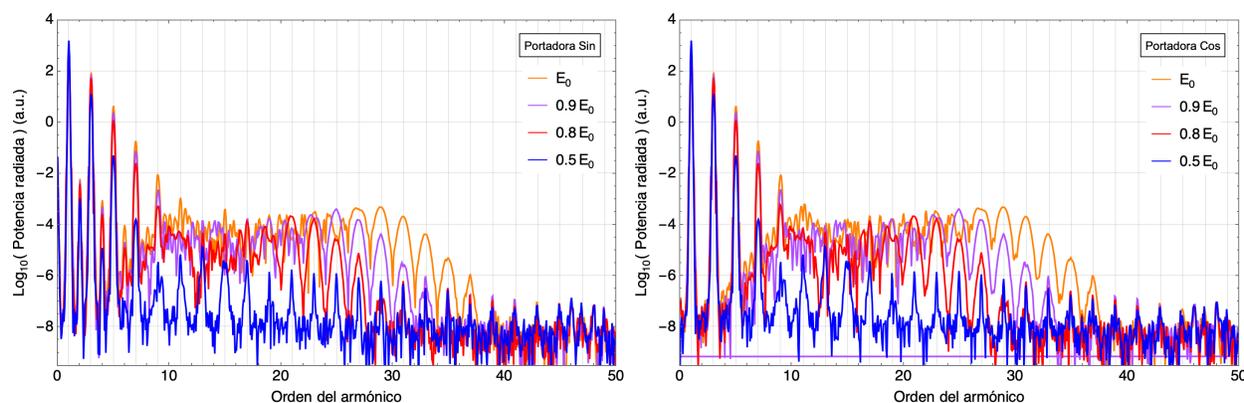


Figura 18: Espectro de armónicos asociado a los dipolos SFA. Se representa el eje vertical en escala logarítmica frente al eje de frecuencias normalizado al valor de la frecuencia central del pulso,  $\omega_0 = 0,057$  a.u. **a)** Campo eléctrico con onda portadora tipo seno. | **b)** Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno.

<sup>22</sup>Estrictamente hablando, la potencia radiada por una carga puntual se define en términos de su aceleración tal y como establece la fórmula de Larmor (2.4.20) vista en el fundamento teórico.

Concluimos entonces que la aproximación SFA aplicada al dipolo es igual de válida que antes en lo referente al proceso HHG, por lo menos para intensidades elevadas del campo externo según lo observado en nuestro estudio (del orden de  $10^2$  TW/cm<sup>2</sup>). Mientras que para campos más bajos como es el caso de  $0.5 E_0$  (39.5 TW/cm<sup>2</sup>) empieza a fallar más. Por contra, si nos fijamos en la región perturbativa, los primeros armónicos de esta zona quedan incluso más definidos que para el caso de la aceleración.

Seguimos con un análisis tiempo-frecuencia de los dipolos SFA. Usando la misma máscara  $M(t - \tau)$  definida en (3.2.9), de nuevo con un FWHM de 0.4 fs ( $\sigma = T/16$ ). Damos los resultados solo para las cuatro amplitudes del campo eléctrico con portadora seno (como se ha comentado, para el caso coseno prácticamente el resultado no difiere), Figuras 19-20.

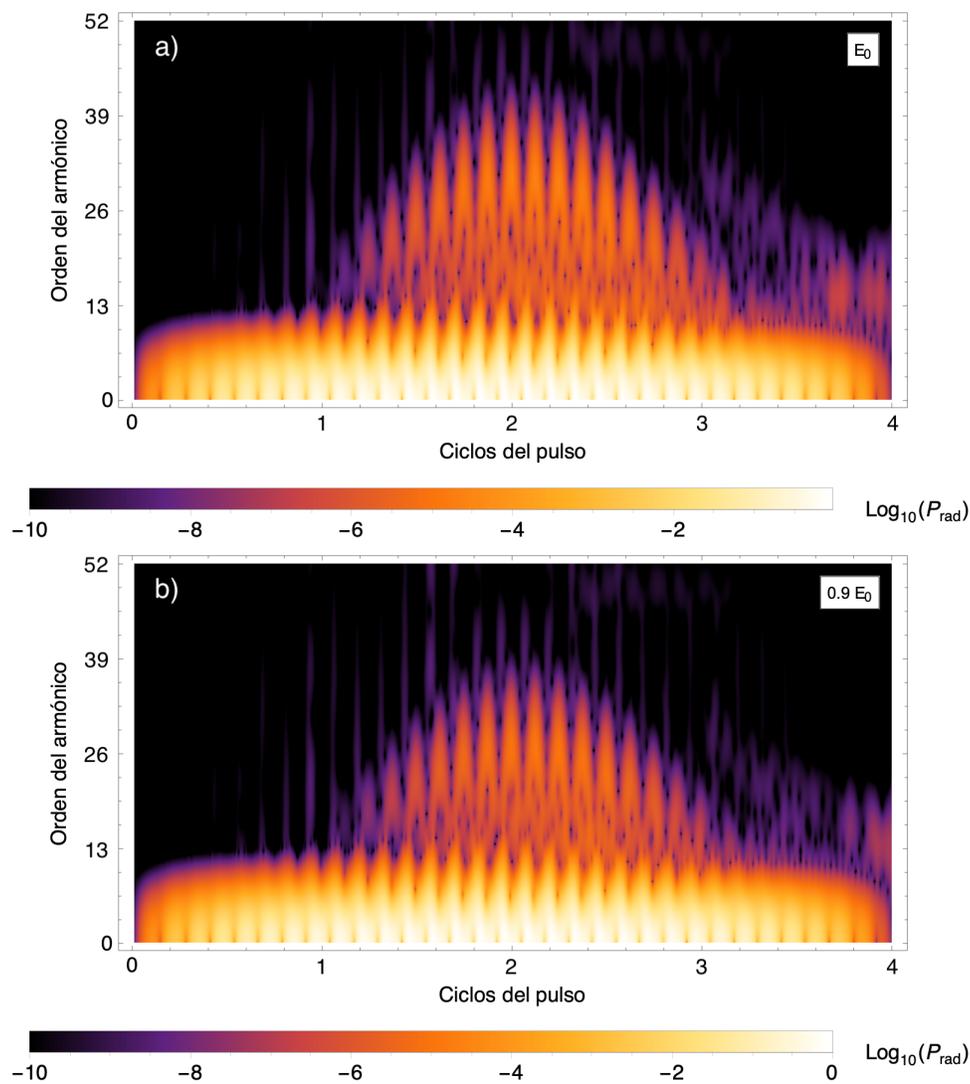


Figura 19: Espectrogramas para la emisión de armónicos en términos del dipolo SFA con onda portadora tipo seno. **a)** Amplitud de campo  $E_0$ . | **b)** Amplitud de campo  $0.9 E_0$ .

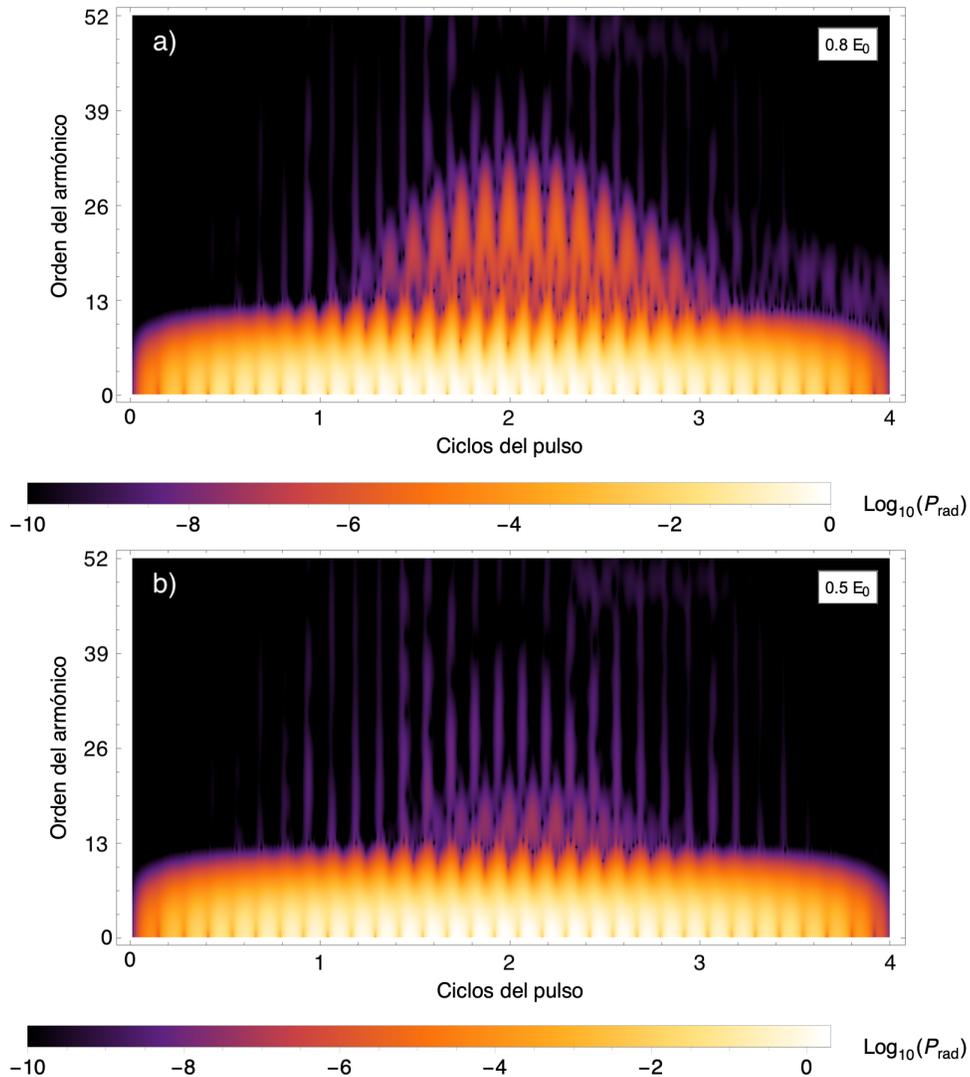


Figura 20: Espectrogramas para la emisión de armónicos en términos del dipolo SFA con onda portadora tipo seno. **a)** Amplitud de campo  $0.8 E_0$ . | **b)** Amplitud de campo  $0.5 E_0$ .

Vemos que la región inferior de armónicos de orden más bajo es común en los cuatro casos (región perturbativa, en torno al H9), lo que coincide con lo observado en los espectros de la Figura 18. Para los armónicos de orden alto sin embargo, a medida que disminuye la amplitud del campo, se emiten menos órdenes y con menor intensidad.

### 3.4.3. Susceptibilidad dependiente del tiempo

Tal y como hemos definido la susceptibilidad en el fundamento teórico, buscamos la relación (lineal si hablamos de la respuesta del átomo con la misma frecuencia central  $\omega_0$  del campo incidente o no lineal si atendemos a los distintos armónicos emitidos) entre la polarización que adquiere el átomo y el campo eléctrico del pulso con el que interacciona. El

método que usaremos para poder definir una susceptibilidad a lo largo del tiempo, será similar al empleado para obtener los espectrogramas de los análisis tiempo-frecuencia realizados, filtrando las señales temporales con la máscara o ventana  $M(t - \tau)$  (3.2.9), haciendo la TF y seleccionando la frecuencia deseada. Así, la susceptibilidad viene dada por la expresión [14]

$$\tilde{\chi}(\tau, \omega) = \frac{\mathcal{F}[\mu(t)M(t - \tau)](\omega)}{\mathcal{F}[E(t)M(t - \tau)](\omega)}, \quad (3.4.3)$$

con  $E(t)$  el campo eléctrico del pulso y  $\mu(t) = -ez(t)$  el dipolo asociado al desplazamiento  $z(t)$  del electrón en el átomo de H<sup>23</sup>.

Dado que viene dada en términos de las TF, la expresión (3.4.3) proporciona una susceptibilidad compleja en función del tiempo. Nosotros nos restringiremos al estudio de su parte real:  $\chi(t) \equiv \text{Re}[\tilde{\chi}(t)]$ .

Con la duración del pulso de 16 ciclos, usamos una ventana mayor de  $\sigma = 1.6T$  equivalente a un FWHM de 10 fs. Los resultados para la dependencia temporal de la susceptibilidad lineal (respuesta de frecuencia igual a la central del pulso  $\omega_0$ ) se muestran en la Figura 21.

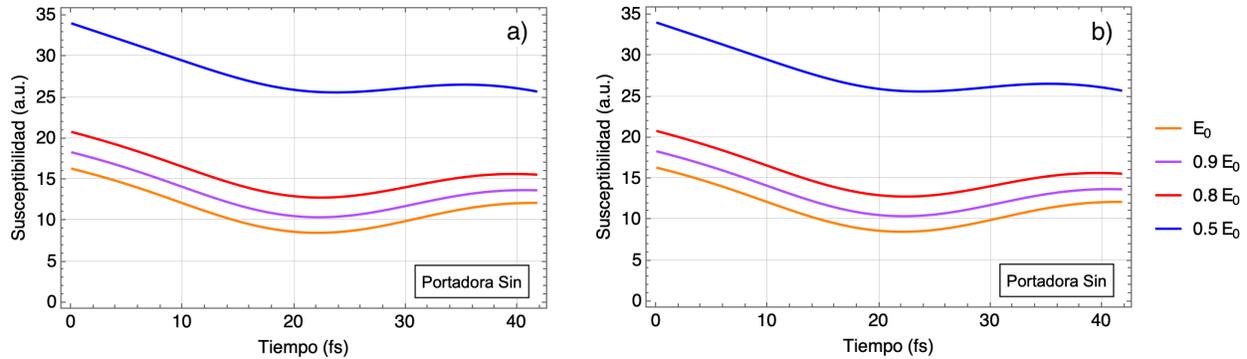


Figura 21: Susceptibilidad SFA dependiente del tiempo obtenidos con los cuatro campos eléctricos de distinta intensidad. **a)** Campo eléctrico con onda portadora tipo seno. | **b)** Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno.

Como se aprecia, el comportamiento de  $\chi$  tiene la misma forma para los cuatro valores de intensidad (solamente cambia la escala vertical), lo que parece indicar que, en principio, la SFA no es una buena aproximación para el estudio de la susceptibilidad. Profundizaremos en esto una vez comparemos con los resultados de la TDSE en las conclusiones finales.

Dada la definición de la susceptibilidad, puede ser interesante hacer una comparación cualitativa en el dominio temporal entre el dipolo y el correspondiente campo. Como se puede

<sup>23</sup>Estrictamente hablando, aunque todo es cuestión de cómo se definan las magnitudes físicas, la relación entre el dipolo o momento dipolar  $\mu$  y el campo eléctrico  $E$  viene dada por la polarizabilidad eléctrica, comúnmente denotada por  $\alpha$ . Por otro lado, la susceptibilidad eléctrica  $\chi$  hace referencia a la densidad de polarización  $P$  o momento dipolar por unidad de volumen. En lo que sigue consideraremos la definición de la susceptibilidad en términos del dipolo  $\mu$ .

ver en los resultados anteriores, no hay diferencia a la hora de considerar onda portadora seno o coseno, por lo que damos dicha comparación solamente para el caso tipo seno, Figura 22.

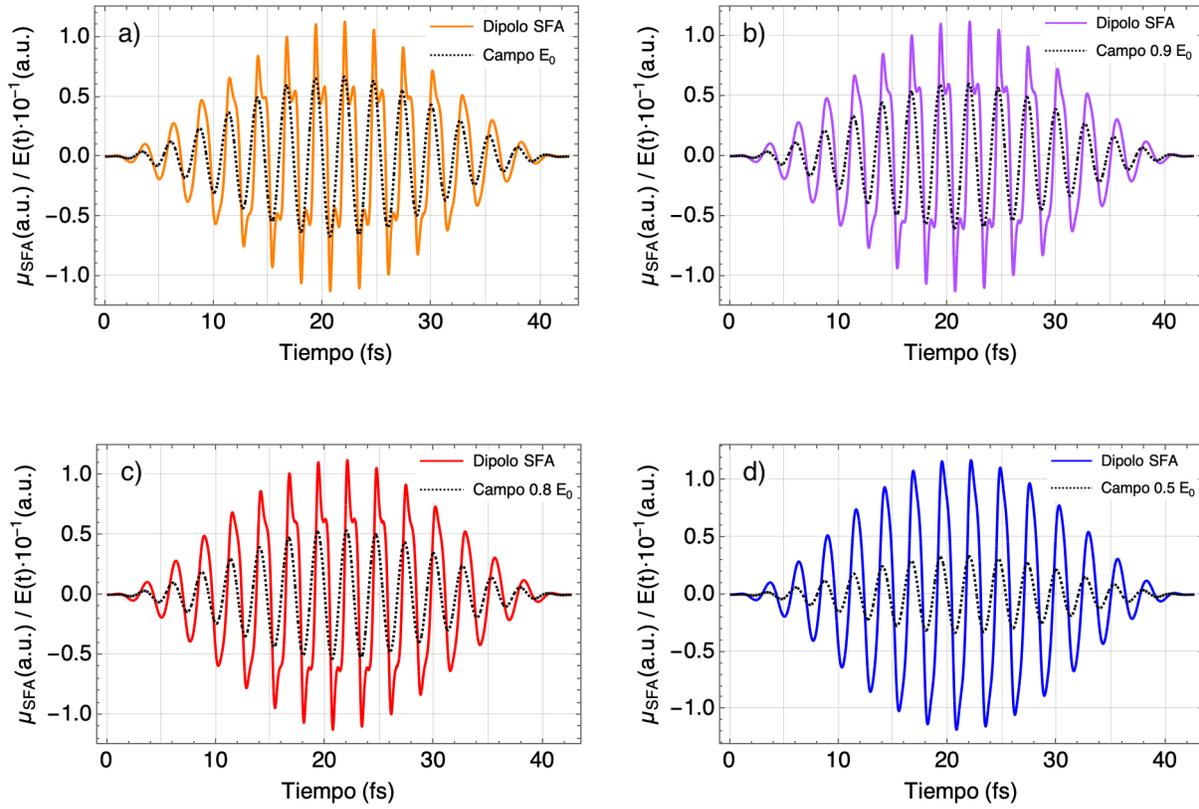


Figura 22: Comparación en el dominio temporal de los dipolos SFA con sus correspondientes campos eléctricos para portadora tipo seno. **a)** Amplitud de campo  $E_0$ . | **b)** Amplitud de campo  $0.9 E_0$ . | **c)** Amplitud de campo  $0.8 E_0$ . | **d)** Amplitud de campo  $0.5 E_0$ .

En los cuatro casos, el dipolo y el campo están prácticamente en fase solamente en la parte central (mitad de la duración del pulso), mientras que al principio y al final hay un pequeño retardo (las oscilaciones del dipolo se adelantan al campo). Sin embargo, nunca llegan a estar en contrafase, por lo que la susceptibilidad no cambia de signo.

### 3.5. Susceptibilidad dependiente del tiempo: comparación con la TDSE

Obtenemos por último los mismos resultados a partir de los resultados para dipolo calculado con la TDSE proporcionados por el Grupo de Investigación ALF de la Universidad de Salamanca. Los pulsos de campo eléctrico y parámetros de simulación para la TDSE son los mismos que los usados anteriormente con la SFA.

### 3.5.1. Dipolo TDSE

El motivo por el que desde el principio hemos escogido un pulso de campo eléctrico más largo para el cálculo del dipolo en este segundo bloque, reside precisamente en la TDSE. Como apuntan algunos autores [15], el cálculo del dipolo por medio de la resolución numérica de la TDSE falla a tiempos demasiado cortos, tal y como hemos podido comprobar en este trabajo al intentar obtener la susceptibilidad a partir del dipolo simulado con un campo eléctrico de cuatro ciclos como el anterior (queda fuera de nuestros objetivos explorar el cálculo de la susceptibilidad con campos de pocos ciclos).

Los resultados para el dipolo con los campos de 16 ciclos son los de la Figura 23.

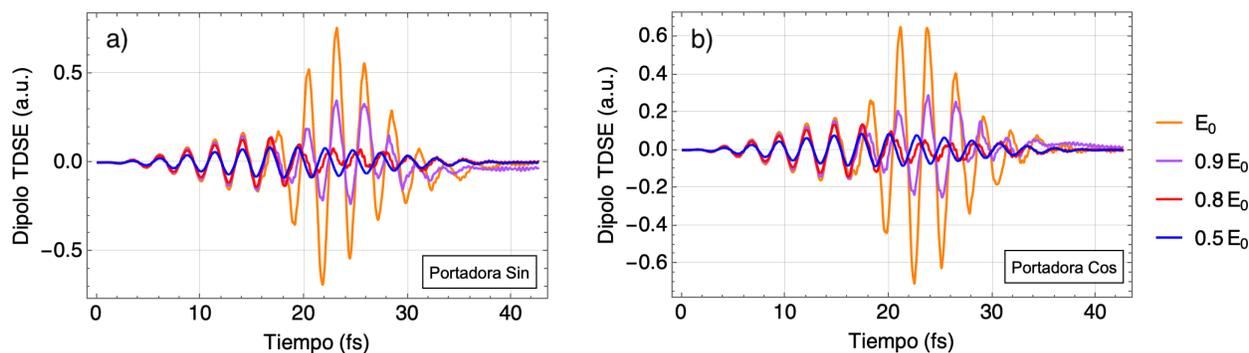


Figura 23: Dipolos TDSE obtenidos con los cuatro campos eléctricos de distinta intensidad. **a)** Campo eléctrico con onda portadora tipo seno. | **b)** Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno.

Contrastan bastante con los dipolos SFA de la Figura 17. Ahora, no son tan regulares ni siguen la forma suave de la envolvente del campo eléctrico (solo es así durante los primeros ciclos del pulso).

Los espectros de armónicos asociados a estos dipolos son los de la Figura 24.

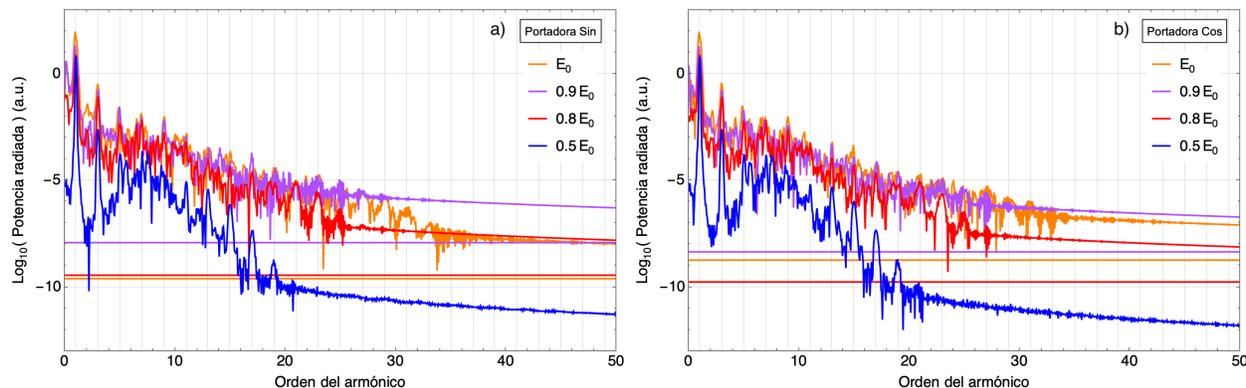


Figura 24: Espectro de armónicos asociado a los dipolos TDSE. Se representa el eje vertical en escala logarítmica frente al eje de frecuencias normalizado al valor de la frecuencia central del pulso,  $\omega_0 = 0,057$  a.u. **a)** Campo eléctrico con onda portadora tipo seno. | **b)** Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno.

Al contrario que ocurría con la SFA, vemos que al obtener espectro de armónicos a partir del dipolo TDSE perdemos la información a cerca de las distintas partes del espectro de armónicos típico del proceso HHG [15]. Además, la potencia relativa es siempre decreciente a medida que aumenta el orden del armónico, siendo imposible discernir entre los armónicos de orden alto y la zona de corte.

En último lugar, damos los análisis tiempo-frecuencia de los dipolos TDSE (mismos parámetros que en el caso SFA), Figuras 25-26.

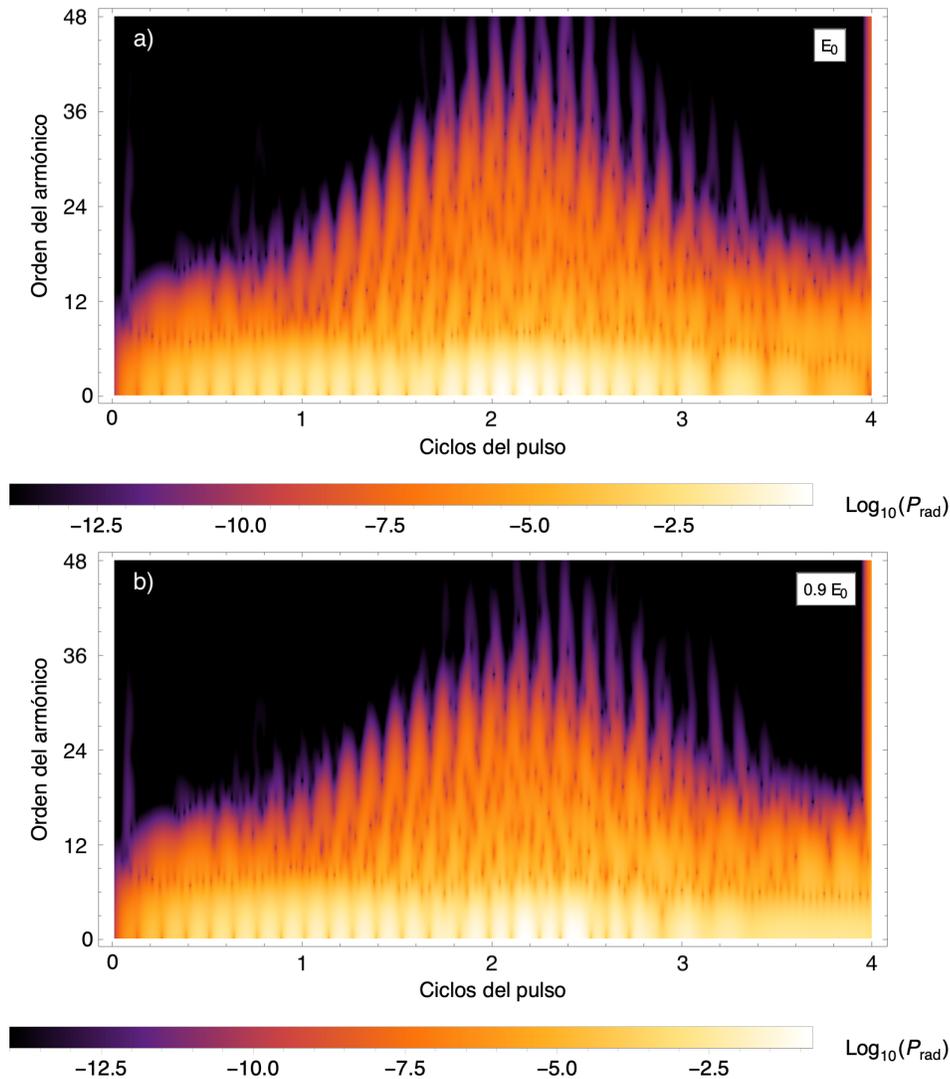


Figura 25: Espectrogramas para la emisión de armónicos en términos del dipolo TDSE con onda portadora tipo seno. a) Amplitud de campo  $E_0$ . | b) Amplitud de campo  $0.9 E_0$ .

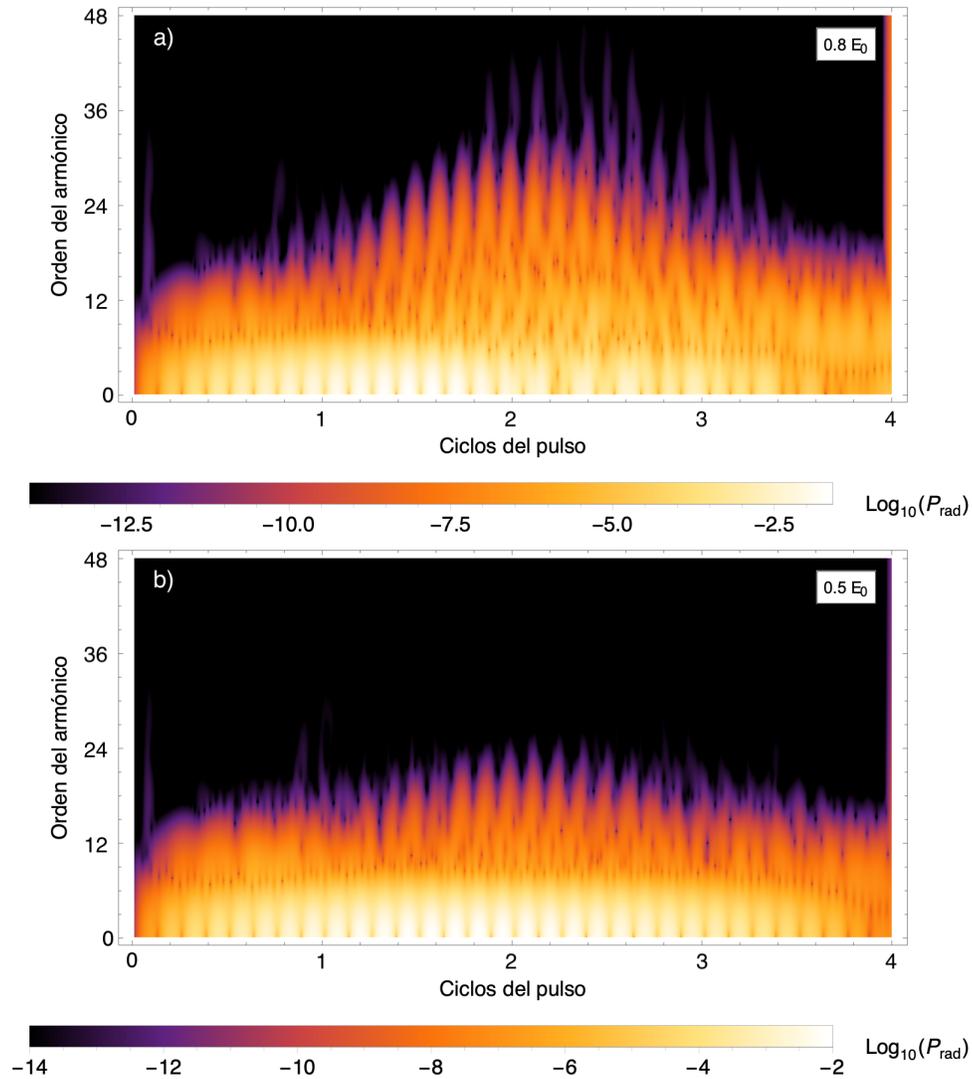


Figura 26: Espectrogramas para la emisión de armónicos en términos del dipolo TDSE con onda portadora tipo seno. **a)** Amplitud de campo  $0.8 E_0$ . | **b)** Amplitud de campo  $0.5 E_0$ .

Comparando con los espectros de la Figura 24, vemos que la región baja correspondiente a los armónicos de orden más bajo no ocupa tanto como en los espectrogramas equivalentes de los dipolos SFA (Figuras 19-20).

### 3.5.2. Susceptibilidad dependiente del tiempo

Repetiendo el procedimiento anterior para la SFA con la expresión (3.4.3), obtenemos la evolución temporal de las susceptibilidades calculadas a partir de la TDSE, tal y como se muestra en la Figura 27.

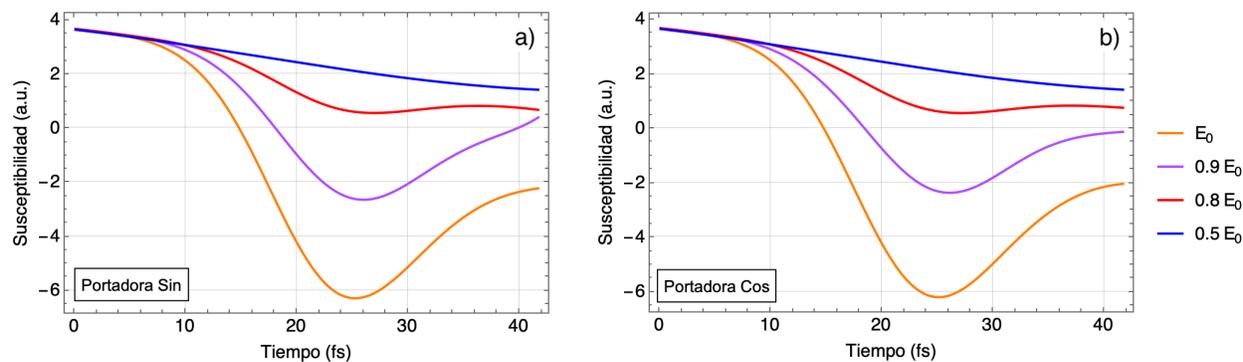


Figura 27: Susceptibilidad TDSE dependiente del tiempo obtenidos con los cuatro campos eléctricos de distinta intensidad. **a)** Campo eléctrico con onda portadora tipo seno. | **b)** Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno.

Representando los dipolos TDSE de la Figura 23 frente a los respectivos campo eléctricos, Figura 28, podemos entender de dónde proviene el cambio de signo que observamos en estas susceptibilidades TDSE. Dado que los dos casos para onda portadora tipo seno o coseno arrojan resultados muy similares, nos centramos en el caso del seno.

Como se puede apreciar en los cuatro casos de distinta amplitud, aproximadamente hasta el tiempo de 15 fs (5.6 ciclos del campo eléctrico) el dipolo y el campo se encuentran en perfecta contrafase.

Para el dipolo con el campo de amplitud  $E_0$  (Figura 28a), tras este tiempo, empieza a existir un desfase relativo entre ambos que va aumentando hasta estar en fase a los 24 fs (9 ciclos del pulso), tiempo para el cual tenemos el mínimo de la susceptibilidad (Figura 27a). Posteriormente, vuelve a aparecer este desfase relativo, pero no llega a darse de nuevo la situación de contrafase del principio del pulso, por lo que no vuelve a haber un cambio de signo.

Para la amplitud de  $0.9 E_0$  (Figura 28b) el comportamiento es similar. En este caso, el dipolo tarda más en estar en fase con el campo, lo que retrasa el paso por cero de la susceptibilidad hasta los 26 fs tras el inicio del pulso. Ahora, al final del pulso, el dipolo vuelve a estar en contrafase con el campo como al principio, de forma que volvemos a tener un paso por cero en la susceptibilidad a los 40 fs (15 ciclos del campo). Para el caso de la onda portadora tipo coseno (Figura 27b) podemos deducir que esto último no ocurre.

Por último, para las dos amplitudes de campo más bajas, (Figuras 28c-28d) no llega a darse la situación de dipolo y campo en fase, por lo que no hay cambio de signo en las respectivas susceptibilidades durante toda la duración del pulso. Cabe destacar el caso de la amplitud  $0.5 E_0$ , en el que dipolo y campo están en contrafase a lo largo de todo el eje de tiempos. Para campos poco intensos como este, cabría esperar un comportamiento constante de la susceptibilidad en función del tiempo. Sin embargo, apreciamos una cierta pendiente decreciente.

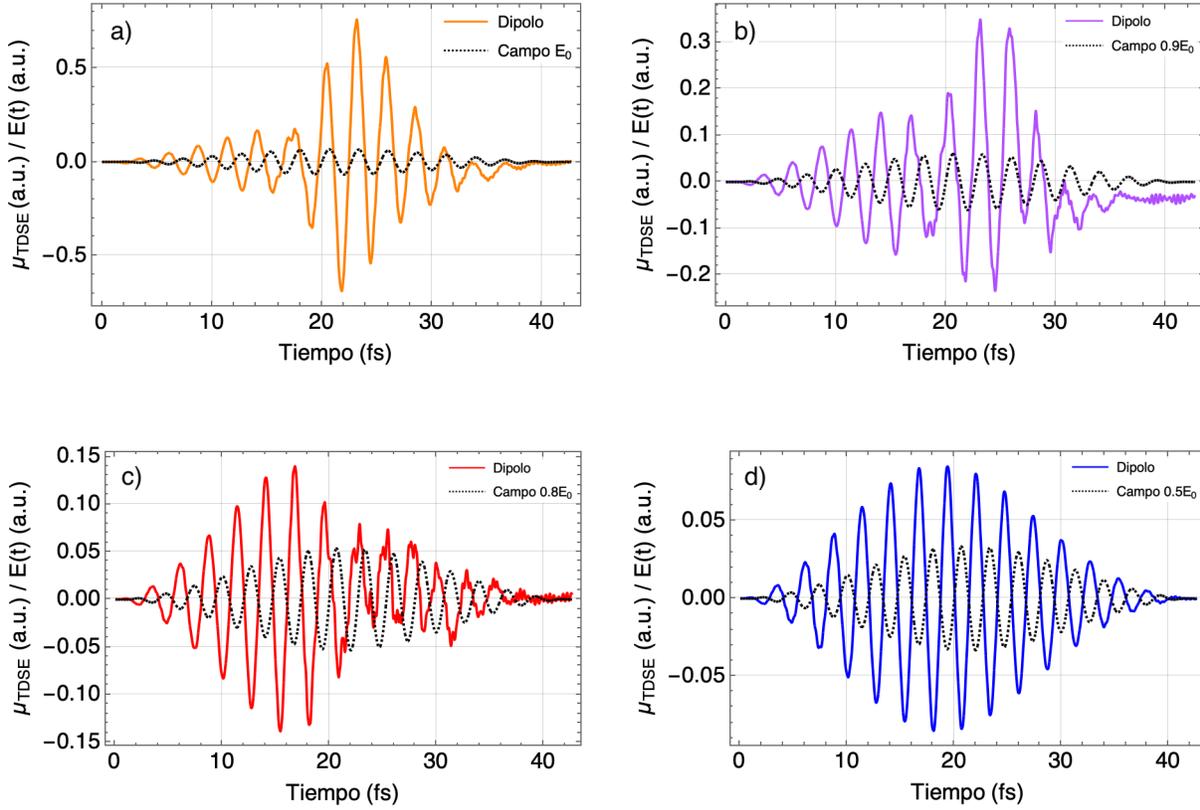


Figura 28: Comparación en el dominio temporal de los dipolos TDSE con sus correspondientes campos eléctricos para portadora tipo seno. **a)** Amplitud de campo  $E_0$ . | **b)** Amplitud de campo  $0.9 E_0$ . | **c)** Amplitud de campo  $0.8 E_0$ . | **d)** Amplitud de campo  $0.5 E_0$ .

Atendiendo a la forma de la expresión (3.4.3) con la que hemos obtenido la dependencia temporal de la susceptibilidad, también podemos analizar el comportamiento de la susceptibilidad de primer orden obtenida en la Figura 27 a través de un estudio más detallado de los espectrogramas de los dipolos anteriores. Para ello, consideremos la misma técnica ya explicada para obtener las Figuras 25-26. Como queremos comparar con los resultados de la susceptibilidad dependiente del tiempo, en lugar usar una ventana temporal  $M(t - \tau)$  de anchura  $\sigma = T/16$  (FWHM de 0.4 fs), calculamos con la misma anchura de la ventana con la que hemos obtenido la susceptibilidad:  $\sigma = 1.6 T$  (FWHM de 10 fs). Además, como estamos considerando la respuesta lineal, solamente nos interesa lo que ocurre en tono al armónico de orden 1. En la Figura 29 mostramos estos resultados. En la columna de la izquierda (Figuras 29a,c,e,g) aparecen representados los módulos al cuadrado de la cantidad  $\mathcal{F}[\mu(t)M(t - \tau)](\omega)$  (denotada simplemente como TF en las gráficas) y en la de la derecha (Figuras 29b,d,f,h) la parte real, ya que es la que estamos considerando para representar la susceptibilidad. Igual que antes, hacemos solo para el caso de onda portadora del campo eléctrico tipo seno y para los cuatro valores de intensidad.

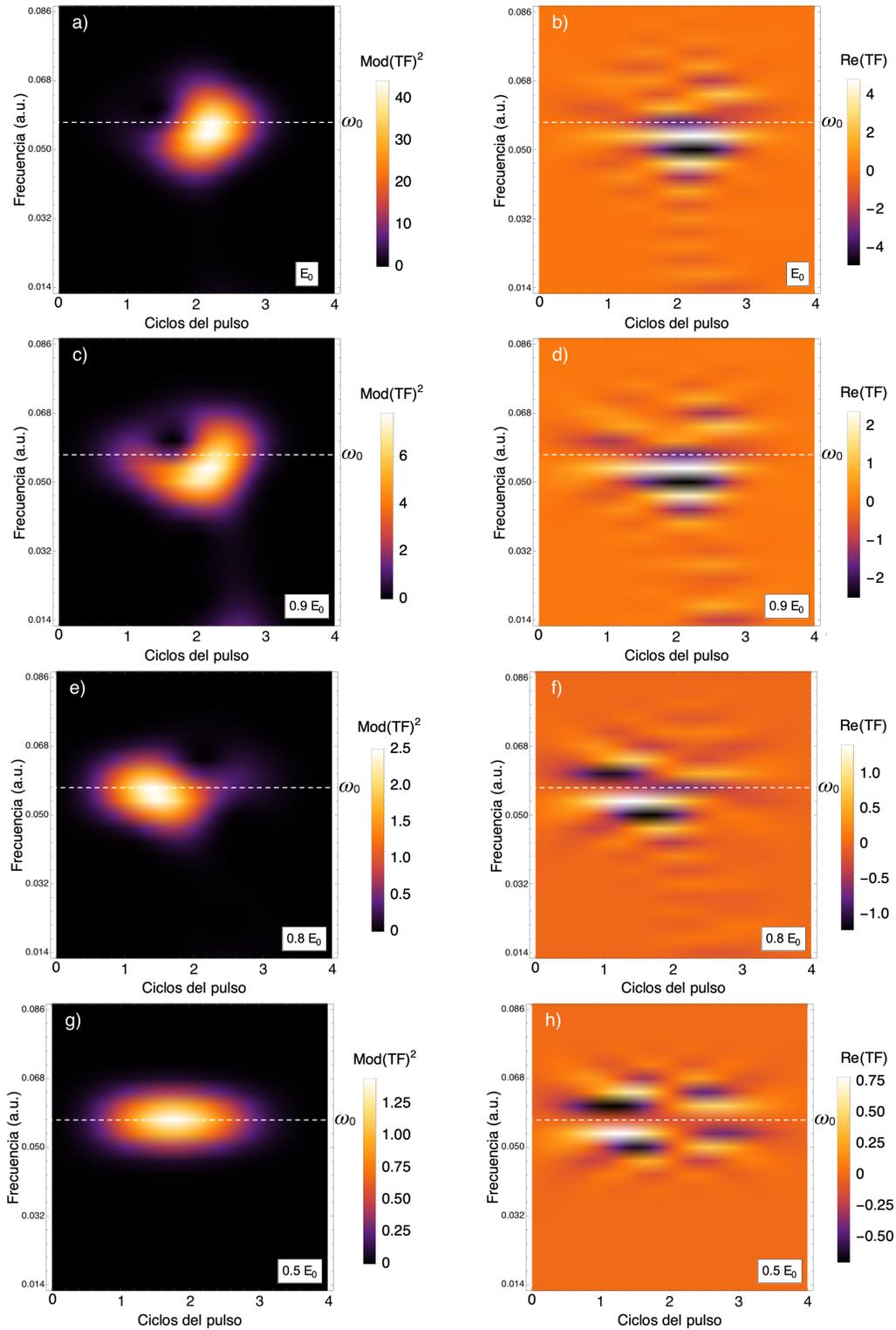


Figura 29: Espectrogramas de los dipolos TDSE en torno al armónico de orden 1,  $\omega = \omega_0$  (línea discontinua), para portadora tipo seno. **a)**  $|TF|^2$  para amplitud  $E_0$ . **b)**  $\text{Re}(TF)$  para amplitud  $E_0$ . **c)**  $|TF|^2$  para amplitud  $0.9 E_0$ . **d)**  $\text{Re}(TF)$  para amplitud  $0.9 E_0$ . **e)**  $|TF|^2$  para amplitud  $0.8 E_0$ . **f)**  $\text{Re}(TF)$  para amplitud  $0.8 E_0$ . **g)**  $|TF|^2$  para amplitud  $0.5 E_0$ . **h)**  $\text{Re}(TF)$  para amplitud  $0.5 E_0$ .

Efectivamente comprobamos que en las tres primeras amplitudes la parte real de la TF definida anteriormente llega a hacerse negativa, mientras que para el campo menos intenso de todos no se produce cambio de signo alguno a la frecuencia central del pulso. Por su parte, la representación del módulo al cuadrado nos informa sobre la potencia radiada por el dipolo para el armónico de orden 1. Vemos que este no se emite en todo el dominio temporal (duración total del pulso), sino solamente para un cierto intervalo de tiempo. Si repetimos este análisis para los dipolos SFA, obtenemos para los cuatro casos de intensidad algo parecido a la Figura 30. Vemos que para la frecuencia central del pulso no se produce cambio de signo de la parte real, consistente con la susceptibilidad SFA siempre positiva obtenida en la Figura 21.

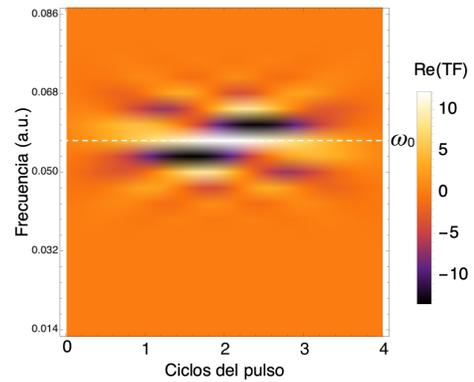


Figura 30: Espectrograma del dipolo SFA para amplitud de campo  $E_0$  y portadora tipo seno en torno al armónico de orden 1 (línea discontinua).

## Discusión y Conclusiones

Para terminar, damos las principales conclusiones que hemos podido extraer a partir de todos los resultados obtenidos a lo largo del trabajo, junto con posibles interpretaciones físicas que justifican algunos de los resultados menos explorados dentro del ámbito de la evolución temporal de la susceptibilidad.

Primeramente, para poner en contexto, recopilamos los aspectos principales de la aproximación de campo fuerte en la que hemos basado nuestro estudio, desarrollada con detalle en el fundamento teórico. Para la descripción cuántica de un átomo hidrogenoide interaccionando con un campo eléctrico en forma de pulso intenso (dada de manera exacta por la TDSE), en el caso de introducir aproximaciones con el objetivo de simplificar el problema, es necesario abandonar el tratamiento perturbativo aplicado al modelo de Lorentz microscópico, usado a menudo en el contexto de la óptica no lineal. La interpretación física esencial que supone la SFA es que el electrón atómico (recordamos la aproximación SAE), una vez ionizado tras la interacción con el campo intenso, evoluciona como un electrón libre sin volver a interaccionar con el potencial Coulombiano iónico. Así, la función de onda SFA que describe al electrón puede expresarse como  $|\Psi(t)\rangle = |\phi_0(t)\rangle + |\delta\Psi(t)\rangle$ , con  $|\phi_0(t)\rangle$  la función de onda del estado inicial (estado fundamental del átomo de H en nuestro caso) que evoluciona en el átomo sin interaccionar con el campo externo y  $|\delta\Psi(t)\rangle$  la función de onda ionizada. De manera que, al calcular valores esperados de operadores como la aceleración y el dipolo, se desprecian las contribuciones por parte de las transiciones entre estados ionizados (estados del continuo):  $\langle\hat{\mathbf{a}}\rangle(t) \sim \text{Re}[\langle\phi_0(t)|\hat{\mathbf{a}}|\delta\Psi(t)\rangle]$  y  $\langle\hat{\mu}\rangle(t) \sim \text{Re}[\langle\phi_0(t)|\hat{\mu}|\delta\Psi(t)\rangle]$ . Uno de los problemas más relevantes que presenta la SFA y para el que no se ha encontrado solución, es que durante la evolución temporal puede ocurrir que la población ionizada deje de estar normalizada.

En lo que se refiere al primer bloque sobre la emisión de armónicos (proceso HHG ampliamente estudiado en la comunidad científica), con los espectros de armónicos obtenidos a partir de la aceleración que experimenta el electrón, hemos comprobado que la SFA guarda un muy buen acuerdo cualitativo con los resultados TDSE. Esto es aplicable solamente a partir de la región de armónicos de orden alto (*plateau*), junto con la zona de corte o *cutoff*. También hemos evidenciado el acuerdo cuantitativo con la relación semiclásica  $\hbar\omega_{cutoff} = I_p + 3.17U_p$  para la frecuencia de corte del espectro. Sin embargo, para la región perturbativa correspondiente a los armónicos de orden más bajo, la SFA no es satisfactoria en comparación con la TDSE. El motivo es que estos armónicos se generan dentro del átomo con transiciones entre los estados ligados, y la SFA ignora esto considerando a los electrones como partículas libres una vez se produce la interacción con el campo intenso. En lo que se refiere al espectro de armónicos radiado obtenido a partir del dipolo, la SFA sigue siendo igual de válida (por lo menos para intensidades del campo de  $\sim 10^2$  TW/cm<sup>2</sup> según lo observado en nuestro estudio), en contraste con la TDSE con la que se pierde información relativa a las diferentes partes del espectro típico del proceso HHG.

En lo que se refiere al segundo bloque sobre el estudio de la evolución temporal de la

susceptibilidad  $\chi$  resuelta en tiempos del orden de femtosegundo, damos aquí una posible interpretación de nuestros resultados en base a modelos físicos ya conocidos como el modelo de Lorentz mencionado anteriormente, puesto que no es un tema sobre el que se haya profundizado demasiado. Además, nos restringimos a la respuesta temporal lineal del átomo de H. De los resultados con la SFA, extraemos que esta aproximación no es válida para este estudio. La principal observación que puede hacerse es el hecho de que  $\chi(t)$  no muestra diferencias para las distintas intensidades de campo (más allá de la magnitud), teniendo el mismo comportamiento para los cuatro casos analizados. Si bien cualitativamente puede llegar a asemejarse a los resultados TDSE, concluimos que no podemos justificar el uso de la SFA en este contexto.

Para interpretar los resultados proporcionados por la TDSE, como estamos tratando la respuesta lineal, podemos recurrir al modelo de Lorentz. En este modelo, el potencial atómico que experimenta el electrón en el átomo se describe a través del oscilador armónico, de manera que su desplazamiento puede obtenerse a partir de la ecuación de movimiento del oscilador armónico amortiguado y forzado:

$$\frac{d^2z}{dt^2} = -\omega_0^2 z - \gamma \frac{dz}{dt} - \frac{e}{m} E_\omega e^{-i\omega t},$$

donde  $-\omega_0^2 z$  es la fuerza de ligadura debida al potencial atómico ( $\omega_0$  es la frecuencia característica del sistema),  $\gamma dz/dt$  hace referencia al término de amortiguamiento y el término que va con  $E_\omega e^{-i\omega t}$  representa al término forzado introducido por el campo monocromático externo de frecuencia  $\omega$ . La solución general a tiempos largos (tras el transitorio) de esta ecuación para la respuesta lineal es  $z(t) = z_\omega^{(1)} e^{-i\omega t} + c.c.$  con

$$z_\omega^{(1)} = \frac{eE_\omega}{m} \frac{\omega^2 - \omega_0^2 - i\omega\gamma}{(\omega^2 - \omega_0^2)^2 + \omega^2\gamma^2}.$$

Si no tenemos en cuenta el término de amortiguamiento ( $\gamma = 0$ ), esencialmente tenemos que  $z(t) \propto 1/(\omega^2 - \omega_0^2)$ . En términos del dipolo, como  $\mu(t) = -e z(t)$ , cambia el signo  $\mu(t) \propto 1/(\omega_0^2 - \omega^2)$ .

De esta manera, a la vista de los resultados, tendremos dos contribuciones a la susceptibilidad. Por un lado la asociada a las transiciones internas del átomo (estados ligados) y por otro lado la asociada a la población ionizada. Cuando el electrón se encuentra ligado al átomo (niveles discretos con energía bien definida), tenemos que  $\omega_0 \gg \omega$  y entonces  $\mu(t) \sim 1/\omega_0^2 > 0$ . Para la población ionizada, como son partículas libres en el continuo,  $\omega_0 = 0$  y  $\mu(t) \sim -1/\omega^2 < 0$ . Ambas contribuciones tienen signo opuesto, de acuerdo con lo observado para el comportamiento de  $\chi(t)$ . En general, para los cuatro valores de intensidad de campo analizados, al comienzo del pulso  $\chi(t) > 0$ , lo que significa que el electrón se encuentra ligado al átomo (esto encaja con el hecho de que partimos del estado fundamental del átomo de H,  $\phi_0(r)$ , en el instante inicial  $t_0 = 0$ ). A medida que transcurre el tiempo, la función decrece hasta pasar eventualmente por cero; se interpreta como que la población ionizada aumenta con la propagación del pulso. Por ejemplo, para la amplitud de campo  $E_0$  esto es muy evidente. Para intensidades de campo grandes, la contribución a la  $\chi(t)$  de la población

ionizada supera a la de los estados ligados llegado un cierto tiempo (15 fs o 5.5 ciclos del pulso para el caso  $E_0$  y 18 fs o 6.6 ciclos para el caso  $0.9 E_0$ ). Para la amplitud de campo de  $0.8 E_0$  vemos que también aumenta ligeramente la población ionizada, pero no lo suficiente como para superar a la contribución de las transiciones internas. Para campos más bajos, hemos comprobado que la solución converge a la de  $0.5 E_0$  (la respuesta del átomo sigue siendo función del tiempo pero deja de depender de la intensidad). Para ésta, cabría esperar un comportamiento constante de  $\chi(t)$ , aunque se observa una ligera pendiente decreciente. Esto significaría que existe algo de población ionizada tras el final del pulso (relacionado con que el átomo queda excitado), pudiendo tener que ver con el hecho de que el átomo de H es muy polarizable.

En lo que se refiere a la similitud entre los resultados para onda portadora tipo seno o coseno, esto ocurre porque para este segundo bloque hemos usado un pulso mucho más largo, y en estas circunstancias el desfase envolvente-portadora se vuelve irrelevante.

Volviendo a la SFA, como esta presenta problemas con la normalización de la población ionizada y considera que el electrón queda libre tras la interacción con el campo, de ahí puede provenir que falle al intentar obtener la dependencia temporal de la susceptibilidad.

En el presente trabajo nos hemos limitado a estudiar la dependencia temporal de la susceptibilidad eléctrica para la respuesta lineal del átomo de H (a la frecuencia central del pulso  $\omega_0$ ). Como futuras proyecciones de este trabajo, nos preguntamos por dependencia temporal de susceptibilidades no lineales. Una posible manera sería modificando la expresión para  $\tilde{\chi}(\tau, \omega)$  en base a la definición de susceptibilidad no lineal vista al principio:

$$\tilde{\chi}^{(n)}(\tau, \omega) = \frac{\mathcal{F}[\mu(t)M(t - \tau)](\omega)}{\mathcal{F}[E(t)^n M(t - \tau)](\omega)},$$

seleccionando para frecuencias  $\omega = n\omega_0$ , es decir, los distintos armónicos (al menos a orden más bajo donde es válida la expansión perturbativa de la polarización  $P(t)$  en términos de las distintas potencias  $E(t)^n$  del campo).

Otra manera de profundizar, sería considerar aproximaciones más elaboradas como la SFA+ que queda fuera del nivel y propósito de este escrito.

De igual modo, este estudio podría aplicarse a otros átomos con energías de ligadura diferentes.



## Discussion and Conclusions

Finally, we give here the main conclusions that we have been able to draw from all the results obtained throughout the work, together with the possible physical interpretations that justify some of the less explored results within the scope of the temporal evolution of the susceptibility.

First of all, to put in context, we recapitulate the main aspects of the strong field approximation on which we have based our study, developed in detail in the theoretical framework. For the quantum description of the hydrogenic atom interacting with an electric field in the form of a strong pulse (given exactly by the TDSE), in the case of introducing approximations with the aim of simplifying the problem, it is necessary to leave the perturbative treatment applied to the microscopic Lorentz model, often used in the context of non-linear optics. The essential physical interpretation implied by the SFA is that the atomic electron (we recall the SAE approximation), once ionized after the interaction with the strong field, evolves as a free electron without interacting again with the ionic Coulombic potential. Thus, the SFA wave function describing the electron can be expressed as  $|\Psi(t)\rangle = |\phi_0(t)\rangle + |\delta\Psi(t)\rangle$ , with  $|\phi_0(t)\rangle$  the initial state wave function (ground state of the H atom in our case) that evolves in the atom without interacting with the external field, and  $|\delta\Psi(t)\rangle$  the ionized wave function. Thus, when calculating expected values of operators, such as acceleration and dipole, contributions from transitions between ionized states (continuum states) are neglected:  $\langle\hat{\mathbf{a}}\rangle(t) \sim \text{Re}[\langle\phi_0(t)|\hat{\mathbf{a}}|\delta\Psi(t)\rangle]$  and  $\langle\hat{\mu}\rangle(t) \sim \text{Re}[\langle\phi_0(t)|\hat{\mu}|\delta\Psi(t)\rangle]$ . One of the most relevant problems presented by the SFA, for which no correction has been proposed, is that during the time evolution the ionized population may no longer be normalized.

Regarding the first block about high-harmonic emission (HHG process widely studied in the scientific community), with the harmonic spectra obtained from the acceleration experienced by the electron, we have found that the SFA has a very good qualitative agreement with the TDSE results. This is applicable only in region of the higher order harmonics (*plateau*), together with the cutoff zone. We have also evidenced quantitative agreement with the semiclassical relation  $\hbar\omega_{cutoff} = I_p + 3.17U_p$  for the spectrum cutoff frequency. However, for the perturbative region corresponding to the lower order harmonics, SFA does not compare well against TDSE. The reason is that these harmonics are generated inside the atom with transitions between bound states, and the SFA ignores this by considering the electrons as free particles once the interaction with the strong field occurs. As far as the radiated harmonic spectrum obtained from the dipole is concerned, the SFA remains equally valid (at least for field strengths of  $\sim 10^2$  TW/cm<sup>2</sup>, as observed in our study), in contrast to the TDSE, which does not provide a reasonable HHG spectra.

Regarding the second block on the study of the temporal evolution of the susceptibility  $\chi$  resolved in femtosecond scale, we give here a possible interpretation of our results based in the Lorentz model mentioned above, since this has not been widely studied in the literature. Furthermore, we restrict ourselves to the linear time response of the H atom. From the SFA

results, we extract that this approximation is not valid for this study. The main observation that can be made is the fact that  $\chi(t)$  shows no differences for different field strengths (beyond their magnitude), having the same behavior for the four cases analyzed. While qualitatively it may come to resemble the TDSE results, we conclude that we cannot justify the use of SFA in this context.

To interpret the results provided by the TDSE, as we are dealing with the linear response, we can resort to the Lorentz model. In this model, the atomic potential experienced by the electron in the atom is described by the harmonic oscillator, so that its displacement can be obtained from the motion equation of the damped and forced harmonic oscillator:

$$\frac{d^2z}{dt^2} = -\omega_0^2 z - \gamma \frac{dz}{dt} - \frac{e}{m} E_\omega e^{-i\omega t},$$

where  $-\omega_0^2 z$  is the binding force due to the atomic potential ( $\omega_0$  is the characteristic frequency of the system),  $\gamma dz/dt$  refers to the damping term, and the term that goes with  $E_\omega e^{-i\omega t}$  represents the forced term introduced by the external monochromatic field of frequency  $\omega$ . The general solution at long times (after the transient) of this equation for the linear response is  $z(t) = z_\omega^{(1)} e^{-i\omega t} + c.c.$  with

$$z_\omega^{(1)} = \frac{eE_\omega}{m} \frac{\omega^2 - \omega_0^2 - i\omega\gamma}{(\omega^2 - \omega_0^2)^2 + \omega^2\gamma^2}.$$

If we disregard the damping term ( $\gamma = 0$ ), we essentially have that  $z(t) \propto 1/(\omega^2 - \omega_0^2)$ . In terms of the dipole, since  $\mu(t) = -e z(t)$ , the sign changes  $\mu(t) \propto 1/(\omega_0^2 - \omega^2)$ .

Thus, in view of the results, we have two contributions to the susceptibility. On the one hand the contribution associated with the internal transitions of the atom (bound states) and on the other hand the contribution associated with the ionized population. When the electron is bound to the atom (discrete levels with well-defined energy),  $\omega_0 \gg \omega$  and then  $\mu(t) \sim 1/\omega_0^2 > 0$ . For the ionized population, since they are free particles in the continuum,  $\omega_0 = 0$  and  $\mu(t) \sim -1/\omega^2 < 0$ . Both contributions have opposite sign, in agreement with what has been observed for the behavior of  $\chi(t)$ . In general, for the four values of field strength analyzed, at the beginning of the pulse  $\chi(t) > 0$ , which means that the electron is bound to the atom (this fits with the fact that the atom starts from the fundamental state  $\phi_0(r)$  at the initial instant  $t_0 = 0$ ). As time increases, the function decreases until eventually it passes through zero; it is interpreted as the ionized population increases with the propagation of the pulse. For example, for field amplitude  $E_0$  this is very obvious. For large field strengths, the contribution of the ionized population to  $\chi(t)$  exceeds the one of the bound states at a certain time (15 fs or 5.5 cycles of the pulse for the  $E_0$  case and 18 fs or 6.6 cycles for the  $0.9 E_0$  case). For the  $0.8 E_0$  field amplitude we see that the ionized population also increases slightly, but not enough to outweigh the contribution from the internal transitions. For lower fields, we have found that the solution converges to that of  $0.5 E_0$  (the atom response is still a function of time but no longer depends on the intensity). For the latter, one would expect a constant behavior of  $\chi(t)$ , although a slight decreasing slope is observed. This would mean that there is some ionized population after the end of the pulse (related to the atom being excited), which may have to do with the fact that the H atom is highly polarizable.

Regarding the similarity between the results for sine or cosine carrier waves, we think this occurs because for this second block we have used a much longer pulse, therefore the carrier-envelope phase becomes irrelevant.

Returning to the SFA, since it has problems with the normalization of the ionized population and considers that the electron is free after the interaction with the field, this may cause it to fail when trying to obtain the time dependence of the susceptibility.

In the present work we have limited ourselves to study the time dependence of the electrical susceptibility for the linear response of the H atom (at the center frequency  $\omega_0$  of the pulse). As future projections of this work, we wonder about the time dependence of nonlinear susceptibilities. One possible way would be to modify the expression for  $\tilde{\chi}(\tau, \omega)$  based on the definition of nonlinear susceptibility seen at the beginning:

$$\tilde{\chi}^{(n)}(\tau, \omega) = \frac{\mathcal{F}[\mu(t)M(t - \tau)](\omega)}{\mathcal{F}[E(t)^n M(t - \tau)](\omega)},$$

selecting for frequencies  $\omega = n\omega_0$ , i.e., the different harmonics (at least at lower order where the perturbative expansion of the polarization  $P(t)$  in terms of the various powers  $E(t)^n$  of the field is valid).

Another way to go deeper, would be to consider more elaborated approximations such as SFA+, which is beyond the level and purpose of this work.

Similarly, this study could be applied to other atoms with different binding energies.



## Apéndice A: Libertad Gauge y Hamiltoniano de interacción

Recordamos las ecuaciones de Maxwell en su forma diferencial y en el sistema CGS de unidades:

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = 4\pi\rho \quad (\text{A.1})$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (\text{A.2})$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (\text{A.3})$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \frac{4\pi}{c} \mathbf{J} + \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}. \quad (\text{A.4})$$

Para el vacío, donde no existen cargas ni corrientes, se reducen a

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = 0 \quad (\text{A.5})$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (\text{A.6})$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (\text{A.7})$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}, \quad (\text{A.8})$$

Según (A.6), como el gradiente del campo vectorial  $\mathbf{B}$  es nulo, podemos expresarlo como el rotacional de una función vectorial:  $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$  (de manera que el gradiente del rotacional siempre es nulo). Si sustituimos esta expresión para la inducción magnética en la ley de Faraday (A.7) tenemos que

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} (\nabla \times \mathbf{A}) = -\nabla \times \left( \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right) \implies \nabla \times \left( \mathbf{E} + \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right) = 0. \quad (\text{A.9})$$

Usando el mismo argumento anterior, como el rotacional de la cantidad entre paréntesis es nulo, la podemos expresar como el gradiente de una función escalar:  $\mathbf{E} + \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} = -\nabla\varphi$ .

Recapitulando, podemos dar entonces los campos electromagnéticos en términos de dos funciones o potenciales; el potencial escalar  $\varphi$  y el vector potencial  $\mathbf{A}$ :

$$\mathbf{E} = -\nabla\varphi - \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \quad \mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}. \quad (\text{A.10})$$

Sin embargo, los potenciales que dan lugar a los campos  $\mathbf{E}$  y  $\mathbf{B}$  no son únicos; veamos en qué consiste la libertad de Gauge. Supongamos que existen otros potenciales  $\varphi'$  y  $\mathbf{A}'$  que crean los mismos campos y obtengamos las condiciones que deben cumplir. Sean por ejemplo  $\varphi' = \varphi + \alpha$  y  $\mathbf{A}' = \mathbf{A} + \boldsymbol{\beta}$ , con  $\alpha(\mathbf{r}, t)$  una función escalar y  $\boldsymbol{\beta}(\mathbf{r}, t)$  una función vectorial.

Para la inducción magnética debe ser entonces, según (A.10),

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}' = \nabla \times \mathbf{A} + \nabla \times \boldsymbol{\beta} = \mathbf{B} + \nabla \times \boldsymbol{\beta} \implies \nabla \times \boldsymbol{\beta} = 0. \quad (\text{A.11})$$

De manera que la función  $\boldsymbol{\beta}$  viene dada por el gradiente de una función escalar:  $\boldsymbol{\beta} = \nabla\Lambda$ .

Para el campo eléctrico en (A.10) queda

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= -\nabla\varphi' - \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}'}{\partial t} = -\nabla\varphi - \nabla\alpha - \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} - \frac{1}{c} \frac{\partial \boldsymbol{\beta}}{\partial t} = \\ &= \mathbf{E} - \nabla\alpha - \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t}(\nabla\Lambda) \implies \nabla \left( \alpha + \frac{1}{c} \frac{\partial \Lambda}{\partial t} \right) = 0; \quad (\text{A.12}) \end{aligned}$$

es decir, la cantidad entre paréntesis no puede depender de las posiciones, únicamente del tiempo:  $\alpha + (1/c) \partial\Lambda/\partial t = f(t) \implies \alpha = -(1/c) \partial\Lambda/\partial t + f(t)$ . Como no hemos impuesto ninguna condición extra sobre la función  $\Lambda$ , podemos incluir  $f(t)$  en ella sin mas que redefinirla<sup>24</sup>, luego  $\alpha = -(1/c) \partial\Lambda/\partial t$ .

Llevando esto a los potenciales planteados al principio, tenemos finalmente que

$$\varphi' = \varphi - \frac{1}{c} \frac{\partial \Lambda}{\partial t} \quad \mathbf{A}' = \mathbf{A} + \nabla\Lambda. \quad (\text{A.13})$$

Existen infinitas funciones  $\Lambda$  que cumplan estas condiciones, es decir, infinitas libertades Gauge en la elección de los potenciales que caracterizan el campo electromagnético.

De manera equivalente a los potenciales (A.13), existe una expresión análoga para la transformación Gauge de una función de onda que cumpla la TDSE:

$$\Psi' = e^{-iq\Lambda/\hbar} \Psi; \quad (\text{A.14})$$

pasar de un Gauge a otro incluye una fase en la función de onda (operador de transformación gauge).

Por último, deducimos el Hamiltoniano que describe a una carga puntual en el seno de un campo electromagnético. Primero partimos del Lagrangiano del sistema. Para una carga puntual  $q$  que se desplaza en un campo eléctrico descrito por el potencial escalar  $\varphi$ , el Lagrangiano (función escalar, es igual a la energía cinética del sistema menos la potencial) toma la forma  $\mathcal{L} = T - U = mv^2/2 - q\varphi$ . Si existe también un campo magnético, supongamos dependiente del tiempo, este interactuará con las corrientes (cargas en movimiento), luego tenemos que añadir un término que dependa de la velocidad  $\mathbf{v}$ . Además, como  $\mathcal{L}$  es una

<sup>24</sup>Sin pérdida de generalidad,  $\Lambda \longrightarrow \Lambda + \int_0^t f(t)dt$ .

cantidad escalar, este término tendrá que ir como el producto escalar de la velocidad por un vector que describa el campo inducción magnética. Usamos entonces el vector potencial, de manera que, en el sistema CGS, tenemos

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2}mv^2 - \frac{q}{c}\mathbf{v} \cdot \mathbf{A} - q\varphi, \quad (\text{A.15})$$

donde  $v^2 = v_x^2 + v_y^2 + v_z^2$  en coordenadas cartesianas. A partir del Lagrangiano podemos obtener los momentos generalizados o canónicos

$$P_i = \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial v_i} = mv_i - \frac{q}{c}A_i \quad i = x, y, z \quad (\text{A.16})$$

(con  $p_i = mv_i$  las componentes del momento cinético).

Formalmente, el Hamiltoniano es la transformada de Legendre del Lagrangiano, pero si  $\mathcal{L}$  no depende explícitamente del tiempo y el sistema de coordenadas elegido es natural, podemos calcularlo como suma de la energía cinética más la potencial, usando la relación (A.16) entre el momento canónico  $\mathbf{P}$  y el cinético  $\mathbf{p}$ :

$$\begin{aligned} \mathcal{H} &= \frac{p^2}{2m} + q\varphi \\ &= \frac{1}{2m} \left( \mathbf{P} - \frac{q}{c}\mathbf{A} \right)^2 \\ &= \frac{P^2}{2m} - \frac{q}{mc}\mathbf{A} \cdot \mathbf{P} + \frac{q^2}{2mc^2}A^2, \end{aligned} \quad (\text{A.17})$$

donde hemos usado que el operador momento  $\mathbf{P} = -i\hbar\nabla$  y el vector potencial  $\mathbf{A}(t)$  conmutan por depender este último solo del tiempo, no de las posiciones. Además, hemos asumido que no hay fuentes, por lo que  $\varphi = 0$ .



## Apéndice B: Deducción de la ecuación (2.3.16)

El objetivo es deducir una ecuación diferencial con el tiempo como variable independiente cuya solución sean las amplitudes SFA definidas como

$$\Psi(\mathbf{P}, t) = -\frac{i}{\hbar} \int_{t_0}^t e^{iS(\mathbf{P}, t, t_1)/\hbar} e^{-i\epsilon_0(t_1-t_0)/\hbar} \langle \mathbf{P} | V_F(t_1) | \phi_0 \rangle dt_1. \quad (\text{B.1})$$

Partimos de la expresión general para una función  $f(t, x)$  cualquiera:

$$\frac{d}{dt} \int_{t_0}^t f(t, x) dx = f(t, t) + \int_{t_0}^t \frac{d}{dt} f(t, x) dx. \quad (\text{B.2})$$

En nuestro caso, la variable de integración es  $x \equiv t_1$ . Identificamos entonces la función  $f(t, t_1)$  con el integrando de (B.1),

$$f(t, t_1) = -\frac{i}{\hbar} e^{iS(\mathbf{P}, t, t_1)/\hbar} e^{-i\epsilon_0(t_1-t_0)/\hbar} \langle \mathbf{P} | V_F(t_1) | \phi_0 \rangle. \quad (\text{B.3})$$

Según (B.2) necesitamos calcular  $f(t, t)$  (sustituyendo en (B.3)  $t_1$  por  $t$ ) y  $df(t, t_1)/dt$  (derivando (B.3) respecto del tiempo).

Por un lado,

$$\begin{aligned} f(t, t) &= -\frac{i}{\hbar} e^{iS(\mathbf{P}, t, t)/\hbar} e^{-i\epsilon_0(t-t_0)/\hbar} \langle \mathbf{P} | V_F(t) | \phi_0 \rangle \\ &= -\frac{i}{\hbar} e^{-i\epsilon_0(t-t_0)/\hbar} \langle \mathbf{P} | V_F(t) | \phi_0 \rangle \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

ya que  $S(\mathbf{P}, t, t) = -\frac{1}{2m} \int_t^t p(t')^2 dt' = 0$  por ser los límites de integración iguales.

Por otro lado,

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} f(t, t_1) &= -\frac{i}{\hbar} e^{-i\epsilon_0(t_1-t_0)/\hbar} \langle \mathbf{P} | V_F(t_1) | \phi_0 \rangle \frac{d}{dt} (e^{iS(\mathbf{P}, t, t_1)/\hbar}) \\ &= -\frac{i}{\hbar} e^{-i\epsilon_0(t_1-t_0)/\hbar} \langle \mathbf{P} | V_F(t_1) | \phi_0 \rangle \frac{i}{\hbar} e^{iS(\mathbf{P}, t, t_1)/\hbar} \frac{dS(\mathbf{P}, t, t_1)}{dt} \\ &= -\frac{i}{\hbar} e^{-i\epsilon_0(t_1-t_0)/\hbar} \langle \mathbf{P} | V_F(t_1) | \phi_0 \rangle \frac{i}{\hbar} e^{iS(\mathbf{P}, t, t_1)/\hbar} \frac{-1}{2m} \left[ p(t)^2 + \int_{t_1}^t \frac{dp(t')^2}{dt} dt' \right] \\ &= -\frac{i}{\hbar} e^{-i\epsilon_0(t_1-t_0)/\hbar} \langle \mathbf{P} | V_F(t_1) | \phi_0 \rangle \frac{i}{\hbar} e^{iS(\mathbf{P}, t, t_1)/\hbar} \frac{-p(t)^2}{2m} \\ &= -i \frac{p(t)^2}{2m\hbar} f(t, t_1). \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

En la tercera igualdad hemos usado la definición de la acción  $S$  junto con la fórmula (B.2) para la derivada de la integral, y en la quinta la definición (B.3).

Llevando los resultados (B.4) y (B.5) a (B.2):

$$\frac{d}{dt} \int_{t_0}^t f(t, t_1) dt_1 = -\frac{i}{\hbar} e^{-i\epsilon_0(t-t_0)/\hbar} \langle \mathbf{P} | V_F(t) | \phi_0 \rangle + \int_{t_0}^t -i \frac{p(t)^2}{2m\hbar} f(t, t_1) dt_1, \quad (\text{B.6})$$

y como  $\int_{t_0}^t f(t, t_1) dt_1 = \Psi(\mathbf{P}, t)$ , llegamos finalmente a la ecuación (2.3.16):

$$\frac{d}{dt} \Psi(\mathbf{P}, t) = -\frac{i}{\hbar} e^{-i\epsilon_0(t-t_0)/\hbar} \langle \mathbf{P} | V_F(t) | \phi_0 \rangle - i \frac{p(t)^2}{2m\hbar} \Psi(\mathbf{P}, t) \quad (\text{B.7})$$

□

## Apéndice C: Código fuente desarrollado

```
1 PROGRAM dipolo_aceleracion_SFA
2
3 REAL E,time,dt,w,pi,T,tfin,A,c,Pr,Pz,E0,dPr,dPz,Prmax,Pzmax
4 INTEGER i,N,j,k,NPr,NPz
5 COMPLEX im,f,dipol,dipoli,acel,aceli,psi,suma,k1,k2,k3,k4
6
7 100 FORMAT(e22.15) ! Formato para escribir con 15 decimales
8
9 PARAMETER(N=16384)
10
11 PARAMETER(pi=4.d0*ATAN(1.d0))
12 PARAMETER(w=0.057d0)
13 PARAMETER(T=2.d0*pi/w)
14 PARAMETER(tfin=16.d0*T)
15
16 PARAMETER(dt=tfin/N)
17
18 PARAMETER(im=(0.d0,1.d0))
19
20 PARAMETER(c=137.037d0)
21
22
23 PARAMETER(Prmax=3.d0) ! haremos 0 < Pr < Prmax
24 PARAMETER(Pzmax=3.d0) ! haremos -Pzmax < Pz < Pzmax
25
26 PARAMETER(NPr=300)
27 PARAMETER(NPz=300)
28
29 PARAMETER(dPr=Prmax/NPr)
30 PARAMETER(dPz=Pzmax/NPz)
31
32
33 DIMENSION dipol(N),acel(N)
34
35
36 c Inicializamos a cero los arrays
37
38 DO i=1,N
39     dipol(i)=(0.d0,0.d0)
40     acel(i)=(0.d0,0.d0)
41 END DO
42
43
```

```

44  c   Archivos para guardar los resultados
45
46  OPEN(10,file='dipolSFA.txt')
47  OPEN(20,file='acelSFA.txt')
48
49
50  c   Tres bucles anidados: dos de ellos recorren los momentos y el
51  c   tercero mas interno recorre el tiempo
52
53  DO j=1,NPr      ! Bucle en el momento radial
54
55  Pr=j*dPr
56
57  DO k=-NPz,NPz  ! Bucle en el momento del eje z
58
59  Pz=k*dPz + dPz/2
60
61  psi=(0.d0,0.d0)
62
63  c   ALGORITMO RUNGE-KUTTA DE ORDEN 4
64
65  DO i=1,N      ! Bucle temporal
66
67      time=i*dt
68
69      k1=f(time,psi,Pr,Pz)
70      k2=f(time+(dt/2),psi+(k1*dt/2),Pr,Pz)
71      k3=f(time+(dt/2),psi+(k2*dt/2),Pr,Pz)
72      k4=f(time+dt,psi+(k3*dt),Pr,Pz)
73
74      psi=psi+(k1+(2*k2)+(2*k3)+k4)*(dt/6)
75
76
77      dipoli=psi*EXP(-im*time/2)*
78      *(im*4.d0*SQRT(8.d0)/pi)*(Pz/((1+(Pz**2)+(Pr**2))**3))
79
80      aceli=psi*EXP(-im*time/2)*
81      *(-im*SQRT(2.d0)/pi)*(Pz/((Pz**2)+(Pr**2)))*
82      *(1-(ATAN(SQRT((Pz**2)+(Pr**2)))/SQRT((Pz**2)+(Pr**2))))
83
84
85  c   Integral (suma) en el espacio de momentos
86
87      dipol(i)=dipol(i)+dipoli*2.d0*pi*Pr*dPr*dPz
88      acel(i)=acel(i)+aceli*2.d0*pi*Pr*dPr*dPz
89

```

```
90     END DO ! Cerramos bucle en i (tiempo)
91
92     END DO ! Cerramos bucle en k (Pz)
93
94     END DO ! Cerramos bucle en j (Pr)
95
96
97 c   Guardamos los resultados en los ficheros
98
99     DO i=1,N
100         time=i*dt
101         write(10,100) real(dipolsuma(i))
102         write(20,100) real(accelsuma(i))-E(time)
103     END DO
104
105     CLOSE(10)
106     CLOSE(20)
107
108     RETURN
109     END
110
111
112
113 c   Campo electrico del pulso laser
114
115     FUNCTION E(time)
116
117     REAL E,time,pi,w,E0,T
118
119     PARAMETER(pi=4.d0*ATAN(1.d0))
120     PARAMETER(w=0.057d0)
121     PARAMETER(E0=0.067d0)
122     PARAMETER(T=2.d0*pi/w)
123
124     IF (time.le.(16.d0*T)) THEN
125         ! Campo con portadora seno:
126         E=E0*(SIN(time*pi/(16.d0*T))**2.d0)*SIN(w*time)
127
128         ! Campo con portadora coseno:
129         E=E0*(SIN(time*pi/(16.d0*T))**2.d0)*COS(w*time)
130     ELSE
131         E=0.d0
132     END IF
133
134     RETURN
135     END
```

```

136
137 c   Vector potencial dado por el campo electrico del pulso
138
139   FUNCTION A(time)
140
141   REAL A,time,c,pi,w,T,E0
142
143   PARAMETER(c=137.037d0)
144   PARAMETER(pi=4.d0*ATAN(1.d0))
145   PARAMETER(w=0.057d0)
146   PARAMETER(T=2.d0*pi/w)
147   PARAMETER(E0=0.067d0)
148
149   IF (time.gt.(16.d0*T)) THEN
150     A=0.d0
151   ELSE
152     ! Portadora seno:
153     A=-c*E0*(-0.0343997d0 + (4.67836d0*COS(0.0534375d0*time))
154 - (8.77193d0*COS(0.057d0*time)) +
155 + (4.12797d0*COS(0.0605625d0*time)))
156
157     ! Portadora coseno:
158     A=-c*E0*((-4.67836d0*SIN(0.0534375d0*time)) +
159 + (8.77193d0*SIN(0.057d0*time)) -
160 - (4.12797d0*SIN(0.0605625d0*time)))
161   END IF
162
163   RETURN
164   END
165
166
167
168 c   Funcion f(t,psi)=dpsi/dt del algoritmo Runge-Kutta para
169 c   resolver la ecuacion diferencial (2.3.16)
170
171   FUNCTION f(time,psi,Pr,Pz)
172
173   REAL time,c,E0,pi,Pr,Pz
174   COMPLEX psi,im,f
175
176   PARAMETER(c=137.037d0)
177   PARAMETER(E0=0.067d0)
178   PARAMETER(pi=4.d0*ATAN(1.d0))
179
180   PARAMETER(im=(0.d0,1.d0))
181

```

```
182
183     f=- (im/2)*(((Pz + A(time)/c)**2) + (Pr**2))*psi -
184 - im*EXP(im*time/2)*((A(time)*Pz/c)+
185 +((A(time)**2)/(2*(c**2))))*
186 *(SQRT(8.d0)/(pi*E0))*(1/((Pz**2)+(Pr**2) + 1))
187
188     RETURN
189     END
```



## Referencias

- [1] Theodore H Maiman, RH Hoskins, IJ d'Haenens, Charles K Asawa, and V Evtuhov. Stimulated optical emission in fluorescent solids. ii. spectroscopy and stimulated emission in ruby. *Physical Review*, 123(4):1151, 1961.
- [2] Krzysztof Jakubczak. High-order harmonic generation. In *Laser Pulse Phenomena and Applications*. IntechOpen, 2010.
- [3] Peter F Moulton. Ti: sapphire lasers: Out of the lab and back in again. *Optics and Photonics News*, 1(8):20–23, 1990.
- [4] Donna Strickland and Gerard Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics communications*, 55(6):447–449, 1985.
- [5] KJ Schafer, Baorui Yang, LF DiMauro, and KC Kulander. Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff. *Physical review letters*, 70(11):1599, 1993.
- [6] Maciej Lewenstein, Ph Balcou, M Yu Ivanov, Anne L'huillier, and Paul B Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Physical Review A*, 49(3):2117, 1994.
- [7] Tenio Popmintchev, Ming-Chang Chen, Paul Arpin, Margaret M Murnane, and Henry C Kapteyn. The attosecond nonlinear optics of bright coherent x-ray generation. *Nature Photonics*, 4(12):822–832, 2010.
- [8] Cheng Jin. *Theory of nonlinear propagation of high harmonics generated in a gaseous medium*. Springer Science & Business Media, 2013.
- [9] Thomas Gaumnitz, Arohi Jain, Yoann Pertot, Martin Huppert, Inga Jordan, Fernando Ardana-Lamas, and Hans Jakob Wörner. Streaking of 43-attosecond soft-x-ray pulses generated by a passively cep-stable mid-infrared driver. *Optics express*, 25(22):27506–27518, 2017.
- [10] Robert W Boyd. *Nonlinear optics*. Academic press, 2020.
- [11] José Antonio Pérez Hernández, Camilo Granados, Julio Ramos, Carlos Hernández García, and Luis Plaja. The SFA/SFA+ Bible. July 2018.
- [12] Robert Müller Andrey Surzhykov. Light-matter interaction i - lecture 12. 2018.
- [13] Marco Antonio Pinto Ramos. Procesamiento de señales utilizando el análisis tiempo-frecuencia. 2005.
- [14] A Spott, A Jaron-Becker, and A Becker. Time-dependent susceptibility of a helium atom in intense laser pulses. *Physical Review A*, 96(5):053404, 2017.

- [15] AD Bandrauk, S Chelkowski, Dennis J Diestler, J Manz, and K-J Yuan. Quantum simulation of high-order harmonic spectra of the hydrogen atom. *Physical Review A*, 79(2):023403, 2009.

## Índice de figuras

|    |   |    |
|----|---|----|
| 1. | Escala de intensidades en $\text{W}/\text{cm}^2$ del régimen no lineal para las que es válido o no el tratamiento perturbativo. Para campos débiles tenemos los distintos órdenes perturbativos con su correspondiente fenomenología. Para campos intensos se empieza a tener el proceso de generación de armónicos de orden alto (HHG, <i>High Harmonic Generation</i> ) y el régimen de la óptica relativista. Esquema adaptado de [2]. . . . .   | 13 |
| 2. | Modelo de 3 pasos para la generación de armónicos de orden alto, imagen tomada de [7]. . . . .  | 15 |
| 3. | Espectro típico de HHG. Imagen tomada de [8]. . . . .   | 15 |
| 4. | <b>a)</b> Potencial bidimensional cuadrático simétrico por el que puede aproximarse el potencial atómico real para pequeños desplazamientos del electrón inducidos por campos poco intensos.   <b>b)</b> Potencial bidimensional asimétrico (contribución cúbica al término cuadrático) del desarrollo de Taylor del potencial atómico. . . . .   | 21 |
| 5. | Mallado del espacio de momentos en las direcciones radial $\rho$ y axial $z$ . Por cada pareja de puntos $(P_\rho, P_z)$ en el espacio de momentos tendremos un valor de la función de onda SFA del electrón $\Psi(\mathbf{P}, t)$ evolucionada en el tiempo. No consideramos la coordenada acimutal $\varphi$ por ser el problema isótropo en ella (campo linealmente polarizado en $z$ ). . . . .   | 42 |
| 6. | Campos eléctricos del pulso láser y vector potencial asociados usados para la simulación, para los cuatro valores de intensidad. <b>a)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo seno. Distinguimos la forma de la envolvente para el campo de mayor amplitud (línea discontinua) con cuatro oscilaciones completas de la portadora (línea continua).   <b>b)</b> Vector potencial asociado al campo eléctrico del pulso con onda portadora tipo seno.   <b>c)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno.   <b>d)</b> Vector potencial asociado al campo eléctrico del pulso con onda portadora tipo coseno. . . . .     | 45 |
| 7. | Aceleraciones SFA que experimenta en electrón en el átomo de H durante la duración del pulso. <b>a)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo seno.   <b>b)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno. . . . .   | 46 |
| 8. | Aceleración que experimenta el electrón del átomo de H en la interacción con un pulso láser intenso de amplitud $E_0$ y portadora tipo seno bajo el marco SFA. Como puede apreciarse en el cuadro de la esquina superior derecha, quedan algunas oscilaciones residuales tras la finalización del pulso en el tiempo $4T$ , generando emisión de fluorescencia (cuatro órdenes de magnitud por debajo de las amplitudes típicas durante la duración del pulso). . . . .   | 46 |
| 9. | Espectro de armónicos para la radiación emitida por el electrón atómico, obtenido bajo el marco SFA para los cuatro valores de amplitud del campo. Se representa el eje vertical en escala logarítmica frente al eje de frecuencias normalizado al valor de la frecuencia central del pulso, $\omega_0 = 0,057$ a.u. Apreciamos en todos ellos las tres partes principales del espectro: zona perturbativa, meseta o <i>plateau</i> y región de corte o <i>cutoff</i> . Véase la analogía con Figura 3. <b>a)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo seno.   <b>b)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno. . . . . | 48 |

|     |   |    |
|-----|---|----|
| 10. | Espectrograma del proceso HHG para el campo de amplitud $E_0$ y portadora seno en el que se observa la evolución temporal de la emisión de armónicos. En el eje horizontal se representa el tiempo y en el vertical las frecuencias correspondientes desde el armónico de orden 7 hasta el de orden 51. De nuevo, la potencia radiada se da en escala logarítmica. Encima de la imagen se ha superpuesto (sin escala vertical) la aceleración SFA anterior de la Figura 8 (amplitud $E_0$ y portadora seno) para evidenciar la relación cualitativa de forma visual en el eje temporal. . . . .                                       | 50 |
| 11. | Espectrogramas SFA. <b>a)</b> Campo de amplitud $E_0$ y portadora seno.   <b>b)</b> Campo de amplitud $E_0$ y portadora coseno.   <b>c)</b> Campo de amplitud $E_0/\sqrt{2}$ y portadora seno.   <b>d)</b> Campo de amplitud $E_0/\sqrt{2}$ y portadora coseno.   <b>e)</b> Campo de amplitud $E_0/\sqrt{3}$ y portadora seno.   <b>f)</b> Campo de amplitud $E_0/\sqrt{3}$ y portadora coseno.   <b>g)</b> Campo de amplitud $E_0/2$ y portadora seno.   <b>h)</b> Campo de amplitud $E_0/2$ y portadora coseno. . . . .   | 51 |
| 12. | Aceleraciones que experimenta en electrón en el átomo de H durante la duración del pulso de diferentes amplitudes, obtenidas con la integración numérica de la TDSE. <b>a)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo seno.   <b>b)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno. . . . .  | 52 |
| 13. | Espectro de armónicos para la radiación emitida por el electrón atómico, obtenido con la integración de la TDSE para los cuatro valores de amplitud del campo. Se representa el eje vertical en escala logarítmica frente al eje de frecuencias normalizado al valor de la frecuencia central del pulso, $\omega_0 = 0.057$ a.u. <b>a)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo seno.   <b>b)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno. . . . .  | 53 |
| 14. | Espectrograma del proceso HHG obtenido mediante la integración de la TDSE en el que se observa la evolución temporal de la emisión de armónicos. La potencia radiada se da en escala logarítmica. Encima de la imagen se ha superpuesto (sin escala vertical) la aceleración TDSE de la Figura 12 para amplitud $E_0$ y portadora tipo seno. . . . .  | 54 |
| 15. | Espectrogramas TDSE. <b>a)</b> Campo de amplitud $E_0$ y portadora seno.   <b>b)</b> Campo de amplitud $E_0$ y portadora coseno.   <b>c)</b> Campo de amplitud $E_0/\sqrt{2}$ y portadora seno.   <b>d)</b> Campo de amplitud $E_0/\sqrt{2}$ y portadora coseno.   <b>e)</b> Campo de amplitud $E_0/\sqrt{3}$ y portadora seno.   <b>f)</b> Campo de amplitud $E_0/\sqrt{3}$ y portadora coseno.   <b>g)</b> Campo de amplitud $E_0/2$ y portadora seno.   <b>h)</b> Campo de amplitud $E_0/2$ y portadora coseno. . . . .  | 55 |
| 16. | Campos eléctricos del pulso láser y vector potencial asociados usados para la simulación del dipolo SFA, para los cuatro valores de intensidad. <b>a)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo seno. Distinguimos la forma de la envolvente para el campo de mayor amplitud (línea discontinua) con 16 oscilaciones completas de la portadora (línea continua).   <b>b)</b> Vector potencial asociado al campo eléctrico del pulso con portadora tipo seno.   <b>c)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno.   <b>d)</b> Vector potencial asociado al campo eléctrico del pulso con onda portadora tipo coseno. . . . . | 57 |
| 17. | Dipolos SFA obtenidos con los cuatro campos eléctricos de distinta intensidad. <b>a)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo seno.   <b>b)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno. . . . .  | 57 |
| 18. | Espectro de armónicos asociado a los dipolos SFA. Se representa el eje vertical en escala logarítmica frente al eje de frecuencias normalizado al valor de la frecuencia central del pulso, $\omega_0 = 0,057$ a.u. <b>a)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo seno.   <b>b)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno. . . . .   | 58 |

|     |  |    |
|-----|--|----|
| 19. | Espectrogramas para la emisión de armónicos en términos del dipolo SFA con onda portadora tipo seno. <b>a)</b> Amplitud de campo $E_0$ .   <b>b)</b> Amplitud de campo $0.9 E_0$ . . . . .   | 59 |
| 20. | Espectrogramas para la emisión de armónicos en términos del dipolo SFA con onda portadora tipo seno. <b>a)</b> Amplitud de campo $0.8 E_0$ .   <b>b)</b> Amplitud de campo $0.5 E_0$ . . . . .   | 60 |
| 21. | Susceptibilidad SFA dependiente del tiempo obtenidos con los cuatro campos eléctricos de distinta intensidad. <b>a)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo seno.   <b>b)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno. . . . .  | 61 |
| 22. | Comparación en el dominio temporal de los dipolos SFA con sus correspondientes campos eléctricos para portadora tipo seno. <b>a)</b> Amplitud de campo $E_0$ .   <b>b)</b> Amplitud de campo $0.9 E_0$ .   <b>c)</b> Amplitud de campo $0.8 E_0$ .   <b>d)</b> Amplitud de campo $0.5 E_0$ . . . . .   | 62 |
| 23. | Dipolos TDSE obtenidos con los cuatro campos eléctricos de distinta intensidad. <b>a)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo seno.   <b>b)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno. . . . .  | 63 |
| 24. | Espectro de armónicos asociado a los dipolos TDSE. Se representa el eje vertical en escala logarítmica frente al eje de frecuencias normalizado al valor de la frecuencia central del pulso, $\omega_0 = 0,057$ a.u. <b>a)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo seno.   <b>b)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno. . . . .   | 63 |
| 25. | Espectrogramas para la emisión de armónicos en términos del dipolo TDSE con onda portadora tipo seno. <b>a)</b> Amplitud de campo $E_0$ .   <b>b)</b> Amplitud de campo $0.9 E_0$ . . . . .  | 64 |
| 26. | Espectrogramas para la emisión de armónicos en términos del dipolo TDSE con onda portadora tipo seno. <b>a)</b> Amplitud de campo $0.8 E_0$ .   <b>b)</b> Amplitud de campo $0.5 E_0$ . . . . .  | 65 |
| 27. | Susceptibilidad TDSE dependiente del tiempo obtenidos con los cuatro campos eléctricos de distinta intensidad. <b>a)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo seno.   <b>b)</b> Campo eléctrico con onda portadora tipo coseno. . . . .   | 66 |
| 28. | Comparación en el dominio temporal de los dipolos TDSE con sus correspondientes campos eléctricos para portadora tipo seno. <b>a)</b> Amplitud de campo $E_0$ .   <b>b)</b> Amplitud de campo $0.9 E_0$ .   <b>c)</b> Amplitud de campo $0.8 E_0$ .   <b>d)</b> Amplitud de campo $0.5 E_0$ . . . . .  | 67 |
| 29. | Espectrogramas de los dipolos TDSE en torno al armónico de orden 1, $\omega = \omega_0$ (línea discontinua), para portadora tipo seno. <b>a)</b> $ \text{TF} ^2$ para amplitud $E_0$ .   <b>b)</b> $\text{Re}(\text{TF})$ para amplitud $E_0$ .   <b>c)</b> $ \text{TF} ^2$ para amplitud $0.9 E_0$ .   <b>d)</b> $\text{Re}(\text{TF})$ para amplitud $0.9 E_0$ .   <b>e)</b> $ \text{TF} ^2$ para amplitud $0.8 E_0$ .   <b>f)</b> $\text{Re}(\text{TF})$ para amplitud $0.8 E_0$ .   <b>g)</b> $ \text{TF} ^2$ para amplitud $0.5 E_0$ .   <b>h)</b> $\text{Re}(\text{TF})$ para amplitud $0.5 E_0$ . . . . . | 68 |
| 30. | Espectrograma del dipolo SFA para amplitud de campo $E_0$ y portadora tipo seno en torno al armónico de orden 1 (línea discontinua). . . . .   | 69 |