

INTRODUCTION À LA GÉNÉRATION DE HAUTES HARMONIQUES

CLARA L. GARCIA

La génération des hautes harmoniques dans les gaz est un phénomène physique qui a suscité un intérêt considérable dans la communauté scientifique et a permis la réalisation d'impulsions ultracourtes de hautes énergies. Cet article propose une introduction à la génération de hautes harmoniques en présentant deux modèles utilisés pour la décrire : le Three Step Model et le modèle de Lewenstein.

1. INTRODUCTION

Dans les années 1980, le développement de lasers intenses à impulsions courtes a ouvert la voie à des intensités lumineuses de l'ordre de $10^{14} \text{ W cm}^{-2}$, soit plusieurs ordres de grandeur supérieurs à celles des lasers continus jusqu'alors accessibles. De nouveaux phénomènes hautement non-linéaires, issus de l'interaction entre les atomes et le champ électrique, ont alors été observés, parmi lesquels le processus de génération de hautes harmoniques (*High Harmonic Generation* "HHG").

La génération de hautes harmoniques s'appuie sur un phénomène surgissant lors de la focalisation d'une impulsion laser brève ($\sim \text{fs}$) et de forte intensité sur un jet de gaz atomique. Il en résulte l'apparition d'un peigne d'harmoniques impaires dans le domaine extrême ultraviolet (XUV). L'amplitude de ce spectre harmonique obtenu peut être décrite en trois zones (Fig. 1) :

- Aux ordres les plus faibles, on retrouve les harmoniques issues de l'optique non-linéaire dont l'intensité diminue exponentiellement avec la non-linéarité ;
- Cette zone est suivie d'un plateau où les harmoniques ont une intensité comparable, et qui correspond à une contribution non-perturbative de l'optique hautement non-linéaire ;
- Enfin, vient une zone de coupure (*cutoff*) où l'intensité des harmoniques chute très rapidement.

La première observation d'harmoniques générées dans un gaz a été rapportée par McPherson *et al.* en 1987 [1] avec la production de six harmoniques à partir d'un laser à impulsion picoseconde de longueur d'onde $\lambda = 248 \text{ nm}$. Un an plus tard, un spectre de 33 harmoniques est obtenu par M. Ferray *et al.* à partir d'un laser Nd :YAG à impulsion de 30 ps et longueur d'onde $\lambda = 1064 \text{ nm}$ [2].

Le processus de génération de hautes harmoniques a soulevé de nombreux questionnements. En effet, ne pouvant pas être expliqué par la théorie de l'optique non-

linéaire, ni par la théorie des perturbations, de nombreux modèles ont cherché à capturer l'essence du phénomène prenant place lors de cette interaction entre lumière et matière.

Cet article propose une introduction aux deux modèles principaux utilisés pour expliquer la génération de hautes harmoniques dans les gaz : le modèle semi-classique à trois étapes (*Three Step Model*),^{3,4} et le modèle quantique de Lewenstein [5]. Le propos de l'article est centré autour de l'interaction d'un seul atome-électron avec le champ laser, la réponse globale du milieu macroscopique n'étant pas développée ici.

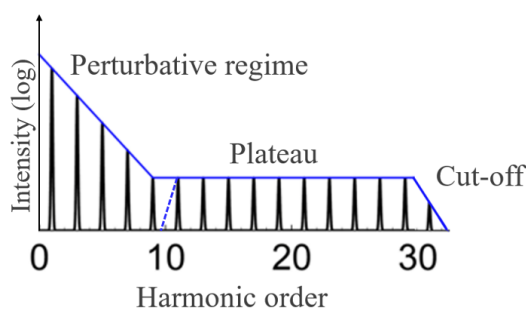


Fig. 1 Schéma de principe d'un spectre HHG typique. Les premières harmoniques subissent une décroissance puis atteignent un plateau. Au niveau du plateau, les harmoniques ont une intensité comparable. Enfin, à partir d'une certaine énergie E_{cutoff} l'intensité des harmoniques décroît brutalement.

2. UN MODÈLE SEMI-CLASSIQUE : *THREE STEP MODEL*

Le *Three Step Model*, développé par Kulander (Kulander *et al.*, 1993 [3]) et Corkum (Corkum *et al.*, 1993 [4]), constitue une description semi-classique simple mais extrêmement féconde de la génération d'harmoniques d'ordre

élevé dans les gaz atomiques. Le modèle prend en compte un champ laser intense, polarisé linéairement, et de fréquence relativement basse, qui interagit avec un électron d'un atome.

Le processus se décompose en trois étapes fondamentales comme illustré en figure 2 :

1. **Ionisation par effet tunnel** : Aux maxima du champ laser, celui-ci déforme le potentiel atomique ressenti par les électrons dans l'atome. Les électrons les moins liés peuvent alors s'échapper par effet tunnel ;
2. **Excursion dans le continuum** : Quand un électron est éjecté, il arrive dans le continuum avec une vitesse nulle. Il est alors accéléré par le champ oscillant, acquérant une énergie cinétique E_{kin} ;
3. **Recombinaison** : Lorsque le champ électrique change de signe, l'électron peut changer de direction, et peut dans certains cas retourner à proximité de l'ion parent où il est recombéné radiativement. Il libère alors un photon harmonique d'énergie $h\nu = I_p + E_{\text{kin}}$, avec I_p le potentiel d'ionisation de l'atome.

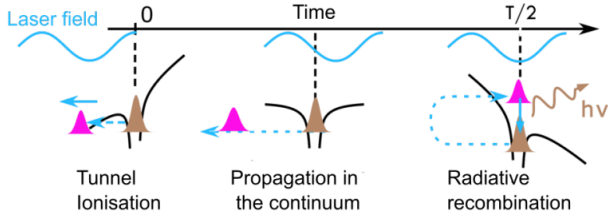


Fig. 2 Illustration du *Three Step Model*. À $t = 0$, l'électron s'échappe de l'atome par effet tunnel. Il est ensuite propagé dans le continuum, avant de revenir à proximité de l'ion parent et d'être recombéné radiativement à $t = T/2$, T étant la période du laser. Tiré de [6].

Le processus se répète à chaque demi-cycle optique $T/2$.

Le *Three Step Model* repose donc sur un processus intrinsèquement quantique : l'ionisation d'un atome par effet tunnel et l'émission d'un photon par recombinaison radiative de l'électron ionisé. Bien que le champ électrique et la propagation du paquet d'ondes électronique soient traités de manière classique, nous allons voir que les prédictions obtenues par le *Three Step Model* sont très proches des observations expérimentales.

2.1. Prédictions du modèle

En considérant le champ électrique incident : $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 \cos(\omega_0 t)$, avec E_0 l'amplitude et ω_0 la fréquence du champ, un électron émis par un atome à un temps $t = t_i$ évolue dans le continuum selon l'équation de Newton :

$$m\ddot{\mathbf{x}} = -e\mathbf{E}_0 \cos(\omega_0 t). \quad (1)$$

En posant comme conditions initiales $\mathbf{x}(t_i) = 0$ et $\dot{\mathbf{x}}(t_i) = 0$, on obtient :

$$\mathbf{x}(t) = \frac{\mathbf{E}_0}{\omega_0^2} [(\cos(\omega_0 t_i) - \cos(\omega_0 t)) + (\omega_0 t - \omega_0 t_i) \sin(\omega_0 t_i)]. \quad (2)$$

Ainsi, le processus est déterministe : à un instant d'ionisation donné correspond à une énergie précise à un moment précis de recombinaison.

2.1.1. Une énergie photonique maximale

L'énergie cinétique de l'électron dans le continuum s'exprime :

$$E_{\text{kin}}(t) = 2U_p (\sin(\omega_0 t) - \sin(\omega_0 t_i))^2, \quad (3)$$

avec $U_p = e^2 E_0^2 / 4m\omega_0^2$ l'énergie ponderomotrice, qui est l'énergie moyenne acquise par une particule chargée lorsqu'elle est repoussée par un champ électromagnétique oscillant.

Lors de la recombinaison radiative (step 3), l'énergie du photon émis correspond à $E_{h\nu} = E_{\text{kin}}(t_r) + I_p$, avec t_r le temps de recombinaison. Un calcul classique permet de montrer que sous ces conditions, l'énergie cinétique maximale gagnée par l'électron au cours de son excursion dans le continuum correspond à $E_{\text{kin,max}} = 3.17 U_p$.

L'énergie correspondant à l'harmonique la plus élevée est :

$$E_{\text{cutoff}} = 3.17 U_p + I_p. \quad (4)$$

Cette relation permet d'expliquer la chute d'intensité des harmoniques (*cutoff*) au-delà d'une certaine énergie. La nature du gaz utilisé modifie donc le spectre harmonique : un gaz rare léger, correspondant à une énergie d'ionisation I_p élevée, permet d'obtenir des harmoniques plus élevées. Cette loi de coupure du spectre est en accord avec les observations expérimentales.

2.1.2. Deux types de trajectoires distinctes

Pour une énergie cinétique donnée, la résolution du système d'équations :

$$\begin{cases} (\cos(\omega_0 t_r) - \cos(\omega_0 t_i)) + (\omega_0 t_r - \omega_0 t_i) \sin(\omega_0 t_i) = 0, \\ (\sin(\omega_0 t_r) - \sin(\omega_0 t_i))^2 = \frac{E_{\text{kin}}(t)}{2U_p}, \end{cases} \quad (5)$$

aboutit non pas à une, mais à deux trajectoires distinctes.

Pour une même énergie cinétique, deux trajectoires sont possibles : une trajectoire dite courte et une trajectoire dite longue.

Ces deux types de trajectoires ont des propriétés spatiales et spectrales différentes. De nombreux travaux ont permis de démontrer expérimentalement l'existence de longues excursions dans le continuum en comparaison à des excursions plus courtes,⁷⁻⁹ confirmant ainsi cette prédiction.

2.1.3. Harmoniques impaires

Les trois étapes du *Three Step Model* se produisent deux fois à chaque cycle optique du champ laser. Dans le domaine fréquentiel, cela correspond à une séparation entre harmoniques de deux fois l'énergie du photon incident. Les harmoniques sont ainsi soit paires soit impaires.

On peut alors remarquer que dans un milieu centro-symétrique, pour une solution $(\omega_0 t_i, \omega_0 t_r)$, $(\omega_0 t_i + p\pi, \omega_0 t_r + p\pi)$ est aussi une solution avec p un entier. Ainsi, il est possible de noter $x_m(\omega t) = (-1)^p x_{p=0}(\omega t - p\pi)$. Ainsi, les harmoniques sont émises à chaque demi-cycle, avec une alternance de phase de π entre deux émissions successives. Dans un milieu centro-symétrique, cette alternance entraîne l'annulation des composantes paires et la production exclusive d'harmoniques impaires.

Dans un milieu centro-symétrique, le processus de génération de hautes harmoniques n'émet que des harmoniques impaires.

2.2. Limites du *Three Step Model*

Le *Three Step Model* permet ainsi de trouver et d'expliquer qualitativement certaines propriétés de la génération de hautes harmoniques. Néanmoins, il ne fournit pas d'informations quantitatives sur les propriétés temporelles et spectrales des harmoniques émises. Cette approche semi-classique ne tient pas non plus compte des effets quantiques pouvant survenir au cours du processus de génération de hautes harmoniques tels que la diffusion quantique des paquets d'ondes, les interférences quantiques, etc.

Pour prendre en compte ces effets, un modèle quantique de l'interaction atome-champ est donc nécessaire. L'interaction peut être décrite de manière non perturbative par résolution numérique de l'équation de Schrödinger dépendante du temps.^{10,11} Une telle résolution numérique est cependant très longue, justifiant un modèle simplifié, reposant sur l'approximation de champs forts : le modèle de Lewenstein.

3. TRAITEMENT QUANTIQUE DE L'ÉLECTRON : MODÈLE DE LEWENSTEIN

Le modèle de Lewenstein, proposé en 1994 [5], constitue une description quantique du processus de génération d'harmoniques dans le cadre de la *Strong-Field Approximation* (SFA). Ce formalisme retrouve les résultats du *Three Step Model* tout en les justifiant à partir de l'équation de Schrödinger dépendante du temps. La SFA repose sur trois hypothèses principales :

1. L'électron, une fois ionisé, est traité comme une onde libre décrite par un état de Volkov, évoluant uniquement sous l'influence du champ laser ;
2. L'interaction de l'électron avec l'ion résiduel est négligée pendant la propagation dans le continuum ;
3. Seul l'état fondamental de l'atome est pris en compte (les autres états liés sont ignorés).

Ces approximations sont valables lorsque le paramètre de Keldysh¹²

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}}, \quad (6)$$

est inférieur ou proche de 1, ce qui correspond au régime tunnel. Ici I_p est l'énergie d'ionisation et U_p l'énergie

pondéromotrice moyenne acquise par une charge dans un champ laser d'amplitude E_0 et de fréquence ω_0 .

3.1. Équation de Schrödinger et dipôle atomique

L'évolution de la fonction d'onde s'écrit dans la jauge longueur :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(\mathbf{r}) + \hat{\mathbf{r}} \cdot \mathbf{E}(t) \right] \Psi(\mathbf{r}, t),$$

où $V(\mathbf{r})$ est le potentiel atomique et $\mathbf{E}(t)$ le champ laser polarisé linéairement. Le dipôle atomique, responsable de l'émission d'harmoniques, s'écrit dans le formalisme de Lewenstein :

$$\mathbf{d}(t) = -i \int_0^t dt' \int d\mathbf{p} \mathbf{d}^*(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)) \mathbf{E}(t') \cdot \mathbf{d}(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t')) \times e^{-iS(\mathbf{p}, t, t')/\hbar} a(t') + \text{c.c.},$$

avec l'action quasi-classique :

$$S(\mathbf{p}, t, t') = \int_{t'}^t \left[\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau))^2}{2m} + I_p \right] d\tau.$$

Définitions des variables :

- $\mathbf{A}(t)$: potentiel vecteur du champ laser, lié à $\mathbf{E}(t)$ par $\mathbf{E}(t) = -\frac{d}{dt} \mathbf{A}(t)$;
- $\mathbf{p}$: moment canonique (variable d'intégration) ;
- $\mathbf{d}(\mathbf{k}) = \langle \mathbf{k} | \hat{\mathbf{r}} | g \rangle$: élément dipolaire entre l'état fondamental $|g\rangle$ et un état de continuum de vecteur d'onde $\mathbf{k}$;
- $a(t')$: amplitude de survie de l'état fondamental, tenant compte de la déplétion ;
- I_p : potentiel d'ionisation de l'atome.

On retrouve dans cette équation les trois étapes du *Three Step Model* : (i) l'ionisation par effet tunnel (terme en $\mathbf{E}(t')$), (ii) la propagation dans le continuum (phase accumulée S), et (iii) la recombinaison avec l'ion parent (terme en $\mathbf{d}^*(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t))$).

3.2. Conditions de point-col et trajectoires quantiques

Pour extraire les contributions dominantes, on applique la méthode du point-col (*saddle-point*) aux intégrales. Les conditions stationnaires sont :

1. Stationnarité en impulsion :

$$\mathbf{p}_{st} = -\frac{1}{t - t'} \int_{t'}^t \mathbf{A}(\tau) d\tau;$$

2. Condition d'ionisation :

$$\frac{(\mathbf{p}_{st} + \mathbf{A}(t'))^2}{2m} + I_p = 0.$$

Cette équation implique que l'instant d'ionisation t' est en général complexe, ce qui reflète la nature quantique de l'effet tunnel ;

3. Condition de recombinaison :

$$\frac{(\mathbf{p}_{st} + \mathbf{A}(t))^2}{2m} = q\hbar\omega - I_p,$$

qui relie l'énergie accumulée par l'électron à l'ordre harmonique q .

Ces équations prédisent l'existence de deux familles de trajectoires (courtes et longues) au niveau du plateau harmonique, qui fusionnent près du *cutoff* (Fig. 3).

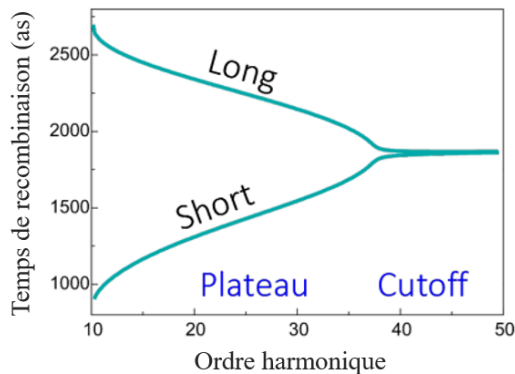


Fig. 3 Temps de recombinaison en fonction de l'ordre harmonique. Au niveau du plateau, deux trajectoires, longues et courtes, coexistent et se rejoignent dans la zone de cutoff. Tiré de [6].

3.3. Prédiction et coupure spectrale

Le modèle de Lewenstein permet de retrouver la loi de coupure :

$$E_{\text{cutoff}} \approx I_p + 3.17 U_p,$$

mais il prédit aussi la présence d'harmoniques légèrement au-delà de cette limite, avec une intensité fortement réduite, en raison de la coalescence des trajectoires courtes et longues en une trajectoire complexe unique. Par ailleurs, le développement en série de Fourier du dipôle montre que, dans un milieu centro-symétrique, seules les harmoniques impaires sont présentes, en accord avec les observations expérimentales.

3.4. Limites du modèle

Bien que très puissant et largement utilisé, le modèle de Lewenstein présente certaines limites :

- L'interaction Coulombienne entre l'électron et l'ion résiduel est négligée, ce qui peut fausser les prédictions pour certaines trajectoires longues ;
- Les effets multi-électroniques et les états liés excités ne sont pas pris en compte ;
- La SFA suppose un champ monochromatique de durée longue devant la période optique, ce qui limite son application pour les impulsions très brèves.

Ces limitations ont conduit au développement d'approches améliorées, comme la SFA corrigée par le potentiel coulombien ou des simulations numériques directes de l'équation de Schrödinger dépendante du temps (TDSE).

4. CONCLUSION

La génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG) est un phénomène non linéaire où l'interaction entre un champ laser intense et un atome produit des photons dans le domaine XUV. Ce processus, découvert à la fin des années 1980 a conduit à l'émergence de la physique attoseconde. Le *Three Step Model* fournit une description semi-classique intuitive : il met en évidence le rôle de l'ionisation tunnel, de la propagation de l'électron dans le continuum, puis de sa recombinaison radiative avec l'ion parent. Il prédit notamment la loi de coupure $E_{\text{cutoff}} \approx I_p + 3.17 U_p$, ainsi que l'existence de deux types de trajectoires (courtes et longues), en accord avec les observations expérimentales. Le modèle de Lewenstein, en adoptant une approche quantique fondée sur la *Strong-Field Approximation*, permet de justifier et de généraliser ces résultats. Il décrit le dipôle atomique responsable de l'émission harmonique, introduit les temps complexes liés à l'ionisation tunnel, et met en évidence le rôle crucial de la phase électronique. Ce formalisme rend également compte du dédoublement des trajectoires au sein du plateau, et explique la présence possible d'harmoniques au-delà du cutoff classique. Ensemble, ces deux modèles — l'un semi-classique et l'autre quantique — constituent les piliers théoriques de la compréhension de la HHG. Ils ont permis non seulement d'interpréter les premières expériences, mais aussi de guider le développement de nouvelles sources cohérentes dans l'XUV et de trains d'impulsions attosecondes. Aujourd'hui, la génération d'harmoniques d'ordre élevé demeure un domaine de recherche extrêmement actif. Les modèles sont progressivement enrichis afin d'inclure des effets jusqu'alors négligés : interaction électron-ion au-delà de la SFA, contributions multi-électroniques, réponse collective du milieu, ou encore quantification du champ incident et du rayonnement émis. De tels raffinements ouvrent la voie à une compréhension toujours plus fine du processus de HHG, et à l'exploration de phénomènes quantiques ultrarapides tels que l'intrication lumière-matière ou la dynamique électronique corrélée dans les atomes et les molécules.

REMERCIEMENTS

Cet article est extrait d'un rapport que j'ai rédigé dans le cadre du cours d'Optique Quantique, enseigné par Perola Milman en 2023. Je souhaite tout d'abord la remercier pour ce cours que j'ai beaucoup apprécié. Je tiens également à exprimer ma profonde gratitude envers Vincent Lorient, qui m'a fait découvrir le fascinant domaine de la physique attoseconde et m'a introduit le concept d'HHG. Enfin, je souhaite remercier l'équipe du JPCE pour tout le travail remarquable accompli. J'ai été heureuse de faire partie de l'équipe d'édition et je suis ravie de voir le journal perdurer année après année. J'encourage vivement tous les lecteurs à s'engager dans cette belle aventure, vous ne le regretterez pas !

RÉFÉRENCES

- (1) McPHERSON, A. ; GIBSON, G. ; JARA, H. ; JOHANN, U. ; LUK, T. S. ; MCINTYRE, I. A. ; BOYER, K. ; RHODES, C. K. *JOSA B* **1987**, *4* , 595-601.
- (2) FERRAY, M. ; L'HUILLIER, A. ; LI, X. F. ; LOMPRES, L. A. ; MAINFRAY, G. ; MANUS, C. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **1988**, *(3)* .
- (3) KULANDER, K. C. ; SCHAFER, K. J. ; KRAUSE, J. L. in *Super Intense Laser Atom Physics*, PIRAUX, B., L'HUILLIER, A., éd., 1993, p. 95-110.
- (4) CORKUM, P. B. *Physical Review Letters* **1993**, *71* (13) , 1994.
- (5) LEWENSTEIN, M. ; BALCOU, P. ; IVANOV, M. Y. ; L'HUILLIER, A. ; CORKUM, P. B. *Physical Review A* **1994**, *49* (3) , 2117-2132.
- (6) RUCHON, T. *High Harmonic Generation and Attosecond Light Pulses, An introduction for newcomers* .
- (7) LYNGBÅ, C. ; GAARDE, M. B. ; DELFIN, C. ; BELLINI, M. ; HÄNSCH, T. W. ; L' HUILLIER, A. ; WAHLSTRÖM, C.-G. *Physical Review A* **1999**, *60* .
- (8) LEE, D. G. ; SHIN, H. J. ; CHA, Y. H. ; HONG, K. H. ; KIM, J.-H. ; NAM, C. H. *Physical Review A* **2001**, *63* .
- (9) MERDJI, H. ; KOVAČEV, M. ; BOUTU, W. ; SALIÈRES, P. ; VERNAY, F. ; CARRÉ, B. *Physical Review A* **2006**, *74* .
- (10) KRAUSE, J. L. ; SCHAFER, K. J. ; KULANDER, K. C. *Physical Review Letters* **1992**, *68* (24) .
- (11) RAE, S. C. ; BURNETT, K. ; COOPER, J. *Physical Review A* **1994**, *50* .
- (12) KELDYSH, L. V. *Zh. Eksperim. i Teor. Fiz.* **1964** .