

3.3 Optimisation de l'effet DDQ : Conditions de synchronisation optimale molécule/champ

Pour le champ laser à $\lambda = 10.6\mu$ considéré dans le travail original sur l'effet DDQ[34], la demi-période d'oscillation du champ laser est comparable à la période vibrationnelle $T_{vib}^{H_2^+}$ de la molécule, (H_2^+). Il est tentant d'identifier $T_{vib}^{H_2^+}$, du moins dans une estimation grossière de sa grandeur, avec la période d'oscillation de la molécule dans l'approximation de l'oscillateur harmonique. C'est ce qui était implicitement fait dans les travaux précédents. Ceci est bon au voisinage du niveau vibrationnel fondamental.

Hors, lors de l'ionisation Franck-Condon, plusieurs états vibrationnels excités sont peuplés, et la période vibrationnelle effective (T_{vib}^{eff}) devrait être déterminée de façon plus exacte, en tenant compte de cette excitation vibrationnelle initiale. La figure 3.12 montre comment se comporte, en fonction du temps, la valeur moyenne de la distance internucléaire R , évaluée avec un paquet d'ondes initialement défini par une transition Franck-Condon, (ψ_{FC}), puis propagé en l'absence du champ sur le potentiel $\epsilon_g(R)$ de l'état fondamental σ_g , (\hat{U}_g est le propagateur sur ce potentiel).¹

$$\langle R \rangle = \langle \psi_{FC} | \hat{U}_g^{-1}(t, 0) R \hat{U}_g(t, 0) | \psi_{FC} \rangle \quad (3.15)$$

La période vibrationnelle effective mesurée sur cette trajectoire de $\langle R \rangle (t)$ est

$$T_{Vib}^{eff} = (27.2 - 9.2) f.s. = 18 f.s. \quad (3.16)$$

Rappelons que pour avoir un effet DDQ fort, l'amplitude du champ laser doit être, en valeur absolue, à son maximum pour avoir une dissociation complète, (et nulle pour avoir un piégeage vibrationnel), alors que le paquet d'ondes arrive à un point de rebroussement à droite de la géométrie d'équilibre, correspondant à un maximum dans $\langle R \rangle (t)$. (Ce point de rebroussement sera désigné R_d dans ce qui suit. Notons qu'il varie avec l'énergie moyenne du paquet d'ondes).

3.3.1 Synchronisation au premier point de rebroussement

Modèle et paramètres du champ laser IR

Considérons ce qui se passe dans une période T_{vib} , après la formation de H_2^+ à $t = 0$. À $t = T_{vib}/2$, en l'absence du champ IR, le paquet d'ondes, ou plutôt son centre $\langle R \rangle$ aurait atteint R_d . Si à ce moment là, le champ IR (qui est en fait en action) est à un maximum, démarrant avec une valeur nulle à $t = 0$, ce qui correspond à $\delta = \pi/2$, soit donc si le temps t

1. Il est à noter que cette trajectoire est celle du paquet d'ondes dans l'évolution libre de l'ion moléculaire après sa formation. Elle est à être distinguée de la trajectoire montrée à la figure 2.5 du centre du paquet d'ondes forcé par le champ IR.

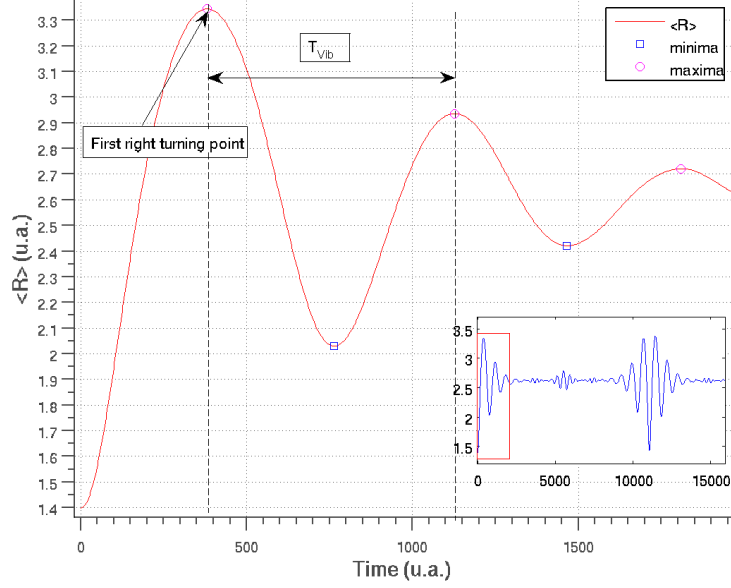


FIGURE 3.12 – Valeur moyenne de la distance internucléaire de H_2^+ pendant une dynamique sans champ sur la surface d'énergie potentiel fondamental. La figure insérée montre la dynamique sur une échelle de temps plus grande.

précité ($t = T_{vib}/2$) est aussi égal à $T_L/4, 3T_L/4, 5T_L/4, (2p + 1)T_L/4, p \in \mathbb{N}$, alors on aurait une dissociation forte, puisque le paquet d'ondes verra la barrière à la dissociation s'ouvrir quand il y arrive. Dans le cas où la phase absolue du champ IR est $\delta = n\pi, n = 0, 1, 2, \text{etc}$, ce qui veut dire que le champ est à un maximum au temps initial, les mêmes conditions impliquent qu'à $t = T_{vib}/2$, la barrière est fermée, et il y aura piégeage vibrationnel.

On voit donc que le laser idéal pour donner un contraste optimal, entre une situation de piégeage et une de dissociation, devrait avoir une période de

$$T_L^{idéal} = \frac{2}{N} T_{vib}, \quad (3.17)$$

avec $N = 1, 2, 3, 5$. Ces paramètres de laser ne sont pas tous disponibles expérimentalement, cependant. Les paramètres des divers sources laser disponibles expérimentalement sont résumés dans le tableau 3.1. Les différences entre les valeurs idéales ($\lambda^{idéal}$ et $\omega_L^{idéal}$) et les valeurs expérimentalement accessibles sont données au tableau 3.2.

$\lambda = 10.6\mu$	$\lambda = 5.3\mu$	$\lambda = 3.2\mu$	$\lambda = 2.12\mu$
$\omega = 943\text{cm}^{-1}$	$\omega = 1887\text{cm}^{-1}$	$\omega = 2830\text{cm}^{-1}$	$\omega = 4717\text{cm}^{-1}$
$T = 35.4\text{fs}$	$T = 17.7\text{fs}$	$T = 11.8\text{fs}$	$T = 7.1\text{fs}$
$I = 5X10^{13} \frac{W}{\text{cm}^2}$	$I = 3X10^{13} \frac{W}{\text{cm}^2}$	N.A.	$I = 5X10^{14} \frac{W}{\text{cm}^2}$

TABLE 3.1 – Différents paramètres laser possibles.

N	$\lambda_L^{ideal}(\mu m)$	$\lambda_L^{exp}(\mu m)$	$\omega_L^{ideal}(cm^{-1})$	$\omega_L^{exp}(cm^{-1})$
1	10.82	10.60	924.03	943.40
2	5.41	5.30	1848.07	1886.79
3	3.61	3.20	2772.10	2830.19
5	2.16	2.12	4620.17	4716.98

TABLE 3.2 – Paramètres d’un laser idéal comparé avec les paramètres expérimentalement disponibles.

En plus du choix de la fréquence (de l’onde porteuse) du champ laser incident, via eq.(3.17), la considération de la trajectoire de $\langle R \rangle$ peut aussi nous aider à choisir la valeur optimale du délai τ entre l’impulsion XUV ionisante et le champ infrarouge, considéré maintenant pulsé. Au chapitre précédent, sur la figure 2.5 (ou la figure 2.1), le champ IR est strictement continu et le temps d’action de l’impulsion XUV est défini par rapport à la période de champ IR. Ici, τ représentera un vrai délai entre deux impulsions de durées finies (celle de l’impulsion XUV est considérée infinitésimale). Remplaçant le champ CW de la figure par une impulsion rectangulaire, au sein de laquelle le champ IR se comporte comme un champ continu, et en considérant ce champ continu partout (donc il commence par zéro et s’annule à la fin de l’impulsion), on peut convenir que τ est le temps séparant le pulse XUV du début de l’impulsion IR, et choisir la valeur de τ selon les deux cas piégeant et dissociatif comme suit :

1. **Cas piégeant (liant)** : Si le paquet d’onde approchait la région de dissociation ($\langle R \rangle$ atteignait R_d) au temps t_1 , lorsque l’intensité du champ est nul, alors la dissociation serait minimisée. Cette situation se produit lorsque

$$t_1 = \tau + \frac{T_L}{2} = \frac{T_{vib}}{2} \quad (3.18)$$

$$\tau = \frac{T_{vib}}{2} - \frac{T_L}{2} \quad (3.19)$$

2. **Cas dissociatif** : Si par contre, au temps t_1 quand le paquet d’onde approchait la région de dissociation ($\langle R \rangle$ atteignait R_d), l’amplitude du champ est, en valeur absolue, à un maximum, alors la dissociation serait maximisée. Cette situation se produit lorsque

$$t_1 = \tau + \frac{T_L}{4} = \frac{T_{vib}}{2} \quad (3.20)$$

$$\tau = \frac{T_{vib}}{2} - \frac{T_L}{4} \quad (3.21)$$

De la figure 3.12, on lit $t_1 = 380.9 \text{ a.u.}$. La valeur de τ pour les deux situations, ou cas piégeant et dissociatif, est présentée au tableau 3.3, avec T_L déterminée par eq.(3.17), $T_{vib}^{eff} = 18 \text{ fs}$, N indiqué à la première colonne du tableau. On indique pour rappel, la valeur de la fréquence idéale $\omega_L^{ideal} = 2\pi/T_L$ à la deuxième colonne.

N	$\omega_L^{ideal} (cm^{-1})$	cas	τ (fs)
1	924.03	liant	-8.8
1		dissociatif	0.19
2	1848.07	liant	0.19
2		dissociatif	4.7
3	2772.10	liant	3.2
3		dissociatif	6.2
5	4620.17	liant	5.6
5		dissociatif	7.4

TABLE 3.3 – Valeur de τ pour différentes valeurs des paramètres du laser selon la situation visée (cas liant ou dissociatif).

Pour explorer l'efficacité de l'effet DDQ avec ces paramètres, on a repris le calcul de paquet d'ondes détaillé à la section précédente, avec cette fois-ci une propagation en champ nul jusqu'à $t = \tau$, suivie d'une propagation en présence d'une impulsion laser de fréquence ω_L^{ideal} d'une durée égale à $3 T_{vib}$. En fait pour chaque couple (ω_L, τ) , une série de calculs à des intensités variées a été conduite, afin de trouver la condition optimisant cette efficacité, mesurée par le contraste entre le cas piégeant et le cas dissociatif, soit par

$$\Delta P_{Liée} = P_{Liée}(liant) - P_{Liée}(diss.),$$

la différence entre la valeur de la probabilité de retrouver la molécule dans un état lié, donc non dissociée, $P_{Liée}$, obtenue à la fin de la propagation dans le cas piégeant et celle obtenue dans le cas dissociatif.

Résultats

La figure 3.13 montre, en fonction de l'intensité I du champ, $\Delta P_{Liée}$ pour chaque cas.

On note que (1) le contraste piégeage/dissociation ne dépasse pas 30 %, et (2) il atteint un maximum à une intensité I_{max} donnée pour chaque valeur de ω_L (ou de T_L). Les résultats sur ce contraste à l'intensité optimale sont résumés au tableau 3.4 pour les fréquences considérées.

T_L	$\omega_L^{ideal} (cm^{-1})$	$I_{max} (W/cm^2)$	$\Delta P_{Liée}$
$2T_{vib}$	924.03	7×10^{13}	0.28
T_{vib}	1848.07	1.1×10^{14}	0.20
$\frac{2}{3}T_{vib}$	2772.10	1.3×10^{14}	0.27
$\frac{2}{5}T_{vib}$	4620.17	2.3×10^{14}	0.21

TABLE 3.4 – Contraste optimale $\Delta P_{Liée}$ entre le cas lié et le cas dissociatif pour chaque longueur d'onde (fréquence) considérée. L'intensité où ce contraste est obtenu est I_{max} , donnée à la deuxième colonne.

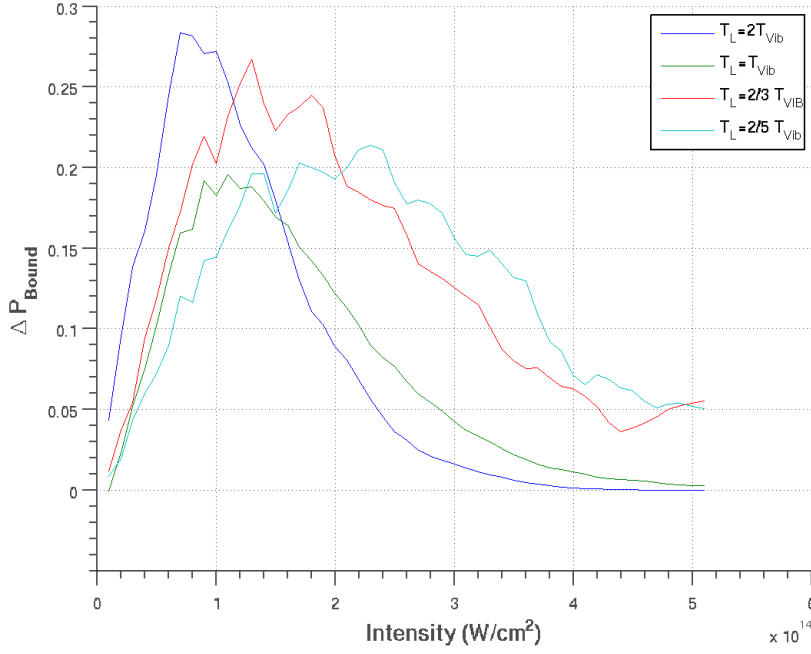


FIGURE 3.13 – $\Delta P_{Liée}$ comme mesure du contraste entre le cas liant et le cas dissociatif en fonction de l'intensité du laser de fréquence $\frac{2\pi}{T_L}$, pour $T_L = \frac{2T_{vib}}{N}$, $N = 1$ (bleu foncé), $N = 2$ (vert), $N = 3$, (rouge) et $N = 5$ (bleu clair).

Regardons les résultats détaillés obtenus pour chaque cas, (spécifié par la valeur de N ou de ω_L^{ideal}), et à l'intensité optimale correspondante.

1. $N = 1$, $T_L = 2T_{Vib}$, $\omega_L^{ideal} = 924.03 cm^{-1}$, $I_{max} = 7 \times 10^{13} W/cm^2$

C'est le cas donnant lieu à la valeur la plus satisfaisante du contraste entre la situation dissociative, très efficace avec une probabilité de dissociation de 70 % ($P_{diss} = 1 - P_{liée}$), à la fin du pulse à un cycle optique, et celle de piégeage, (probabilité de dissociation de 35 %). Notons que dans ce cas, τ est négatif, et l'on a plutôt commencé la propagation du paquet d'ondes à $t = 0$ sans la faire précéder d'une phase de propagation libre.

2. $N = 2$, $T_L = T_{Vib}$, $\omega_L^{ideal} = 1848.07 cm^{-1}$, $I_{max} = 1.11 \times 10^{14} W/cm^2$

$P_{diss} = 1 - P_{liée} \simeq 75\%$ dans le cas dissociatif vs. $\simeq 55\%$ dans le cas piégeant, à la fin du pulse qui contient 3 demi de cycle optique.

3. $N = 3$, $T_L = 2/3T_{Vib}$, $\omega_L^{ideal} = 2772.10 cm^{-1}$, $I_{max} = 1.3 \times 10^{14} W/cm^2$

Ici, $P_{diss} = 1 - P_{liée} \simeq 77\%$ dans le cas dissociatif et $\simeq 50\%$ dans le cas piégeant. Le pulse contient 2 cycles optiques.

4. $N = 5$, $T_L = 2/5T_{Vib}$, $\omega_L^{ideal} = 4620.17 cm^{-1}$, $I_{max} = 2.3 \times 10^{14} W/cm^2$

$P_{diss} = 1 - P_{liée} \simeq 84\%$ dans le cas dissociatif et $\simeq 63\%$ dans le cas piégeant. Le pulse contient 3 cycles optiques.

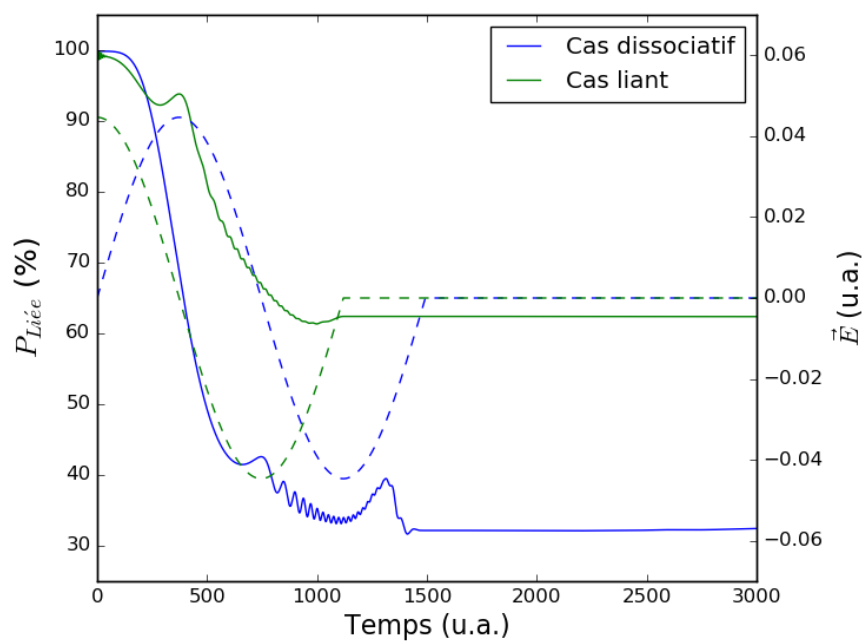


FIGURE 3.14 – Évolution temporelle de $P_{Liée}$ (trait continu) durant le pulse laser (trait pointillé) à l'intensité optimale I_{max} du cas $T_L = 2T_{Vib}$ présenté dans la figure 3.13

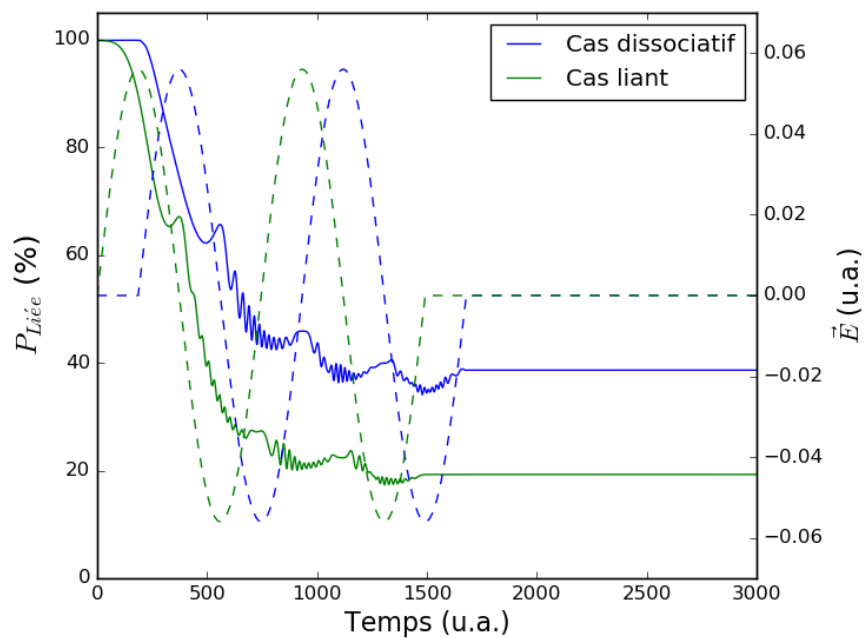


FIGURE 3.15 – Évolution temporelle de $P_{Liée}$ (trait continu) durant le pulse laser (trait pointillé) à l'intensité optimale I_{max} du cas $T_L = T_{Vib}$ présenté dans la figure 3.13

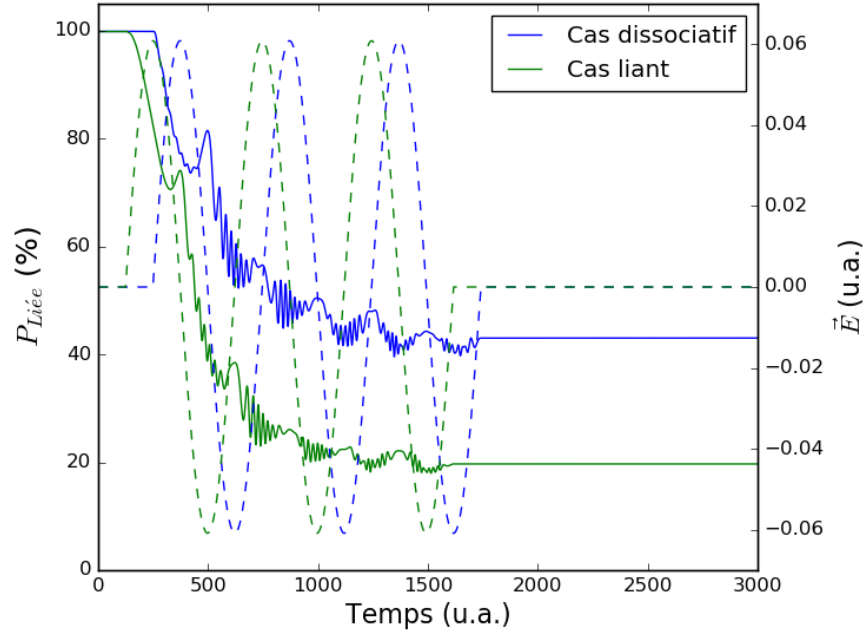


FIGURE 3.16 – Évolution temporelle de $P_{Liée}$ (trait continu) durant le pulse laser (trait pointillé) à l'intensité optimale I_{max} du cas $T_L = 2T_{Vib}/3$ présenté dans la figure 3.13

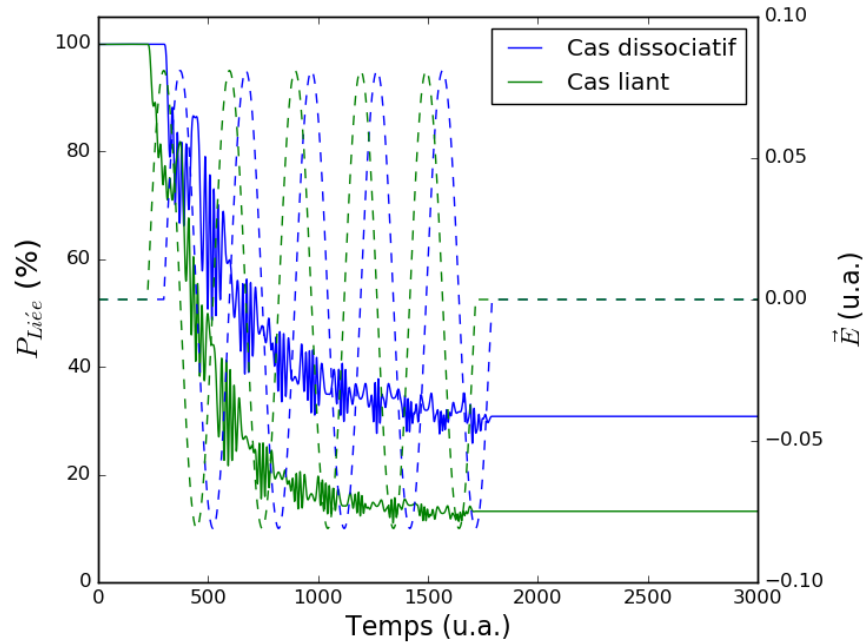


FIGURE 3.17 – Évolution temporelle de $P_{Liée}$ (trait continu) durant le pulse laser (trait pointillé) à l'intensité optimale I_{max} du cas $T_L = 2T_{Vib}/5$ présenté dans la figure 3.13

3.3.2 Synchronisation au sein de la première récurrence de $\langle R \rangle (t)$

La figure 3.12 ne montre qu'une partie de la trajectoire du paquet d'ondes moléculaire en l'absence du champ. En regardant l'évolution de $\langle R \rangle (t)$ à des temps plus longs, on note des récurrences. Ce phénomène n'est pas surprenant, car après tout, le paquet d'onde est une somme cohérente d'états vibrationnels (états stationnaires associés à l'état électronique σ_g) de l'ion moléculaire. La question qui se pose alors naturellement est à savoir si l'on n'aurait pas un meilleur contraste ou efficacité de l'effet DDQ, si l'on cherchait à synchroniser le champ IR avec le mouvement nucléaire en prenant appui sur un point de rebroussement R_d (suffisamment grand) de la première récurrence de $\langle R \rangle (t)$. Deux de ces points sont montrés sur la figure 3.18, et appartiennent à la structure récurrente à l'intérieur de la boîte rectangulaire rouge montrée dans l'encadré en bas de la figure. On les appellera premier et second point de rebroussement. Soit τ_{rec} le point d'entrée de cette boîte.

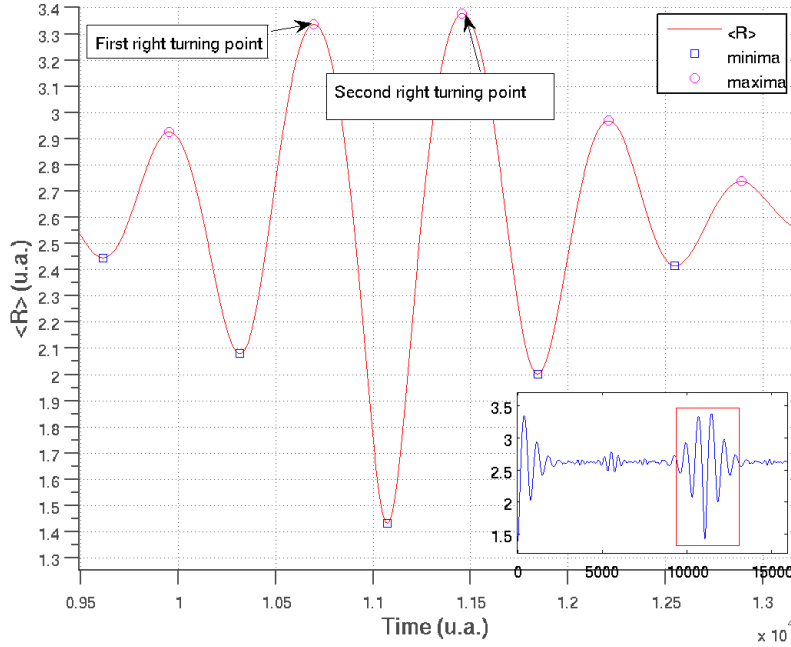


FIGURE 3.18 – Valeur moyenne de R pour la propagation sans champs lors de la récurrence. L'image inséré montre cette valeur pour une plus grande grille temporelle.

Modèle et paramètres

Avec une synchronisation au premier point de rebroussement, le paquet d'ondes approchera la porte à la dissociation au temps $t_1 = 10695 \simeq \tau_0 + (3/2)T_{vib}$ tandis que $t_1 = 11458$ u.a. pour le 2e point de rebroussement.

On remplace l'expression (ou plutôt la valeur) de t_1 dans eq.(3.18) par ceci pour fixer le délai τ (entre l'impulsion ionisante et l'impulsion IR) pour le cas piégeant, et dans eq.(3.20), pour

obtenir τ assurant une situation de dissociation forte. Pour les mêmes valeurs de T_L (ou de ω_L , que précédemment, la propagation de paquet d'ondes dans des conditions d'intensité variées du champ IR a été repris, toujours après une propagation libre de durée τ , ici assurant que l'on entre dans la première récurrence de $\langle R \rangle (t)$ sans champ.

Résultats : synchronisation au premier point de rebroussement

Les résultats pour une synchronisation avec le premier point de rebroussement sont résumés à la figure 3.19.

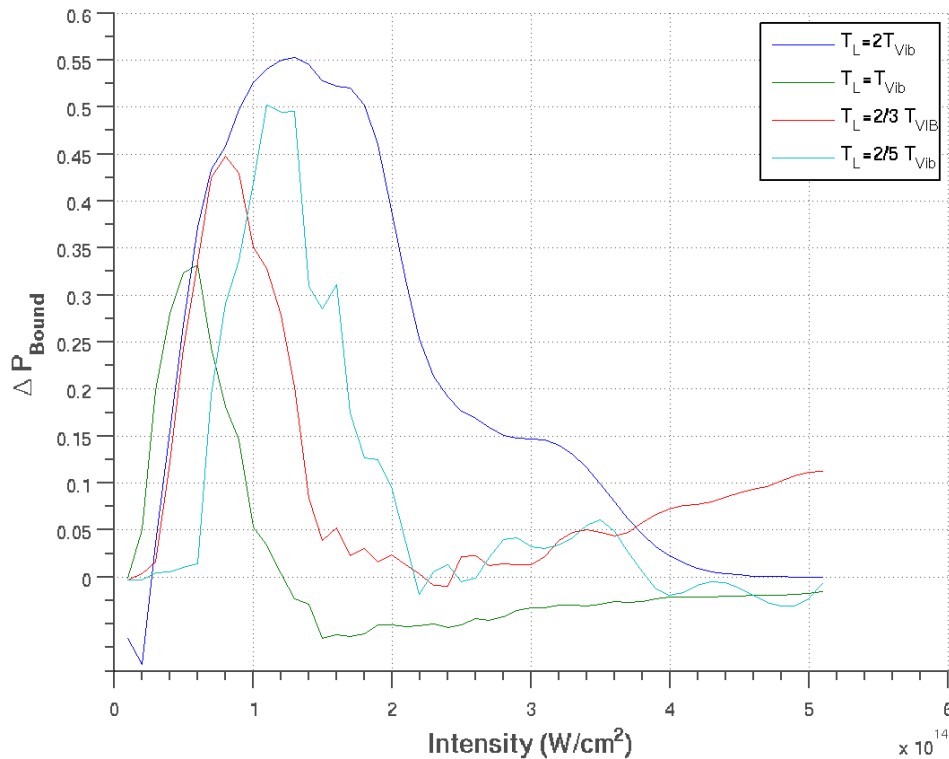


FIGURE 3.19 – $\Delta P_{Liée}$ comme mesure du contraste entre le cas liant et le cas dissociatif en fonction de l'intensité du laser de fréquence $\frac{2\pi}{T_L}$, pour $T_L = \frac{2T_{vib}}{N}$, $N = 1$ (bleu foncé), $N = 2$ (vert), $N = 3$, (rouge) et $N = 5$ (bleu clair) pour la synchronisation au premier point de rebroussement.

La différentiation maximale entre le cas piégeant et le cas dissociatif, mesurée par $\Delta P_{Liée}$ peut être lue à partir de la figure 3.19 pour chaque cas, à une intensité maximale propre à ce cas. Les valeurs de I_{max} , $\Delta P_{Liée}$ pour les différentes valeurs du rapport T_L/T_{vib} sont résumées au tableau 3.5.

On note que l'idée de synchronisation au sein de la première récurrence semble bonne, car elle donne un contraste plus marqué que dans la synchronisation avec les oscillations initiales de $\langle R \rangle (t)$, contraste qui atteint 55 % dans le cas $N = 1, T_L = 2T_{vib}$. Les détails de la

T_L	$I(W/cm^2)$	$\Delta P_{Liée}$
$2T_{Vib}$	1.3×10^{14}	0.55
T_{Vib}	6×10^{13}	0.33
$\frac{2}{3}T_{Vib}$	8×10^{13}	0.45
$\frac{3}{5}T_{Vib}$	1.1×10^{14}	0.50

TABLE 3.5 – Maximum de différenciation du $P_{Liée}$ entre les cas dissociatif et liant pour différente intensité.

dynamique en temps résolu à I_{max} sont montrés aux figures 3.20, pour $T_L = 2T_{Vib}$, 3.21, pour $T_L = T_{Vib}$, 3.22, pour $T_L = 2T_{Vib}/3$ et 3.23, pour $T_L = 2T_{Vib}/5$.

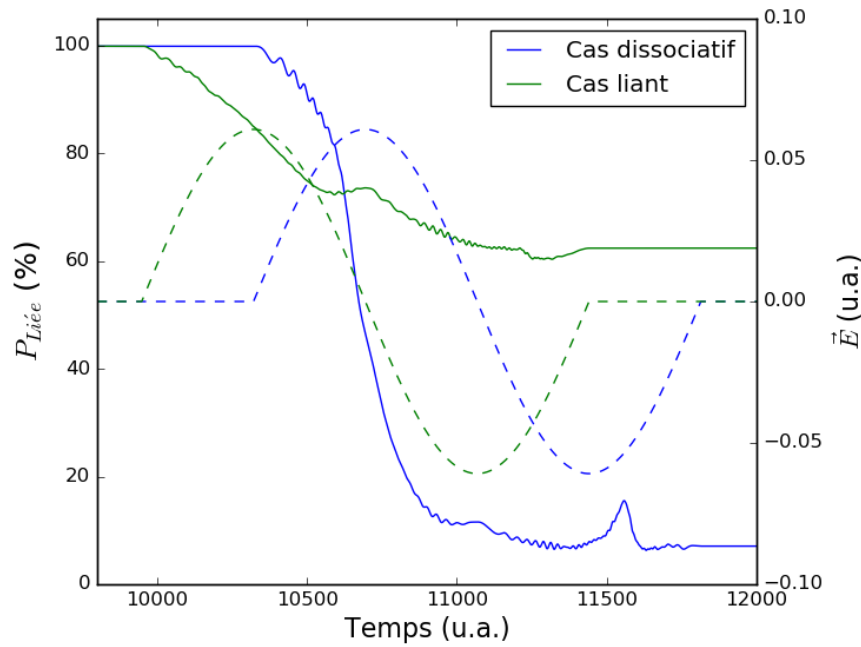


FIGURE 3.20 – Évolution temporelle de $P_{Liée}$ (trait continu) durant l'impulsion laser (trait pointillé) à l'intensité optimale I_{max} du cas $T_L = 2T_{Vib}$ présenté dans la figure 3.19

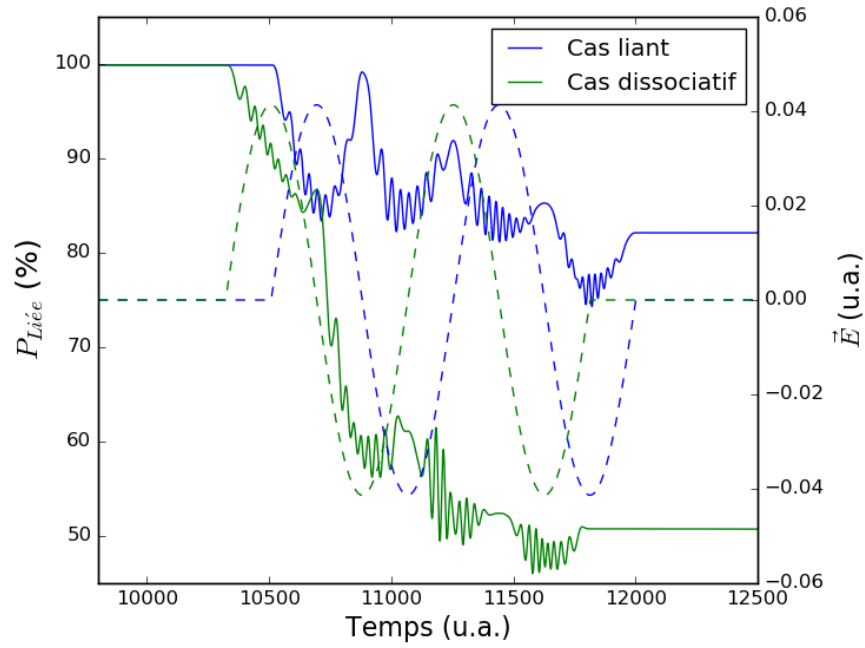


FIGURE 3.21 – Évolution temporelle de $P_{Liée}$ (trait continu) durant l’impulsion laser (trait pointillé) à l’intensité optimale I_{max} du cas $T_L = T_{Vib}$ présenté dans la figure 3.19

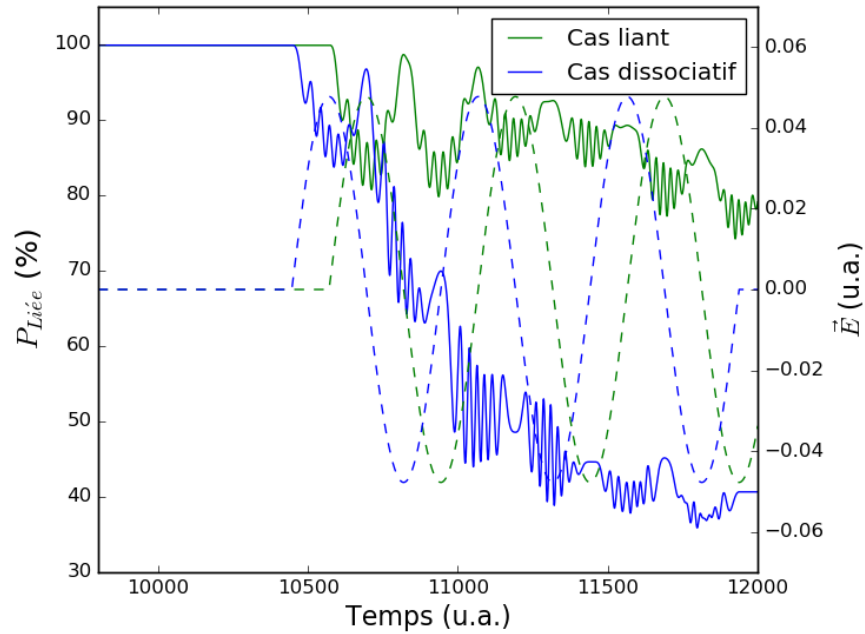


FIGURE 3.22 – Évolution temporelle de $P_{Liée}$ (trait continu) durant l’impulsion laser (trait pointillé) à l’intensité optimale I_{max} du cas $T_L = \frac{2}{3}T_{Vib}$ présenté dans la figure 3.19

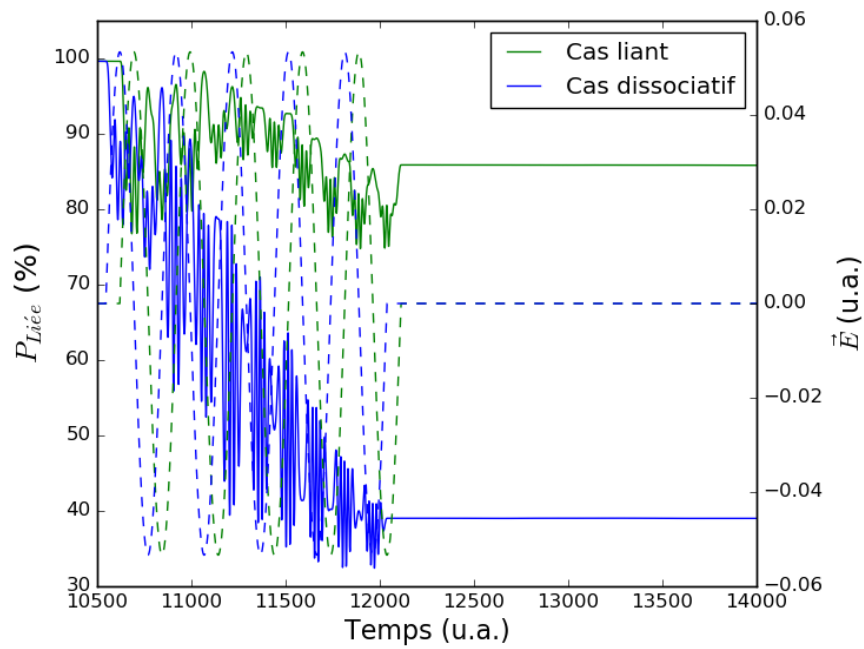


FIGURE 3.23 – Évolution temporelle de $P_{Liée}$ (trait continu) durant l’impulsion laser (trait pointillé) à l’intensité optimale I_{max} du cas $T_L = \frac{2}{5}T_{Vib}$ présenté dans la figure 3.19

Résultats : synchronisation au deuxième point de rebroussement

Le second point de rebroussement, à $t_1 = 11458$ u.a., donne des résultats intéressants, figure 3.24, avec un contraste optimal exalté à 85 % pour $T_L = 2T_{vib}$, ($N = 1$). Par contre, le contraste optimal se détériore pour les autres cas, ne dépassant pas les 30 %.

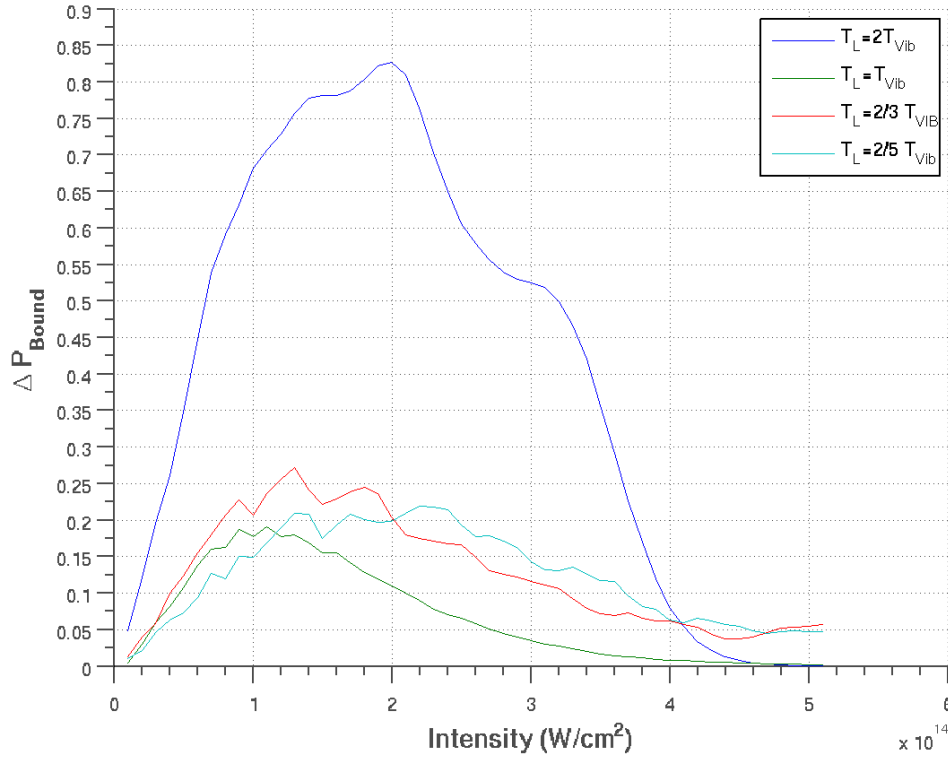


FIGURE 3.24 – $\Delta P_{Liée}$ comme mesure du contraste entre le cas liant et le cas dissociatif en fonction de l'intensité du laser de fréquence $\frac{2\pi}{T_L}$, pour $T_L = \frac{2T_{vib}}{N}$, $N = 1$ (bleu foncé), $N = 2$ (vert), $N = 3$, (rouge) et $N = 5$ (bleu clair) pour la synchronisation au deuxième point de rebroussement.

Le tableau 3.6 résume encore une fois les observations dans ce cas, en regroupant ΔP_{Bound} , I_{max} pour les différents rapports T_L/T_{vib} . Les détails de la dynamique en temps résolu à I_{max} , avec

T_L	$I(W/cm^2)$	$\Delta P_{Liée}$
$2T_{Vib}$	2.0×10^{14}	0.83
T_{Vib}	1.1×10^{14}	0.19
$\frac{2}{3}T_{Vib}$	1.3×10^{14}	0.27
$\frac{2}{5}T_{Vib}$	2.2×10^{14}	0.22

TABLE 3.6 – Intensité donnant lieu à la différentiation maximale du $P_{Liée}$ entre le cas liant et dissociatif pour chaque longueurs d'onde.

une synchronisation au deuxième point de rebroussement au sein de la première récurrence en

$\langle R \rangle (t)$, sont montrés aux figures 3.25, pour $T_L = 2T_{Vib}$, 3.26, pour $T_L = T_{Vib}$, 3.27, pour $T_L = 2T_{Vib}/3$ et 3.28, pour $T_L = 2T_{Vib}/5$.

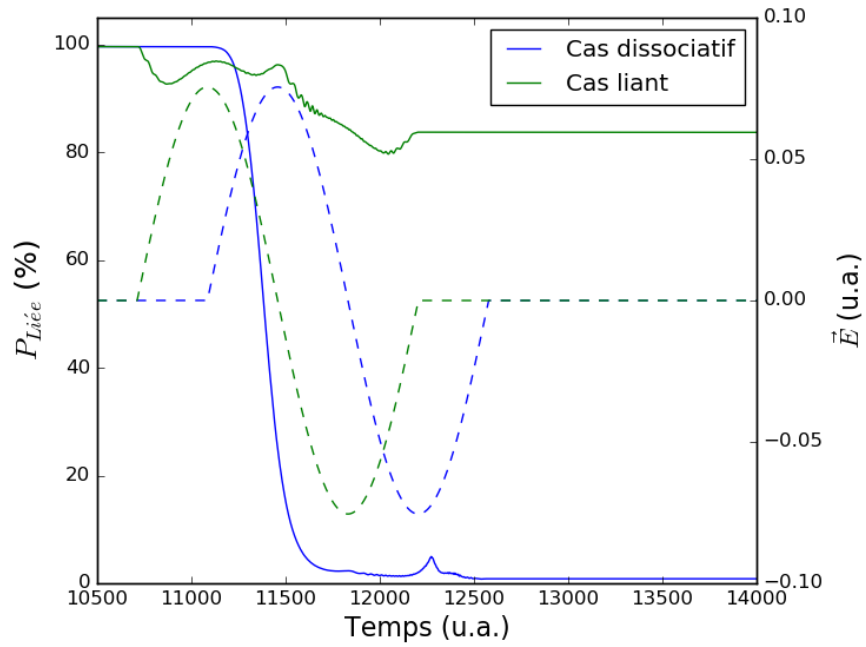


FIGURE 3.25 – Évolution temporelle de $P_{Liée}$ (trait continu) durant le pulse laser (trait pointillé) à l'intensité optimale I_{max} du cas $T_L = 2T_{Vib}$ de la figure 3.24

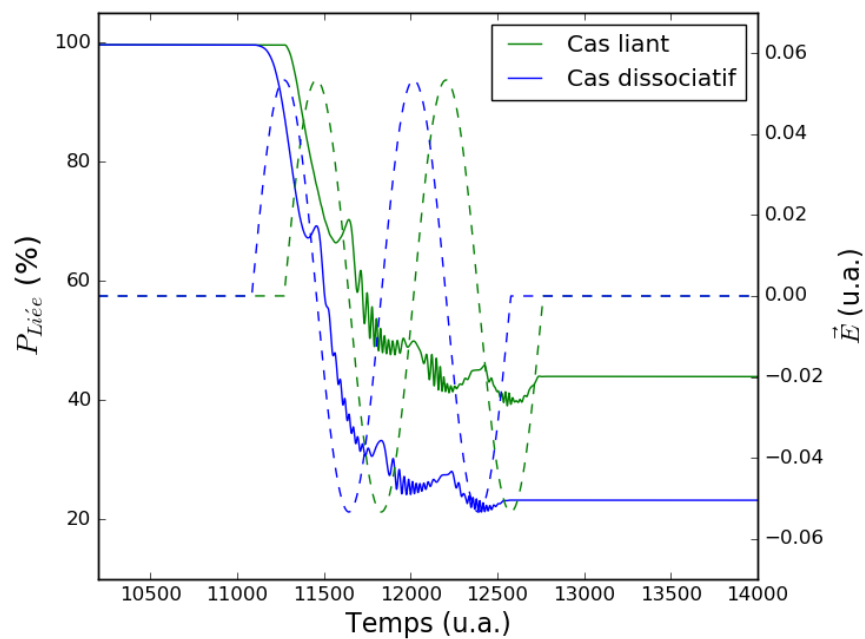


FIGURE 3.26 – Évolution temporelle de $P_{Liée}$ (trait continu) durant le pulse laser (trait pointillé) à l'intensité optimale I_{max} du cas $T_L = T_{Vib}$ de la figure 3.24

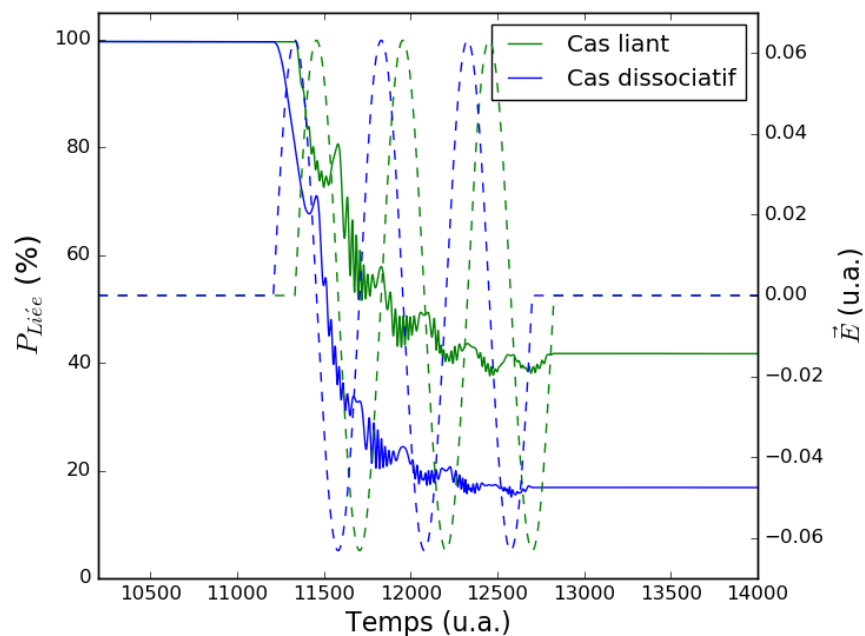


FIGURE 3.27 – Évolution temporelle de $P_{Liée}$ (trait continu) durant le pulse laser (trait pointillé) à l'intensité optimale I_{max} du cas $T_L = \frac{2}{3}T_{Vib}$ de la figure 3.24

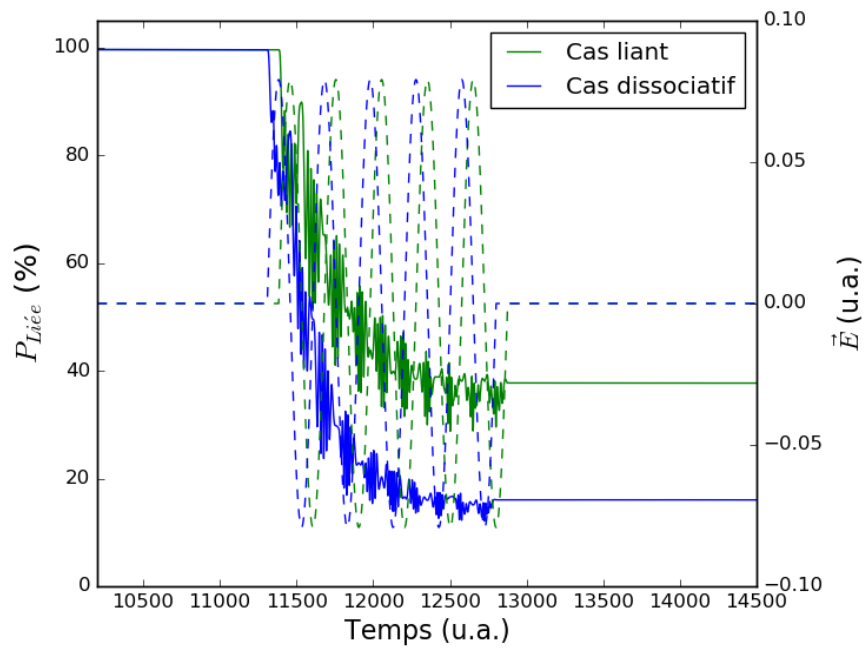


FIGURE 3.28 – Évolution temporelle de $P_{Liée}$ (trait continu) durant le pulse laser (trait pointillé) à l'intensité optimale I_{max} du cas $T_L = \frac{2}{5}T_{Vib}$ de la figure 3.24

3.3.3 Remarques : réalisation expérimentale

Les conditions de champ identifiées et étudiées dans cette section peuvent sembler à prime abord plutôt théoriques, et donc de peu d'intérêt. En effet, à part les valeurs de la fréquence du champ IR, déterminées via eq.(3.17), et dont la réalisation expérimentale la plus proche était évoquée au tableau 3.2, les autres paramètres n'ont pas été discutés en terme de leur signification expérimentale. L'impulsion IR est considérée rectangulaire, le délai τ était défini par rapport au début de cette impulsion créneau, et les cas piégeant et dissociatif correspondent à deux valeurs distinctes de ce "délai". Il s'agit là de modèles bien loin de ce que l'on aurait typiquement dans une expérience pompe-sonde (où l'impulsion ionisante XUV est la pompe, l'impulsion IR la sonde). On peut pourtant s'y référer, en considérant trois points d'interprétation des conditions de champ discutées ci-haut :

1. L'impulsion rectangulaire ne représente que la partie "centrale" d'une vraie impulsion IR, une coupure de celle-ci au voisinage de là où l'intensité crête est atteinte.
2. Le délai physique est celui entre les impulsions de centre à centre. Si l'on assimile l'impulsion XUV à une fonction δ , alors ce délai est celui entre cette impulsion δ et le centre de l'impulsion IR.
3. Choisir un délai dit piégeant ou dissociatif est, en réalité, choisir entre deux valeurs de la phase entre l'enveloppe de l'impulsion et le champ oscillant («Carrier Envelope-Phase, CEP») de l'impulsion IR, en plus de celui du délai physique XUV-IR expliqué au point précédent.

Ces idées sont illustrées graphiquement sur la figure 3.29

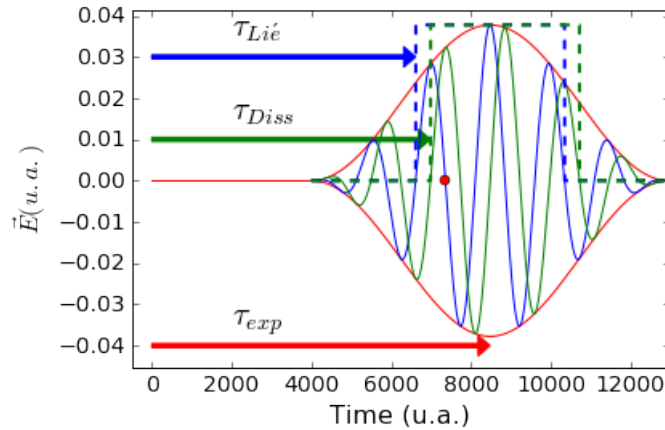


FIGURE 3.29 – Impulsion laser de durée équivalente à six cycles optiques d'un champ porteur de $924,03 \text{ cm}^{-1}$. La phase entre l'onde porteuse et l'impulsion est de 0 rad (en vert) ou $\frac{\pi}{2}$ (en bleu).

La figure montre une impulsion du type donnée à l'équation 3.11 avec un champ IR de fréquence $\omega = 924,03 \text{ cm}^{-1}$ ($T_L = 2T_{Vib}$). L'enveloppe de l'impulsion a une fréquence de répé-

tition théorique (si elle se continue) $\Omega = \omega/12$, et une phase de $\pi/2$. Elle contient six cycles optiques de l'onde porteuse. L'intensité maximale est $I = 5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$. On montre l'onde porteuse avec un CEP de 0 rad (en vert) et $\pi/2$ (en bleu). On y a imaginé une coupure par un pulse créneau, donnant une impulsion rectangulaire correspondant à une situation piégeante ou dissociative. On voit bien que la réalisation expérimentale de cette situation, pour un délai fixé entre l'impulsion ionisante XUV et l'impulsion IR, (flèche rouge), correspond à un choix de la valeur de la CEP, pas celle du délai indiqué par la flèche bleue pour le cas piégeant, et verte pour le cas dissociatif.

Notons que, pour qu'elle ait un sens, la durée de la coupure rectangulaire devrait être déterminée par le caractère adiabatique ou non-adiabatique du pulse IR. Plus l'intensité crête est élevée, et la durée de la vraie impulsion IR courte, plus la non-adiabaticité temporelle sera grande, et plus cette coupure devra être courte. Dans les simulations rapportées ci-haut, cette durée a été fixée arbitrairement de sorte que l'impulsion rectangulaire contient toujours trois cycles vibrationnels.

Cette correspondance entre les paramètres des calculs précédents avec ceux d'une expérience pompe-sonde, $[T_L \longleftrightarrow \omega_{IR}, \tau \longleftrightarrow (\tau_{XUV-IR}, CEP_{IR})]$, étant établie, on peut conclure que les meilleures conditions pour observer l'effet DDQ (avec le meilleur contraste) viseront une synchronisation de l'ouverture ou la fermeture de la porte à la dissociation avec l'arrivée du paquet d'onde à un point de rebroussement à droite de R_{eq} au sein de la première récurrence de $\langle R \rangle (t)$. L'effet DDQ a été trouvé opérationnel avec une fréquence ω_{IR} allant jusqu'à cinq fois la valeur du laser CO_2 (943 cm^{-1}). Des explorations complémentaires menées au sein de notre laboratoire (par G. Leroy, Université de Toulouse, en stage M2, été 2006) indiquent pourtant qu'à cette fréquence, on serait déjà dans le régime multiphotonique et qu'il serait bien plus difficile d'observer l'effet DDQ. Au vu de ces constats précédents plutôt négatifs, les résultats montrés ici, en particulier, à la figure 3.19, sont des plus encourageants. La figure 3.23 montre même qu'à $\omega_{IR} = 4620,17 \text{ cm}^{-1} \simeq 5 \times (943 \text{ cm}^{-1})$, et à $I \simeq 10^{14} \text{ W/cm}^2$, la distinction entre la situation piégeante et celle dissociative est très nette, avec la probabilité de piégeage vibrationnel dans le cas piégeant s'élevant jusqu'à presque 90 %.