



**HAL**  
open science

# Etude des atomes d'hélium et de béryllium en champ laser intense et bref

Stéphane Laulan

► **To cite this version:**

Stéphane Laulan. Etude des atomes d'hélium et de béryllium en champ laser intense et bref. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2004. Français. NNT : . tel-00008322

**HAL Id: tel-00008322**

**<https://theses.hal.science/tel-00008322>**

Submitted on 1 Feb 2005

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° d'ordre : 2847

# THÈSE

présentée à

## L'UNIVERSITÉ BORDEAUX I

ÉCOLE DOCTORALE DE SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

par M. **Stéphane LAULAN**

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : Noyaux, Atomes, Agrégats, Plasmas

---

ETUDE DES ATOMES D'HELIUM ET DE BERYLLIUM EN CHAMP  
LASER INTENSE ET BREF

---

Soutenue le 17 septembre 2004

Après avis de :

MM. **B. Piraux**, *Professeur* Rapporteurs  
**V. Véniard**, *Directrice de recherche CNRS*

Devant la commission d'examen formée par :

MM. **J. Labarsouque**, *Professeur* Président  
**V. Véniard**, *Directrice de recherche CNRS* Examineurs  
**B. Piraux**, *Professeur*  
**O. Peyrusse**, *Ingénieur-chercheur CEA* Rapporteur  
**H. Bachau**, *Directeur de recherche CNRS* Directeur de thèse



## Remerciements

*Ce travail de thèse a été réalisé au sein du laboratoire CELIA (CEntre Lasers Intenses et Applications) de l'université Bordeaux I sous la direction d'Henri Bachau. C'est donc en priorité que je lui adresse mes plus vifs remerciements. Durant ces trois années écoulées, il a su guider et encadrer mon travail avec le plus grand intérêt, et a fait preuve d'une totale disponibilité pour les nombreuses (et parfois insignifiantes..) questions que j'ai pu lui poser.*

*Je remercie les membres du jury de m'avoir fait l'honneur de leur présence, et notamment Valérie Véniard et Bernard Piraux pour s'être plongés dans mon manuscrit plein de "fôtes".*

*Merci à tous les membres du laboratoire CELIA qui m'ont permis de travailler dans un cadre professionnel chaleureux, et notamment aux péniblos Christophe, Jérôme et Tony.*

*A ma famille, qui a toujours été présente durant toutes ces nombreuses années d'études émaillées cependant par quelques "Mais tu fais quoi au juste ?" ou de "Et, ça va te servir à quoi dans la vie ?".*

*Un clin d'oeil à ma soeur Vanessa.*

*A ma mère, pour tout.*

*Aux maileurs fous Benoit et Gilou Gilet qui m'ont gardé en contact avec le monde extérieur durant ces trois années, à l'affût du moindre ragot.*

*Je n'oublie pas le reste de la septième compagnie, le Chef en tête, Ludaou, Denay, Pipo, et leurs groupies respectives.*

*A tous les joyeux éthylo-footballeux dont j'ai partagé la route durant dix ans. Allez, en vrac : Ségui, Luc, Cancan, Bibi, Ludo, Freddy, Yan, Amandine, les soeurs Krumble etc... Adichats !*

*A Xabi, perdu dans ses montagnes...même cursus, même combat. C'est chouette la physique !*

*Enfin, à celle qui m'a accompagné, encouragé, motivé, et surtout supporté pendant tout ce temps. Tu sais tout ce que je pense de toi...*



*“Ce n’est qu’en essayant continuellement  
que l’on finit par réussir.  
En d’autres termes, plus ça rate et plus  
on a de chances que ça marche.”*

- proverbe Shadok -



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Les lasers UV-XUV ultra-brefs</b>	<b>5</b>
1.1 Introduction . . . . .	7
1.2 Sources lasers XUV de hautes puissances . . . . .	9
1.2.1 Les sources actuelles de rayonnement cohérent . . . . .	9
1.2.2 Principe du laser à électrons libres . . . . .	11
1.3 Production d’impulsions femtosecondes et subfemtosecondes . . . . .	12
1.3.1 La diffusion Raman stimulée . . . . .	12
1.3.2 La génération d’harmoniques d’ordres élevés . . . . .	14
1.3.3 Sélection d’une impulsion attoseconde unique . . . . .	17
1.4 Représentation semi-classique du champ laser . . . . .	18
1.5 Conclusion . . . . .	22
<b>2 Description des systèmes atomiques à deux électrons actifs</b>	<b>25</b>
2.1 Introduction . . . . .	27
2.2 Structure électronique . . . . .	29
2.2.1 Description du Hamiltonien diélectronique . . . . .	29
2.2.2 Potentiel modèle et méthode du “pseudo-potentiel” . . . . .	31
2.2.3 Les fonctions de base . . . . .	33
2.3 Approche numérique . . . . .	34
2.3.1 Représentation matricielle du problème . . . . .	35
2.3.2 Discrétisation des états du continu . . . . .	36
2.4 Résultats . . . . .	40
2.4.1 Spectres énergétiques de l’hélium et du béryllium . . . . .	40



2.4.2	Les ions multichargés $B^{3+}$ et $Ne^{8+}$ . . . . .	45
2.5	Conclusion . . . . .	45
<b>3</b>	<b>L'interaction laser-atome et la description du double continuum</b>	<b>47</b>
3.1	Introduction . . . . .	49
3.2	Approche non perturbative de l'interaction laser-atome . . . . .	51
3.2.1	Historique . . . . .	51
3.2.2	Représentations de l'équation de Schrödinger dépendante du temps	52
3.2.3	Méthode explicite de résolution . . . . .	54
3.2.4	Etat du système après interaction . . . . .	55
3.3	Le double continuum atomique . . . . .	56
3.3.1	Un problème théorique ouvert . . . . .	56
3.3.2	Canaux d'ionisation et corrélations électroniques . . . . .	58
3.3.3	Description non corrélée ("ordre 0") . . . . .	61
3.3.4	Description corrélée ("ordre 1") . . . . .	63
3.3.5	Quantités physiques observables . . . . .	64
3.4	Domaine de validité de la méthode . . . . .	66
3.5	Conclusion . . . . .	70
<b>4</b>	<b>Double ionisation de l'hélium par absorption photonique</b>	<b>73</b>
4.1	Introduction . . . . .	75
4.2	Absorption d'un photon . . . . .	77
4.2.1	Section efficace d'ionisation . . . . .	78
4.2.2	La distribution énergétique . . . . .	80
4.2.3	Les corrélations électroniques et la charge $Z$ . . . . .	82
4.3	Absorption de deux photons . . . . .	88
4.3.1	Convergence des théories? . . . . .	88
4.3.2	Ionisation directe et ionisation séquentielle . . . . .	90
4.3.3	Les corrélations électron-électron dans le double continuum . . . . .	95
4.3.4	Comportement des ions héliumoïdes . . . . .	97
4.4	Vers des champs lasers de plus en plus brefs . . . . .	100
4.4.1	Temps d'interaction et temps de relaxation électronique . . . . .	100
4.4.2	Cas des impulsions à dérive de fréquence . . . . .	103
4.5	Conclusion . . . . .	104

---

<b>5 Ionisation du béryllium par absorption photonique</b>	<b>107</b>
5.1 Introduction . . . . .	109
5.2 Ionisation des électrons de valence . . . . .	111
5.2.1 Configuration “diélectronique” . . . . .	111
5.2.2 Béryllium et hélium . . . . .	112
5.2.3 Etudes théoriques et expérimentales en cours . . . . .	115
5.2.4 La double ionisation directe et séquentielle . . . . .	116
5.2.5 Les échelles de temps d’interaction . . . . .	123
5.3 Vers l’ionisation du coeur électronique . . . . .	126
5.3.1 “Activation” du coeur $1s^2$ . . . . .	126
5.3.2 Quelques résultats . . . . .	127
5.4 Conclusion . . . . .	131
<b>Conclusion</b>	<b>133</b>
<b>Perspectives</b>	<b>137</b>
<b>Annexes</b>	<b>139</b>
<b>A Les fonctions B-splines</b>	<b>141</b>
A.1 Construction numérique d’une base de B-splines . . . . .	141
A.2 Application des B-splines à la base radiale atomique . . . . .	143
<b>B Les lois d’échelle suivant la charge <math>Z</math></b>	<b>145</b>
<b>C Le système d’unités atomiques</b>	<b>149</b>
<b>Liste des tableaux</b>	<b>152</b>
<b>Table des figures</b>	<b>155</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>159</b>



# Introduction

L'interaction entre un rayonnement laser et la matière constitue un très vaste domaine d'étude, aux confluent de nombreuses disciplines aussi diverses et variées que la physique, la chimie, la biologie ou encore la médecine. Les propriétés intrinsèques de la matière, qu'elle soit sous la forme d'un solide, d'un agrégat, d'un plasma, ou d'une simple molécule, se trouvent modifiées sous l'action d'un champ électromagnétique. Etudier le comportement de l'entité de base, l'atome, en pareil cas reste encore un sujet théorique et expérimental ouvert. Cette thèse est consacrée à l'étude des atomes d'hélium et de béryllium en présence d'un champ laser intense et bref.

Depuis 1959, date de la conception du premier laser ("Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation"), la communauté scientifique dispose d'un faisceau de lumière unidirectionnel, monochromatique, continu ou impulsionnel, et cohérent dans l'espace et dans le temps. D'abord cantonnés à la lumière visible, les lasers couvrent aujourd'hui toute la gamme des longueurs d'ondes du spectre. La puissance délivrée par un faisceau laser a également vite évolué. Dans le cas des lasers impulsionnels, la puissance crête, c'est-à-dire la puissance atteinte lors du maximum de l'impulsion, a augmenté au fur et à mesure de la possibilité de délivrer l'énergie sur des temps de plus en plus courts. Parallèlement, cette évolution technologique s'est accompagnée de nombreuses études théoriques et expérimentales concernant, entre autres, la compréhension des phénomènes d'interaction d'un tel rayonnement avec la matière. Actuellement, les sources lasers à la pointe du développement peuvent atteindre des puissances de l'ordre du térawatt ( $10^{12}$  Watts) dans le domaine spectral des rayons ultra-violets, avec des durées d'impulsions de quelques femtosecondes ( $10^{-15}$  s) et avec des taux de répétitions élevés. Avec de telles caractéristiques, il est maintenant possible d'appréhender de nouveaux processus non linéaires durant l'interaction laser-atome. Par exemple, un atome peut absorber des

photons au dessus du seuil d'ionisation lorsqu'il est irradié par un champ laser intense. Ce phénomène est connu sous le nom de processus ATI ("Above Threshold Ionization") [1]. Un atome peut également émettre des photons dont l'énergie sera un multiple de l'énergie du photon du laser incident de forte intensité : c'est la génération d'harmoniques d'ordres élevés [2]. C'est dans ce contexte que nous allons nous intéresser plus particulièrement aux processus de double ionisation des atomes d'hélium et de béryllium par absorption photonique.

Pourquoi avoir choisi d'étudier ces deux systèmes atomiques ? La double ionisation de l'atome d'hélium en champ laser offre tout d'abord un sujet théorique fondamental qui est le problème coulombien à trois corps. Nous sommes en effet en présence de deux électrons dans le continuum et d'une troisième charge, qui est le noyau composé de  $Z$  protons. Cette problématique, étudiée depuis de très nombreuses années, n'a toujours pas de solution standard. Ensuite, l'hélium est une cible facilement manipulable et donc très souvent utilisée dans les expériences. La double ionisation de l'hélium par absorption d'un unique photon a été traitée dans d'innombrables travaux depuis de nombreuses années, tant sur le plan théorique qu'expérimental. Ce n'est que récemment que les calculs théoriques se sont correctement accordés avec les observations expérimentales. La revue de Briggs et coll. [3] datant de 2000 fait le point sur cette convergence de résultats, notamment à propos des sections efficaces différentielles. La double ionisation par absorption de deux photons suscite quant à elle plus d'interrogations, notamment avec des champs lasers intenses et ultra-brefs. La non linéarité de ce processus met en jeu de nouvelles perspectives d'un point de vue physique. L'absorption de deux photons arrache les deux électrons de l'attraction du noyau, laissant un ion doublement chargé. Plusieurs cheminements sont dans ce cas possibles pour atteindre le double continuum depuis l'état fondamental. Les deux photons peuvent éjecter directement les deux électrons, mais également produire un ion simplement chargé avec le premier photon puis l'ion  $\text{He}^{++}$  avec le deuxième photon. La caractérisation énergétique et angulaire de ces mécanismes est un des aspects théoriques intéressants pour comprendre la dynamique atomique non linéaire, bien que l'observation expérimentale reste encore dans ce cas difficile à mettre en place.

Concernant l'atome de béryllium, son étude est dans la continuité de celles menées sur les systèmes atomiques diélectroniques simples. Cet atome de la famille des alcalino-terreux se différencie de l'atome d'hélium par la présence de deux autres électrons sur une couche interne beaucoup plus liée au noyau. L'interaction de ce coeur électronique sur les électrons

de valence peut être définie par un potentiel modèle, méthode analytique souvent utilisée en physique atomique [4]. Mettre en parallèle le comportement de ces deux atomes soumis à des champs lasers intenses et brefs offre la possibilité d'observer de nouvelles corrélations électroniques. De plus, avec le développement de nouvelles sources lasers, dont nous ferons le point dans le chapitre 1, la communauté scientifique va bientôt disposer de rayonnements capables d'ouvrir la voie à l'étude de l'ionisation multiple des couches internes des atomes complexes. Le béryllium, par sa configuration, en est le plus représentatif.

Les traitements numériques de l'interaction entre un atome et un champ ont été effectués initialement dans le cadre de la théorie des perturbations. Le principe est de considérer le champ laser comme une faible perturbation du problème. L'étude de systèmes atomiques à un électron actif, soumis à des champs peu intenses et de durées d'impulsions assez longues, a alors donné de bons résultats dans ce cadre de travail [5]. Cependant, l'augmentation de l'intensité des rayonnements lasers, ainsi que les durées d'impulsions de plus en plus brèves, ont fait que cette approche s'est avérée limitée et plus difficile à appliquer. Des méthodes non perturbatives ont alors vu le jour, où il est nécessaire de résoudre l'équation de Schrödinger dépendante du temps. Equation fondamentale de la physique atomique, elle régit la dynamique d'un système atomique plongé dans un champ électromagnétique. Les techniques pour résoudre cette équation se sont améliorées au fur et à mesure des capacités sans cesse croissantes des ordinateurs. Nous ferons dans le chapitre 3 un bref historique de cette évolution. Pour notre part, nous allons utiliser une approche non perturbative de type "spectrale". Elle consiste à se servir de l'ensemble des états propres de l'atome non perturbé pour construire les fonctions d'onde diélectroniques dépendantes du temps. Il est donc nécessaire d'avoir à notre disposition une méthode de calcul précise et efficace du spectre électronique de l'atome à deux électrons actifs. Les états propres diélectroniques seront développés sur la base d'un produit antisymétrisé de fonctions à une particule, où la partie radiale est décrite à l'aide de fonctions B-splines. Ces fonctions de carrés sommables sont très bien adaptées aux calculs de structures atomiques et moléculaires [6]. Ce travail se situe dans la continuité d'une étude portant sur les processus de double excitation vers les états autoionisants [7, 8]. Certains aspects techniques, comme le calcul des dipôles et de la structure de l'hélium, développés dans ces deux travaux, ne seront pas détaillés ici.

Le travail que nous allons présenter dans ce document s'organise en cinq parties. Nous allons dans un premier chapitre introductif faire un tour d'horizon des techniques

expérimentales actuelles capables de produire un rayonnement cohérent de haute puissance dans le domaine spectral UV-XUV, et de durée d'impulsion de l'ordre de la femtoseconde ou subfemtoseconde. Ceci nous servira de point de départ pour définir un modèle semi-classique d'une impulsion laser ayant de telles caractéristiques. Dans le chapitre 2, nous développerons la méthode numérique utilisée pour décrire l'ensemble des énergies et états propres d'un système atomique à deux électrons actifs. Le traitement non perturbatif, non relativiste et spectral de l'interaction laser-atome sera expliqué dans le chapitre 3, où le point important sera de définir le plus précisément possible la région du double continuum atomique. Les deux derniers chapitres présenteront les résultats sur la double ionisation des atomes d'hélium et de béryllium en présence d'un champ laser intense et bref, issus de notre approche numérique. Ils concerneront en particulier des calculs de sections efficaces totales d'ionisation, et de distribution énergétique entre les électrons éjectés dans le double continuum après absorption d'un photon ou de deux photons.

Chapitre **1**

Les lasers UV-XUV ultra-brefs : contexte  
expérimental et représentation semi-classique

*“Les hommes se pressent vers la lumière, non pour mieux voir, mais pour  
mieux briller.”*

- Friedrich Nietzsche -





## 1.1 Introduction

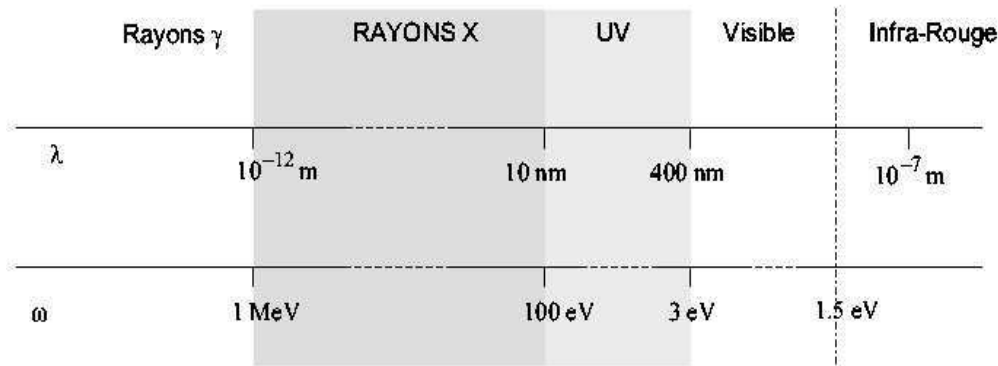


FIGURE 1.1: *Domaine spectral des rayons X et ultra-violet*

Le terme générique “champ laser intense et bref” utilisé dans ce document regroupe un nouvel ensemble de sources lasers en plein développement actuellement. Une effervescence expérimentale existe depuis quelques années autour de la production de rayonnements lasers de plus en plus puissants, de longueurs d’ondes de plus en plus courtes, avec une durée d’impulsion de plus en plus brève. La notion de *champ intense* fait ici référence à des faisceaux lasers dont l’éclairement, soit le nombre de Watts par centimètres carrés que va subir le milieu irradié, est de l’ordre de  $10^{13} - 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> dans le domaine spectral des rayons ultra-violet (UV) et des rayons X. Les puissances crêtes associées varient entre le gigawatt ( $10^9$  Watts) et le térawatt ( $10^{12}$  Watts). Comme l’indique la figure (1.1), le domaine UV-X se délimite de 400 nanomètres ( $10^{-9}$  mètres) jusqu’à  $10^{-12}$  mètres pour les rayons X les plus lointains. Ceci correspond à des énergies de photons très élevées, variant de la dizaine d’électrons-Volts (eV) à  $10^6$  eV. Tout autant que la puissance délivrée par ces rayonnements, le confinement ultra-bref de l’impulsion va amener une nouvelle réflexion au niveau des processus physiques d’interaction avec la matière. C’est sur ce point que nous allons axer principalement notre étude. L’expression *champ bref* s’applique ici à des durées d’impulsions lasers de l’ordre de la femtoseconde ( $10^{-15}$  s), voire de l’attoseconde ( $10^{-18}$  s). Cette nouvelle échelle de temps ouvre de nouvelles perspectives dans l’étude de la dynamique des processus ultra-rapides. Pour fixer les idées, les temps subpicosecondes ( $10^{-12}$  s) caractérisent le mouvement des atomes dans les molécules. Ici, des impulsions subfemtosecondes vont permettre de rendre accessible le mouvement des électrons au sein

des atomes [9].

Nous allons dans un premier temps faire le point sur les principales techniques expérimentales pouvant produire de tels rayonnements. Nous nous attarderons sur le principe du laser à électrons libres, source laser novatrice la plus puissante actuellement, ainsi que sur le principe de la génération d'harmoniques d'ordres élevés, développée notamment au laboratoire CELIA, capable de générer dans un futur proche des trains d'impulsions attosecondes. Dans un second temps, nous proposerons une représentation semi-classique d'un champ laser intense et bref, point de départ de notre étude théorique de l'interaction laser-atome.

## 1.2 Sources lasers XUV de hautes puissances

### 1.2.1 Les sources actuelles de rayonnement cohérent

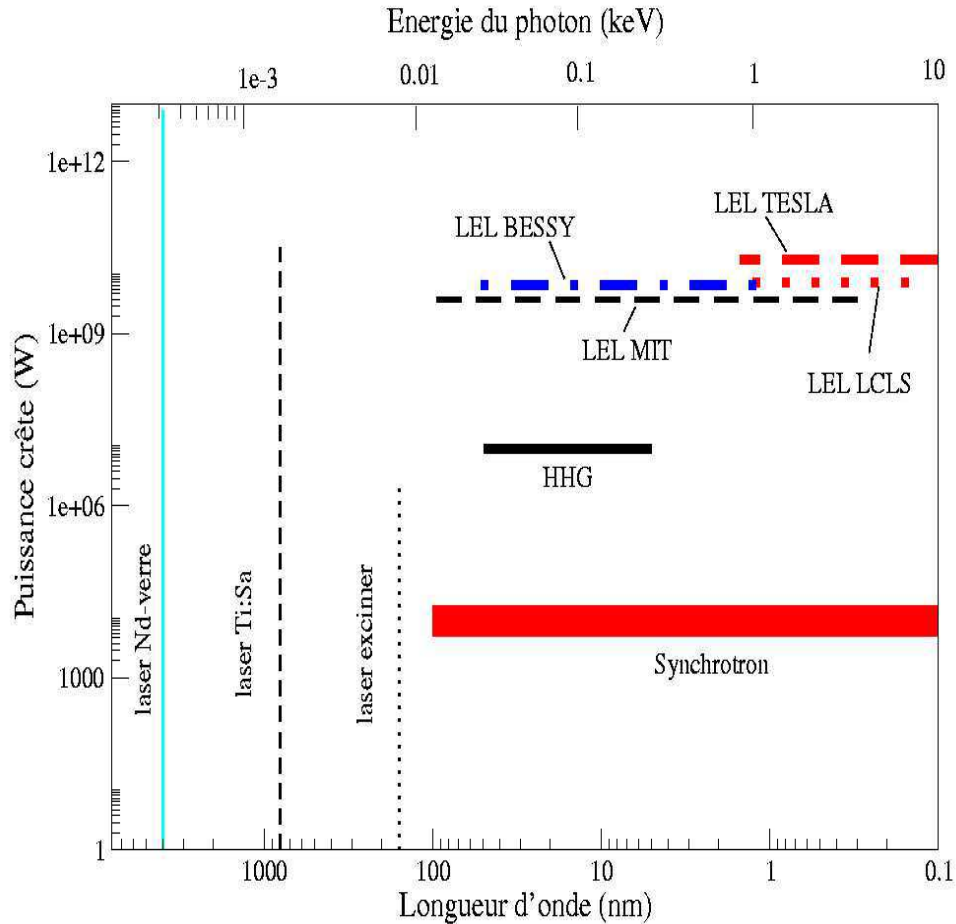


FIGURE 1.2: Comparaison de quelques sources lasers en fonction de leur puissance crête, de leur énergie photonique et de leur longueur d'onde

Les sources de rayonnement cohérent dont dispose actuellement la communauté scientifique peuvent être regroupées en trois grandes catégories. Nous avons tout d'abord **les sources lasers traditionnelles**. Leur principe consiste à exciter les électrons d'un milieu, puis à y déclencher l'émission de photons en cascade sous forme de rayonnement. Pour ce faire, le dispositif du laser se compose d'un réservoir d'électrons (qui peut être solide, liquide ou gazeux) appelé milieu actif, associé à une source excitante qui élève les électrons à des niveaux d'énergies supérieurs. Dans une seconde phase, de la lumière est injectée dans le milieu, provoquant des collisions entre électrons excités et photons. Lors

de ces collisions, les électrons retournent à leur niveau d'énergie initial en émettant de nouveaux photons. Ce processus d'émission stimulée produit l'amplification de la lumière. Deux miroirs situés aux extrémités du laser réfléchissent les photons émis, la lumière se densifiant à chaque parcours. L'un des deux miroirs est semi-réfléchissant, ce qui permet à une fraction de la lumière d'être relâchée à chaque aller-retour. Sur la figure (1.2) est défini le domaine d'action de deux lasers à solide, le laser Ti :Sa et le laser Nd-verre. Le premier possède comme milieu actif un cristal saphir (Sa) dopé aux ions titane (Ti). La longueur d'onde du rayonnement qu'il génère est fixée par ce milieu, et correspond au domaine de l'infrarouge. Le second est composé d'un verre dopé au néodyme. La longueur d'onde du rayonnement est plus grande, mais sa puissance crête peut atteindre  $10^{12}$  Watts. Les caractéristiques d'un laser de type "excimer" sont également reportées. Dans ce cas, on utilise un milieu gazeux composé généralement de molécules diatomiques ( $Xe_2$ ,  $Kr_2$ ) excitées par une décharge électrique.

Une deuxième catégorie regroupe **les sources synchrotron de troisième génération**. Ce type de rayonnement est émis lorsque des électrons se déplaçant à une vitesse proche de celle de la lumière sont déviés par un champ magnétique. Il est mis en oeuvre dans de grands accélérateurs de particules linéaires ou circulaires. Les sources synchrotron de première génération datent des années 1960 et 1970, et servaient à la physique des particules. La deuxième génération regroupe dans les années 1980 des installations construites spécifiquement pour la production de rayonnement synchrotron. En 1992, un synchrotron de troisième génération est construit à l'ERSF ("European Synchrotron Radiation Facility") de Grenoble, capable de produire un rayonnement cohérent. Les autres sources de ce type sont actuellement le "spring-8" au Japon, et le synchrotron APS ("Advanced Photon Source") aux Etats-Unis. Comme l'indique la figure (1.2), ces sources peuvent couvrir un large domaine en longueur d'onde, mais avec une puissance crête de l'ordre de  $10^4$ - $10^5$  Watts.

Les sources lasers les plus prometteuses en termes de hautes puissances dans le domaine XUV sont **les lasers à électrons libres (LEL)**. Ce nouveau type de source laser est basé sur la combinaison des caractéristiques d'une source laser traditionnelle et du rayonnement synchrotron. L'idée est de remplacer le milieu amplificateur par un faisceau d'électrons relativistes produit par un accélérateur de particules. Actuellement, plusieurs lasers à électrons libres sont développés. Citons le "Linac Coherent Light Source" (LCLS) à Stanford, opérationnel en 2009, le LEL du "Massachusetts Institute of Technology" (MIT) à

Cambridge, le TESLA LEL au “Deutsches Elektronen-Synchrotron Laboratory” (DESY) à Hambourg, ou encore le projet “Berlin Electron Storage Ring for Synchrotron Radiation” (BESSY). Nous constatons sur la figure (1.2) que les LEL vont permettre d’appréhender des puissances crêtes de l’ordre du gigawatt et au-delà, dans le domaine spectral des rayons UV et X.

### 1.2.2 Principe du laser à électrons libres

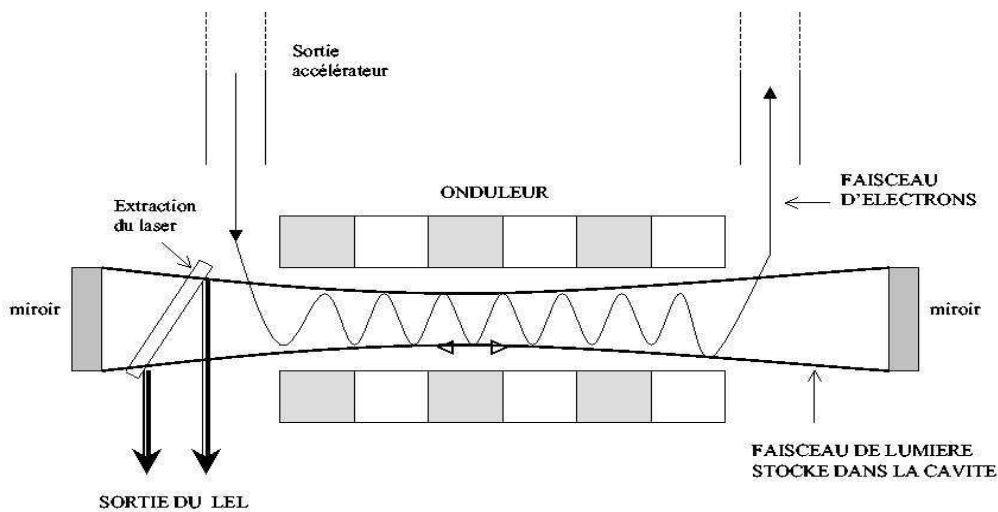


FIGURE 1.3: Schéma du laser à électrons libres

Le schéma (1.3) nous explique de façon générale le fonctionnement d’un laser à électrons libres. Des paquets d’électrons circulant dans un accélérateur circulaire ou linéaire sont projetés dans une structure magnétique appelée onduleur. A l’intérieur de cet onduleur, les électrons vont acquérir une vitesse transversale sinusoïdale permettant, par le couplage avec l’onde électromagnétique, un rayonnement laser. Celui-ci est alors amplifié par une cavité optique, et son extraction nous donne un faisceau laser utilisable. Un autre type de LEL est possible, cette fois-ci dépourvu de cavité optique. L’amplification se fait alors en un seul passage par SASE (“Self-Amplification of Spontaneous Emission”) [10]. A la différence d’un laser traditionnel où la longueur d’onde est fixée par les niveaux atomiques du milieu amplificateur, la longueur d’onde d’un LEL varie de façon continue avec le champ magnétique de l’onduleur et l’énergie des électrons. Elle s’écrit alors de la façon

suivante :

$$\lambda = \frac{\lambda_0}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2}\right) \quad (1.1)$$

$K$  est le paramètre de déflexion de l'onduleur,  $\gamma$  l'énergie des particules normalisée par rapport à leur énergie au repos (0.511 MeV) et  $\lambda_0$  la longueur d'onde de l'onduleur. L'atout majeur d'un tel dispositif est donc son accordabilité en longueur d'onde. L'éclairement du faisceau obtenu, qui dépend fortement du courant crête du faisceau d'électrons, sera alors très élevé. Nous pouvons citer comme autres avantages la faible divergence, la polarisation, la structure impulsionnelle ou encore la cohérence du faisceau. L'équipe de J. Andruszkow et coll. [10] a mis en place en 2000 un laser à électrons libres de type SASE au laboratoire DESY à Hambourg, de longueur d'onde de 109 nanomètres avec une durée d'impulsion variant de 0.4 à une picoseconde. Plus récemment, en 2002, H. Wabnitz et coll. [11] ont étudié l'ionisation d'atomes de xénon avec un champ laser créé par LEL de  $7 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>, de l'ordre de la centaine de nanomètres et d'une durée d'impulsion de 100 fs.

### 1.3 Production d'impulsions femtosecondes et sub-femtosecondes

Outre la course expérimentale vers la production de champs lasers intenses dans le domaine UV-XUV, l'obtention d'impulsions ultra-brèves est un autre challenge actuel. Le tableau (1.1) reporte les ordres de grandeurs des différents paramètres caractérisant les sources lasers que nous venons de présenter. La durée d'impulsion d'un LEL, c'est-à-dire la durée pendant laquelle le rayonnement sera appliqué sur la cible, correspond en moyenne à la centaine de femtosecondes. C'est ce confinement ultra-bref qui va produire d'importantes puissances crêtes. Regardons de plus près les phénomènes physiques capables de produire des échelles de temps encore plus brèves.

#### 1.3.1 La diffusion Raman stimulée

Un processus récemment développé est basé sur la diffusion Raman stimulée. L'effet Raman est un phénomène de diffusion inélastique de la lumière : lorsque la matière est irradiée par une onde électromagnétique, les photons incidents sont soit absorbés soit diffusés par la matière. Les photons diffusés avec la même fréquence que celle des photons incidents vont correspondre à la diffusion Rayleigh élastique. La diffusion Raman correspond aux photons diffusés avec une fréquence différente. Si la fréquence de diffusion est

	Ti :Sa	Excimer	MIT LEL	LCLS LEL	TESLA LEL	BESSY LEL
Longueur d'onde (nm)	800	157	0.3-100	0.15-1.5	0.1-1.5	1.2-60
Energie photon (eV)	1.6	7.8	4200	8300	12400	800
Energie impulsion (mJ)	1	15	0.2	3	4	1
Durée impulsion (fs)	30	$10^7$	50	230	200	200
Puissance crête (GW)	33	0.002	4	8	20	7
Photons/impulsion	$4 \times 10^{15}$	$1 \times 10^{16}$	$3 \times 10^{11}$	$2 \times 10^{12}$	$2 \times 10^{12}$	$1 \times 10^{13}$
Photons/sec	$2 \times 10^{19}$		$3 \times 10^{14}$	$2 \times 10^{14}$	$5 \times 10^{15}$	$8 \times 10^{16}$
Fréquence de l'impulsion (kHz)	4		1	0.12	2	8

TABLEAU 1.1: Caractéristiques de quelques sources lasers actuelles



inférieure à la fréquence initiale, il y aura création de vibrations dans la molécule (diffusion Raman-Stokes). Par contre, si la fréquence de diffusion est supérieure à la fréquence initiale, cela entraînera la destruction de certaines vibrations (diffusion Raman anti-Stokes). Nous voyons donc que l'interaction d'un faisceau laser avec les molécules d'un gaz va créer un milieu Raman excité. C'est à partir de ce processus fondamental que la production d'impulsions ultra-brèves peut être réalisée. En excitant un gaz moléculaire avec une première impulsion laser (pompe), on peut induire une modulation de la phase d'une deuxième impulsion (sonde) se propageant dans le milieu Raman excité et ainsi élargir notablement son spectre. En contrôlant le délai entre les deux impulsions pompe et sonde, il est alors possible de mettre en phase les composantes spectrales de l'impulsion sonde et de produire des impulsions subfemtosecondes. Les premières expériences basées sur la diffusion Raman stimulée ont produit un train d'impulsions de 6 femtosecondes à 400 nanomètres [12, 13].

### 1.3.2 La génération d'harmoniques d'ordres élevés

#### Principe

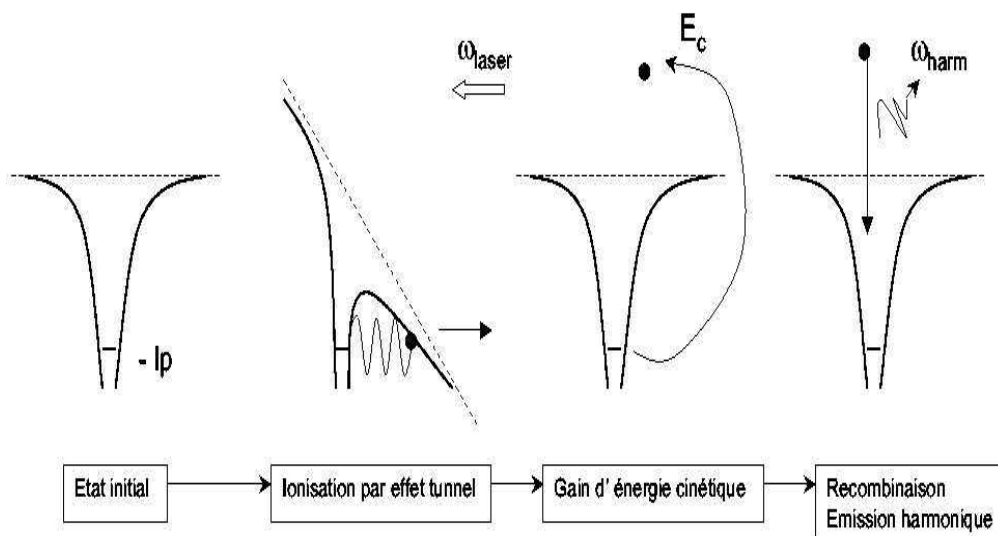


FIGURE 1.4: *Modèle semi-classique du processus de génération de photons harmoniques*

Un autre processus physique, découvert en 1987 [2, 14], présente la caractéristique

d'émettre un spectre d'impulsions lumineuses subfemtosecondes : c'est la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Ce phénomène est basé sur la capacité d'un atome à émettre des photons, appelés photons harmoniques, dont l'énergie sera un multiple impair de l'énergie du photon du laser incident de forte intensité. Le schéma (1.4) nous montre de façon simplifiée les différentes étapes du processus. Le laser incident d'énergie  $\omega_{laser}$  ionise le système atomique par effet tunnel. L'électron éjecté, d'énergie cinétique  $E_c$ , peut alors se recombiner avec l'ion résiduel sous l'action du champ et ainsi permettre l'émission d'un photon harmonique  $\omega_{harm}$ . Par définition, on appellera harmonique d'ordre  $N = 2n + 1$  ( $n$  étant un entier) le rayonnement dont l'énergie correspond à  $N$  fois l'énergie du photon fondamental, soit :

$$\omega_{harm} = N \times \omega_{laser} \quad (1.2)$$

L'ordre seulement impair des harmoniques ainsi obtenues s'explique par les règles de transitions dipolaires. En effet, d'après la symétrie sphérique des atomes, l'absorption ou l'émission d'un photon par l'atome se fait entre deux états dont les moments angulaires vérifient  $\Delta l = \pm 1$ .

### Spectre caractéristique

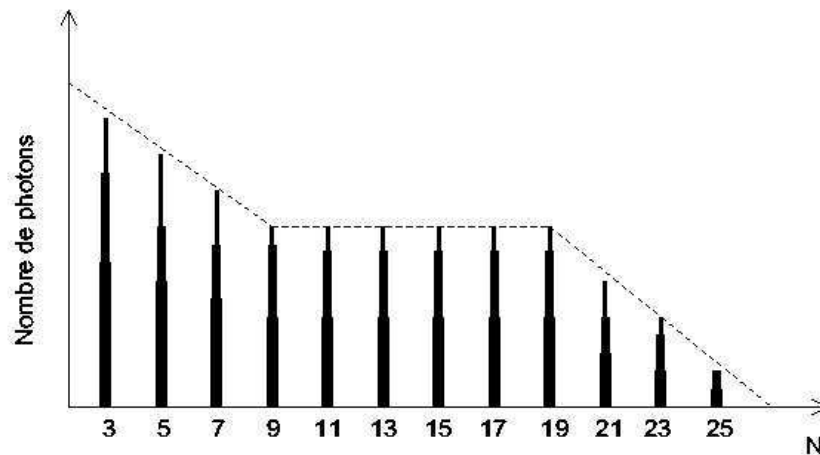


FIGURE 1.5: *Spectre harmonique*

Le schéma (1.5) nous montre l'allure caractéristique du spectre des harmoniques. Nous observons que le nombre de photons harmoniques émis en fonction de l'ordre  $N$  subit une décroissance sur les premières harmoniques d'ordres peu élevés, suivie d'un plateau, et

enfin d'une nouvelle décroissance sur les dernières harmoniques appelée "cut-off". Une étude semi-classique [15] a démontré que ce "cut-off" se produit pour des photons dont l'énergie vérifie la relation suivante :

$$\omega_{cut} = I_p + 3.2 \times U_p \quad (1.3)$$

Où  $I_p$  est le potentiel d'ionisation et  $U_p$  la force pondéromotrice. En jouant sur les paramètres du champ laser initial, que sont la longueur d'onde et l'intensité, nous pourrions alors faire varier cette énergie pondéromotrice et ainsi élargir le plateau pour atteindre des harmoniques d'ordres élevés. Il a été remarqué que le spectre en fréquences des harmoniques se traduisait dans le domaine temporel par un train d'ondes attosecondes, lorsque l'impulsion laser fondamentale était brève et intense. Récemment, une observation expérimentale de trains d'impulsions attosecondes issus de la génération d'harmoniques a été faite au C.E.A. à Saclay [16].

### Au laboratoire CELIA

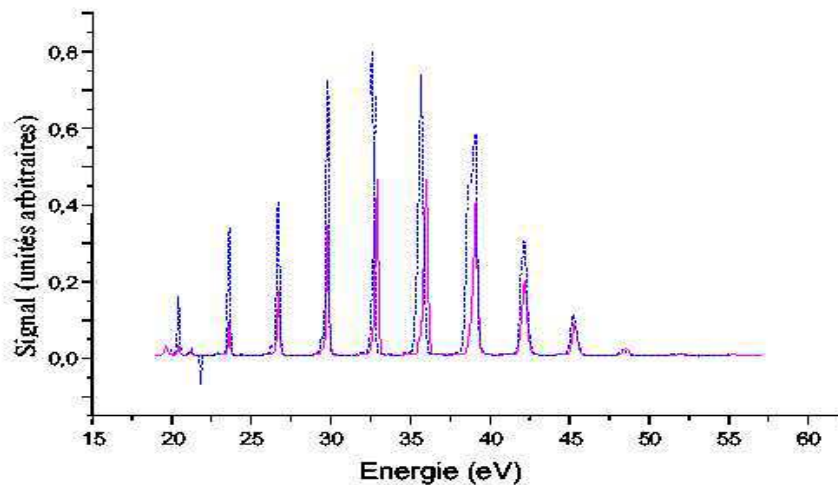


FIGURE 1.6: *Spectre d'harmoniques dans l'argon obtenu expérimentalement au CELIA*

Le laser titane-saphir développé au CELIA génère des impulsions de l'ordre de 20 fs, avec une énergie proche de 28 mJ par impulsion. La puissance crête associée est de l'ordre du térawatt. La longueur d'onde d'émission se situe dans l'infrarouge à environ 800 nm. Le taux de répétition est de 1 kHz. La méthode utilisée pour obtenir des harmoniques d'ordres élevés consiste à faire passer l'impulsion issue du laser Ti :Sa dans un capillaire

creux rempli d'un gaz rare. Dans ce jet de gaz, les atomes sont quasiment isolés les uns par rapport aux autres pendant le temps d'interaction. Ils vont alors produire des photons harmoniques dont leur énergie sera mesurée en les envoyant sur un autre gaz. On mesure alors l'énergie des électrons éjectés des atomes par absorption des photons harmoniques. La figure (1.6) présente le spectre d'harmoniques obtenu avec de l'argon, avec une énergie de photon fondamental de 1.55 eV et un éclairement de  $2.1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Le spectre consiste en une série de pics dont chaque énergie caractérise l'énergie des photons harmoniques incidents. Les pics sont séparés de deux fois l'énergie du photon fondamental. Sachant que le potentiel d'ionisation de l'argon est égal à 15.755 eV, nous pouvons alors identifier le premier pic du graphe comme étant l'harmonique 23, d'après les expressions (1.2) et (1.3).

### 1.3.3 Sélection d'une impulsion attoseconde unique

L'obtention d'un train d'ondes attosecondes, aussi importante soit-elle, n'est qu'une étape sur la route qui nous mènera vers un nouveau domaine : "la physique attoseconde". L'enjeu est maintenant de sélectionner une seule impulsion du train. Un réseau européen composé d'une dizaine d'équipes travaille actuellement sur ce projet. Isoler une impulsion permettrait de disposer d'une impulsion lumineuse vingt fois plus brève que le plus rapide des lasers classiques existants. Il existe aujourd'hui deux approches majeures pour confiner l'émission harmonique en une seule impulsion. La première nécessite une impulsion laser fondamentale de 5 fs. En sélectionnant spectralement les harmoniques dans la région de la coupure, qui ne sont émises qu'au voisinage de l'éclairement crête, il est alors possible d'obtenir une seule impulsion attoseconde. Cette technique a été mise au point à l'Institut für Photonik de Vienne, et permet d'observer une impulsion unique de 650 attosecondes [17]. La deuxième approche est quant à elle moins exigeante en terme de puissance du laser incident. Elle est basée sur la modulation temporelle de la polarisation au cours de l'impulsion laser. En effet, l'efficacité de la génération d'harmoniques d'ordres élevés est maximale pour une polarisation linéaire du faisceau laser, moindre pour une polarisation circulaire. La méthode consiste alors à faire varier la polarisation pour que celle-ci soit linéaire uniquement à l'éclairement crête. Il existe plusieurs techniques expérimentales pour faire varier continûment la largeur de la porte temporelle de polarisation. Citons par exemple l'utilisation de deux impulsions de fréquences porteuses légèrement différentes et possédant des polarisations orthogonales [17], ou encore l'utilisation de deux lames quart

d'onde actuellement en développement au laboratoire CELIA [18].

## 1.4 Représentation semi-classique du champ laser

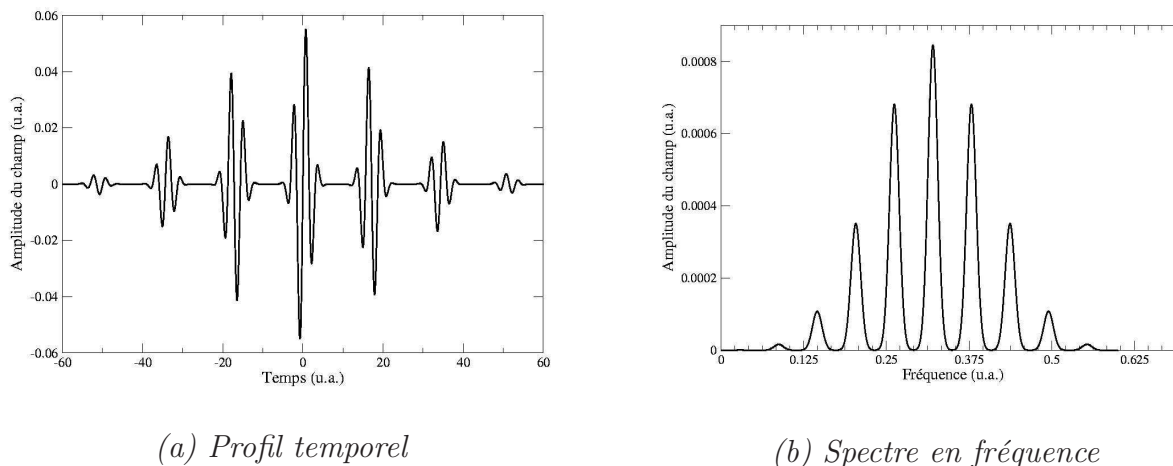


FIGURE 1.7: Train d'impulsions attosecondes

Nous venons de présenter les techniques expérimentales actuelles majeures dédiées à la production de rayonnements UV-XUV ultra-brèves. La figure (1.7) nous donne de façon générale le profil temporel et le spectre en fréquence d'un train d'impulsions ultra-brèves. La forme spectrale est obtenue par transformée de Fourier du spectre temporel. Le but est maintenant ici de trouver une représentation théorique d'une impulsion unique qui va servir à étudier les processus non linéaires agissant durant l'interaction de celle-ci avec la matière, sujet qui nous préoccupe dans ce document. Pour ce faire, elle doit avant tout prendre en compte les caractéristiques essentielles des rayonnements UV-XUV que nous venons de voir, à savoir une intensité élevée, des photons très énergétiques et une durée d'impulsion très brève. Un champ électromagnétique est caractérisé par son champ électrique  $\vec{E}(\vec{r}, t)$  et son champ magnétique  $\vec{B}(\vec{r}, t)$ . Dans le cadre de notre travail, la longueur d'onde sera suffisamment grande par rapport à la dimension des systèmes atomiques irradiés. Nous allons donc pouvoir travailler dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique. En effet, cette approximation est valable si l'extension spatiale de l'atome reste faible par rapport aux variations spatiales du champ électrique. Nous pouvons alors négliger ces variations à l'échelle des dimensions atomiques et supposer que le champ laser ne dépend finalement que du temps  $t$ . De plus, dans cette approximation, le champ magnétique sera nul. La représentation du champ électrique que nous avons choisie

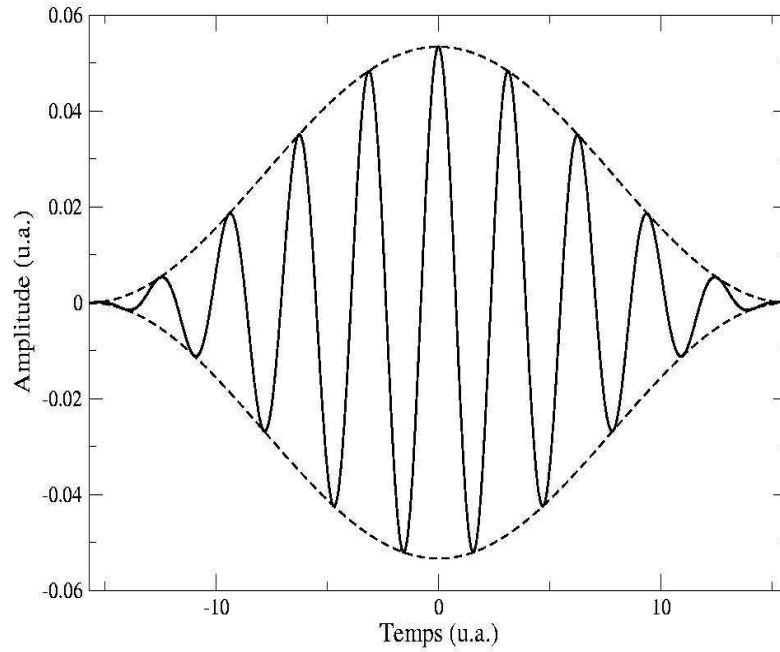


FIGURE 1.8: Profil temporel d'une impulsion laser avec une enveloppe en  $\cos^2$ , d'énergie de photon  $\omega = 2$  u.a., d'amplitude maximale  $E_0 = 0.053$  u.a., et de 10 cycles optiques

est alors la suivante :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) \equiv \vec{E}(t) = E_0 f(t) \sin(\omega t) \vec{e}_z = E_0 \cos^2\left(\frac{\pi t}{T}\right) \sin(\omega t) \vec{e}_z \quad (1.4)$$

$\omega$  est l'énergie de photon du champ,  $\vec{e}_z$  la direction de polarisation linéaire,  $E_0$  l'amplitude maximale. Nous pouvons noter ici que d'un point de vue macroscopique,  $E_0$  varie dans tout l'espace. Il faudrait donc calculer la valeur du champ à chaque point de l'espace pour compléter la représentation. La fonction hyperbolique, ici une fonction sinus, représente les oscillations "naturelles" du champ au cours du temps. La fonction  $f(t)$ , quant à elle, définit l'enveloppe temporelle qui va englober ces oscillations durant un temps total  $T$ , et ainsi permettre de décrire un temps de montée progressif jusqu'à une intensité crête. La durée totale de l'impulsion  $T$  est alors définie par l'expression suivante :

$$T = \frac{2\pi}{\omega} n_{cycles} \quad (1.5)$$

La relation ci-dessus introduit le paramètre  $n_{cycles}$ , qui est le nombre de cycles optiques du champ laser. L'intervalle de temps pendant lequel le champ va se propager sera alors symétrique par rapport à  $t = 0$ , soit  $-T/2 \leq t \leq +T/2$ . La relation entre le champ

électrique  $\vec{E}(t)$  et le potentiel vecteur  $\vec{A}(t)$  est donnée par l'expression suivante :

$$\vec{E}(t) = -\frac{\partial \vec{A}(t)}{\partial t} \quad (1.6)$$

Le profil temporel d'un champ électrique défini à l'aide de l'expression (1.4) est donné sur la figure (1.8). Dans le cas présent, nous avons choisi une énergie de photon  $\omega$  de 2 u.a. (54.4 eV), 10 cycles optiques, et une amplitude maximale  $E_0$  égale à 0.053 u.a.. La correspondance entre les unités atomiques (u.a.), que nous allons utiliser dans ce document, et les unités du système international, est donnée dans l'annexe C. Une telle amplitude de champ correspond à un éclairement crête de  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, d'après la définition (C.9). La

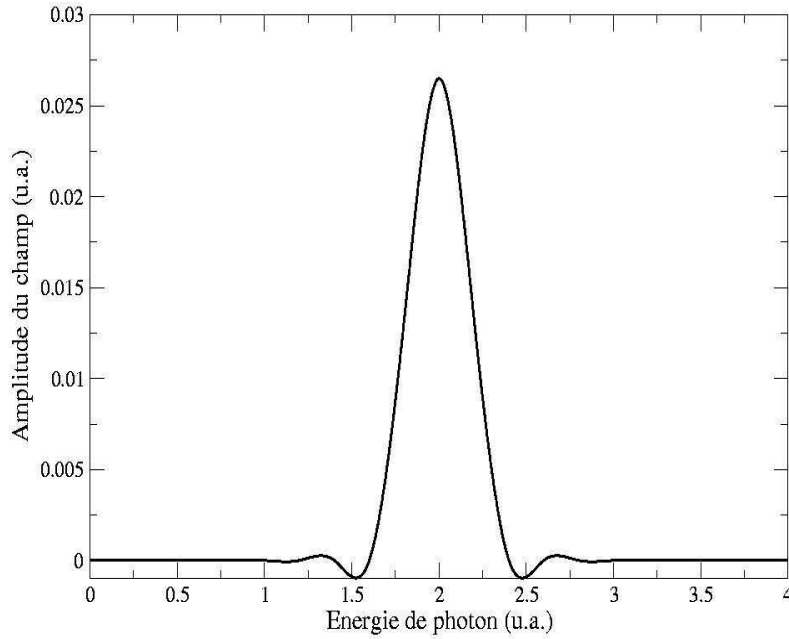


FIGURE 1.9: *Spectre en énergie de photon du champ laser défini dans la figure (1.8)*

figure (1.9) représente le spectre en énergie de photon correspondant, obtenu par transformée de Fourier. Nous obtenons bien une impulsion unique, centrée sur l'énergie  $\omega = 2$  u.a.. La largeur à mi-hauteur de l'impulsion, appelée largeur spectrale, est donnée par :

$$\Delta\omega = \frac{2\pi}{T/2} \quad (1.7)$$

Avec  $T$  la durée totale de l'impulsion définie en (1.5). Grâce à la représentation (1.4), nous allons pouvoir faire varier les paramètres  $E_0$ ,  $\omega$  et  $n_{cycles}$  directement accessibles pour obtenir une impulsion aussi intense et brève que l'on souhaite.

Une autre forme du champ laser sera étudiée dans la suite de ce document. Il s'agit de représenter des impulsions à dérive de fréquence [19]. Elles sont caractérisées par le fait que les différentes composantes spectrales vont subir un léger décalage les unes par rapport aux autres. On dit que l'impulsion présente un glissement de fréquence linéaire. Ce type d'impulsion est utilisé expérimentalement lors de la compression de faisceaux lasers [20]. L'expression du champ électrique qui va modéliser ce phénomène est de la forme suivante :

$$\vec{E}(t) = E_0 f(t) \sin\left[\omega t \left(1 + \frac{\alpha t}{T}\right)\right] \quad (1.8)$$

Avec  $\alpha$  le paramètre définissant le décalage en fréquence. Dans la littérature anglo-saxonne, ce paramètre est appelé paramètre de "chirp", terme anglais signifiant gazouillis. Ceci est l'équivalent des échos radars en acoustique : une oreille sensible aux hautes fréquences entendrait une sorte de gazouillis perpétuel produit par les vibrations acoustiques en décalage de fréquence. La figure (1.10) montre l'évolution du profil temporel

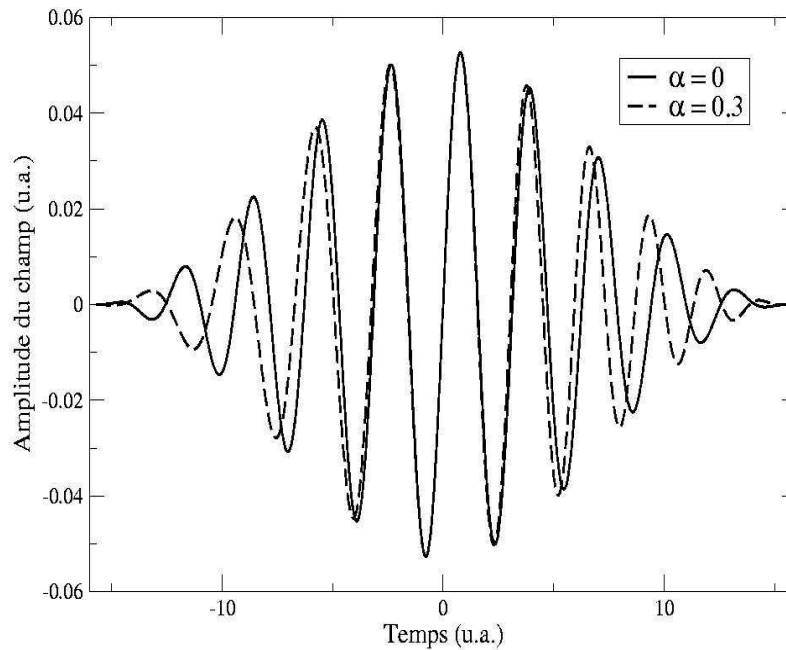


FIGURE 1.10: *Evolution du profil temporel suivant la valeur du paramètre de chirp  $\alpha$  - Caractéristiques du champ laser (défini en (1.8)) :  $I = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> ;  $\omega = 2$  u.a. ; 10 cycles optiques*

d'un champ électrique défini par l'expression (1.8) en fonction de la valeur du paramètre de chirp. Nous observons que l'introduction de ce paramètre produit un léger décalage au début et à la fin du spectre temporel, par rapport au spectre d'une impulsion "non



chirpée” (1.4). L’évolution des spectres en énergie de photon dans pareils cas est observée

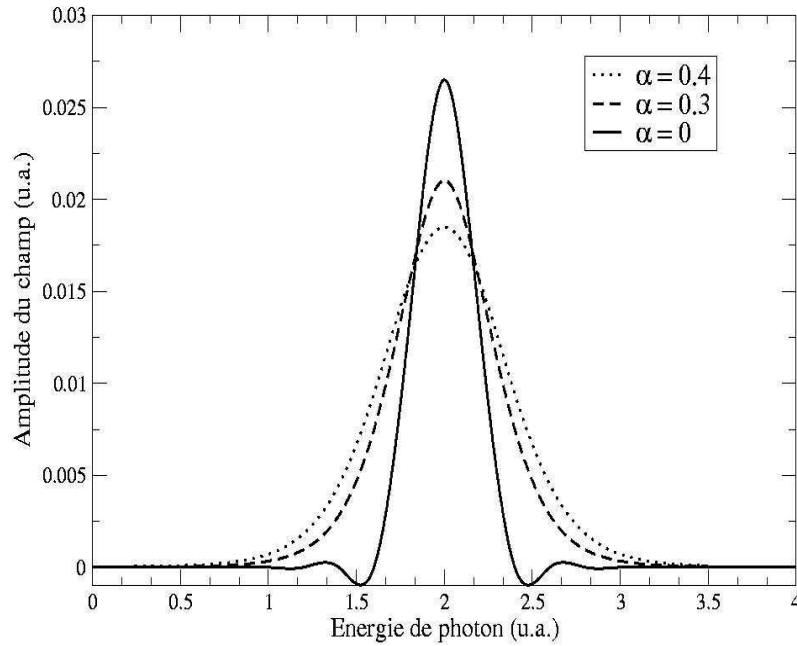


FIGURE 1.11: *Evolution du spectre en énergie de photon suivant le paramètre de chirp  $\alpha$  - Les caractéristiques du champ laser sont celles de la figure (1.10)*

sur la figure (1.11). La largeur à mi-hauteur de l’impulsion devient de plus en plus importante suivant l’augmentation de la valeur du paramètre de chirp. La durée effective de l’impulsion diminue donc, d’après (1.7).

Dans le chapitre 4, lorsque nous aborderons les processus d’interaction laser-atome, nous étudierons l’influence de ces impulsions à dérive de fréquence sur le comportement de l’atome irradié.

## 1.5 Conclusion

Nous venons de faire un bref aperçu de quelques méthodes expérimentales récentes capables de produire des rayonnements lasers d’impulsions femto- ou subfemtosecondes dans le domaine spectral UV-XUV. De telles échelles de temps vont permettre notamment de sonder directement les effets de relaxation électronique dans les atomes, et ainsi d’aborder une nouvelle physique lors de l’interaction laser-matière.

La communauté scientifique théorique a donc emboîté le pas dans cette métrologie ultra-rapide pour essayer de décrire les différents processus non linéaires qui vont appa-

---

raitre lorsqu'une impulsion aussi brève et intense va irradier un milieu dilué. Nous avons alors proposé une représentation semi-classique du champ laser adaptée, premier élément de notre représentation théorique de l'interaction laser-atome. Dans le but final d'étudier la réponse d'un atome soumis à un rayonnement UV-XUV ultra-bref, attachons nous maintenant à décrire le système atomique dans son ensemble.



# Chapitre 2

## Description des systèmes atomiques à deux électrons actifs : cas de l'hélium et du béryllium

*“Se donner du mal pour les petites choses, c'est parvenir aux grandes, avec le temps.”*

- Samuel Beckett -



## 2.1 Introduction

Nous avons choisi dans ce document de nous intéresser à des systèmes atomiques possédant deux électrons dits “actifs”, c’est-à-dire où seulement deux électrons vont participer aux processus d’interaction avec le champ laser que nous allons appliquer. Plus particulièrement, nous allons étudier l’atome d’hélium. Dans ce cas, nous abordons un problème à trois corps : deux électrons et un noyau de charge  $Z = 2$  u.a.. Une description précise d’un tel système nécessite la prise en compte des différentes interactions se produisant entre les trois entités. Une force électrostatique, définie par un potentiel central, est exercée par le noyau sur chacun des deux électrons. De plus, ces derniers subissent une répulsion électrostatique l’un par rapport à l’autre. L’illustration du rôle prépondérant de l’interaction électron-électron peut être faite en observant la position de l’énergie fondamentale de l’atome d’hélium. En supprimant cette force répulsive, c’est-à-dire si nous considérons un modèle à électrons indépendants, la valeur énergétique de cet état sera de  $-4$  u.a.. Il faut comparer ce résultat à la valeur littérale, qui est de  $-2.903724$  u.a. [21]. Nous constatons de façon évidente que la description des corrélations entre les électrons va être un défi majeur dans l’obtention d’une représentation correcte du spectre électronique du système atomique. C’est pour cette raison que nous avons choisi de développer une méthode numérique qui va prendre en compte ce terme de façon très précise. Nous allons également nous pencher sur la description de l’atome de béryllium. Ce système atomique est composé d’un noyau de charge  $Z = 4$  u.a., de deux électrons sur la couche externe  $2s$ , mais également de deux électrons sur la couche interne  $1s$ . Nous verrons dans un prochain chapitre que l’ionisation des électrons de la couche  $2s$  peut se produire avec des énergies de photons de l’ordre de  $15$  eV, tandis que les électrons de la couche plus interne  $1s$  seront atteints avec des photons beaucoup plus énergétiques d’environ  $160$  eV. Ainsi, nous allons supposer que l’interaction du champ laser avec la couche  $1s$  et avec la couche  $2s$  sont deux phénomènes qui ne vont pas interférer entre eux. Nous allons donc pouvoir “geler” la configuration d’une couche électronique suivant la fréquence du champ laser appliquée, et ainsi se retrouver dans le cas d’un système atomique à deux électrons actifs, au même titre que l’atome d’hélium. L’interaction de la couche gelée sur la couche active sera représentée par un potentiel modèle, méthode analytique souvent utilisée en physique atomique [4].

Différentes méthodes numériques ont été développées pour décrire des systèmes atomiques diélectroniques. Nous pouvons citer comme exemple le modèle SAE (“Single Ac-

tive Electron”) [22, 23]. Il consiste à geler la configuration d’un électron, et ainsi de ne considérer que les processus d’excitation ou d’ionisation de l’autre électron. Cette représentation est relativement peu précise car le terme de corrélations électron-électron n’est pas correctement défini. Une autre approche, également utilisée, se base sur l’interaction de configurations d’orbitales monoélectroniques [24, 25]. Le spectre du système diélectronique est alors développé sur le produit de deux orbitales à un électron. Cette méthode est assez efficace, mais perd en précision au niveau de la représentation de l’état fondamental. En effet, la base des configurations monoélectroniques est “tronquée” pour des raisons pratiques, ce qui entraîne une moins bonne description des corrélations électroniques. Pour notre part, nous avons opté pour une approche légèrement différente. Nous allons calculer l’ensemble des énergies et états propres du système atomique par une méthode de configuration d’interaction de fonctions diélectroniques. L’équation de Schrödinger non relativiste, indépendante du temps, représentant le système atomique, est alors résolue sur la base de ces fonctions diélectroniques. Celles-ci sont développées sur un produit antisymétrisé de fonctions monoélectroniques. D’autres travaux ont déjà utilisé ce type d’approche [26], mais l’originalité que nous proposons réside dans le choix des fonctions décrivant la partie radiale des fonctions d’onde atomiques de bases. Nous utilisons des fonctions B-splines [27], outils numériques très bien adaptés aux calculs de structures atomiques et moléculaires [6]. La décomposition de la partie radiale des fonctions d’onde sur des fonctions Sturmienne a également été réalisée [28], ou encore sur une grille de points [29].

Le plan de ce chapitre s’oriente en trois parties. Dans un premier temps, nous allons définir les termes du Hamiltonien représentant la structure électronique des atomes d’hélium et de béryllium dans leur ensemble. Nous étudierons alors la base d’états dans laquelle nous allons faire notre étude, celle-ci étant définie par les propriétés des fonctions B-splines. Dans un second temps, nous allons présenter l’approche numérique qui va résoudre l’équation de Schrödinger indépendante du temps associée au système atomique. Nous finirons ce chapitre en présentant les spectres énergétiques des atomes d’hélium et de béryllium obtenus par notre méthode.

## 2.2 Structure électronique

Nous présentons dans cette section les différentes composantes du Hamiltonien total non relativiste décrivant un système atomique à deux électrons actifs. Dans le cas du béryllium, l'influence du coeur électronique sera représentée à l'aide d'un potentiel modèle. Nous étudierons ensuite la base de fonctions B-splines utilisée pour représenter le système atomique.

### 2.2.1 Description du Hamiltonien diélectronique

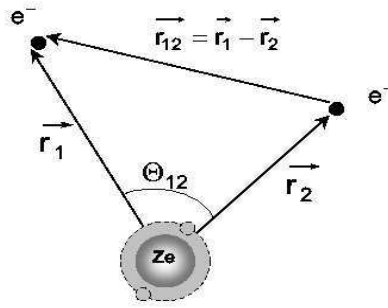


FIGURE 2.1: Schéma d'un système atomique diélectronique

L'équation de Schrödinger indépendante du temps décrivant un système atomique diélectronique s'écrit sous la forme suivante :

$$(\mathcal{H} - E^{S,L,M})\psi^{S,L,M}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = 0 \quad (2.1)$$

$\mathcal{H}$  est le Hamiltonien total, qui se décompose ainsi :

$$\mathcal{H} = h_1 + h_2 + I_{1,2} \quad (2.2)$$

Le terme  $h_i$ , avec  $i = 1$  ou  $2$ , est le Hamiltonien représentant un système atomique à un seul électron  $i$ . Il s'écrit d'un point de vue non relativiste sous la forme suivante :

$$h_i = E_c + E_p = \frac{\vec{p}_i^2}{2m_e} - \frac{Ze^2}{r_i} \quad (2.3)$$

Il correspond à la somme de l'énergie cinétique  $E_c$  et de l'énergie potentielle  $E_p$  de l'électron  $i$ . Le terme cinétique peut se réécrire ainsi :

$$E_c = \frac{\vec{p}_i^2}{2m_e} = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta_i \quad (2.4)$$



Le terme d'énergie potentielle  $E_p$  représente l'interaction coulombienne entre le noyau et l'électron. Il caractérise la force électrostatique de la charge  $Ze$  du noyau,  $e$  étant la charge fondamentale d'un proton, agissant sur chacun des électrons. En utilisant les unités atomiques définies dans l'annexe C, le Hamiltonien décrivant un système à un électron s'écrit finalement sous la forme suivante :

$$h_i = -\frac{1}{2}\Delta_i - \frac{Z}{r_i} \quad (2.5)$$

L'interaction entre les deux électrons est représentée par le terme  $I_{1,2}$  dans le Hamiltonien  $\mathcal{H}$  (2.2). Il va décrire les corrélations électron-électron, c'est-à-dire la répulsion électrostatique entre les deux électrons du système atomique séparés par la distance  $|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|$ . Le schéma (2.1) définit les longueurs  $r_1$  et  $r_2$ , distances entre le noyau et les électrons, et également l'angle  $\Theta_{12}$  entre les électrons. Ainsi, la combinaison des variables  $r_i$  et  $\Theta_{12}$  va entraîner différents types de corrélations électroniques au sein de l'atome. Regardons l'expression du terme d'interaction  $I_{1,2}$  en unités atomiques :

$$I_{1,2} = \frac{1}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} = \sum_{l=0}^{\infty} \frac{(r_{<})^l}{(r_{>})^{l+1}} P_l(\cos\Theta_{12}) \quad (2.6)$$

$$= \sum_{l=0}^{\infty} \frac{4\pi}{2l+1} \sum_{m=-l}^{+l} \frac{(r_{<})^l}{(r_{>})^{l+1}} \mathcal{Y}_l^{m*}(\theta_1, \phi_1) \mathcal{Y}_l^m(\theta_2, \phi_2) \quad (2.7)$$

$r_{<}$  et  $r_{>}$  sont respectivement la valeur minimale et maximale du couple  $(r_1, r_2)$ .  $P_l(\cos\Theta_{12})$  est un polynôme de Legendre, et  $\mathcal{Y}_l^m(\theta_i, \phi_i)$  est une fonction harmonique sphérique. Le premier terme de la somme sur le moment angulaire  $l$ , soit  $l = 0$ , va nous donner un terme purement radial, puisque la définition des polynômes de Legendre nous dit que  $P_{l=0}(\cos\Theta_{12}) = 1$ . Il représente les effets de corrélations radiales électron-électron, ou encore appelés effets d'écran. Dans ce problème à trois corps, un électron ne va pas subir les effets de la charge globale  $Z$  du noyau, mais les effets de la charge écrantée par l'autre électron. D'autres corrélations électroniques, de types angulaires, seront prises en compte avec les termes d'ordres supérieurs de la somme (2.7).

Le Hamiltonien  $\mathcal{H}$  (2.2) non relativiste décrit donc le système atomique dans son ensemble. Il est adapté aux atomes diélectroniques, tel que l'atome d'hélium, et aux ions de types héliumoides ( $B^{3+}$ ,  $Ne^{8+}$ , ...) où seulement deux électrons "cohabitent" avec le noyau. Cependant, la notion de système à deux électrons actifs peut être étendue à d'autres systèmes atomiques plus complexes, tels que la famille des alcalino-terreux. L'atome de béryllium est le cas le plus représentatif de ce groupe ; en plus de deux électrons de valence

sur la couche externe  $2s$ , cet atome possède deux autres électrons sur la couche plus interne  $1s$  (représentés en pointillés sur le schéma 2.1). Nous allons voir dans ce qui suit qu’une extension de la méthode que nous venons de présenter va permettre de décrire ce type d’atome comme un système diélectronique.

### 2.2.2 Potentiel modèle et méthode du “pseudo-potentiel”

Afin de décrire la structure électronique du béryllium, nous repartons de l’expression du Hamiltonien total  $\mathcal{H}$  définie en (2.2). Pour prendre en compte le coeur électronique  $1s^2$  de cet atome, il est nécessaire d’effectuer quelques approximations. En premier lieu, nous allons considérer que la configuration des électrons sur la couche interne  $1s$  est gelée par rapport à la configuration des électrons  $2s$ . Cela revient à dire qu’il est impossible aux électrons  $1s^2$  de changer d’état sous l’action du champ extérieur. Cette première approximation restera valide tant que la fréquence du champ n’est pas suffisante pour atteindre le coeur électronique. Ainsi, nous avons un système diélectronique constitué d’un ensemble “noyau+coeur” et seuls les deux électrons  $2s$  seront qualifiés “d’actifs”. La deuxième approximation concerne maintenant la prise en compte de l’interaction de ce coeur électronique sur chacun des électrons actifs. Le Hamiltonien à un électron va alors s’écrire de la façon suivante :

$$h'_i = h_i + V_M(i) \quad (2.8)$$

Avec  $h_i$  défini en (2.5).  $V_M(i)$  est le potentiel modèle décrivant les effets du coeur  $1s^2$  sur l’électron de valence  $i$ . Son expression est issue d’une approche Hartree-Fock [30], qui utilise comme point de départ l’expression suivante :

$$V_M(i) = 2V^d(i) - V^{ex}(i) \quad (2.9)$$

Le terme  $V^d(i)$  est le potentiel électrostatique créé par l’électron de coeur  $1s(i)$ . Le terme  $V^{ex}(i)$  est un potentiel qui prend en compte les effets d’échanges possibles entre l’électron de valence et les électrons de coeur. L’étude [30] a montré que  $V_M(i)$  pouvait être représenté par la forme suivante :

$$V_M(i) = 2V^d(i) = 2\langle\phi_{1s}(j)|\frac{1}{r_{ij}}|\phi_{1s}(j)\rangle \quad (2.10)$$

Où  $\phi_{1s}(j)$  sont des fonctions hydrogéoïdes. La forme finale du potentiel modèle s’écrit alors en unités atomiques :

$$V_M(i) = \frac{2}{r_i} - \frac{2}{r_i}(1 + \alpha r_i)e^{-2\alpha r_i} \quad (2.11)$$

Le paramètre  $\alpha$  définit la charge effective du système. Il est ajusté de telle façon que la deuxième valeur propre du Hamiltonien  $h'_i$  (2.8) coïncide avec la valeur expérimentale de l'énergie du  $\text{Be}^+(2s)$ . En prenant  $\alpha = 2.33371$ , nous obtenons un résultat de  $-0.6665$  u.a., en bon accord avec la valeur expérimentale  $-0.6692$  u.a. [21].

Une dernière approximation est nécessaire pour avoir une bonne représentation de la structure électronique de l'atome de béryllium. Les fonctions d'onde diélectroniques, solutions de la diagonalisation du Hamiltonien total  $\mathcal{H}$ , vont être caractérisées par la forme  $(nl_1, n'l_2)$ , avec  $l_1$  et  $l_2$  les moments angulaires respectifs des deux électrons de valence. A priori, rien ne nous empêche ici d'obtenir des solutions de la forme  $(1s, n'l_2)$ , ce qui va être en contradiction avec le principe d'exclusion de Pauli qui stipule que :

*Dans tout modèle à électrons indépendants, deux électrons ne peuvent jamais être décrits par (ne peuvent jamais occuper) la même spin-orbitale, ou une orbitale donnée ne peut pas être occupée par plus de deux électrons.*

Il peut en effet y avoir non respect de ce principe pour le cas du béryllium car cet atome possède déjà deux électrons de coeur sur l'orbitale  $1s$ . Pour éliminer les états n'ayant pas de sens physique, nous introduisons alors le potentiel  $V_{ps}$  dans le Hamiltonien total  $\mathcal{H}$  (2.2), défini comme suit :

$$V_{ps} = M \times P = M(P(1) + P(2) - P(1)P(2)) \quad (2.12)$$

$M$  est un grand nombre arbitraire et nous définissons l'opérateur de projection  $P$  sous la forme suivante :

$$P(i) = |1s(i)\rangle \langle 1s(i)| \quad (2.13)$$

Avec  $|1s(i)\rangle$  état propre du Hamiltonien  $h'_i$  (2.8). Cette forme de potentiel est issue de la méthode dite de "pseudo-potentiel". Elle est utilisée entre autres pour calculer les états autoionisants [31]. L'ajout du potentiel  $V_{ps}$  au Hamiltonien du système va déplacer les états non-physiques vers le haut du spectre énergétique, et conservera ainsi dans le bas du spectre les véritables états de valence.

Nous venons de représenter l'atome de béryllium sous la forme d'un coeur électronique  $1s^2$  gelé et de deux électrons actifs  $2s^2$ . En utilisant cette approche, nous pourrions ainsi étudier l'ionisation des électrons de valence du système, processus possible avec des énergies de photons de l'ordre de 15 eV. A ces énergies, nous vérifierons que l'ionisation du coeur électronique est négligeable. Grâce au développement de nouvelles sources lasers très puissantes, dont nous avons parlé dans le chapitre précédent, il est maintenant possible de

produire des photons très énergétiques capables d'atteindre ce coeur électronique. Dans le cas du béryllium, des photons de l'ordre de 160 eV sont nécessaires pour ioniser un électron 1s. Avec des longueurs d'ondes correspondantes très courtes, de l'ordre de la dizaine de nanomètres, la problématique se retrouve inversée : les électrons de valence vont devenir "spectateurs" lors des processus d'ionisation, tandis que le coeur électronique sera "actif". La notion de potentiel modèle définie en (2.10) peut également s'appliquer dans ce cas de figure. L'interaction entre les électrons  $2s^2$  gelés et l'électron de coeur  $i$  est alors représentée par le potentiel modèle suivant :

$$V'_M(i) = 2\langle\phi_{2s}(j)|\frac{1}{r_{ij}}|\phi_{2s}(j)\rangle \quad (2.14)$$

$$= \frac{2}{r_i} - \frac{2}{r_i}\left(1 + \frac{3}{4}\alpha' r_i + \frac{1}{4}\alpha'^2 r_i^2 + \frac{1}{8}\alpha'^3 r_i^3\right)e^{-\alpha' r_i} \quad (2.15)$$

Pour que notre représentation théorique reste cohérente, le paramètre  $\alpha'$  défini dans l'équation ci-dessus sera calibré sur la valeur expérimentale de l'orbitale  $2s$ . Dans ce cas,  $\alpha' = 2.30918$  donnera un bon accord entre énergie calculée et énergie expérimentale ( $\frac{-\alpha'^2}{2 \times 4} = -0.6665$  u.a.). De plus, nous modifierons également la forme du potentiel  $V_{ps}$  (2.12) pour cette fois-ci "empêcher" de peupler les états de valence  $2s$  déjà occupés. Il s'écrira alors sous la forme suivante :

$$V_{ps} = M(|2s(1) \rangle \langle 2s(1)| + |2s(2) \rangle \langle 2s(2)| - |2s(1) \rangle \langle 2s(1)|2s(2) \rangle \langle 2s(2)|) \quad (2.16)$$

### 2.2.3 Les fonctions de base

Les états propres de l'équation de Schrödinger indépendante du temps définie en (2.1) sont caractérisés par le spin total  $S$ , le moment angulaire total  $L$  et par le moment magnétique total  $M$ , et s'écrivent sous la forme suivante :

$$\psi_j^{S,L,M}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \sum_{i=1}^{n'} c_i^{j,S,L,M} \phi_i^{S,L,M}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \quad (2.17)$$

$n'$  est le nombre total d'états considérés. Les fonctions de base  $\phi_i^{S,L,M}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$  sont des produits antisymétrisés de fonctions monoélectroniques. En effet, le principe d'exclusion de Pauli, cité plus haut, impose que la fonction d'onde totale d'un système à deux électrons actifs doit être antisymétrique dans l'échange des électrons. Les fonctions de base s'écrivent alors sous la forme suivante :

$$\phi_i^{S,L,M}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \frac{B_n(r_1)}{r_1} \frac{B_m(r_2)}{r_2} Y_{l_1, l_2}^{L,M}(\Omega_1, \Omega_2) + (-1)^S \frac{B_n(r_2)}{r_2} \frac{B_m(r_1)}{r_1} Y_{l_1, l_2}^{L,M}(\Omega_2, \Omega_1) \quad (2.18)$$

L'indice  $i$  est associé ici à un ensemble de paramètres  $(n, m, l_1, l_2)$  donné. La partie angulaire des fonctions de base est représentée par des fonctions harmoniques sphériques à deux particules  $Y_{l_1, l_2}^{L, M}(\Omega_1, \Omega_2)$ . Ce sont des états propres des opérateurs  $\vec{L}^2$  et  $L_z$ , où  $L$  est le moment cinétique total. Elles s'écrivent, à l'aide des coefficients de Clebsch-Gordan [32], sous la forme d'un produit de fonctions harmoniques sphériques à une particule :

$$Y_{l_1, l_2}^{L, M}(\Omega_1, \Omega_2) = \sum_{m_1=-l_1}^{l_1} \langle l_1 m_1 l_2 M - m_1 | LM \rangle \mathcal{Y}_{l_1}^{m_1}(\Omega_1) \mathcal{Y}_{l_2}^{M-m_1}(\Omega_2) \quad (2.19)$$

La partie radiale des fonctions (2.18) est représentée par des fonctions B-splines notées  $B_i^k(r)$  [27]. Une revue récemment publiée [6] décrit leurs diverses propriétés, très bien adaptées à notre problématique. Nous rappelons juste la construction générale des B-splines ainsi que leurs propriétés principales dans l'annexe A. D'un point de vue général, nous pouvons dire que :

**Les fonctions B-splines  $B_i^k(\mathbf{r})$  d'ordre  $k$  sont des polynômes par morceaux d'ordre  $k-1$  définis dans une région finie de l'espace.**

Le choix, arbitraire, d'utiliser de telles fonctions est guidé par le fait qu'elles vont confiner notre étude dans un espace radial fini  $[r = 0, r = R_{max}]$ , à savoir une sphère dont l'extension radiale sera limitée par le rayon  $R_{max}$ . A l'intérieur de cette sphère,  $N_b$  fonctions B-splines seront définies non nulles sur leurs supports respectifs. Le rayon de la sphère sera ainsi découpé en intervalles dont la répartition dépendra d'une séquence de points d'arrêts choisie, tout en respectant la continuité en ces points. Cette représentation va ainsi permettre une bonne description de l'ensemble des états diélectroniques, que ce soit les états liés, localisés près de l'origine de la sphère, ou les états des simples et double continua.

## 2.3 Approche numérique

Après avoir défini l'espace numérique dans lequel nous allons décrire la structure atomique diélectronique, il ne nous reste plus qu'à diagonaliser l'équation de Schrödinger (2.1) afin d'obtenir les énergies et états propres du système. Nous n'allons pas nous attacher ici à détailler point par point les différentes étapes de calcul [7], mais plutôt à donner un aperçu général de la méthode de résolution basée sur une représentation matricielle des différentes composantes du problème. Nous nous attarderons plutôt sur un paramètre jouant un rôle important dans notre approche : la densité des états du continu.

### 2.3.1 Représentation matricielle du problème

Rappelons l'équation à résoudre en notation "bra-ket" :

$$\mathcal{H}|\psi^{S,L,M}\rangle = E^{S,L,M}|\psi^{S,L,M}\rangle \quad (2.20)$$

En remplaçant dans cette équation les vecteurs propres par leurs expressions définies en (2.17), et en projetant à gauche sur le bra  $\langle\phi_j^{S,L,M}|$ , nous obtenons l'expression suivante :

$$\sum_{i=1}^{n'} c_i^{S,L,M} \langle\phi_j^{S,L,M}|\mathcal{H}|\phi_i^{S,L,M}\rangle = E^{S,L,M} \sum_{i=1}^{n'} c_i^{S,L,M} \langle\phi_j^{S,L,M}|\phi_i^{S,L,M}\rangle \quad (2.21)$$

$$\forall j = 1, n'$$

Calculer les couples de données  $[E^{S,L,M}, \{c_i^{S,L,M}\}_1^{n'}]$  revient alors à résoudre le problème aux valeurs propres généralisées suivant :

$$\mathbb{H}\mathcal{C} = E^{S,L,M}\mathbb{S}\mathcal{C} \quad (2.22)$$

Avec

$$\mathbb{H} = \{\mathfrak{h}_{i,j}\}_{i,j=1}^{n'} \quad \mathfrak{h}_{i,j} = \langle\phi_j^{S,L,M}|\mathcal{H}|\phi_i^{S,L,M}\rangle \quad (2.23)$$

$$\mathbb{S} = \{\mathfrak{s}_{i,j}\}_{i,j=1}^{n'} \quad \mathfrak{s}_{i,j} = \langle\phi_j^{S,L,M}|\phi_i^{S,L,M}\rangle \quad (2.24)$$

$$\mathcal{C} = \{c_i^{S,L,M}\}_{i=1}^{n'} \quad (2.25)$$

La matrice  $\mathbb{S}$  est appelée matrice de "recouvrement". Elle apparaît dans les calculs à cause de la non-orthogonalité des fonctions B-splines. Dans le cas de l'atome d'hélium, les éléments de la matrice hamiltonienne totale  $\mathbb{H}$  s'écrivent de la forme suivante :

$$\mathfrak{h}_{ij} = \langle\phi_j^{S,L,M}|h_1 + h_2 + I_{1,2}|\phi_i^{S,L,M}\rangle \quad (2.26)$$

De part la forme explicite des fonctions de base  $\phi_i^{S,L,M}$  (2.18), les différentes intégrales intervenant dans le calcul des éléments (2.26) vont porter sur les fonctions B-splines. De plus, le Hamiltonien réduit pour un électron  $i$  s'écrit :

$$h_i^{reduit} = -\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr_i^2} + \frac{l_i(l_i + 1)}{2r_i^2} - \frac{Z}{r_i} \quad (2.27)$$

Nous constatons donc que nous avons à faire à quatre types d'intégrales simples lors de la résolution de l'équation aux valeurs propres généralisées (2.22), qui sont :

- le terme cinétique :  $\int_0^{R_{max}} B_i(r) \frac{d^2}{dr^2} B_j(r) dr$
- la barrière centrifuge :  $\int_0^{R_{max}} B_i(r) \frac{1}{r^2} B_j(r) dr$
- le potentiel électrostatique :  $\int_0^{R_{max}} B_i(r) \frac{1}{r} B_j(r) dr$
- le terme de recouvrement :  $\int_0^{R_{max}} B_i(r) B_j(r) dr$

Ces intégrales peuvent être facilement résolues grâce à la méthode d'intégration de Gauss-Legendre. En effet, les B-splines étant des fonctions polynomiales définies par morceaux, cette méthode permet de calculer exactement des intégrales de polynômes.

La partie radiale du terme matriciel d'interaction diélectronique, la plus complexe, fait quant à elle intervenir une intégrale double :

$$\int_{r_1=0}^{R_{max}} \int_{r_2=0}^{R_{max}} B_i(r_1) B_j(r_2) \frac{(r_<)^l}{(r_>)^{l+1}} B_{i'}(r_1) B_{j'}(r_2) dr_1 dr_2 \quad (2.28)$$

La résolution de (2.28) est également basée sur la méthode de Gauss-Legendre, en utilisant le développement du terme  $1/|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|$  défini en (2.7), ainsi que les propriétés relatives aux coefficients de Clebsch-Gordan et aux coefficients  $3j$  [32]. De façon plus générale, le calcul de ce type d'intégrale est expliqué dans la section 10.3 de la revue [6].

Dans le cas de l'atome de béryllium, l'ajout d'un potentiel modèle ne va pas apporter de grosses demandes en calculs supplémentaires dans la résolution de l'équation aux valeurs propres généralisées (2.22). Les nouveaux éléments seront en effet de la forme suivante :

$$\int_0^{R_{max}} B_i(r) (V_M(r) + V_{ps}) B_j(r) dr \quad (2.29)$$

Avec  $V_M(r)$  défini en (2.11) ou en (2.15),  $V_{ps}$  en (2.12).

### 2.3.2 Discrétisation des états du continu

La résolution du problème aux valeurs propres généralisées (2.22) nous permet d'obtenir les énergies et les fonctions d'onde d'un système atomique à deux électrons actifs. La particularité d'avoir pris des fonctions B-splines comme base radiale nous a amené à confiner notre système dans une "boîte" radiale de dimension finie  $R_{max}$ . Cela équivaut à "empêcher" les fonctions d'onde de s'étendre à l'extérieur de cet espace en plaçant une barrière de potentiel infinie à la borne  $r = R_{max}$ . Cette méthode de calcul, dite de

discrétisation, va ainsi nous renvoyer l'ensemble des énergies du système sous une forme "discrétisée". Les solutions dont l'énergie est inférieure à l'énergie du premier seuil d'ionisation correspondront aux états liés de l'atome. Par définition, leur spectre est discret ; nous obtiendrons alors directement ces énergies par la diagonalisation du problème aux valeurs propres. En ce qui concerne les solutions dont l'énergie est située au dessus du seuil d'ionisation, le spectre de ces états sera également obtenu de façon discrète. Pour que ces solutions soient interprétées comme une représentation du continu atomique, nous allons admettre que chacune d'entre elles décrit une bande d'états du continu de largeur  $\Delta E$ , comme l'indique le schéma (2.2). Dans ce cas, les fonctions d'onde obtenues sont

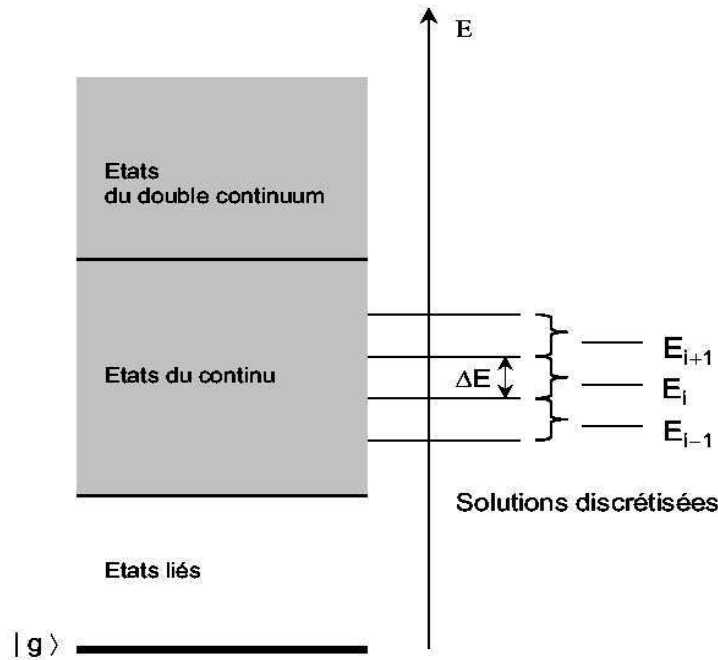


FIGURE 2.2: Représentation schématique de la discrétisation des états du continu

orthonormées sur les indices, soit :

$$\langle \psi_i | \psi_j \rangle = \delta_{i,j} \quad (2.30)$$

Afin d'étudier à partir de ces fonctions d'onde des grandeurs ayant un sens physique, comme par exemple des sections efficaces d'ionisation, il faut les normaliser. Nous avons choisi d'utiliser la normalisation sur l'échelle des énergies, soit :

$$\langle \psi_E | \psi_{E'} \rangle = \delta(E - E') \quad (2.31)$$



Le but est maintenant de trouver le facteur multiplicatif qui fera passer de la normalisation sur l'indice à celle sur l'échelle des énergies. Pour cela, nous avons utilisé la méthode de normalisation de Landau, parfaitement adaptée à notre problématique [33]. Nous obtenons alors la relation suivante :

$$\psi_{E_i} = \sqrt{\rho(E_i)}\psi_i \quad (2.32)$$

Où  $\rho(E_i)$  est la densité des états du continu. Elle peut être approximée par la fonction suivante :

$$\rho(E_i) = \left| \frac{2}{E_{i+1} - E_{i-1}} \right| \quad (2.33)$$

Le continuum simple du type  $1skl$  est facilement normalisé sur l'échelle des énergies suivant l'application directe de l'expression (2.33). Les continua multiples, par exemple  $2skp$ ,  $2pks$ ,  $2pkd$  et  $1skp$  pour  $L = 1$ , nécessitent un traitement plus complexe [6]. Le double continuum, qui est intriqué avec le simple continuum, n'est pas normalisable sans approximation dans notre approche.

Un des grands avantages d'avoir utilisé des fonctions B-splines comme base de la méthode est que la densité d'états va pouvoir être ajustée facilement en faisant varier les paramètres  $N_b$  et  $R_{max}$ . Pour vérifier cela, regardons le comportement asymptotique des fonctions d'onde du continu, défini comme suit [34] :

$$\mathcal{U}_{E,l}(r) \simeq_{r \rightarrow \infty} \sin\left(kr + \frac{Z}{r} \ln(2kr) - \frac{l\pi}{2} + \arg\Gamma\left(l + 1 - \frac{iZ}{k}\right) + \sigma_l\right) \quad (2.34)$$

Avec  $l$  le moment angulaire de l'électron libre,  $Z$  la charge du noyau,  $k$  l'impulsion de l'électron dans le continu ( $k = \sqrt{2E}$  en unités atomiques) et  $\sigma_l$  le déphasage non coulombien. La condition aux limites imposée par les fonctions B-splines implique que toutes les fonctions radiales réduites (2.34) sont nulles en  $r = 0$  et en  $r = R_{max}$ . Ainsi, une fonction d'onde d'énergie  $E = k^2/2$  doit satisfaire la relation suivante :

$$kR_{max} + \frac{Z}{k} \ln(2kR_{max}) - \frac{l\pi}{2} + \arg\Gamma\left(l + 1 - \frac{iZ}{k}\right) + \sigma_l = n\pi \quad (2.35)$$

Avec  $n$  un entier. Cette équation définit une relation entre l'énergie et un paramètre discret  $n$ , paramètre qui correspond à l'indice discret des solutions discrétisées (voir schéma (2.2)). En première approximation, quand  $kR_{max}$  est plus grand que les autres termes de l'expression (2.35), nous obtenons comme expression de l'énergie :

$$E_n \simeq \frac{n^2\pi^2}{2R_{max}^2} \quad (2.36)$$

La densité d'états peut alors être définie de la façon générale suivante :

$$\rho(E) = \frac{\partial n}{\partial E_n} \quad (2.37)$$

Ce qui nous donne, d'après (2.36) et (2.37) :

$$\rho(E) = \frac{1}{\pi\sqrt{2}} \frac{R_{max}}{\sqrt{E}} \quad (2.38)$$

La relation (2.38) correspond au cas idéal où un nombre suffisant  $N_b$  de fonctions B-splines est considéré. Nous constatons finalement que la densité d'états est proportionnelle à la dimension de la boîte. Un bon accord entre la dimension  $R_{max}$  et le nombre de B-splines va donc permettre de jouer sur la finesse de la densité d'états. Nous avons représenté sur

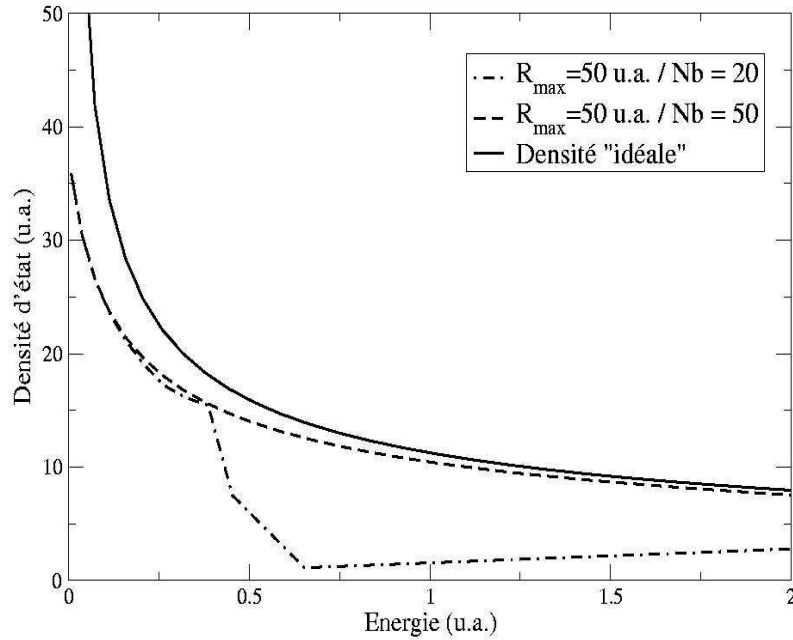


FIGURE 2.3: Densité des états du simple continu de  $He^+$

la figure (2.3) la densité des états du simple continuum de  $He^+$ , suivant deux couples de paramètres  $[R_{max}; N_b]$  différents, et nous la comparons avec la densité "idéale" définie en (2.38). Nous remarquons qu'un nombre trop faible de fonctions B-splines par rapport à la taille de la boîte ne donnera pas une densité d'états suffisante pour décrire correctement des états de hautes énergies. Le choix adéquat des paramètres de la base numérique sera discuté dans la section suivante.

## 2.4 Résultats

### 2.4.1 Spectres énergétiques de l'hélium et du béryllium

Nous venons de définir une méthode numérique, basée sur les propriétés des fonctions B-splines, afin de pouvoir décrire les spectres électroniques d'un système atomique à deux électrons actifs. Les paramètres importants qui vont caractériser une base de travail seront la borne maximale  $R_{max}$ , le nombre de fonctions B-splines  $N_b$ , la séquence de points d'arrêts, l'ordre  $k$  des polynômes, ainsi que les paires de moments angulaires  $(l_1, l_2)$  des électrons actifs du système. L'ordre  $N_{dim}$  des matrices intervenant dans les calculs de l'équation aux valeurs propres (2.22) sera alors défini de la façon suivante :

$$N_{dim} = n_{id} \times \frac{N_b(N_b + 1)}{2} + n_{diff} \times N_b^2 \quad (2.39)$$

Avec  $n_{id}$  ( $n_{diff}$ ) le nombre de couples angulaires où  $l_1 = l_2$  ( $l_1 \neq l_2$ ). Pour calculer les énergies et états propres du problème, il va donc falloir prendre en compte la capacité de la machine à stocker des matrices de dimension  $N_{dim} \times N_{dim}$ . Ceci va alors nous imposer un nombre limité de B-splines et de couples angulaires  $(l_1, l_2)$  pour une base donnée. De plus, il faut également ne pas oublier que la densité de fonctions B-splines par unité de longueur, soit  $N_b/R_{max}$ , doit être assez importante pour définir correctement la structure électronique. En prenant en compte ces différents éléments, nous avons opté pour deux bases de travail; elles sont présentées dans les tableaux (2.1)(a) et (2.1)(b). La base numérique (2.1)(a), qui sera notée base  $I$  par la suite, possède un rayon  $R_{max}$  égal à 50 u.a., et 50 fonctions B-splines d'ordre  $k = 7$  réparties sur une séquence de points d'arrêts linéaire. La densité de B-splines par unité de longueur est égale à 1 u.a.. Le moment angulaire total  $L$  maximal pris en compte est 3. Les couples angulaires  $(l_1, l_2)$  possibles pour chaque symétrie  $L$  sont également donnés, ainsi que l'ordre des matrices  $N_{dim}$  associé. La base numérique (2.1)(b), notée base  $II$ , est quant à elle de dimension plus réduite, avec  $R_{max} = 30$  u.a., mais sa densité de B-splines par unité de longueur est plus importante. Le nombre de couples angulaires par symétrie  $L$  est également plus important. Utiliser deux bases différentes nous permettra de vérifier la convergence de nos résultats dans la suite de ce document. De plus, la spécificité de chacune d'entre elles va également jouer sur leur choix dans l'étude à faire. La base  $I$ , dotée d'un espace radial plus conséquent, sera plutôt le support d'études sur des processus d'ionisation dont l'absorption multiphotonique nous amène dans une zone énergétique élevée du double continuum. La base  $II$ , plus réduite mais possédant plus de possibilités de couplages angulaires, sera

$R_{max} = 50$ u.a.	$N_b = 50$	$k = 7$	séq. linéaire
Moment angulaire total $L$	couples angulaires $(l_1, l_2)$		$N_{dim}$
0	(0,0)(1,1)(2,2)(3,3)		5100
1	(0,1)(1,2)		5000
2	(0,2)(1,1)(1,3)		6275
3	(0,3)(1,2)		5000

(a) Base *I*

$R_{max} = 30$ u.a.	$N_b = 40$	$k = 7$	séq. linéaire
Moment angulaire total $L$	couples angulaires $(l_1, l_2)$		$N_{dim}$
0	(0,0)(1,1)(2,2)(3,3)		3280
1	(0,1)(1,2)(2,3)		4800
2	(0,2)(1,1)(1,3)(2,2)(3,3)		5660
3	(0,3)(1,2)(2,3)		4800

(b) Base *II*TABLEAU 2.1: *Couples de moments angulaires  $(l_1, l_2)$  possibles pour chaque moment angulaire total  $L$  et taille des matrices correspondantes, pour deux bases différentes*

plus appropriée à l'ionisation de systèmes atomiques par absorption d'un photon moins énergétique.

Nous présentons maintenant dans les tableaux (2.2) et (2.3) les énergies de quelques états liés et états du continu des atomes d'hélium et de béryllium, que nous avons obtenu dans les bases *I* et *II*. Nous donnons également les valeurs expérimentales des énergies [21]. Nous constatons tout d'abord une très bonne convergence des résultats dans les deux bases numériques. Ensuite, l'écart entre les résultats obtenus et les résultats expérimentaux est seulement de l'ordre de 0.001 – 0.002 u.a.. Nous avons donc une très bonne représentation des spectres énergétiques des atomes d'hélium et de béryllium. Notons ici que le spectre énergétique du béryllium reporté dans le tableau (2.3) correspond aux électrons 2s en présence de la configuration gelée du cœur électronique  $1s^2$  (voir section 2.2.2). Nous avons vu précédemment que notre approche théorique était à même de représenter également le spectre énergétique des électrons de cœur en présence de la configuration gelée des électrons de valence, à l'aide du potentiel modèle (2.15). Le tableau (2.4) indique dans ce

	Base <i>I</i>	Base <i>II</i>	Valeurs expérimentales [21]
$E_{\text{fondamentale}}$	-2.901686 u.a.	-2.903115 u.a.	-2.903724 u.a.
$^1S^e$ E(1s2s)	-2.145671 u.a.	-2.145931 u.a.	-2.146135 u.a.
E(1s3s)	-2.061076 u.a.	-2.061208 u.a.	-2.061445 u.a.
E(1s4s)	-2.033396 u.a.	-2.028934 u.a.	-2.033764 u.a.
E(1s5s)	-2.019524 u.a.	-1.992802 u.a.	-2.021355 u.a.
$^1P^o$ E(1s2p)	-2.123530 u.a.	-2.123795 u.a.	-2.124003 u.a.
E(1s3p)	-2.054943 u.a.	-2.055039 u.a.	-2.053319 u.a.
E(He <sup>+</sup> (1s))	-1.999846 u.a.	-1.999999 u.a.	-1.999813 u.a.
E(He <sup>+</sup> (2s))	-0.499996 u.a.	-0.499999 u.a.	-0.499962 u.a.
E(He <sup>+</sup> (3s))	-0.222221 u.a.	-0.222222 u.a.	-0.222203 u.a.
E(He <sup>+</sup> (4s))	-0.124999 u.a.	-0.124992 u.a.	-0.124987 u.a.

TABLEAU 2.2: *Energies des premiers états liés et états du continu de l'hélium*

	Base I	Base II	Valeurs expérimentales [21]
$E_{\text{fondamentale}}$	-1.007649 u.a.	-1.013096 u.a.	-1.01185 u.a.
$^1S^e$ E( $[1s^2]2s3s$ )	-0.759962 u.a.	-0.763782 u.a.	-0.762722 u.a.
E( $[1s^2]2s4s$ )	-0.711862 u.a.	-0.714793 u.a.	-0.714571 u.a.
E( $[1s^2]2s5s$ )	-0.693061 u.a.	-0.684091 u.a.	-0.695995 u.a.
E( $[1s^2]2s6s$ )	-0.679931 u.a.	-0.664706 u.a.	-0.686887 u.a.
$^1P^o$ E( $[1s^2]2s2p$ )	-0.813808 u.a.	-0.817897 u.a.	-0.817908 u.a.
E( $[1s^2]2s3p$ )	-0.734910 u.a.	-0.738355 u.a.	-0.737616 u.a.
E(Be $^+$ ( $[1s^2]2s$ ))	-0.666540 u.a.	-0.670107 u.a.	-0.669245 u.a.
E(Be $^+$ ( $[1s^2]3s$ ))	-0.267036 u.a.	-0.267866 u.a.	-0.267233 u.a.
E(Be $^+$ ( $[1s^2]4s$ ))	-0.143130 u.a.	-0.143447 u.a.	-0.143153 u.a.
E(Be $^+$ ( $[1s^2]5s$ ))	-0.089067 u.a.	-0.088649 u.a.	-0.089065 u.a.

TABLEAU 2.3: Energies des premiers états liés et états du continu du béryllium

	Base <i>I</i> “calibrée”
$E(1s^2[2s^2])$	-11.5974 u.a.
<i><math>^1S^e E(1s2s[2s^2])</math></i>	<i>-7.3755 u.a.</i>
$E(1s3s[2s^2])$	-7.0760 u.a.
$E(1s4s[2s^2])$	-7.0112 u.a.
<i><math>^1P^o E(1s2p[2s^2])</math></i>	<i>-7.2797 u.a.</i>
$E(1s3p[2s^2])$	-7.0440 u.a.
$E(\text{Be}^+(1s[2s^2]))$	-6.9609 u.a.
<i><math>E(\text{Be}^+(2s[2s^2]))</math></i>	<i>-1.1646 u.a.</i>
$E(\text{Be}^+(3s[2s^2]))$	-0.3454 u.a.

TABLEAU 2.4: *Energies des premiers états liés et états du continu du coeur électronique du béryllium - Les résultats en italiques correspondent à des états non physiques*

cas l'énergie de l'état fondamental du coeur  $1s^2$  ainsi que les énergies de quelques états liés et du continu. Les résultats en italique représentent les états non physiques que nous obtiendrions si le potentiel  $V_{ps}$  (2.16) n'était pas pris en compte. Nous avons effectué les calculs dans une base radiale similaire à la base *I* (tableau (2.1)(a)). Cependant, nous avons “calibré” la dimension  $R_{max}$  de l'espace radial à partir de la loi d'échelle suivante :

$$R_{max} = \tilde{R}_{max} \times Z^{-1} \quad (2.40)$$

L'établissement des lois d'échelles suivant la charge  $Z$  est expliqué dans l'annexe B.  $\tilde{R}_{max}$  est le rayon associé à l'atome d'hydrogène, système de référence. Le rayon  $R_{max}(2s^2)$  de l'espace radial définissant le béryllium avec le coeur électronique gelé peut être défini à partir du système de référence avec  $Z = 2$  dans l'expression (2.40). Le rayon  $R_{max}(1s^2)$  pour le béryllium avec la couche externe gelée se calculerait de même avec cette fois-ci  $Z = 4$ . Ainsi, en reliant ces deux considérations, nous obtenons :

$$R_{max}(1s^2) = \left( \frac{Z = 2}{Z = 4} \right) R_{max}(2s^2) \quad (2.41)$$

Le rayon  $R_{max}(1s^2)$  utilisé dans le tableau (2.4) est donc égal à 25 u.a.. L'ajustement de

	Base $I$ "calibrée"	Valeurs expérimentales [21]
$E(B^{3+}(1s^2))$	-22.025450 u.a.	-22.034909 u.a.
$E(B^{3+}(1s2s))$	-14.576947 u.a.	-14.583031 u.a.
$E(Ne^{8+}(1s^2))$	-93.893952 u.a.	-94.005653 u.a.
$E(Ne^{8+}(1s2s))$	-60.290466 u.a.	-60.391329 u.a.

TABLEAU 2.5: *Energies des ions multichargés  $B^{3+}$  et  $Ne^{8+}$* 

la dimension de l'espace radial permet ainsi de représenter correctement les orbitales  $1s$  en présence de la charge  $Z = 4$ .

### 2.4.2 Les ions multichargés $B^{3+}$ et $Ne^{8+}$

Nous présentons dans le tableau (2.5) les énergies de quelques uns des états électroniques des ions bore  $B^{3+}$  ( $Z=5$ ) et néon  $Ne^{8+}$  ( $Z=10$ ). Les énergies et fonctions propres de ces ions sont obtenues facilement avec la méthode décrite dans ce chapitre. A partir de la base  $I$  relative à l'hélium (tableau (2.1)(a)), il suffit de paramétrer le rayon  $R_{max}$  pour chaque ion suivant la loi d'échelle (2.40). Ces ions font en effet partis de la série isoélectronique de l'atome d'hélium. Ils possèdent la même configuration électronique que celui-ci, mais avec une charge plus élevée.

Nous verrons dans le chapitre suivant que l'étude du comportement des ions multichargés héliumoides en champ laser intense présente un grand intérêt : elle va nous permettre de quantifier les effets des corrélations électron-électron dans les processus d'ionisation multiphotonique.

## 2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons proposé une méthode numérique pour calculer l'ensemble des énergies et états propres d'un système atomique à deux électrons actifs.

La représentation de la structure électronique de l'atome d'hélium, faite dans le paragraphe 2.2, est basée sur une méthode de configuration d'interaction de fonctions diélectroniques, où le terme de corrélation électron-électron est pris en compte sans approximation. La



résolution de l'équation de Schrödinger indépendante du temps est alors faite dans le cadre non relativiste. La flexibilité de la méthode nous permet d'introduire la description d'un coeur électronique dans la structure, et ainsi étudier l'atome de béryllium. La configuration gelée du coeur par rapport aux électrons de valence, ou inversement suivant le domaine énergétique étudié, est représentée par un potentiel modèle.

Les états diélectroniques sont construits sur la base d'un produit antisymétrisé de fonctions B-splines et de fonctions harmoniques. L'utilisation des B-splines pour décrire la partie radiale confine l'espace de travail dans une boîte de dimension finie  $R_{max}$ . La diagonalisation du problème aux valeurs propres décrite dans le paragraphe 2.3 nous donne alors les états du continu de façon discrétisée. Grâce à la normalisation par la densité d'états, nous pouvons obtenir des calculs de spectres électroniques facilement tractables. Les bases numériques utilisées dans notre méthode permettent une certaine rapidité de calcul et ne nécessitent pas d'importantes capacités de mémoire de stockage.

Finalement, les résultats des spectres énergétiques de l'hélium et du béryllium, présentés dans le paragraphe 2.4, sont en très bon accord avec les résultats expérimentaux. Une description précise des systèmes atomiques diélectroniques est maintenant à notre disposition ; nous allons pouvoir étudier leurs comportements en présence de champs lasers intenses et brefs.

# Chapitre 3

## L'interaction laser-atome et la description du double continuum

*“Un jour, à force de fouiller l'atome, un savant expliquera peut-être la joie et la paix de l'esprit par des formules mathématiques.”*

- Bernard Moitessier -



## 3.1 Introduction

Nous présentons dans ce chapitre une méthode numérique capable de définir la dynamique de systèmes atomiques à deux électrons actifs en présence de champs lasers intenses et brefs. Le développement actuel de sources lasers de très forts éclaircements et de durées d'impulsions très brèves, que nous avons exposé dans le chapitre 1, est un challenge intéressant pour la communauté scientifique théorique pour appréhender les effets non linéaires produits par un atome exposé à de tels rayonnements.

Parmi ces processus non linéaires, nous allons axer notre étude sur les mécanismes d'ionisation lors de l'interaction d'un atome diélectronique avec un champ laser. L'ionisation d'un atome peut s'effectuer soit par effet tunnel, soit par absorption multiphotonique. Le premier mécanisme se produit lorsque la barrière de potentiel coulombienne est abaissée par le champ laser. L'électron peut alors s'échapper de la région du noyau en traversant cette barrière par effet tunnel (ceci équivaut d'un point de vue énergétique à l'absorption d'un très grand nombre de photons). La dominance d'un processus par rapport à l'autre est régie par le paramètre de Keldysh [35]. Les processus impliquant des photons fondamentaux du laser Ti :Sa à  $10^{14}$ - $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> se rapprochent de l'effet tunnel. Ce phénomène physique a notamment permis d'observer l'absorption de photons au dessus du seuil d'ionisation, nommé processus ATI ("Above Threshold Ionization"), où l'intensité du laser est telle que l'atome va absorber plus de photons que nécessaire pour dépasser le potentiel d'ionisation [1, 36]. La génération de photons harmoniques, décrite dans la section 1.3.2, est également liée à ce phénomène. Dans le cadre de notre travail, le processus d'ionisation dominant sera l'ionisation par absorption de quelques photons. Les électrons du système atomique vont absorber plusieurs photons afin d'acquérir l'énergie suffisante pour s'extraire de l'attraction coulombienne les liant au noyau.

L'ionisation par absorption multiphotonique a été largement étudiée théoriquement et expérimentalement depuis de nombreuses années, notamment dans le cas de systèmes atomiques à un électron actif, et avec des champs lasers peu intenses et de durées d'impulsions assez longues [5]. Les études théoriques ont été effectuées dans le cadre de la théorie des perturbations LOPT ("Lower Order Perturbation Theory"). Le principe est de considérer le champ laser comme une faible perturbation du système atomique. Cependant, ce traitement peut ne plus s'avérer approprié pour les domaines d'éclaircements lasers qui vont nous intéresser. D'une part, la forte intensité du champ laser peut rendre les termes d'ordres supérieurs de la théorie des perturbations non négligeables par rapport à l'ordre le plus

bas. Prendre alors ces termes d'ordres supérieurs alourdirait considérablement les calculs. D'autre part, la durée de plus en plus brève des impulsions lasers associée à de telles intensités nécessite la prise en compte de l'enveloppe temporelle du champ dans les calculs, ce qui complexifie l'approche perturbative [37].

Il est donc préférable, et plus simple, de traiter le problème dans une approche non perturbative. Pour cela, nous allons résoudre l'équation de Schrödinger dépendante du temps, notée par la suite ESDT. Notre méthode est basée sur une approche non perturbative de type spectrale, c'est-à-dire que nous allons utiliser l'ensemble des états propres de l'atome isolé, défini dans la chapitre 2, pour construire les fonctions d'onde diélectroniques dépendantes du temps. Nous allons ainsi pouvoir calculer de nombreuses quantités physiques sur l'état du système après interaction, directement avec les solutions de l'ESDT, comme par exemple la population des états finaux. Néanmoins, notre représentation de l'interaction laser-atome va se porter essentiellement sur la description des processus de double ionisation par absorption multiphotonique. Lorsque les photons sont suffisamment énergétiques, l'atome peut être doublement ionisé. L'état final du système irradié fait alors partie du double continuum atomique, zone qui suscite encore de nombreuses questions théoriques quant à sa représentation. Les deux électrons sont tout deux éjectés de leurs orbitales, laissant ainsi un ion résiduel doublement chargé. Définir les fonctions d'onde du double continuum n'est pas un problème trivial. Nous avons choisi de l'aborder en deux temps. Tout d'abord, nous allons considérer les états diélectroniques finaux du double continuum comme un simple produit d'orbitales  $\text{He}^+$  pour l'hélium,  $\text{Be}^+$  pour le béryllium. Ensuite, nous allons inclure une partie des corrélations radiales agissant entre les deux électrons libres à l'aide d'une approche spécifique. L'originalité de notre méthode va porter sur sa capacité à représenter la répartition de l'énergie amenée par le champ laser entre les deux électrons éjectés.

Nous débutons ce chapitre par un bref historique sur l'évolution des techniques utilisées pour décrire non perturbativement l'interaction laser-atome. Puis, nous établirons les étapes de calculs nécessaires à l'approche numérique que nous avons développée. Nous insisterons sur la représentation des états du double continuum. Finalement, nous définirons le domaine de validité de notre méthode.

## 3.2 Approche non perturbative de l'interaction laser-atome

### 3.2.1 Historique

La limitation de la théorie des perturbations dans la description de la dynamique d'un système atomique irradié par un champ laser de très fort éclairement a amené la communauté scientifique théorique à développer des méthodes non perturbatives pour traiter le problème. Il est alors nécessaire dans ce cas de résoudre l'équation de Schrödinger dépendante du temps décrivant le système laser-atome. Les méthodes numériques mises en oeuvre pour résoudre ce type de problème doivent d'une part décrire de façon précise l'atome isolé, de l'autre utiliser des calculs dépendants du temps efficaces en termes de rapidité et de stockage numérique.

Il y a une vingtaine d'années, les premiers travaux se sont basés sur quelques approximations plus ou moins importantes pour réduire les difficultés. Le modèle SAE ("Single Active Electron"), par exemple, réduit les dimensions du problème en décrivant le système atomique comme un atome à un électron, en gelant l'autre électron dans son état fondamental [22]. Dans ce cas, le champ laser que l'on appliquera ne va interagir qu'avec un seul électron actif, défini dans un potentiel créé par l'attraction nucléaire et le deuxième électron gelé. Cependant, ce modèle n'est approprié que pour les processus de simple ionisation multiphotonique. Des méthodes basées sur la théorie de Hartree-Fock dépendante du temps ont alors vu le jour pour essayer de mieux définir les corrélations électroniques dans les calculs, tout en gardant une demande numérique faible. Kulander [38], en 1987, a décrit la fonction d'onde de l'atome d'hélium par un produit de deux orbitales monoélectroniques évoluant dans le temps. Ce modèle, basique, fut amélioré en introduisant les effets d'échanges de symétries entre les deux électrons avec une approche Hartree-Fock dépendante du temps non restrictive [39], ou en affinant les termes de répulsion électrostatique électron-électron [40, 41]. D'autres types d'approches ont été considérés, toujours dans le but de réduire la complexité de la résolution des calculs dépendants du temps. Nous pouvons citer comme exemples l'utilisation des équations de mouvement des électrons issues de la mécanique classique [42], ou encore de la méthode de Thomas-Fermi dépendante du temps [43].

L'évolution des moyens de calculs informatiques a permis au fil des ans d'améliorer les techniques d'approches non perturbatives de l'interaction laser-atome. Des méthodes plus adaptables, précises, autocohérentes, sont aujourd'hui disponibles. Deux grands types

d'approches se distinguent. Le premier regroupe les méthodes basées sur la résolution de l'ESDT sur une grille de points [29, 44]. Les coordonnées radiales des deux électrons sont définies sur une grille de points à deux dimensions, tandis que les coordonnées angulaires sont prises en compte à l'aide de fonctions harmoniques sphériques. L'intégration de l'ESDT est alors gouvernée par plusieurs paramètres, que sont l'espacement des points du grillage, le moment angulaire maximal, le nombre de termes pris en compte dans le développement du terme d'interaction électron-électron, ou encore le volume de l'espace d'intégration. Des méthodes du type TDCC ("Time Dependent Close Coupling"), initialement associées aux problèmes de diffusion électron-atome [45], sont adaptées à la représentation de l'interaction laser-atome avec ces grilles de points [46]. Elles consistent à calculer un système d'équations différentielles couplées décrivant l'évolution du paquet d'onde dans le temps. L'utilisation des méthodes de grilles nécessite cependant d'importantes capacités informatiques. Le deuxième type d'approche se base sur une résolution dite "spectrale" de l'ESDT [47, 48], que nous allons développer dans ce chapitre. En quelques mots, cela va consister à développer les solutions de l'ESDT sur une base formée par l'ensemble des fonctions d'onde de l'atome non perturbé.

Pour conclure ce tour d'horizon, nous pouvons également citer un dernier traitement récent basé sur la théorie de Floquet et de la matrice R [49]. Il consiste tout d'abord à diviser l'espace de travail en deux sous-espaces. La zone interne va représenter les états liés de l'atome, la zone externe les états du continu. Ainsi, le Hamiltonien atomique et le Hamiltonien d'interaction seront décrits spécifiquement pour chaque région. Ensuite, l'équation de Schrödinger dépendante du temps est transformée en un problème indépendant du temps en utilisant le formalisme de Floquet. Récemment, Feng et coll. [50] ont associé cette méthode avec les propriétés des fonctions B-splines pour décrire la double ionisation multiphotonique de l'hélium.

### 3.2.2 Représentations de l'équation de Schrödinger dépendante du temps

Dans la représentation dite de "Schrödinger", l'évolution dans le temps d'un système atomique interagissant avec un champ laser est donnée par l'équation de Schrödinger dépendante du temps suivante, en unités atomiques :

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = [\mathcal{H} + H_{int}(t)] \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \quad (3.1)$$

Outre l'approximation dipolaire électrique dont nous avons parlée dans le chapitre 1, nous négligeons ici tout déplacement du noyau, en supposant que sa masse est suffisamment grande par rapport à celle de l'électron. Nous allons également supposer que les éclairagements lasers mis en jeu dans ce travail seront suffisamment faibles pour négliger tout effet relativiste. Regardons maintenant plus en détails les composantes de l'expression (3.1).  $\mathcal{H}$  est le Hamiltonien de l'atome isolé décrit dans la section 2.2.1.  $H_{int}(t)$  représente le terme d'interaction entre le champ laser et le système atomique, et s'écrit :

$$H_{int}(t) = -(\vec{r}_1 + \vec{r}_2)\vec{E}(t) \quad \text{en jauge des longueurs}$$

$$H_{int}(t) = -(\vec{p}_1 + \vec{p}_2)\vec{A}(t) + \frac{\vec{A}^2(t)}{2} \quad \text{en jauge des vitesses}$$

Avec  $\vec{E}(t)$  et  $\vec{A}(t)$  définis en (1.4) et (1.6).  $\frac{\vec{A}^2(t)}{2}$  est un terme de phase, qui ne sera pas pris en compte dans les calculs.  $\vec{r}_1$  et  $\vec{r}_2$  sont les vecteurs positions des électrons,  $\vec{p}_1$  et  $\vec{p}_2$  les vecteurs impulsions. La relation simple reliant l'espace des positions à l'espace des moments est la suivante :

$$\vec{p} = -i\vec{\nabla} = -i\frac{\partial}{\partial\vec{r}} \quad (3.2)$$

Formellement, les résultats issus de l'équation de propagation (3.1) doivent être indépendants de la jauge dans laquelle nous nous placerons. La fonction d'onde  $\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)$ , qui décrit l'évolution du système atome+champ à chaque instant  $t$ , est développée sur la base des états stationnaires du système (2.17), soit :

$$\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = \sum_{L=L_{min}}^{L_{max}} \sum_{j=1}^{N_s} C_j^L(t) \psi_j^{S,L,M}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \quad (3.3)$$

Nous utilisons ainsi une méthode de type spectrale, puisque les fonctions  $\psi_j^{S,L,M}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$  sont états propres du Hamiltonien atomique non perturbé (2.1). Les  $C_j^L(t)$  sont les coefficients de décomposition dépendants du temps. Le paramètre  $N_s$  fixe le nombre d'états stationnaires considérés par moment angulaire  $L$  dans l'équation de propagation. Il est inférieur au paramètre  $n'$  de l'expression (2.17), pour des raisons de facilité de stockage numérique.

Une autre forme peut être envisagée pour décrire l'équation de propagation ; appelée représentation "interaction", elle est basée sur le changement de variable suivant :

$$\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = e^{-i\mathcal{H}t} \Psi_I(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \quad (3.4)$$

Où l'indice  $I$  correspond à la notation "interaction". Sachant qu'un état atomique stationnaire oscille dans le temps à une fréquence égale à son énergie propre, la transformation



(3.4) permet d'annuler ces oscillations dans les calculs. L'équation de propagation (3.1) devient alors :

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi_I(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = [e^{i\mathcal{H}t} H_{int}(t) e^{-i\mathcal{H}t}] \Psi_I(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) \quad (3.5)$$

### 3.2.3 Méthode explicite de résolution

Décrivons maintenant la méthode de calcul utilisée pour résoudre l'équation de Schrödinger dépendante du temps. Par souci de rendre les calculs moins lourds numériquement, nous avons opté pour travailler dans la représentation interaction (3.5). L'indice  $I$  qui lui est associé ne sera plus noté par la suite. En utilisant la représentation matricielle posée dans la section 2.3.1, et en se servant de l'expression des fonctions d'onde définies en (3.3), l'équation de propagation (3.5) peut alors se réécrire comme suit :

$$\frac{d}{dt} C_k^L(t) = -i \sum_{L'=L_{min}}^{L_{max}} \sum_{j=1}^{N_s} e^{i(E_k^{S,L,M} - E_j^{S,L',M'})t} V_{int}^{(k,L,M)(j,L',M')}(t) C_j^{L'}(t) \quad (3.6)$$

Avec :

$$V_{int}^{(k,L,M)(j,L',M')}(t) = \langle \psi_k^{S,L,M} | H_{int} | \psi_j^{S,L',M'} \rangle \quad (3.7)$$

Le terme (3.7) est le terme d'interaction couplant les états atomiques  $\psi_k^{S,L,M}$  et  $\psi_j^{S,L',M'}$ . En ne considérant uniquement qu'une polarisation linéaire du champ laser, les règles de transitions électriques applicables sur les moments magnétiques et angulaires sont dans ce cas :

$$\Delta M = M - M' = 0 \quad ; \quad M' = 0 \quad (3.8)$$

$$\Delta L = L - L' = \pm 1 \quad (3.9)$$

Ainsi, les fonctions d'onde et les énergies seront présentées par la suite sans la notation  $M$ . De plus, nous poserons  $S = 0$ . La double somme dans l'équation (3.6) devient :

$$\sum_{L'=L_{min}}^{L_{max}} \sum_{j=1}^{N_s} \iff \sum_{j=1}^N \quad \text{avec} \quad N = (L_{max} - L_{min} + 1) \times N_s \quad (3.10)$$

L'équation (3.6) peut alors être réécrite sous la forme d'une équation différentielle, soit :

$$\frac{dy_k(t)}{dt} = f_k(t, y_1, y_2, \dots, y_N) \quad ; \quad k = 1, \dots, N \quad (3.11)$$

Les éléments  $y_k$  correspondent aux coefficients de décomposition  $C_k^L$  de l'équation (3.6), et  $f_k$  est l'élément suivant :

$$f_k(t, y_1, y_2, \dots, y_N) = -i \sum_{j=1}^N e^{i(E_k^L - E_j^{L'})t} V_{int}^{(k,L)(j,L')}(t) y_j(t) \quad (3.12)$$

Les éléments  $f_k$  sont stockés dans la matrice d'interaction totale  $\mathbb{F}$  dépendante du temps telle que :

$$\frac{dy_k(t)}{dt} = \sum_{j=1}^N \mathbb{F}_{(k,j)} y_j(t) \quad (3.13)$$

La dimension du vecteur  $\vec{y}$ , défini par les éléments  $y_k$ , est  $N$  (3.10), tandis que la matrice d'interaction  $\mathbb{F}$  est de dimension  $N \times N$ . La résolution est basée sur la méthode de Runge-Kutta d'ordre 5 [51]. Bien adaptée à notre problématique, cette approche permet de calculer l'équation différentielle (3.13) sur un intervalle fini, ici  $[t = -T/2, t = +T/2]$ , avec  $T$  la durée totale de l'impulsion laser (1.5). Le pas d'intégration est alors adapté en fonction de la variation des coefficients. Cette méthode est de type "explicite", car la solution  $\vec{y}(t_{n+1})$  au temps  $t_{n+1} = t_n + h$ ,  $h$  étant le pas d'intégration, dépend uniquement des solutions  $\vec{y}(t_n)$  au temps  $t_n$ . La méthode de résolution calcule la solution au temps  $t_{n+1}$  de la façon suivante :

$$\vec{y}(t_{n+1}) = f(t, \vec{y}(t_n)) \quad (3.14)$$

Le fait d'avoir effectué une décomposition de la fonction d'onde sur les états atomiques de base (3.3) nous a amené à un problème dit "non raide" [52], où nous ne sommes pas confrontés à un pas d'intégration trop petit. En revanche, dans le cas où nous aurions choisi par exemple de développer directement la fonction d'onde dépendante du temps sur les fonctions B-splines [53], la méthode (3.14) ne pourrait pas être utilisée car elle ne parvient pas à converger dans ce cas. Il s'agit alors d'un problème dit "raide", où seule une méthode "implicite" de la forme suivante peut le résoudre :

$$\vec{y}(t_{n+1}) = f(t, \vec{y}(t_n), \vec{y}(t_{n+1})) \quad (3.15)$$

### 3.2.4 Etat du système après interaction

A la fin de l'interaction avec le champ laser, c'est-à-dire au temps  $t = +T/2$ , le système atomique est représenté par la fonction d'onde finale suivante (voir (3.3)) :

$$\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t = +\frac{T}{2}) = \sum_{L=L_{min}}^{L_{max}} \sum_{j=1}^{N_s} C_j^L(t = +\frac{T}{2}) \psi_j^L(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \quad (3.16)$$

L'état initial du système avant toute perturbation est quant à lui donné par l'expression suivante :

$$\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t = -\frac{T}{2}) = \psi_1^0(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \quad (3.17)$$

$\psi_1^0(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$  est l'état initial du système atomique non perturbé, fonction propre de l'équation (2.1). De nombreuses grandeurs physiques sont maintenant disponibles grâce aux solutions directes de l'ESDT. Par exemple, la population de l'état fondamental après interaction est donnée simplement par :

$$P_1^{L=0} = |C_1^0(t = +T/2)|^2 \quad (3.18)$$

L'amplitude  $C_1^0$  correspond à l'état fondamental de la fonction d'onde finale. La probabilité d'ionisation totale du système, c'est-à-dire la probabilité de trouver le système atomique où au moins un électron se trouve dans le simple continuum, est également facilement accessible :

$$\mathcal{P}_{ionis} = \langle \psi^L | \psi^L \rangle_{E > \text{seuil}} = \sum_{L=L_{min}}^{L_{max}} \sum_{i=n_L+1}^{N_s} |C_i^L(\frac{T}{2})|^2 \quad (3.19)$$

Où  $n_L$  est le nombre d'états liés pour une symétrie donnée  $L$ .

Ainsi, notre approche permet d'étudier directement les processus de simple ionisation atomique par absorption de un ou plusieurs photons, en termes de populations des états liés ou du simple continu, probabilités d'excitation etc... En ce qui concerne les processus de double ionisation par absorption multiphotonique, nous allons présenter dans la section suivante notre approche pour représenter l'état du système atomique doublement ionisé.

## 3.3 Le double continuum atomique

### 3.3.1 Un problème théorique ouvert

La bonne représentation de l'interaction laser-atome, entreprise dans ce document, est tributaire de trois points essentiels : une description précise de la structure électronique de l'atome isolé, des calculs efficaces pour la propagation du champ laser, une définition précise des états atomiques finaux atteints. Les deux premiers points viennent d'être discutés dans les chapitres précédents, où nous avons constaté que notre approche était très précise dans le cadre non relativiste. Les approximations majeures vont intervenir dans la description des états du double continuum atomique. En effet, les états finaux qui vont nous intéresser se trouvent au delà du seuil de double ionisation. Dans cette région, un système atomique à deux électrons actifs possède une infinité d'états qui peuvent être simplement ionisés ou doublement ionisés. La représentation de ces derniers n'est pas un problème ayant une solution standard. La difficulté vient du fait que ces états sont solutions d'un problème à trois corps : deux électrons libres dans le double continuum, et

un ion résiduel doublement chargé. De nombreuses études théoriques sur le sujet ont tout d’abord été menées de façon très qualitative, en faisant intervenir des méthodes simplificatrices dont le domaine de validité était assez restreint. Par exemple, nous pouvons citer une méthode qui utilise les expressions asymptotiques des fonctions d’onde des électrons dans un champ coulombien [54, 55]. Elle modélise un problème où les deux électrons sont éjectés très loin du noyau. D’autres méthodes emploient la théorie de Wannier [56], dans laquelle les deux électrons sont positionnés à équidistance du noyau juste au dessus du seuil de double ionisation [57, 58]. Aujourd’hui, les diverses approches théoriques capables de représenter l’interaction laser-atome dans son ensemble, ont intégré des méthodes plus efficaces pour définir les états du double continuum atomique. Citons, par exemple, une approche appelée 2SC (“Two-Screened Coulomb wavefunctions”) dans laquelle les états finaux du double continuum sont représentés par un produit de deux fonctions d’onde coulombiennes écrantées [59, 60]. L’introduction de la notion de charge effective permet de prendre en compte les effets de corrélations radiales et angulaires entre les deux électrons libres. Une variante de cette approche, appelée méthode 3C, est basée sur le même formalisme de Lippman-Schwinger et de l’opérateur de Green, mais représente les états du double continuum comme un produit de trois ondes coulombiennes [61, 62]. Plus récemment, nous pouvons citer la méthode CCC (“Convergent Close Coupling”). Introduite au départ pour décrire les collisions électron-hydrogène [63], elle a été appliquée au cas de la double ionisation de l’hélium [64, 65]. C’est une méthode indépendante du temps qui définit les états du double continuum par un produit d’une orbitale  $\text{He}^+$ , décrite sur une base de polynômes de Laguerre, avec un paquet d’onde sortant coulombien. Nous pouvons également trouver dans la littérature l’application des méthodes de grilles, présentées dans la section 3.2.1, dans le cas de la résolution de l’ESDT avec les transformations ECS (“Exterior Complex Scaling”) [66, 67]. Les coordonnées subissent une rotation dans le plan complexe, ce qui a pour but de mieux définir le comportement asymptotique des fonctions d’onde décrivant les états doublement ionisés. Enfin, l’utilisation du formalisme de la matrice R (voir section 3.2.1), a été associée aux ondes sortantes semi-classiques et aux coordonnées hypersphériques pour décrire les corrélations électroniques dans le double continuum [68]. Cette approche est appelée HRM-SOW, pour “Hyperspherical R-Matrix method with Semiclassical Outgoing Waves”.

Avant de proposer la représentation des états du double continuum que nous avons développée, nous allons chercher tout d’abord à savoir comment ces états vont être atteints

depuis l'état initial atomique par l'absorption d'un ou de deux photons.

### 3.3.2 Canaux d'ionisation et corrélations électroniques

#### Absorption d'un photon

Les systèmes atomiques que nous allons étudier, à savoir l'hélium et le béryllium, possèdent chacun un état fondamental de symétrie totale  $^1S^e$  ( $L = 0$ ). D'après la règle de transition dipolaire pour les atomes ( $\Delta L = \pm 1$ ), l'absorption d'un photon va donc peupler des états de symétrie totale  $^1P^o$  ( $L = 1$ ). Les deux électrons actifs se trouvent chacun dans un état fondamental  $ns$ , avec  $n = 1$  pour l'hélium,  $n = 2$  pour le béryllium. Leurs moments angulaires  $l_1$  et  $l_2$  sont tout deux égaux à zéro. La configuration électronique de l'état fondamental de l'atome est notée, par abus de langage, sous la forme  $|g \rangle = ns^2$ . En effet, il faut faire attention à ne pas associer cette notation avec celle d'un modèle à deux électrons indépendants. Ici, et dans tout ce document, l'écriture  $\text{He}(1s^2)$  ou  $\text{Be}(2s^2)$  sous-entend que l'atome est dans un état fondamental corrélé, où les différents termes d'interactions électron-électron sont pris en compte avec l'expression (2.7). Pour fixer les idées, l'état fondamental atomique peut se résumer par l'expression simplifiée suivante :

$$|g = ns^2 \rangle \equiv \underbrace{nsns}_{\text{ORDRE 0}} + \underbrace{\underbrace{ksk's}_{\text{corrélations radiales}} + \underbrace{kp k'p + kdk'd + \dots}_{\text{corrélations angulaires}}}_{\text{ORDRE 1}} \quad (3.20)$$

C'est l'ordre zéro du développement de  $1/r_{12}$  (2.7) qui correspond à une configuration à deux électrons indépendants  $ns$ . Les termes d'ordres supérieurs contiennent les possibles corrélations radiales et angulaires entre les électrons.

Après absorption d'un photon, les moments angulaires finaux des électrons vont également vérifier la règle de transition ( $\Delta l = \pm 1$ ). Nous allons appeler :

*canal d'ionisation* ( $L, l_1, l_2$ ) le couplage par  $N$  photons entre un état final caractérisé par ces trois moments angulaires et l'état fondamental atomique.

Dans le cas présent où  $N = 1$ , les différents canaux d'ionisation pris en compte dans nos bases radiales sont donnés dans le tableau (2.1). Par exemple, la base  $II$  comprend les canaux ( $L = 1, l_1 = 0, l_2 = 1$ ), ( $L = 1, l_1 = 1, l_2 = 2$ ) et ( $L = 1, l_1 = 2, l_2 = 3$ ). Prenons l'exemple de la simple ionisation de l'hélium par absorption d'un photon. Un état final simplement ionisé, non excité, est de la forme  $1sk_2p$ . Cette notation fait ici référence à un modèle à deux électrons indépendants. En utilisant le formalisme de la théorie des perturbations, que nous décrirons plus en détails dans la section 3.4, le terme de couplage

entre l'état fondamental  $g$  et un état du simple continu  $1sk_2p$  est donné par l'expression suivante :

$$D_{fg}^{(N=1)} = \langle \psi_g | \sum_{i=1}^2 \vec{r}_i \cdot \vec{E} | \psi_{1sk_2p} \rangle \quad (3.21)$$

Pour alléger les notations, nous poserons par la suite  $\sum_{i=1}^2 \vec{r}_i \equiv \vec{r}$ , sauf indication contraire. Si l'état fondamental est représenté à l'ordre zéro du développement de  $1/r_{12}$  (3.20), soit un état purement  $1s1s$  ( $\psi_g = \psi_{1s1s}$ ), nous constatons que l'élément de matrice  $D_{fg}^{(N=1)}$  sera non nul, d'après les propriétés d'orthogonalité des orbitales monoélectroniques. Autrement dit, nous pouvons nous attendre à ce que l'ordre zéro apporte la plus grande contribution dans l'évaluation du processus de simple ionisation par absorption d'un photon, que ce soit au niveau de l'état fondamental ou au niveau de l'état final.

Regardons maintenant le processus de double ionisation par absorption d'un photon. Les canaux de double ionisation possibles dans la base  $II$  ( tableau (2.1)(b)) sont de la forme  $k_1sk_2p$ ,  $k_1pk_2d$  et  $k_1dk_2f$ . Le terme de couplage correspondant est alors le suivant :

$$D_{fg}^{(N=1)} = \langle \psi_g | \vec{r} \cdot \vec{E} | \psi_{k_1l_1k_2l_2} \rangle \quad (3.22)$$

Où  $\psi_{k_1l_1k_2l_2}$  représente la fonction d'onde d'un état du double continuum. Dans ce cas, la description à la fois de l'état fondamental et de l'état final à l'ordre zéro du développement de  $1/r_{12}$  ne va plus donner un élément de matrice différent de zéro. En effet, le terme de couplage (3.22), en prenant  $\psi_g = \psi_{1s1s}$ , sera cette fois-ci égal à zéro d'après l'orthogonalité des orbitales monoélectroniques. Il est donc nécessaire ici de prendre en compte l'ordre un de la théorie des perturbations dans la représentation de l'état fondamental (3.20) et/ou dans la représentation du double continuum. D'un point de vue plus phénoménologique, la nécessité d'introduire le terme correctif d'ordre un revient à prendre en compte les effets de corrélations radiales et angulaires entre les deux électrons. Les interactions électron-électron dans l'état fondamental atomique et/ou dans les états du double continuum sont donc indispensables à la bonne description du processus.

Une dernière remarque que nous pouvons faire est que le canal de double ionisation ( $L = 1, l_1 = 0, l_2 = 1$ ) est directement ouvert grâce aux corrélations électroniques radiales (3.20). En effet, un état final  $k_1sk_2p$  peut être couplé par un photon à partir de la composante radiale  $k_1sns$  de l'état initial. Les autres états finaux possibles, de type  $k_1pk_2d$  et  $k_1dk_2f$ , ne seront quant à eux couplés qu'à partir des composantes électroniques angulaires de l'état fondamental. Si on suppose que les effets d'interactions angulaires sont plus faibles que les interactions radiales entre les deux électrons, nous pourrions nous attendre à ce que

le canal ( $L = 1, l_1 = 0, l_2 = 1$ ) soit le canal dominant dans les processus à un photon. Nous vérifierons cette remarque avec les résultats que nous allons présenter dans les chapitres suivants.

Quoi qu'il en soit, le raisonnement que nous venons de faire a eu pour but de poser les bases de la double ionisation par absorption d'un photon, et d'en tirer la conclusion importante suivante :

**Le processus de double ionisation par absorption d'un seul photon est directement relié aux effets de corrélations électroniques entre les deux électrons actifs du système atomique étudié. Leurs prises en compte au niveau de l'état fondamental et/ou au niveau des états doublement ionisés sont nécessaires pour permettre la double ionisation.**

### Absorption de deux photons

D'après la règle de transition dipolaire ( $\Delta L = \pm 1$ ), l'absorption de deux photons depuis l'état fondamental atomique peuple maintenant des états finaux de symétrie totale  $^1S^e$  ( $L = 0$ ) ou de symétrie totale  $^1D^e$  ( $L = 2$ ). Le terme de couplage multiphotonique d'ordre  $N = 2$ , que nous établirons plus loin (3.49), contient des termes du type :

$$\langle \psi_g | \vec{r} \cdot \vec{E} | \psi_{a_1} \rangle \langle \psi_{a_1} | \vec{r} \cdot \vec{E} | \psi_f \rangle \quad (3.23)$$

L'absorption du premier photon couple l'état fondamental  $g$  avec un état intermédiaire noté  $a_1$ . Celui-ci est alors couplé avec l'état final  $f$  par le deuxième photon. En partant d'un état fondamental décrit à l'ordre zéro du développement de  $1/r_{12}$ , soit  $|g\rangle = nsns$  (3.20), l'état intermédiaire est alors de la forme  $nskp$ , et les états finaux du double continuum du type  $kp k'p$ . Dans ce cas de figure, nous constatons que les propriétés d'orthogonalité des orbitales monoélectroniques ne vont pas entraîner d'éléments de matrices nuls. Le processus de double ionisation par absorption de deux photons est donc non nul à l'ordre zéro du développement en  $1/r_{12}$  [69]. Ainsi, en considérant un état fondamental non corrélé, l'absorption de deux photons peut peupler les canaux de double ionisation ( $L = 0, l_1 = 1, l_2 = 1$ ) et ( $L = 2, l_1 = 1, l_2 = 1$ ). Les autres canaux possibles, de symétrie  $^1S^e$  et  $^1D^e$ , présentés dans le tableau (2.1) pour chaque base radiale, ne seront ouverts qu'en prenant en compte l'ordre un du développement de  $1/r_{12}$  dans l'état fondamental (3.20) et/ou final. Les contributions de ces canaux devraient donc être moins

importantes dans le processus de double ionisation que celles apportées par les canaux ( $L = 0, l_1 = 1, l_2 = 1$ ) et ( $L = 2, l_1 = 1, l_2 = 1$ ) issus de l'ordre zéro. Concernant ces deux canaux dominants, nous pouvons démontrer que le canal de symétrie  $^1D^e$  aura un poids deux fois plus important que celui de symétrie  $^1S^e$ . L'expression (2.19) nous donne la forme des fonctions harmoniques sphériques à deux particules  $Y_{l_1, l_2}^{L, M}(\Omega_1, \Omega_2)$ . Elles s'écrivent à l'aide des coefficients de Clebsch-Gordan et d'un produit de deux fonctions harmoniques sphériques à une particule. En utilisant les propriétés de ces coefficients [32], il est facilement démontrable que l'état final à l'ordre zéro s'écrit :

$$\mathcal{Y}_{l_1=1}^{m_1=0}(\Omega_1)\mathcal{Y}_{l_2=1}^{m_2=0}(\Omega_2) = -\sqrt{\frac{1}{3}}Y_{l_1=1, l_2=1}^{L=0, M=0}(\Omega_1, \Omega_2) + \sqrt{\frac{2}{3}}Y_{l_1=1, l_2=1}^{L=2, M=0}(\Omega_1, \Omega_2) \quad (3.24)$$

Ainsi, le canal dominant de double ionisation lors de l'absorption de deux photons sera le canal ( $L = 2, l_1 = 1, l_2 = 1$ ).

D'un point de vue qualitatif, nous venons d'étudier le mécanisme de double ionisation d'un système atomique diélectronique par absorption de deux photons. La conclusion importante qu'il faut retenir ici est que :

**Contrairement à l'absorption d'un photon, les processus de double ionisation par absorption de deux photons peuvent se produire sans la prise en compte des effets de corrélations électroniques.**

### 3.3.3 Description non corrélée (“ordre 0”)

Comment définir la fonction d'onde d'un état du double continuum  $\psi_{k_1 l_1 k_2 l_2}^L(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ ? Nous venons de constater dans la section précédente que pour le cas de la double ionisation par absorption d'un photon, nous devons inclure les corrélations électroniques soit dans l'état fondamental atomique, soit au niveau des états doublement ionisés. Notre méthode permet d'intégrer parfaitement les corrélations dans l'état fondamental de l'atome isolé (2.7). Concernant l'absorption de deux photons, la double ionisation peut se produire sans leur prise en compte. Nous nous sommes donc basés sur ces conclusions pour établir, **dans le cas de l'hélium**, l'approximation suivante :

**Les états diélectroniques finaux du double continuum sont représentés dans une première approximation par un produit antisymétrisé de fonctions hydrogéoïdes.**



Nous allons donc définir dans un premier temps le double continuum de façon non corrélée, soit à "l'ordre zéro". Une fonction hydrogénoïde s'écrit sous la forme suivante :

$$\phi_{kl}^m(\vec{r}) = R_{kl}(r)\mathcal{Y}_l^m(\theta, \varphi) \quad (3.25)$$

Où  $R_{kl}(r)$  est la partie radiale et  $\mathcal{Y}_l^m(\theta, \varphi)$  la partie angulaire représentée par des fonctions harmoniques sphériques. La fonction (3.25) est alors état propre de l'équation suivante :

$$(h_i - E_{k_i l_i})\phi_{k_i l_i}^m(\vec{r}_i) = 0 \quad (3.26)$$

Où  $i = 1$  ou  $2$ , et  $h_i$  est le Hamiltonien d'un système à un électron défini dans l'équation (2.3).  $E_{k_i l_i}$  est l'énergie de l'électron  $k_i l_i$ . Pour obtenir une représentation du double continuum cohérente avec celle du système diélectronique général, l'équation ci-dessus est résolue en utilisant la même base de fonctions B-splines que pour l'équation (2.1) (voir aussi (2.17) et (2.18)).

Les états du double continuum s'écrivent finalement :

$$\psi_{k_1 l_1 k_2 l_2}^L(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \mathcal{N}[\phi_{k_1 l_1}(\vec{r}_1)\phi_{k_2 l_2}(\vec{r}_2)] = \mathcal{N}[R_{k_1 l_1}(r_1)R_{k_2 l_2}(r_2)Y_{l_1, l_2}^{L, M}(1, 2) + (1 \Leftrightarrow 2)] \quad (3.27)$$

Le coefficient de normalisation  $\mathcal{N}$  assure la relation d'orthogonalité suivante :

$$\langle \psi_{k_1 l_1 k_2 l_2}^L | \psi_{k_1 l_1 k_2 l_2}^L \rangle = 1 \quad (3.28)$$

A la fin de l'impulsion laser, à  $t = T/2$ , la population d'un état  $\psi_{k_1 l_1 k_2 l_2}^L(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$  sera alors donnée par l'expression suivante :

$$\mathcal{P}^L(E_{k_1 l_1}, E_{k_2 l_2}) = | \langle \psi_{k_1 l_1 k_2 l_2}^L(\vec{r}_1, \vec{r}_2) | \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, +T/2) \rangle |^2 \quad (3.29)$$

Où  $E_{k_1 l_1}$  et  $E_{k_2 l_2}$  sont les énergies respectives des deux électrons libres.  $\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, +T/2)$  est la fonction d'onde totale du système après interaction (3.16). Dans le cas où le moment angulaire total  $L$  final est égal à zéro, la fonction  $\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, +T/2)$  contenant l'état initial est exclue des calculs. La population d'un état du double continuum (3.29) peut également être établie en projetant la fonction  $\psi_{k_1 l_1 k_2 l_2}^L(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$  sur la fonction d'onde totale dans laquelle nous soustrayons toutes les composantes associées à des énergies négatives [70], puisque le seuil de double ionisation est fixé à  $E > 0$ . Cette approche donne cependant des résultats similaires avec ceux issus de l'expression (3.29). Nous utiliserons donc par la suite exclusivement l'expression (3.29).

**Dans le cas du béryllium**, la méthode sera similaire :

La fonction d'onde du double continuum sera représentée par un produit de deux orbitales de l'ion  $\text{Be}^+$ , qui sont états propres du Hamiltonien  $h'_i$  défini en (2.8).

### 3.3.4 Description corrélée (“ordre 1”)

Dans le but d'affiner la description du double continuum, nous avons développé une méthode originale pour inclure une partie des corrélations électroniques au niveau des fonctions d'onde des états finaux doublement ionisés. Notre approche a comme point de départ une vision perturbative du problème. Prendre en compte les corrélations électron-électron reviendrait en effet à introduire l'ordre 1 de la théorie des perturbations dans l'équation (3.27), soit :

$$\begin{aligned} \psi_{k_1 l_1 k_2 l_2}^L(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = & \mathcal{N} [ |\phi_{k_1 l_1}(1) \phi_{k_2 l_2}(2) \rangle \\ & + \sum_{kl, k'l' \neq k_1 l_1, k_2 l_2} \frac{\langle \phi_{k_1 l_1}(1) \phi_{k_2 l_2}(2) | \frac{1}{r_{12}} | \phi_{kl}(1) \phi_{k'l'}(2) \rangle}{(E_{k_1 l_1} + E_{k_2 l_2}) - (E_{kl} + E_{k'l'})} |\phi_{kl}(1) \phi_{k'l'}(2) \rangle \\ & + (1 \Leftrightarrow 2) ] \end{aligned} \quad (3.30)$$

Cependant, le terme perturbatif d'ordre 1 n'est pas valide dans le cas de la double ionisation. L'élément de matrice d'interaction en  $1/r_{12}$  dans l'expression (3.30), de part sa forme de potentiel coulombien pour les grandes distances, ne décroît pas assez vite pour assurer la convergence de la correction. Ce sont pourtant ces éléments de matrice qui vont représenter les possibles corrélations entre les deux électrons.

Pour contourner ce problème, tout en gardant cette notion de corrélations, nous avons procédé à la méthode suivante :

**Nous diagonalisons le Hamiltonien non perturbé  $\mathcal{H}$  (2.2) sur la base d'états  $\{\psi_{k_1 l_1 k_2 l_2}^L(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\}$  (3.27) avec  $k_1, l_1$  et  $l_2$  fixés**

L'équation aux valeurs propres à résoudre est alors :

$$(\mathcal{H} - E_n^{k_1 l_1 l_2}) \mathcal{F}_n^{k_1 l_1 l_2}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = 0 \quad (3.31)$$

Avec :

$$\mathcal{F}_n^{k_1 l_1 l_2}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \sum_{k_2=1}^{N_{orb}} C_{n, k_2}^{k_1 l_1 l_2} |\psi_{k_1 l_1 k_2 l_2}^L(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \quad (3.32)$$

$N_{orb}$  est le nombre d'orbitales  $l_2$ . Nous restons toujours avec l'idée que les deux électrons éjectés dans le double continuum sont représentés chacun par une fonction hydrogénoïde

dans le cas de l'hélium, ou par une fonction propre de  $h'_i$  (2.8) dans le cas du béryllium. Néanmoins, nous avons ici gelé un électron sur l'orbitale  $k_1l_1$  et laissé libre l'autre électron dans le continu  $l_2$ . Dans la base restreinte ainsi définie, nous avons donc inclu la partie radiale des corrections associées au premier élément du développement de  $1/r_{12}$  (2.6).

La population d'un état  $\mathcal{F}_n^{k_1l_1l_2}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$  d'énergie  $E = E_n^{k_1l_1l_2}$  sera alors donnée par l'expression suivante :

$$\mathcal{P}^L(E_{k_1l_1}, E_{k_2l_2}) = | \langle \mathcal{F}_n^{k_1l_1l_2}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) | \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, +T/2) \rangle |^2 \quad (3.33)$$

Rappelons que l'énergie  $E_n^{k_1l_1l_2}$  est l'énergie totale des deux électrons. Un des deux électrons aura donc une énergie fixée  $E_{k_1l_1}$ , l'autre électron une énergie  $E_{k_2l_2} = E_n^{k_1l_1l_2} - E_{k_1l_1}$ .

### 3.3.5 Quantités physiques observables

La probabilité pour qu'un état final du double continuum atomique soit peuplé après interaction vient d'être décrite par deux approches dans les sections précédentes. Elle va servir de pierre angulaire pour étudier diverses quantités physiques utiles à la bonne compréhension des phénomènes agissant dans le double continuum.

#### Spectre de distribution énergétique

Une probabilité, à proprement parler, n'a pas de sens physique véritable quand il s'agit d'un état discrétisé du continuum. Puisque nous étudions des états du double continuum, donc par définition des états continus infinis, la quantité significative qu'il nous faut regarder est la densité de probabilité. Elle se présente sous la forme suivante :

$$\frac{d^2\mathcal{P}^L(E_{k_1l_1}, E_{k_2l_2})}{dE_{k_1l_1}dE_{k_2l_2}} = \rho(E_{k_1l_1})\rho(E_{k_2l_2})\mathcal{P}^L(E_{k_1l_1}, E_{k_2l_2}) \quad (3.34)$$

$\rho(E)$  est la densité d'états que nous avons définie de façon générale en (2.33). Elle s'écrit ici sous la forme suivante :

$$\rho(E_{kl}) = \frac{2}{|E_{(k+1)l} - E_{(k-1)l}|} \quad (3.35)$$

La densité de probabilité (3.34) représente la répartition de la probabilité d'obtenir les deux électrons avec les énergies respectives  $E_{k_1l_1}$  et  $E_{k_2l_2}$ . Autrement dit, nous obtenons la distribution de l'énergie photonique amenée par le laser entre les deux électrons éjectés dans le double continuum. Le spectre associé sera donné suivant trois axes ( $\mathcal{P}^L, E_{k_1l_1}, E_{k_2l_2}$ ), et nous étudierons son évolution en fonction de l'énergie du photon appliquée, ou suivant

les différents moments angulaires des électrons. L'énergie totale disponible dans le double continuum sera notée :

$$E_{tot} = E_g + N\omega \quad (3.36)$$

Avec  $E_g$  l'énergie fondamentale du système atomique étudié,  $N$  le nombre de photons absorbés. Le seuil de double ionisation est fixé à l'énergie zéro.

Une autre forme de représentation de la distribution énergétique sera employée dans ce document. Appelé spectre "intégré à un électron", il est obtenu ainsi :

$$\frac{d\mathcal{P}^L(E_{k_1l_1})}{dE_{k_1l_1}} = \rho(E_{k_1l_1}) \sum_{E_{k_2l_2}} \mathcal{P}^L(E_{k_1l_1}) \quad (3.37)$$

Il donnera une vision en deux dimensions de la répartition de la densité de probabilité suivant l'énergie d'un électron.

### Probabilité totale de double ionisation

Elle est calculée de la façon suivante :

$$\mathcal{P}_{kk} = \sum_{(L, k_1l_1, k_2l_2)} \mathcal{P}^L(E_{k_1l_1}, E_{k_2l_2}) \quad (3.38)$$

Par exemple, la probabilité totale de double ionisation par absorption de deux photons sera donnée par la somme de tous les canaux d'ionisation ( $L = 0, l_1, l_2$ ) et ( $L = 2, l_1, l_2$ ). Les couples de moments angulaires ( $l_1, l_2$ ) possibles pour chaque moment angulaire  $L$  sont donnés dans le tableau (2.1).

### Section efficace de double ionisation

Ce paramètre est calculé à l'aide de la formule suivante :

$$\sigma(N\gamma, 2e) = \left(\frac{\omega}{I}\right)^N \frac{\mathcal{P}_{kk}}{C(N)T} \quad (3.39)$$

Où  $I$  est l'éclairement du champ exprimé en  $\text{W}/\text{cm}^2$ ,  $\omega$  l'énergie du photon en joules,  $N$  le nombre de photons absorbés et  $T$  la durée totale de l'impulsion laser en secondes.  $\mathcal{P}_{kk}$  correspond à la probabilité totale de double ionisation (3.38). Les sections efficaces seront alors exprimées en  $\text{cm}^{2N}\text{s}^{N-1}$ . Les coefficients sans dimension  $C(N)$  prennent en compte la forme de l'enveloppe temporelle  $f(t)$  de l'impulsion laser (1.4). Ils se calculent de la manière suivante :

$$C(N)T = \int_{-T/2}^{+T/2} |f(t)|^{2N} \quad (3.40)$$

D'où :

$$C(1) = \frac{3}{8}; C(2) = \frac{35}{128} \dots \quad (3.41)$$

Il est important de noter que l'expression de la section efficace établie en (3.39) est uniquement valable en régime perturbatif. En effet, une section efficace généralisée est indépendante de l'intensité  $I$  de l'éclairement laser. L'expression (3.39) dépend pourtant de  $I^{-N}$  mais également de la probabilité d'ionisation  $\mathcal{P}_{kk}$ . Dans la théorie des perturbations, la probabilité d'ionisation dépend de  $I^N$ , ce qui nous donnera bien une section efficace indépendante de  $I$ . Nous verrons dans la section suivante que pour des éclairagements lasers de  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, régime dans lequel nous allons exclusivement travailler dans ce document, le traitement perturbatif, et donc notre expression (3.39), restent valables.

### 3.4 Domaine de validité de la méthode

Dans cette dernière section, nous allons cerner les différents domaines dans lesquels notre description de l'interaction laser-atome peut être appliquée.

#### Base radiale/champ laser

Notre méthode est basée sur une approche spectrale non perturbative. Nous avons vu dans le chapitre 2 que le spectre atomique était confiné dans une sphère radiale de rayon  $R_{max}$ . Une première condition importante à respecter pour que les calculs issus de la résolution de l'ESDT soient valables est que la dimension de cette sphère soit assez grande pour prendre en compte le déplacement complet des électrons lors de la propagation. Cette condition de validité se résume par :

$$v_e t < R_{max} \quad (3.42)$$

Où  $v_e$  est la vitesse de l'électron. Dans le cas de la double ionisation, la durée  $t$  est égale à  $T/2$ , car nous supposons que ce processus se produit dans un intervalle de temps défini autour du maximum de l'impulsion. En utilisant l'expression de la densité d'états (2.38), dans laquelle nous avons une relation entre  $R_{max}$  et  $\rho(E)$ , l'inégalité (3.42) devient :

$$\frac{1}{\rho(E)} < \frac{2\pi}{T} \quad (3.43)$$

D'après l'expression de la largeur spectrale (1.7), nous avons finalement :

$$\frac{2}{\rho(E)} < \Delta\omega \quad (3.44)$$

La relation (3.44) montre que la largeur spectrale doit être suffisante pour couvrir le plus d'états discrétisés possibles. D'une part, la densité d'états  $\rho(E)$  est reliée au paramètre

$R_{max}$  (2.38), de l'autre la durée totale  $T$  de l'impulsion est rattachée au nombre de cycles optiques (1.5). Il faut donc paramétrer de façon efficace la base radiale et le champ laser pour obtenir des résultats corrects. Par exemple, la base  $I$  définie dans le tableau (2.1)(a) nous permet de représenter un système atomique dont l'énergie maximale dans le double continuum  $^1S^e$  est de 1.7 u.a.. Aux alentours d'une telle énergie, la durée de propagation maximale possible sera de l'ordre de la dizaine de femtoseconde.

### Absorption multiphotonique/effet tunnel

Nous allons étudier dans la suite de ce document des processus d'ionisation atomique par absorption multiphotonique. Cependant, comme nous l'avons noté en introduction, un autre mécanisme d'ionisation peut se produire : l'ionisation par effet tunnel. Sous certaines conditions, la barrière de potentiel coulombienne est abaissée par le champ laser. L'électron peut alors s'échapper de l'attraction du noyau en traversant cette barrière par effet tunnel. Les deux mécanismes d'ionisation sont représentés sur la figure (3.1), dans le cadre d'un atome à un électron. Le potentiel  $V(r, t)$ , auquel est soumis l'électron lié au noyau en

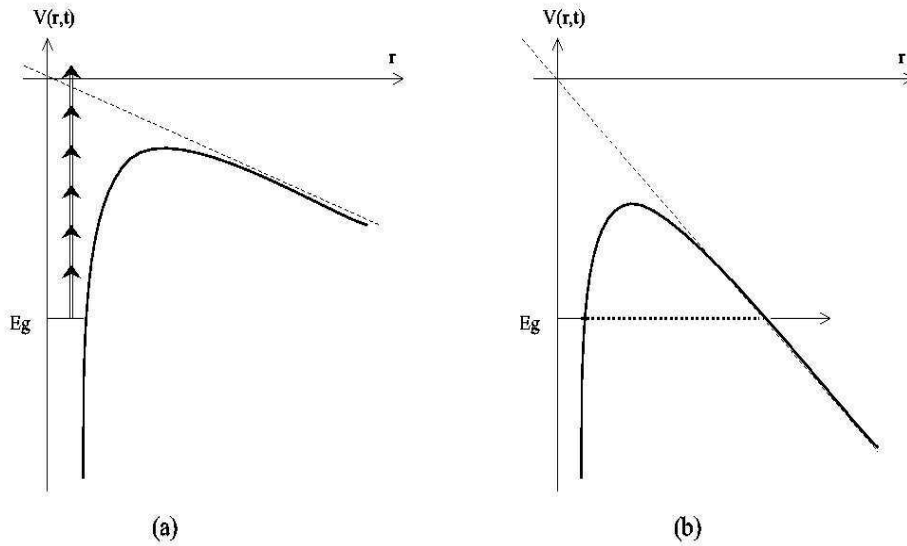


FIGURE 3.1: (a) Ionisation par absorption multiphotonique (b) Ionisation par effet tunnel

présence du champ, est de la forme suivante :

$$V(r, t) = \frac{1}{r} + E_0 r \sin(\omega t) \quad (3.45)$$

C'est le paramètre de Keldysh [35] qui va déterminer lequel de ces deux processus d'ionisation est dominant lors de l'interaction d'un atome avec un champ laser. Il est égal

à :

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} \quad (3.46)$$

$I_p$  est le potentiel d'ionisation de l'atome en u.a..  $U_p$  représente l'énergie pondéromotrice en u.a., c'est-à-dire l'énergie classique qu'acquiert l'électron dans le champ électrique. Elle s'écrit sous la forme suivante :

$$U_p = \frac{I_{(W/cm^2)}}{\omega_{(u.a.)}^2 I_{0(W/cm^2)}} \quad (3.47)$$

Avec  $I_0 = 14.0379 \times 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>. Le paramètre de Keldysh représente donc le rapport entre le temps que met l'électron à traverser la barrière de potentiel et une période du champ électromagnétique. Si  $\gamma \gg 1$ , c'est le processus d'absorption multiphotonique qui sera dominant. Si  $\gamma \ll 1$ , l'ionisation par effet tunnel aura alors lieu préférentiellement. Dans ce cas, nous sommes dans une situation proche du champ statique avec  $V(r, t)$  variant lentement et  $E_g$  proche du seuil d'ionisation.

## ESDT/LOPT

Nous allons comparer maintenant notre approche non perturbative avec une approche perturbative du problème. Rappelons tout d'abord l'expression du taux d'ionisation en régime perturbatif, qui représente la probabilité par unité de temps de porter le système atomique initialement dans un état  $g$ , vers un état final  $f$ , par absorption de  $N$  photons :

$$\Gamma_{fg}^{(N)} = 2\pi I^N |D_{fg}^{(N)}|^2 \quad (3.48)$$

$I$  est l'intensité du champ, exprimée en unités de  $I_0 = 14.0379 \times 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>.  $D_{fg}^{(N)}$  est le terme de couplage multiphotonique d'ordre  $N$  suivant :

$$D_{fg}^{(N)} = \sum_{a_{N-1}} \int \cdots \sum_{a_1} \int \frac{\langle f | \vec{r} \cdot \vec{E} | a_{N-1} \rangle \cdots \langle a_1 | \vec{r} \cdot \vec{E} | g \rangle}{(\omega_i + (N-1)\omega - \omega_{a_{N-1}}) \cdots (\omega_g + \omega - \omega_{a_1})} \quad (3.49)$$

Le produit vectoriel  $\vec{r} \cdot \vec{E}$  provient du Hamiltonien d'interaction en jauge longueur (section 3.2.2). Les sommations apparaissant dans l'expression (3.49) sont faites sur tous les états atomiques intermédiaires  $|a_i\rangle$  d'énergie  $\omega_i$ . La représentation de la structure atomique faite dans le chapitre 2 nous donne directement tous ces termes de couplages suivant les états initiaux et finaux. La probabilité d'ionisation totale du système en régime perturbatif est donnée par l'expression suivante :

$$\mathcal{P}_{lopt} = 1 - e^{-\Gamma_{fg}^{(N)} t} \quad (3.50)$$

Avec :

$$\Gamma_{fg}^{(N)} t = 2\pi C(N) I^N |D_{fg}^{(N)}|^2 \rho_f(E) T \quad (3.51)$$

Le temps  $t$ , pendant lequel a lieu l'interaction laser-atome, est égal à  $T$  (1.5).  $C(N)$  sont les coefficients (3.40) qui prennent en compte la forme temporelle de l'impulsion. La densité d'état  $\rho_f(E)$  intervient dans l'expression (3.51) car les états finaux  $f$  doivent être normalisés sur l'échelle des énergies. La figure (3.2) montre la probabilité d'ionisation

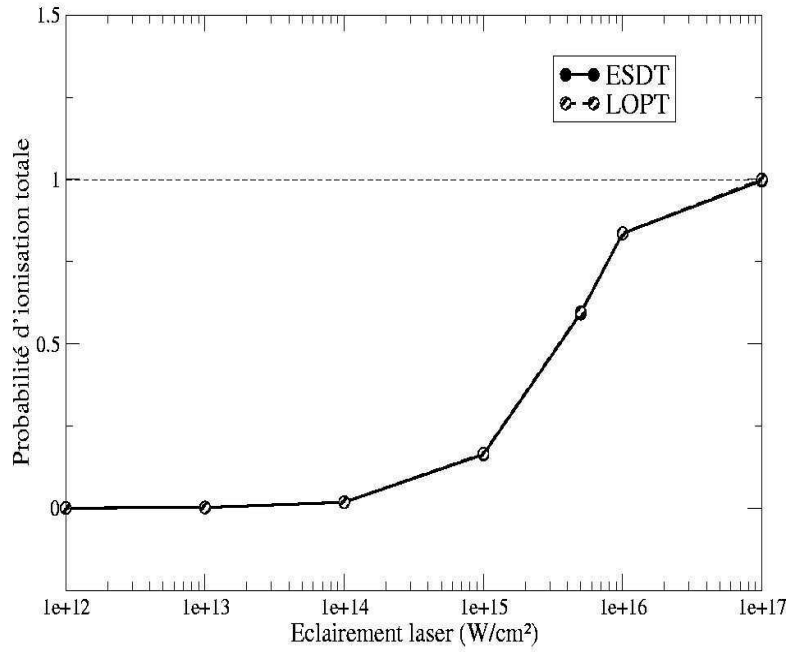


FIGURE 3.2: Probabilité d'ionisation totale de l'hélium par un champ laser d'énergie de photon  $\omega = 1.5$  u.a. et de durée  $T = 41.88$  u.a., en fonction de l'éclairement laser  $I$

totale de l'hélium en fonction de l'intensité du champ laser, pour un photon  $\omega = 1.5$  u.a. et pour une durée de propagation  $T = 41.88$  u.a. (10 cycles optiques). La base utilisée est la base  $I$  (tableau (2.1)(a)), et les résultats sont donnés dans la jauge longueur et en représentation Schrödinger. Nous constatons que, dans ce cas de figure, les résultats ESDT (3.19) et LOPT (3.50) concordent. Le paramètre de Keldysh  $\gamma$  (3.46) reste ici supérieur à 1. L'ionisation par absorption multiphotonique est donc dominante par rapport à l'ionisation par effet tunnel.

La figure (3.3) donne à présent la probabilité d'ionisation totale du béryllium en fonction de l'éclairement laser. L'énergie du photon est égale à 0.6 u.a., et la durée de l'impulsion est la même que précédemment. Nous observons cette fois-ci qu'à partir de  $5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> environ, les deux calculs s'écartent légèrement. Pour cet éclairement, le paramètre



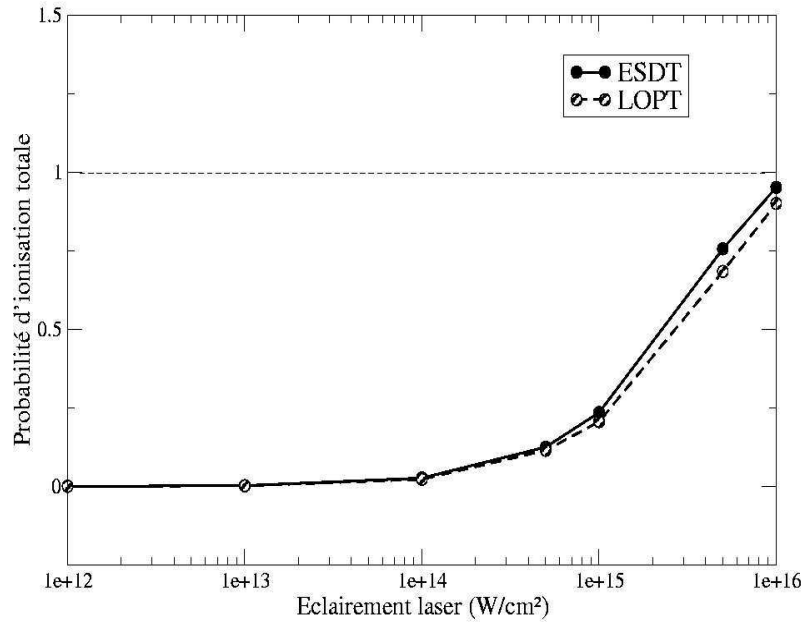


FIGURE 3.3: *Probabilité d'ionisation totale du béryllium par un champ laser d'énergie de photon  $\omega = 0.6$  u.a. et de durée  $T = 41.88$  u.a., en fonction de l'éclairement laser  $I$*

de Keldysh est ici proche de 1. Le traitement LOPT n'est plus à même de représenter l'interaction laser-atome.

Quoi qu'il en soit, à  $I = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, nous restons pour les deux systèmes atomiques dans les limites du domaine de validité : la définition de la section efficace que nous avons faite en (3.39) sera valable.

### 3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons développé une méthode numérique permettant de calculer la dynamique des systèmes atomiques diélectroniques irradiés par des champs lasers intenses et brefs. La méthode est basée sur un traitement non perturbatif du problème, où nous résolvons l'équation de Schrödinger dépendante du temps dans un cadre non relativiste. Nous utilisons pour ce faire une méthode spectrale, décrite dans le paragraphe 3.2, où nous développons les fonctions d'onde dépendantes du temps sur la base des états stationnaires de l'atome non perturbé. Une telle approche possède comme principaux avantages de nous permettre d'extraire facilement de nombreuses quantités physiques telles que la probabilité d'ionisation ou les populations des états du continu, mais également de

pouvoir obtenir des résultats avec des temps de calcul peu élevés.

Nous avons focalisé notre attention sur la représentation d'un processus particulier, à savoir la double ionisation atomique. Le paragraphe 3.3 fait le point sur les différents canaux de double ionisation ouverts par absorption multiphotonique depuis l'état fondamental. Contrairement au cas de l'absorption d'un photon, la double ionisation via l'absorption de deux photons ne nécessite pas de corrélations entre les électrons. Nous avons alors proposé deux approches pour définir les états finaux du double continuum. Dans une première approximation, nous avons négligé les effets de corrélations électron-électron en représentant ces états par un simple produit d'orbitales  $\text{He}^+$  dans le cas de l'hélium,  $\text{Be}^+$  pour le béryllium. A l'aide d'une approche originale, nous avons alors inclus des termes de corrélations radiales dans le double continuum atomique.

Nous avons finalement établi dans le paragraphe 3.4 le cadre de travail dans lequel nous allons appliquer notre méthode. Nous avons maintenant tous les outils en main pour fournir des résultats sur les processus de double ionisation multiphotonique des atomes d'hélium et de béryllium en champs lasers UV-XUV brefs.



Chapitre

4

## Double ionisation de l'hélium par absorption photonique

*“La théorie, c’est quand on sait tout et que rien ne fonctionne. La pratique, c’est quand tout fonctionne et qu’on ne sait pas pourquoi. Réunissez la pratique et la théorie : rien ne fonctionne et on ne sait pas pourquoi.”*

- Albert Einstein -



## 4.1 Introduction

Le premier thème que nous allons aborder dans ce chapitre est la double ionisation de l'atome d'hélium par absorption d'un unique photon. Malgré de nombreuses études sur le sujet depuis ces dernières décennies, ce processus reste encore aujourd'hui un problème attractif pour la communauté scientifique théorique et expérimentale. Il offre en effet une situation simple pour comprendre, entre autres, les effets de corrélations qui interviennent entre les deux électrons éjectés. D'un point de vue théorique, nous sommes en présence d'un problème fondamental à trois corps à l'échelle atomique. L'historique des différentes approches numériques adaptées à cette problématique a été exposé dans la section 3.2.1. Du côté expérimental, les sources synchrotron, de part leur possibilité de générer des rayonnements sur une large plage de hautes fréquences, ont été largement exploitées pour étudier ce processus d'interaction. De plus, l'hélium est facilement manipulable d'un point de vue expérimental. Les techniques mises en oeuvre pour "récolter" le plus grand nombre d'informations sont principalement basées sur la détection des électrons en coïncidence [71], ou sur la méthode COLTRIMS ("COLD-Target Recoil-Ion Momentum Spectroscopy") [72]. Une technique récente utilise des mesures faites par "coïncidences entre ions et électrons localisés" [73]. Les études menées sur la double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon sont nombreuses et variées. Des calculs de sections efficaces totales, ainsi que de rapports de probabilités entre simple et double ionisation sont les plus courants [60, 74, 75, 76, 77, 78, 79]. Nous pouvons également trouver une large littérature sur des calculs théoriques et des mesures expérimentales de sections efficaces différentielles, permettant d'étudier la distribution angulaire des électrons éjectés [3, 80, 81], de l'ion de recul  $\text{He}^{2+}$  [82, 83], ou encore les effets de dichroïsme [84, 85, 86]. Dans ce document, nous allons plutôt porter notre attention sur la répartition de l'énergie photonique entre les deux électrons éjectés [57, 87, 88, 89, 90, 91, 92]. Dans tous les cas, la théorie et l'expérience offrent de nombreux résultats en très bon accord. L'absorption d'un photon sera donc un bon test pour vérifier la méthode que nous avons développée.

La principale problématique vers laquelle nous allons nous pencher est la double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons. Dans ce cas de figure, une étude expérimentale est plus difficile à mettre en place. Côté théorique, elle ouvre toutefois de nouvelles perspectives d'un point de vue physique. La non linéarité du processus entraîne tout d'abord deux scénari possibles au niveau de l'éjection des deux électrons. L'absorption de deux photons peut éjecter directement les deux électrons et laisser un ion  $\text{He}^{++}$

doublement chargé, mais également produire un ion  $\text{He}^+$  avec le premier photon puis un ion  $\text{He}^{++}$  avec le deuxième photon. Ensuite, ce processus permet d'explorer de nouvelles régions du double continuum, où les états atteints sont de symétries  $^1S^e$  ou  $^1D^e$ . L'analyse des spectres en énergie des électrons va nous permettre de caractériser les différents mécanismes d'absorption suivant les énergies des photons [93]. Nous allons également observer le comportement de certains ions de la série isoélectronique de l'hélium [70, 94], ce qui nous amenera à une discussion sur la portée des effets de corrélations électroniques face aux effets de la charge nucléaire au sein de l'atome d'hélium.

Dans la troisième et dernière partie de ce chapitre, nous allons nous pencher sur l'évolution des mécanismes de double ionisation atomique suivant la durée de l'impulsion laser. Les avancées expérimentales actuelles, que nous avons présentées dans le chapitre 1, ouvrent en effet une nouvelle ère dans l'interaction laser-atome. Les échelles de temps sub-femtosecondes auxquelles évoluent les électrons au sein des atomes vont être désormais accessibles. Dans le cadre de notre étude, nous verrons qu'une impulsion dans le domaine spectral UV-XUV de quelques centaines d'attosecondes permet de sonder l'atome d'hélium. La durée d'impulsion est dans ce cas du même ordre de grandeur que le temps de relaxation électronique. Nous observerons alors des modifications caractéristiques dans les spectres en énergie des électrons éjectés.

Sauf indications contraires, les résultats présentés dans ce chapitre seront issus de l'approche non corrélée du double continuum décrite dans la section 3.3.3.

## 4.2 Absorption d'un photon

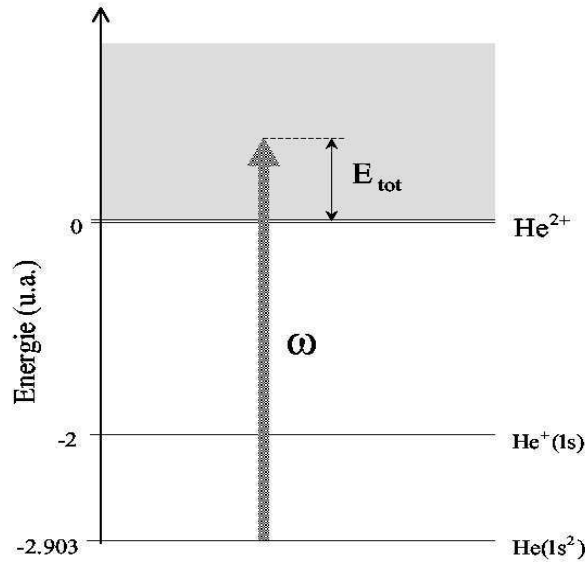


FIGURE 4.1: Schématisation de la double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon

La double ionisation de l'atome d'hélium par absorption d'un photon est schématisée sur la figure (4.1). Les deux électrons sont arrachés de l'attraction du noyau si l'énergie du photon est supérieure au potentiel atomique de double ionisation, à savoir 2.903 u.a. (79 eV). Dans ce cas, le photon couple directement l'état fondamental de l'hélium avec des états du double continuum. L'énergie totale que vont emporter les deux électrons lors de leur éjection est égale à l'énergie disponible au dessus du seuil de double ionisation. Comme l'indique la figure (4.1), elle est notée  $E_{tot}$ , et nous l'avons définie de façon générale dans l'expression (3.36).

La principale question que nous allons nous poser à partir de ce problème de base est de savoir comment cet excès d'énergie photonique au dessus du seuil de double ionisation sera partagé par les deux électrons. Un des deux électrons va-t-il emporter la majorité de l'énergie photonique? Les deux électrons partageront-ils de façon égale l'énergie entre eux? Pour répondre à ces interrogations, nous allons examiner les différentes quantités physiques observables lorsque le système atomique a absorbé un photon, et notamment les spectres énergétiques des électrons (3.34) et (3.37). Mais avant cela, présentons pour commencer quelques résultats de sections efficaces de double ionisation de l'hélium en fonction de l'énergie  $E_{tot}$ , ce qui va nous permettre de vérifier la convergence de notre



méthode numérique.

### 4.2.1 Section efficace d'ionisation

Une section efficace est un paramètre important du point de vue expérimental. Son expression, établie en (3.39), nous montre qu'elle est directement reliée à la probabilité d'ionisation du système atomique. Nous présentons sur la figure (4.2) quelques valeurs de sections efficaces de double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon, exprimées en kilobarns ( $1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$ ), en fonction de l'énergie totale disponible dans le double continuum (3.36). Les calculs ont été effectués dans les deux bases définies dans le tableau

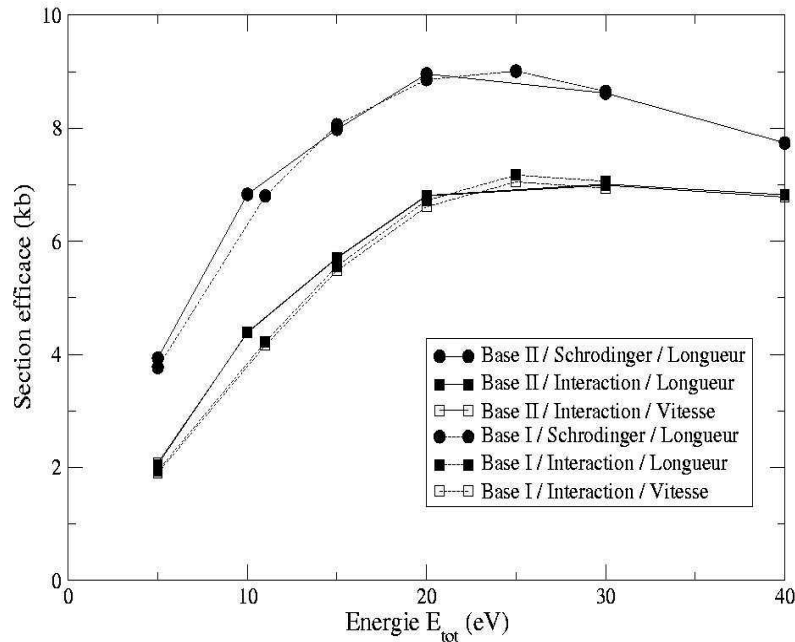


FIGURE 4.2: Sections efficaces totales de double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon en fonction de l'énergie totale disponible dans le double continuum

(2.1), ainsi qu'en résolvant l'ESDT dans les différentes jauges et représentations possibles (voir section 2.2.1). La première remarque que nous pouvons faire est que, dans une même représentation et même jauge de travail, les résultats sont quasiment identiques dans les deux bases. Nous rappelons que la base *I* possède un plus grand espace radial, mais avec une densité de fonctions B-splines par unité de longueur  $N_b/R_{max}$  moins importante que dans la base *II*. Aux énergies de photons considérées, les deux bases sont donc aptes à bien représenter la dynamique du processus de double ionisation à un photon. Au niveau du nombre de couplages angulaires disponibles, la base *II* en possède plus que la base

$I$  dans la symétrie  ${}^1P^e$  ( $L = 1$ ) qui nous intéresse ici. Le canal ( $L = 1, l_1 = 2, l_2 = 3$ ) est uniquement pris en compte dans la base  $II$ . Le faible écart de résultats dans les deux bases nous indique que la contribution de ce canal est faible, en accord avec la discussion tenue dans la section 3.3.2. Cependant, par souci de précision dans les calculs, nous utiliserons exclusivement la base  $II$  dans la suite du document pour décrire les processus à un photon.

Dans le cas d'une même base et même représentation, nous observons des résultats similaires quel que soit la jauge utilisée. Les seules différences significatives que nous observons sont dues à la représentation de l'ESDT adoptée. Les représentations Schrödinger et interaction nous donneraient des résultats identiques si les états finaux du double continuum étaient états propres du Hamiltonien de l'atome isolé (2.1). Cependant, nous avons fait l'approximation de représenter ces états sur la base d'un produit de fonctions hydrogéoïdes (voir section 3.3.3). De plus, en représentation interaction, dans laquelle sont annihilées les oscillations, les quantités physiques observées à la fin de l'impulsion à  $t = +T/2$  seront les mêmes à  $t > +T/2$ ; contrairement aux résultats en représentation Schrödinger qui subiront les oscillations atomiques après l'interaction. Dans la suite de ce document, les résultats que nous présenterons seront exclusivement issus de calculs effectués en représentation Schrödinger et en jauge longueur, sauf indication contraire.

Sur la figure (4.3), nous nous proposons de vérifier la validité de nos résultats de sections efficaces, en les comparant avec d'autres résultats existants. La double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon a été largement étudiée que ce soit du côté théorique ou expérimental. Nous avons choisi de reporter les calculs théoriques obtenus par Pont et coll. [75] en 1995 par une méthode "2SC", décrite dans la section 3.3.1. Nos calculs convergent parfaitement avec les leurs. Les sections efficaces de Kossmann et coll. [78], ainsi que celles de Samson et coll. [79], sont obtenues expérimentalement par rayonnement synchrotron. Elles sont également dans un même ordre de grandeur que nos résultats.

Nous venons de constater que l'approche non perturbative de l'interaction laser-atome, que nous avons développée dans le chapitre précédent, est à même de nous fournir des résultats parfaitement exploitables et convergents par rapport aux résultats connus. La description d'un double continuum non corrélé est donc une bonne approximation pour étudier des sections efficaces totales d'ionisation. Cependant, il est important de noter que le calcul de sections efficaces différentielles, dont nous n'aborderons pas le sujet ici, nécessiterait quant à lui la prise en compte des corrélations électron-électron dans le double continuum.

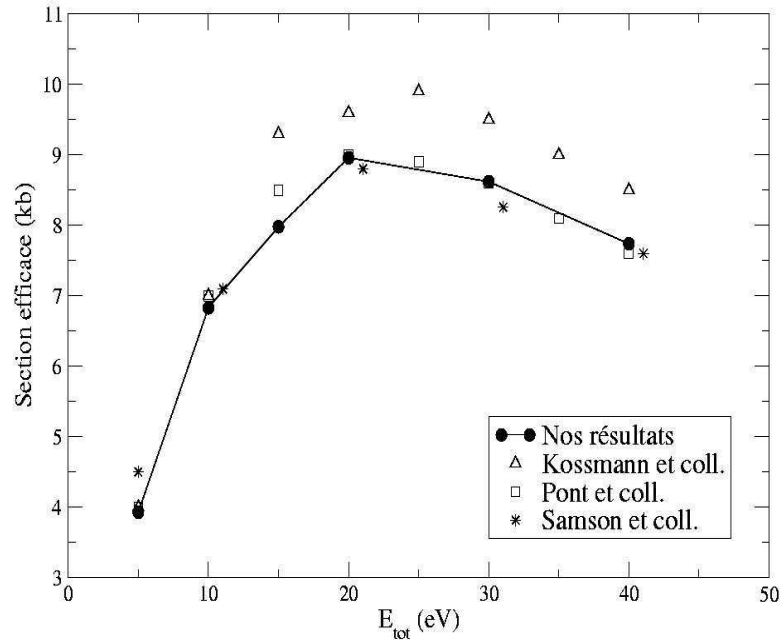


FIGURE 4.3: Sections efficaces totales de double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon - Comparaison de nos résultats avec ceux obtenus par Pont et coll. [75], Kossmann et coll. [78] et Samson et coll. [79]

Nous allons maintenant nous pencher sur la répartition de l'énergie photonique amenée par le champ laser entre les deux électrons éjectés dans le double continuum.

#### 4.2.2 La distribution énergétique

Nous avons représenté sur la figure (4.4) les courbes isopotentielles correspondant à la densité de probabilité de trouver les électrons éjectés avec les énergies respectives  $E_1$  et  $E_2$ , dans le cas d'un photon d'énergie de 4 u.a. (108.8 eV). L'éclairement du champ laser est ici de  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, avec une durée d'impulsion de 25.13 u.a. (0.6 fs). Ce graphe a été obtenu à l'aide de la relation (3.34), et correspond à la somme de tous les canaux d'ionisation ouverts dans le cas de la base *II* du tableau (2.1), soit  $(L = 1, l_1 = 0, l_2 = 1)$ ,  $(L = 1, l_1 = 1, l_2 = 2)$  et  $(L = 1, l_1 = 2, l_2 = 3)$ . Nous remarquons tout d'abord que la région de plus forte probabilité se situe sur une diagonale vérifiant la relation  $E_1 + E_2 \simeq 0.9$  u.a.. La relation de conservation d'énergie, définie en (3.36), nous dit que la somme des énergies des deux électrons éjectés doit être égale à l'énergie totale disponible au dessus du seuil de double ionisation, soit dans ce cas :

$$E_1 + E_2 = E_g + \omega = -2.903 + 4. = 1.1 \text{ u.a.} \quad (4.1)$$

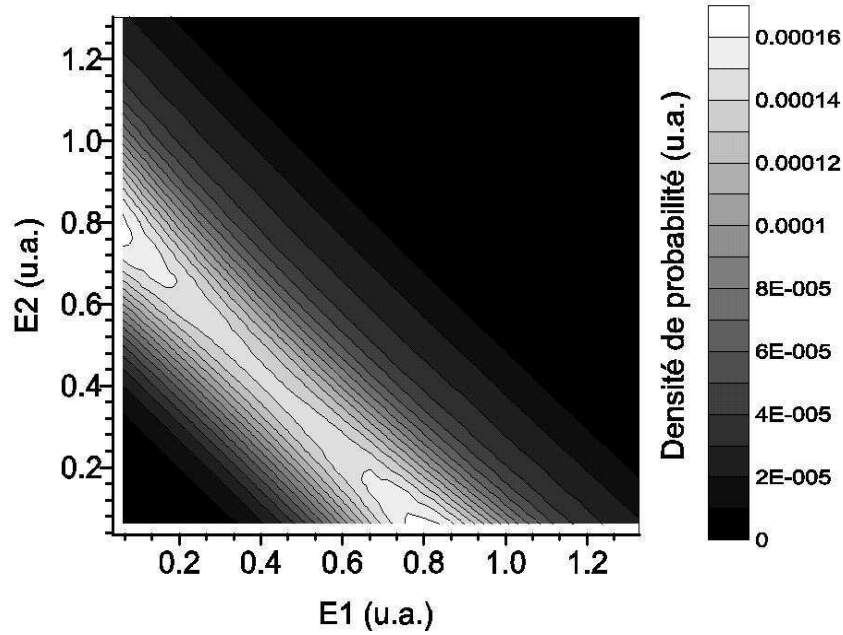


FIGURE 4.4: *Distribution de la densité de probabilité totale de double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon - Caractéristiques du champ laser :  $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$  ;  $\omega = 4 \text{ u.a.}$  ; 16 cycles optiques*

L'écart entre le résultat théorique attendu et le résultat "mesuré" sur le spectre (4.4) s'explique par les approximations faites dans la représentation du double continuum. Deuxièmement, nous pouvons observer que la répartition de la probabilité le long de cette diagonale est assez étalée, sans véritable pic maximum, d'après les valeurs de la densité données en unités atomiques sur l'échelle des couleurs. Ceci nous permet d'en conclure qu'un électron n'emporte pas exclusivement la majorité de l'énergie disponible par rapport à l'autre, mais que l'énergie photonique est distribuée de façon uniforme entre les deux électrons. De récents travaux expérimentaux effectués par Achler et coll. [91], et présentés sur la figure (4.5), viennent ainsi confirmer l'allure de notre spectre théorique. Ils ont étudié la double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon d'énergie  $\omega = 3.6 \text{ u.a.}$ , mais en utilisant un rayonnement synchrotron. Cependant, il est raisonnable de penser que la physique reste inchangée. Le spectre expérimental intégré par rapport à l'énergie d'un électron, représenté sur la droite de la figure (4.5), montre bien que la distribution n'a pas de véritable maximum. La seule différence notable observée par rapport au spectre théorique vient de la distribution totale. Il apparaît expérimentalement une zone de haute probabilité supplémentaire pour les plus faibles énergies des électrons lorsque  $E_1 \simeq E_2$ .

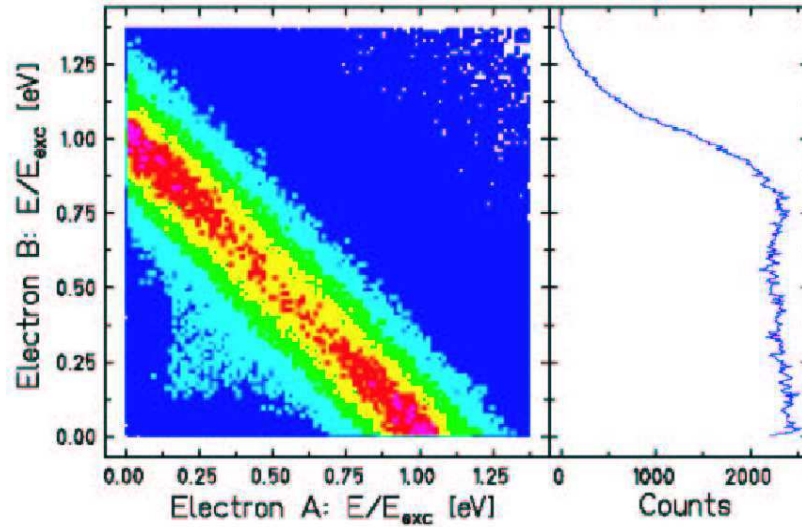


FIGURE 4.5: *Distribution énergétique des électrons obtenue expérimentalement par Achler et coll. [91] par rayonnement synchrotron*

Pour essayer d'expliquer cette différence, regardons de façon plus précise la répartition énergétique que nous obtenons suivant les différents canaux d'ionisation. Nous rappelons ici que le spectre (4.4) correspond à la somme de tous les canaux d'ionisation ( $L = 1, l_1, l_2$ ) ouverts dans la base *II*. La figure (4.6) nous donne la distribution énergétique dans chacun de ces canaux. Nous constatons dans un premier temps que le couple d'électrons de moments angulaires  $l_1 = 0$  et  $l_2 = 1$  a la plus grande probabilité d'être éjecté dans le double continuum, par rapport aux couples  $(l_1 = 1, l_2 = 2)$  et  $(l_1 = 2, l_2 = 3)$ . Ceci est en accord avec le raisonnement tenu dans la section 3.3.2 où nous avons montré que ce canal d'ionisation était dominant, puisqu'il est issu directement des corrélations électroniques radiales de l'état fondamental. Les autres couplages ne sont possibles qu'en prenant en compte les corrélations angulaires. Dans le canal d'ionisation ( $L = 1, l_1 = 1, l_2 = 2$ ), nous observons une zone de haute probabilité en dehors de la ligne de conservation d'énergie, pour des faibles énergies telles que  $E_1 \simeq E_2$ . Ainsi, le même comportement est observé sur le spectre expérimental. Le spectre théorique total (4.4) n'est pas en mesure de représenter les différentes nuances apportées par chaque canal puisque le couplage ( $L = 1, l_1 = 0, l_2 = 1$ ) est largement majoritaire par rapport aux deux autres couplages.

### 4.2.3 Les corrélations électroniques et la charge $Z$

Dans l'annexe B, nous montrons que l'interaction entre un ion hydrogénoïde et un champ laser peut être comparée de façon simple avec le comportement de l'atome d'hy-

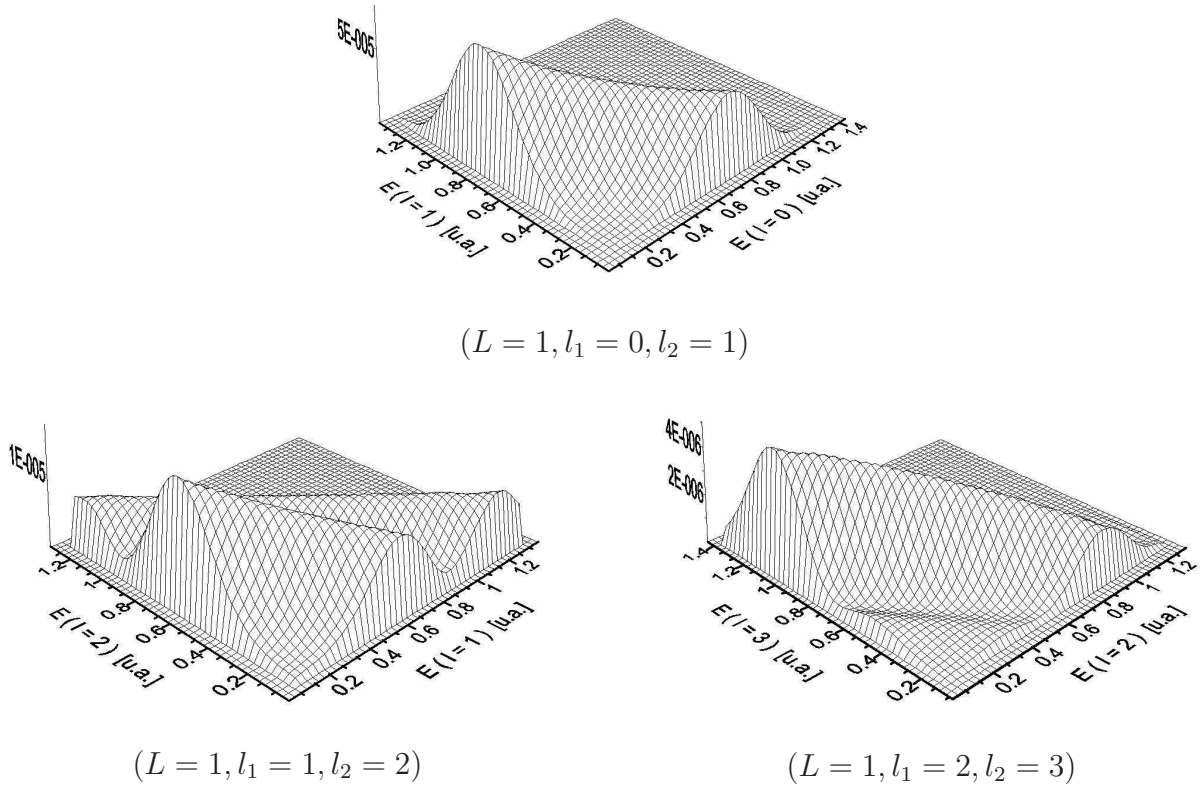


FIGURE 4.6: *Distribution de la densité de probabilité de double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon pour chaque canal pris en compte dans la figure (4.4)*

drogène en pareil cas. Pour cela, il suffit d'accorder les différents paramètres du problème par rapport à des lois d'échelles suivant la charge  $Z$ , définies dans le tableau (B.1). Ceci peut également s'appliquer à l'hélium et aux ions de sa série isoélectronique, si la condition suivante est respectée :

$$(i) \quad \text{Le terme de corrélations électroniques est négligé} \quad (4.2)$$

Ceci équivaut à représenter l'état fondamental à l'ordre zéro de la théorie des perturbations en  $1/r_{12}$ .

### La simple ionisation

Dans un premier temps, appliquons les lois d'échelles au cas de la simple ionisation par absorption d'un photon. Le tableau (4.1) donne les probabilités totales de simple ionisation par absorption d'un photon de l'atome d'hélium, ainsi que des ions bore  $B^{3+}$  et néon  $Ne^{8+}$ . Le calcul d'une probabilité de simple ionisation s'obtient comme suit :

$$\mathcal{P}_{nk} = \mathcal{P}_{ionis}(L) - \mathcal{P}_{kk} \quad (4.3)$$

	He( $Z=2$ )	B <sup>3+</sup> ( $Z=5$ )	Ne <sup>8+</sup> ( $Z=10$ )
Probabilité totale de simple ionisation	0.0016	0.0019	0.0020

TABLEAU 4.1: Probabilités totales de simple ionisation de l'hélium, de l'ion Be<sup>3+</sup> et de l'ion Ne<sup>8+</sup> par absorption d'un photon - Les paramètres des systèmes Be<sup>3+</sup>-laser et Ne<sup>8+</sup>-laser sont calibrés d'après les lois d'échelles en  $Z$  sur ceux du système hélium-laser suivants :  $I = 3.5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> ;  $\omega = 4$  u.a. ; 16 cycles optiques ;  $R_{max} = 50$  u.a.

$\mathcal{P}_{ionis}(L)$  est la contribution de la symétrie  $L$  dans l'expression de la probabilité d'ionisation totale (3.19). Dans le cas présent, nous devons prendre en compte le poids de  $L = 1$ .  $\mathcal{P}_{kk}$  est la probabilité totale de double ionisation (3.38). Elle est ici égale à la somme des probabilités dans les canaux ( $L = 1, l_1, l_2$ ) ouverts dans la base  $II$  définie dans le tableau (2.1)(b). Les paramètres du système hélium-laser sont les suivants :  $\omega = 4$  u.a.,  $I = 3.5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, 16 cycles optiques,  $R_{max} = 50$  u.a.. L'ion B<sup>3+</sup> possède une charge  $Z$  égale à 5 u.a., l'ion Ne<sup>8+</sup> une charge  $Z = 10$  u.a.. L'énergie du photon dans le cas de l'ion B<sup>3+</sup> est calculée, d'après le tableau (B.1), de la façon suivante :

$$\omega_{B^{3+}} = \omega_{He} \left( \frac{Z_{B^{3+}}}{Z_{He}} \right)^2 = 25 \text{ u.a.} \quad (4.4)$$

Avec  $\omega_{He}$  l'énergie du photon dans le cas de l'hélium. De la même façon, l'énergie du photon pour le système Ne<sup>8+</sup>-laser sera égale à 100 u.a.. L'énergie des états fondamentaux de ces deux ions a été donnée dans le tableau (2.5).

Nous constatons avec le tableau (4.1) que les probabilités restent quasiment constantes le long de la série isoélectronique. Elles sont donc en bon accord avec la loi d'échelle attendue suivante :

$$\mathcal{P}^{(N)}(Z) = \tilde{\mathcal{P}}^{(N)} \quad , \quad \forall Z \quad (4.5)$$

Où  $\tilde{\mathcal{P}}$  est associée au système de référence hydrogène-laser (voir annexe B). Quel que soit le système héliumoïde étudié, la relation (4.5) nous dit qu'il aura la même probabilité d'ionisation que l'atome d'hélium, si leurs paramètres respectifs suivent les lois d'échelles du tableau (B.1). Ce résultat s'applique ici, conformément avec la discussion de la section 3.3.2 où nous avons montré que le processus de simple ionisation par absorption d'un photon était possible sans la prise en compte des effets de corrélations électron-électron

dans les états initiaux et finaux, ce qui valide la condition (4.2).

Les figures (4.7) et (4.8) vont nous permettre maintenant d'observer plus précisément le comportement de l'hélium et de l'ion  $B^{3+}$ . D'un côté, nous avons représenté sur la figure

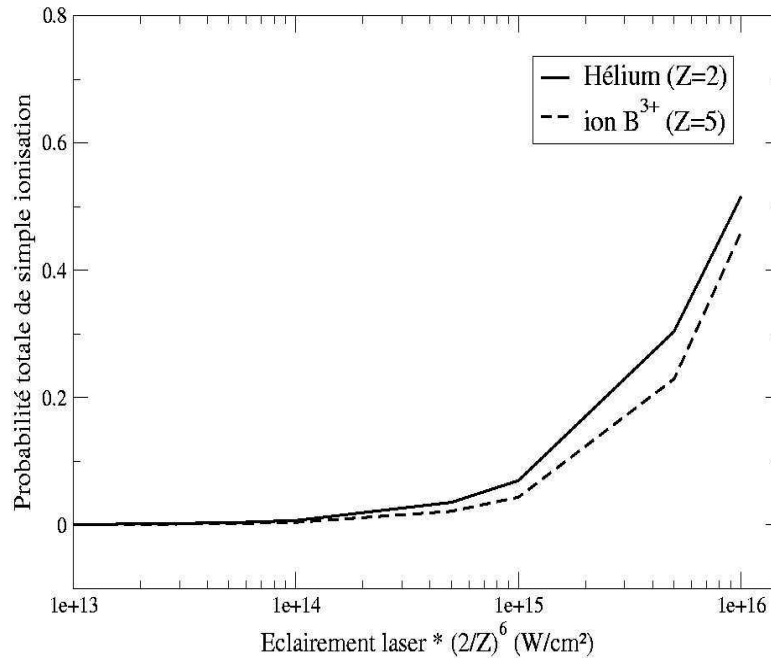


FIGURE 4.7: Probabilité totale de simple ionisation en fonction de l'éclairement du champ laser - Les paramètres du système  $B^{3+}$ -laser sont calibrés d'après les lois d'échelles en  $Z$  sur ceux du système hélium-laser suivants :  $\omega = 1.5$  u.a. ; 10 cycles optiques ; base  $I$

(4.7) l'évolution de la probabilité totale de simple ionisation en fonction de l'éclairement laser. De l'autre, la figure (4.8) définit la probabilité d'exciter avec un photon un état discret du continu en fonction de l'énergie des niveaux atomiques fondamentaux. Les abscisses des deux figures ont subi un changement d'échelle par rapport à la charge pour pouvoir ainsi comparer de façon efficace les deux systèmes.

Avec ces deux exemples, nous remarquons que les résultats de l'atome d'hélium et de l'ion  $B^{3+}$  ne sont que légèrement décalés l'un par rapport à l'autre. L'explication de cette observation tient en deux points. Tout d'abord, nous savons d'après l'équation (B.7) que le terme d'interaction diélectronique dépend d'un facteur en  $1/Z$ . Ainsi, pour des systèmes de charge nucléaire de plus en plus élevée, les effets de corrélations diélectroniques deviendront négligeables devant les effets de la charge. Ceci est le cas de l'ion  $B^{3+}$  de charge  $Z = 5$  u.a.. En revanche, la force attractive nucléaire et la force répulsive diélectronique sont du même ordre de grandeur au niveau de l'atome d'hélium, où la charge n'est que de



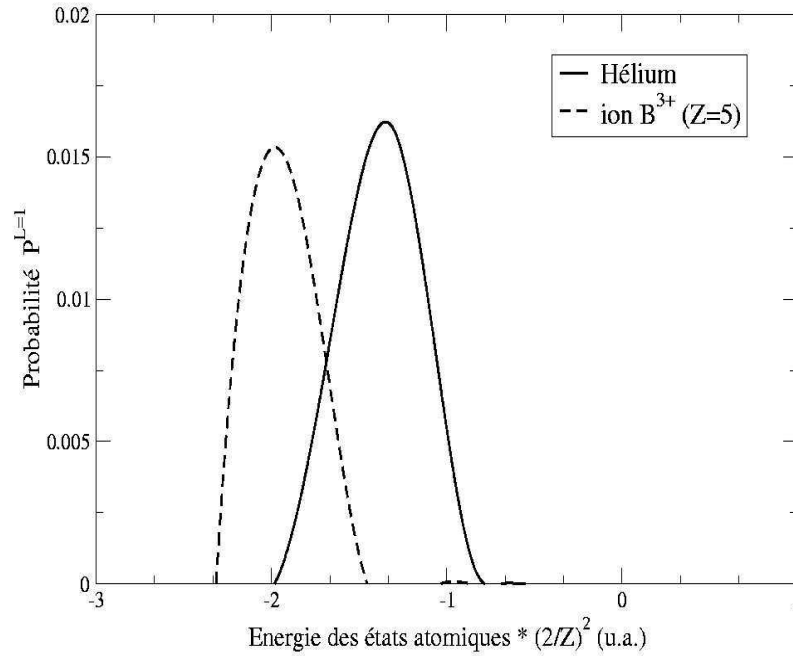


FIGURE 4.8: Population des états du continu après absorption d'un photon de 1.5 u.a. - Caractéristiques du champ laser : voir figure (4.7)

2 u.a.. L'écart de résultats entre le comportement de l'hélium et de l'ion multichargé est une observation directe des effets de corrélations électron-électron dans l'état fondamental de l'atome d'hélium. D'autre part, cet écart de comportement sur les figures (4.7) et (4.8) reste tout de même faible car le processus de simple ionisation par absorption d'un photon étudié ici peut se produire sans les corrélations électroniques. Regardons ce qu'il en est dans le cas de la double ionisation, où leur prise en compte est nécessaire.

### La double ionisation

Le tableau (4.2) donne des probabilités totales de double ionisation par absorption d'un photon, dans le cas de l'hélium et des ions  $B^{3+}$  et  $Ne^{8+}$ . Ces calculs ont été effectués à l'aide de l'expression (3.38) dans la base  $II$  (tableau (2.1)). Les paramètres relatifs aux systèmes ions-laser sont toujours calibrés d'après les lois d'échelles en  $Z$  du tableau (B.1). Ici, nous remarquons que les probabilités totales évoluent suivant le système multichargé. La loi d'échelle (4.5) n'est plus applicable dans le cas de la double ionisation par absorption d'un photon car ce processus nécessite la prise en compte des termes correctifs en  $1/r_{12}$  dans la description de l'état fondamental et/ou final. Pour définir la nouvelle loi d'échelle sur les probabilités, utilisons comme point de départ l'expression (3.50) de la probabilité

	He(Z=2)	B <sup>3+</sup> (Z=5)	Ne <sup>8+</sup> (Z=10)
Probabilité totale			
de double ionisation	$3.6 \times 10^{-5}$	$5.4 \times 10^{-6}$	$9.5 \times 10^{-7}$

TABLEAU 4.2: Probabilités totales de double ionisation de l'hélium, de l'ion B<sup>3+</sup> et de l'ion Ne<sup>8+</sup> par absorption d'un photon - Les paramètres des systèmes B<sup>3+</sup>-laser et Ne<sup>8+</sup>-laser sont calibrés d'après les lois d'échelles en Z sur ceux du système hélium-laser suivants :  $I = 3.5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> ;  $\omega = 4$  u.a. ; 16 cycles optiques ;  $R_{max} = 50$  u.a.

en régime perturbatif. En introduisant le terme du premier ordre dans la fonction d'onde de l'état fondamental, nous obtenons alors :

$$\mathcal{P}_{kk}^{(N=1)} \propto 2\pi I | \langle \phi_{1s}\phi_{1s} + \sum_{n,n'} \frac{\langle \phi_{1s}\phi_{1s} | \frac{1}{r_{12}} | \phi_n\phi_{n'} \rangle \langle \phi_n\phi_{n'} | \vec{r} \cdot \vec{E} | \psi_f \rangle}{E_{1s^2} - E_{nn'}} |^2 \rho_f(E) C(1) T \quad (4.6)$$

Où  $\psi_f$  représente la fonction d'onde des états finaux du double continuum à l'ordre zéro. D'après (3.22), nous savons que le terme  $\langle \phi_{1s}\phi_{1s} | \vec{r} \cdot \vec{E} | \psi_f \rangle$  est nul. Les lois d'échelles sur Z définies dans le tableau (B.1) concernant les autres termes de l'expression (4.6) nous donnent finalement :

$$\mathcal{P}_{kk}^{(N=1)}(Z) = \frac{1}{Z^2} \tilde{\mathcal{P}}_{kk}^{(N=1)} \quad (4.7)$$

Les résultats obtenus dans le tableau (4.2) pour la double ionisation concordent maintenant relativement bien avec la loi en Z ci-dessus (4.7).

Regardons pour finir sur la figure (4.9) la distribution de la densité de probabilité de double ionisation en fonction des énergies  $E_1$  et  $E_2$  des deux électrons éjectés. Les paramètres relatifs aux systèmes ions-laser sont toujours calibrés suivant ceux du système hélium-laser donnés plus haut. Nous observons que la répartition de la probabilité reste globalement la même le long de la série isoélectronique. La diagonale de plus haute probabilité est toutefois de moins en moins marquée au fur et à mesure que la charge Z augmente. Ceci est dû à la largeur spectrale  $\Delta\omega$  du champ laser, définie en (1.7), qui devient de plus en plus importante.

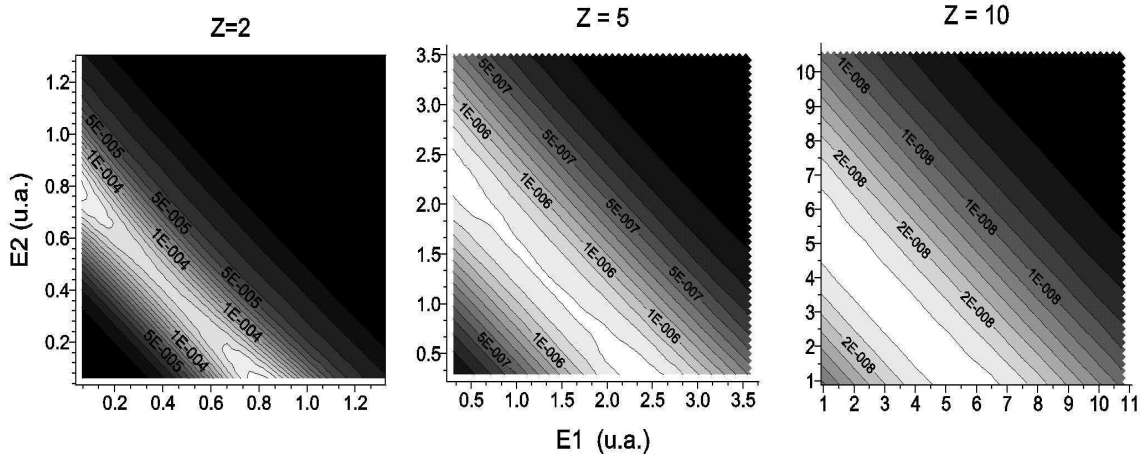


FIGURE 4.9: *Distribution de la densité de probabilité totale de double ionisation de l'hélium et des ions de sa série isoélectronique par absorption d'un photon - Caractéristiques du champ laser : voir tableau (4.2)*

### 4.3 Absorption de deux photons

La double ionisation de l'atome d'hélium par absorption de deux photons est un processus riche en physique car il implique plusieurs voies possibles. Nous allons tout d'abord présenter des résultats de sections efficaces pour vérifier la convergence de quelques approches traitant du sujet. Puis, à l'aide des spectres en énergie des électrons éjectés, nous allons caractériser les différents mécanismes de ce processus suivant l'énergie des photons absorbés. Nous verrons alors si les effets de corrélations électroniques, qui sont bien définis au niveau de l'état fondamental atomique ainsi que durant la propagation laser, vont apporter des modifications de résultats si nous les incluons dans la description du double continuum. Enfin, nous regarderons également la double ionisation par deux photons de certains ions de la série isoélectronique de l'hélium.

#### 4.3.1 Convergence des théories ?

Sur la figure (4.10), nous présentons des résultats de sections efficaces de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons, issus de différentes approches numériques récentes. La description des méthodes utilisées a été faite dans la section 3.2.1. Les résultats de Piraux et coll. [95] sont issus de la résolution directe de l'ESDT sur une base radiale de fonctions Sturmienne. Colgan et Pindzola [96], quant à eux, utilisent une méthode de close-coupling dépendante du temps où la fonction d'onde totale est construite sur une grille de points. Feng et van der Hart [50] travaillent avec le formalisme de la théorie de

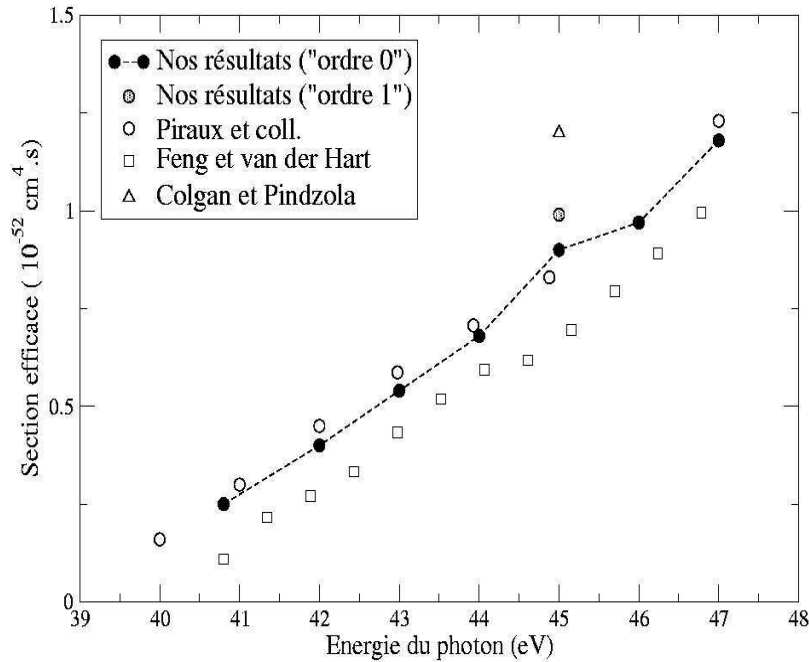


FIGURE 4.10: Sections efficaces de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons - Nos résultats sont comparés avec ceux obtenus par Piraux et coll. [95], Feng et coll. [50] et Colgan et coll. [96]

Floquet et de la matrice R, qui prend en compte les corrélations électron-électron au niveau de l'état final. Nos propres calculs présentés ici ont été effectués par deux approches. La première, appelée "ordre zéro", définit les états du double continuum de façon non corrélée (section 3.3.3). La deuxième, nommée "ordre un", prend alors en compte des corrélations radiales entre les électrons dans le double continuum (section 3.3.4).

D'un point de vue général, nous pouvons constater que toutes les sections efficaces présentées sur la figure (4.10) restent dans un même ordre de grandeur. Faisons un "zoom" sur l'énergie de photon  $\omega = 45$  eV (1.65 u.a.), là où les calculs sont les plus nombreux. L'écart maximal observé entre les différents résultats reste dans un facteur de l'ordre de 1.3. Il est raisonnable de penser que, vu les différences spécifiques de chaque approche, cet écart est acceptable. D'autres calculs, non indiqués sur la figure, sont présentés par souci de clarté dans le tableau (4.3). Nikolopoulos et Lambropoulos [97], avec une méthode perturbative, trouvent une section efficace de  $7.1 \times 10^{-52}$  cm<sup>4</sup>s, ce qui est un facteur huit fois plus grand que nos résultats à l'ordre zéro. Mercouris et coll., [98] avec une résolution non perturbative spécifique, obtiennent également une section efficace beaucoup plus élevée que la nôtre, à savoir  $6.3 \times 10^{-52}$  cm<sup>2</sup>s. Notons que ces deux valeurs reportées ici sont différentes

$\omega$ (eV)	Nos résultats ordre 0 / ordre 1 (cm <sup>4</sup> s)	Nikolopoulos et coll. [97] (cm <sup>4</sup> s)	Mercouris et coll. [98] (cm <sup>4</sup> s)
45	$0.9 \times 10^{-52} / 0.99 \times 10^{-52}$	$7.1 \times 10^{-52}$	$6.3 \times 10^{-52}$
55.8	$2.71 \times 10^{-52} / 2.62 \times 10^{-52}$		$4.6 \times 10^{-52}$

TABLEAU 4.3: *Sections efficaces de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons - Nos résultats sont comparés avec ceux obtenus par Nikolopoulos et coll. [97] et Mercouris et coll. [98]*

de celles présentées dans leurs articles respectifs. Nous avons pris soin de transformer leurs résultats par rapport à la définition de la section efficace que nous avons choisie dans ce document (3.39), pour ainsi comparer des grandeurs similaires.

Nous retenons ici que la convergence des divers résultats est correcte dans son ensemble. Cependant, des efforts restent à faire quant à l'uniformisation des représentations du double continuum. Pour notre part, nos calculs de sections efficaces dans l'approche corrélée ou non corrélée du double continuum ne présentent pas de différences majeures. L'introduction des corrélations dans le double continuum n'influe donc pas de façon significative sur la valeur de la section efficace totale. Nous nous pencherons plus en détails sur ce sujet dans la suite de ce document.

### 4.3.2 Ionisation directe et ionisation séquentielle

#### Processus

Etudions quels vont être les processus d'absorption possibles à travers la structure électronique de l'atome. L'atome d'hélium peut être doublement ionisé par absorption de deux photons d'énergies supérieures à 1.45 u.a. (39.5 eV). Deux voies sont alors réalisables lors du mécanisme d'absorption des photons. La première, la double ionisation **directe**, est représentée schématiquement sur la figure (4.11)(a). La fonction d'onde décrivant l'évolution de l'atome passe d'un état lié - l'état fondamental - vers un état du double continuum via l'excitation "virtuelle" d'états intermédiaires. La seconde voie possible est la double ionisation **séquentielle**, décrite sur la figure (4.11)(b). Dans ce cas, l'absorption des deux photons peut être décomposée en deux séquences distinctes. L'absorption

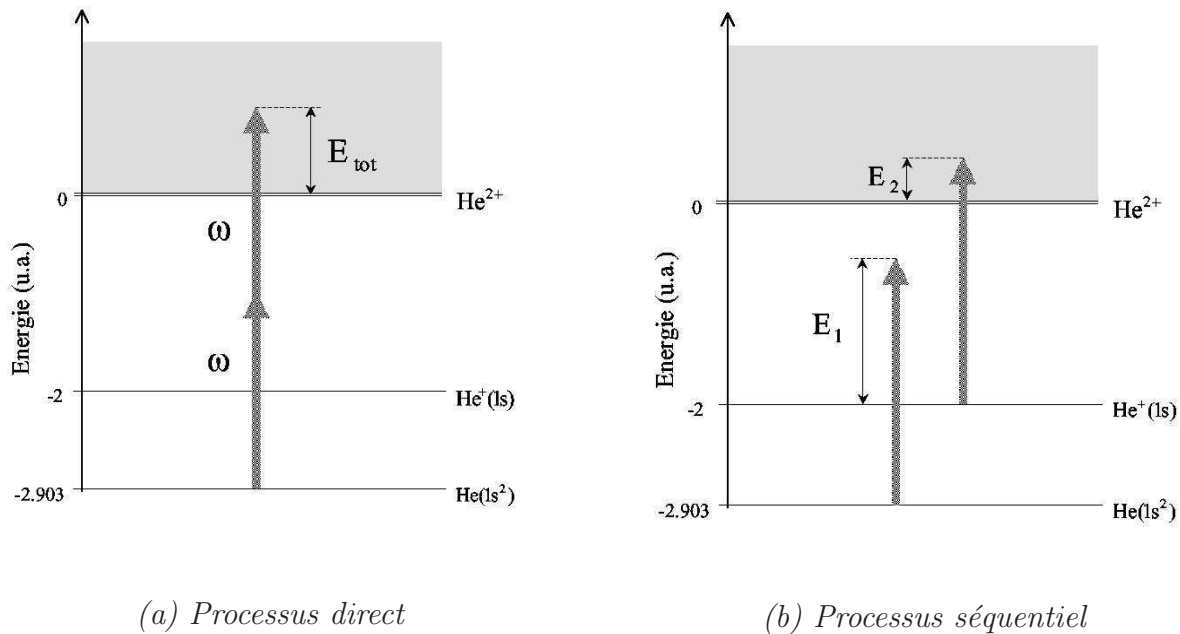


FIGURE 4.11: Schématisation de la double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons

du premier photon, “séquence 1”, éjecte un électron d'énergie  $E_1$  et produit ainsi l'ion  $\text{He}^+$  dans son état fondamental  $1s$ . L'absorption du second photon, “séquence 2”, va alors ioniser l'ion  $\text{He}^+(1s)$  pour donner un ion résiduel  $\text{He}^{++}$  et éjecter le deuxième électron dans le double continuum avec une énergie  $E_2$ . Réussir à caractériser de façon systématique les deux processus de double ionisation est un challenge intéressant. D'un point de vue énergétique, seule la double ionisation directe sera autorisée pour des énergies de photons comprises entre 1.45 u.a. et 2 u.a.. En effet, pour un photon d'énergie inférieure au potentiel de simple ionisation de  $\text{He}^+$ , le processus séquentiel ne pourra atteindre le double continuum qu'avec l'absorption de trois photons. Par contre, dans le cas de photons d'énergie supérieure à 2 u.a., les deux processus d'ionisation vont pouvoir avoir lieu : quel sera alors le processus dominant ?

### Spectres caractéristiques

Grâce à l'étude des spectres en énergie des électrons résultant de la double ionisation, définis en (3.34) et (3.37), nous allons pouvoir obtenir des renseignements quant au processus d'ionisation privilégié. Regardons tout d'abord la distribution totale de la densité de probabilité de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons de 1.6 u.a., présentée sur la figure (4.12). L'éclairement du champ laser est de  $10^{14} \text{ W/cm}^2$ , pour une durée d'impulsion de l'ordre de la femtoseconde. Les calculs ont été effectués

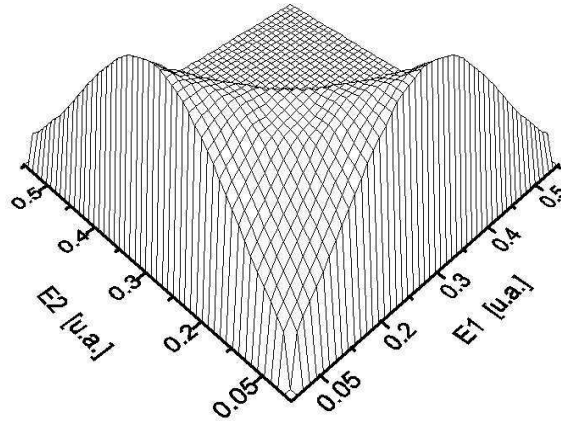


FIGURE 4.12: *Distribution de la densité de probabilité totale de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons - Caractéristiques du champ laser :  $I = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> ;  $\omega = 1.6$  u.a. ; 10 cycles optiques*

dans la représentation non corrélée du double continuum (section 3.3.3). La distribution (4.12) représente la somme des contributions de tous les canaux de type  $(L = 0, l_1, l_2)$  et  $(L = 2, l_1, l_2)$  ouverts dans la base  $I$  (tableau (2.1)), en fonction des énergies respectives  $E_1$  et  $E_2$  des deux électrons. Nous constatons que la répartition de la densité de probabilité est assez étalée, sans véritable zone de probabilité maximale. Ceci nous montre que les électrons ont tendance à se partager uniformément l'énergie totale disponible dans le double continuum, à savoir ici  $E_{tot} = 0.3$  u.a.. L'énergie des photons est égale à 1.6 u.a., ce qui n'autorise dans ce cas que la double ionisation directe. Ainsi, nous en concluons que la forme du spectre observée sur la figure (4.12) est la répartition en énergie caractéristique de la double ionisation directe.

La figure (4.13) montre la distribution en énergie des électrons éjectés par un champ laser de même éclairement que précédemment, mais cette fois-ci avec des photons d'énergies égales à 2.1 u.a.. Dans ce cas, la voie directe et la voie séquentielle sont toutes les deux autorisées énergétiquement. Nous observons sur la figure (4.13)(a) une répartition de la densité de probabilité marquée par deux maximums bien définis, symétriques par rapport à la diagonale  $E_1 = E_2$ . Un électron est donc éjecté avec une énergie beaucoup plus élevée que celle de l'autre électron. Pour caractériser plus précisément ces énergies, regardons le spectre intégré à un électron (4.13)(b) calculé à l'aide de l'expression (3.37). Les pics observés se trouvent respectivement à 1.1 u.a. et 0.09 u.a.. Si nous revenons au diagramme représentant la double ionisation séquentielle (4.11)(b), les énergies théoriques attendues

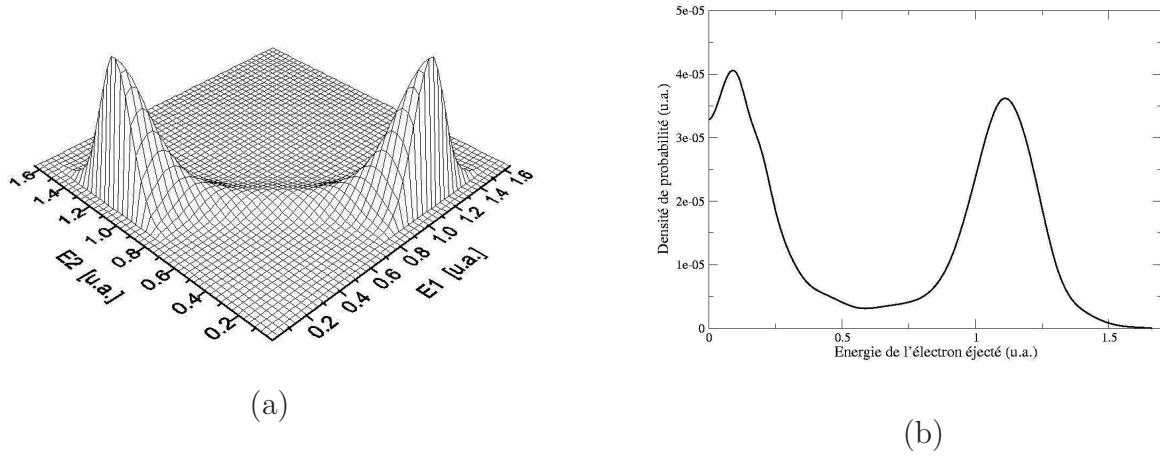


FIGURE 4.13: (a) *Distribution de la densité de probabilité totale de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons* (b) *Spectre intégré à un électron - Caractéristiques du champ laser :  $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$  ;  $\omega = 2.1 \text{ u.a.}$  ; 14 cycles optiques*

pour chacun des électrons éjectés s'établissent de la façon suivante :

$$E_1 = E_{He(1s^2)} + \omega - E_{He^+(1s)} \quad (4.8)$$

$$E_2 = E_{He^+(1s)} + \omega \quad (4.9)$$

Avec  $\omega = 2.1 \text{ u.a.}$ , nous obtenons d'après les deux expressions ci-dessus  $E_1 = 1.2 \text{ u.a.}$  et  $E_2 = 0.1 \text{ u.a.}$ . Le pic de plus haute énergie obtenu sur le spectre (4.13)(b) correspond au processus (4.8), c'est-à-dire à l'ionisation par un photon de l'hélium dans son état fondamental. Le pic de plus basse énergie, quant à lui, est la signature de l'ionisation de l'ion  $He^+(1s)$  par le second photon (4.9). Les valeurs des énergies  $E_1$  et  $E_2$  théoriques et celles obtenues par le calcul sur la figure (4.13)(b) ne sont pas exactement les mêmes car nous avons utilisé des approximations pour représenter les états du double continuum (voir section 3.3.3).

Pour des énergies de photons supérieures à  $2 \text{ u.a.}$ , domaine où les voies séquentielle et directe sont possibles, l'analyse du spectre énergétique nous permet donc de dire que le processus de double ionisation dominant est le processus séquentiel, en accord avec [69]. Une deuxième information importante peut être tirée du spectre (4.13)(b). La distance entre les deux pics va correspondre à l'énergie de corrélation électronique dans l'état fondamental. En effet, l'écart énergétique entre les pics, d'après (4.8) et (4.9), est donné par l'expression suivante :

$$E_{corr} = E_1 - E_2 = E_{He(1s^2)} - 2 \times E_{He^+(1s)} \quad (4.10)$$

Nous définissons les corrélations électroniques de la façon suivante :



l'énergie de corrélation électronique  $E_{corr}$  dans l'état fondamental de l'hélium est la différence entre l'énergie du fondamental  $E_{He(1s^2)} = -2.903$  u.a. calculée de façon "exacte", et l'énergie du fondamental  $E_{1s^2} = -4$  u.a. obtenue avec un modèle à deux électrons indépendants.

En d'autres termes, l'énergie de corrélation quantifie la force de répulsion électrostatique exercée entre les deux électrons dans l'état fondamental atomique. Dans le cas de l'atome d'hélium, elle est égale à 1.1 u.a. (29.9 eV). La différence d'énergie entre les deux électrons éjectés est donc l'énergie de corrélation  $E_{corr}$ . Nous trouvons sur le spectre (4.13)(b) que les deux pics sont séparés par une énergie de l'ordre de 1.01 u.a. (27.5 eV), ce qui concorde relativement bien avec la valeur théorique attendue à 1.1 u.a..

La figure (4.14) nous donne les contributions des principaux canaux de double ionisation

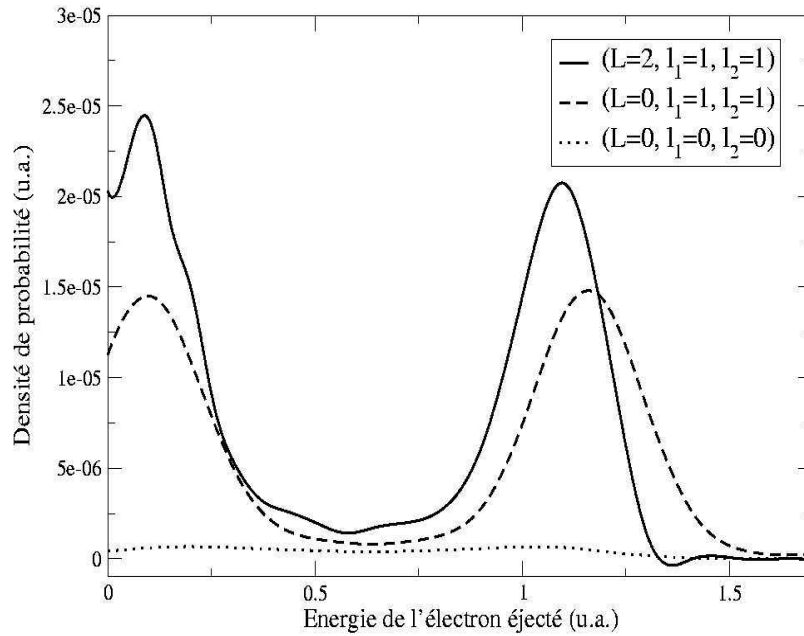


FIGURE 4.14: Spectres intégrés à un électron de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons, dans les canaux  $(L = 2, l_1 = 1, l_2 = 1)$ ,  $(L = 0, l_1 = 1, l_2 = 1)$  et  $(L = 0, l_1 = 0, l_2 = 0)$  - Caractéristiques du champ laser : voir figure (4.13)

de type  $(L = 0, l_1, l_2)$  et  $(L = 2, l_1, l_2)$  pris en compte dans la distribution totale de la figure (4.13). Nous constatons tout d'abord que les canaux  $(L = 2, l_1 = 1, l_2 = 1)$  et  $(L = 0, l_1 = 1, l_2 = 1)$  sont les canaux dominants, en accord avec la discussion de la section 3.3.2. De plus, la contribution du canal  $(L = 2, l_1 = 1, l_2 = 1)$  est également attendue deux fois plus importante que celle du canal  $(L = 0, l_1 = 1, l_2 = 1)$ , d'après les propriétés

des coefficients de Clebsch-Gordan (3.24). Nous observons que cet ordre de grandeur est vérifié pour les pics de plus basse énergie. Concernant l'amplitude des pics de plus haute énergie, la proportion est moins bien respectée, et leurs positions ne sont pas exactement les mêmes. Ceci provient d'un problème purement numérique. En effet, la base radiale  $I$  (tableau (2.1)) dans laquelle nous travaillons permet de représenter des états du double continuum de symétrie  $^1S^e$  avec une énergie maximale de l'ordre de 1.7 u.a.. Par contre, l'énergie maximale des états de symétrie  $^1D^e$  n'est que de 1.35 u.a.. Ainsi, le pic de haute énergie du spectre associé au canal ( $L = 2, l_1 = 1, l_2 = 1$ ) est moins bien défini du fait de la proximité de la limite de l'espace radial.

Le canal ( $L = 0, l_1 = 0, l_2 = 0$ ), représenté sur la figure (4.14), est très peu probable puisque il est issu des termes de corrections d'ordre un (3.20), tout comme les autres canaux possibles du type ( $L = 0, l_1 = 2, l_2 = 2$ ), ( $L = 2, l_1 = 0, l_2 = 2$ ) ou ( $L = 2, l_1 = 1, l_2 = 3$ ) non reportés sur la figure.

Pour résumer ce que nous venons de démontrer dans cette section, nous pouvons dire que :

**Pour  $\omega > 2$  u.a., le processus séquentiel de double ionisation est dominant par rapport au processus direct, et la structure du spectre énergétique associé est directement reliée à l'énergie de corrélation électronique dans l'état fondamental atomique.**

### 4.3.3 Les corrélations électron-électron dans le double continuum

L'approximation principale que nous avons faite dans la représentation des processus de double ionisation multiphotonique concerne la description des états atomiques doublement excités atteints après interaction. Nous avons constaté que le fait de prendre en compte ou non les effets de corrélations électron-électron dans le double continuum n'affectait pas de façon significative les résultats de sections efficaces totales, et par conséquent les probabilités totales de double ionisation. Cependant, regardons les possibles modifications qu'ils peuvent entraîner sur la distribution énergétique entre les électrons [99].

La figure (4.15) présente le spectre intégré à un électron de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons d'énergies égales à 2.1 u.a.. Nous remarquons que les calculs effectués dans une représentation corrélée du double continuum, notés "ordre un", modifie légèrement la position du pic de plus haute énergie par rapport à celle obtenue avec

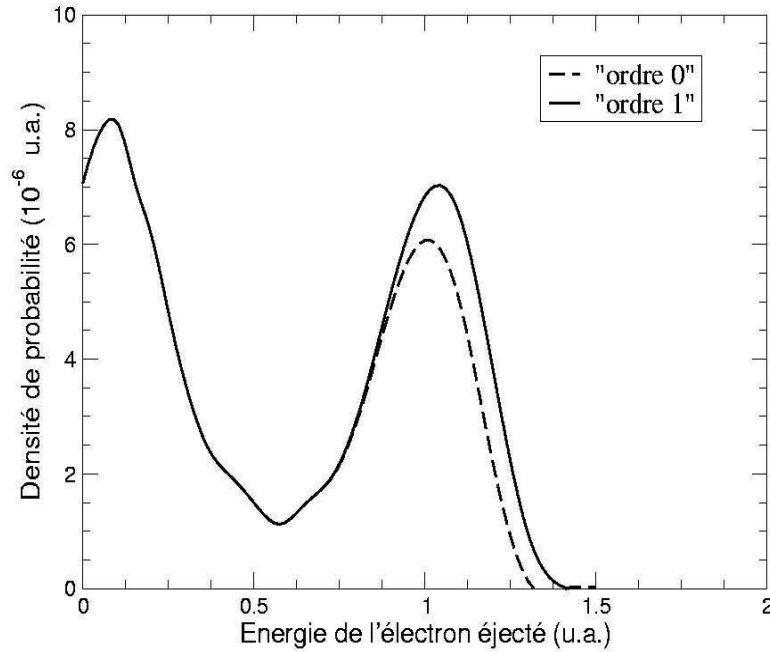
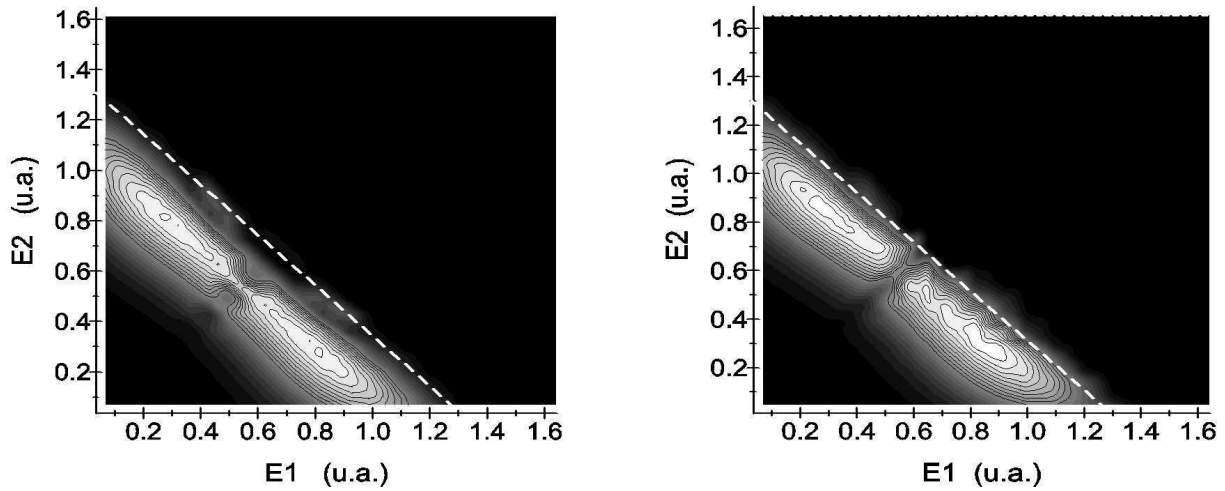


FIGURE 4.15: *Spectre intégré à un électron de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons, dans le canal ( $L = 2, l_1 = 1, l_2 = 1$ ) - Caractéristiques du champ laser :  $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$  ;  $\omega = 2.1 \text{ u.a.}$  ; 10 cycles optiques*

une représentation non corrélée. Nous avons vu que ce pic correspondait au premier pas du processus séquentiel, soit l'émission d'un électron depuis l'état fondamental  $\text{He}(1s^2)$ . Les interactions entre électrons dans le double continuum défini à l'ordre 1 sont essentiellement des corrélations radiales, autrement dit les effets d'écran qui peuvent avoir lieu entre les électrons et le noyau. Ainsi, lors de l'ionisation de  $\text{He}(1s^2)$  par le premier photon, l'électron éjecté "voit" la charge du noyau écrantée par le deuxième électron toujours lié. C'est pour cette raison que la position du pic associé à ce phénomène est améliorée avec les calculs d'ordre 1. Le deuxième pas du processus, l'éjection du second électron depuis l'ion  $\text{He}^+(1s)$ , subira des effets d'écran beaucoup moins importants.

La figure (4.16) montre la répartition de la densité de probabilité suivant les énergies des électrons éjectés, dans le même cas de figure que précédemment. Par souci de clarté de la figure, nous n'avons représenté ici que les zones de plus haute probabilité. Avec une énergie de photon de 2.1 u.a., l'énergie totale disponible dans le double continuum est théoriquement  $E_{tot} = E_1 + E_2 = 1.3 \text{ u.a.}$  ; nous l'avons représentée par une ligne en pointillé. Les distributions calculées par les deux approches gardent de façon globale la forme caractéristique du processus séquentiel, à savoir deux pics de plus haute probabilité



(a) Double continuum non corrélé (“ordre zéro”)

(b) Double continuum corrélé (“ordre un”)

FIGURE 4.16: Distribution de la densité de probabilité totale de double ionisation de l’hélium par absorption de deux photons. En pointillé est représentée la ligne théorique de conservation d’énergie - Caractéristiques du champ laser :  $I = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> ;  $\omega = 2.1$  u.a. ; 6 cycles optiques

symétriques par rapport à l’axe  $E_1 = E_2$ . Cependant, nous observons une légère différence de position de la distribution suivant les deux calculs. La figure (4.16)(b) représentant l’approche corrélée affiche une zone de haute probabilité plus proche de la ligne théorique de conservation d’énergie.

Nous pouvons donc en conclure que les corrélations électroniques dans le double continuum ne vont pas jouer un rôle prépondérant dans la distribution énergétique entre les électrons. Leur prise en compte dans nos calculs va tout de même servir à affiner notre représentation. Néanmoins, notons qu’une analyse angulaire des électrons éjectés devrait nécessiter d’une plus ample investigation sur la représentation des corrélations électron-électron, point dont nous parlerons dans le chapitre des perspectives.

#### 4.3.4 Comportement des ions héliumoïdes

Comme dans le cas de l’étude à un photon, des lois d’échelles suivant la charge  $Z$  (voir annexe B) vont nous permettre d’étudier la double ionisation par absorption de deux photons des ions de la série isoélectronique de l’hélium [70]. Le tableau (4.4) montre la probabilité totale de double ionisation des ions  $B^{3+}$  ( $Z=5$ ) et  $Ne^{8+}$  ( $Z=10$ ) dans les canaux ( $L = 0, l_1, l_2$ ) et ( $L = 2, l_1, l_2$ ). Les paramètres des systèmes  $B^{3+}$ -laser et  $Ne^{8+}$ -laser ont été calibrés suivant les lois d’échelles appropriées à partir des paramètres du système hélium-

	He(Z=2)	B <sup>3+</sup> (Z=5)	Ne <sup>8+</sup> (Z=10)
Probabilité totale			
de double ionisation $\mathcal{P}_{kk}^{(N=2)} (L = 0)$	$0.156 \times 10^{-3}$	$0.224 \times 10^{-3}$	$0.229 \times 10^{-3}$
Probabilité totale			
de double ionisation $\mathcal{P}_{kk}^{(N=2)} (L = 2)$	$0.351 \times 10^{-3}$	$0.479 \times 10^{-3}$	$0.481 \times 10^{-3}$

TABLEAU 4.4: Probabilités totales de double ionisation de l'hélium et des ions de sa série isoélectronique par absorption de deux photons - Les caractéristiques des systèmes B<sup>3+</sup>-laser et Ne<sup>8+</sup>-laser sont calibrés d'après les lois d'échelles en  $Z$  sur les paramètres du système He-laser suivants :  $I = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> ;  $\omega = 2$  u.a. ; 16 cycles optiques ;  $R_{max} = 50$  u.a.

laser suivants :  $I = 3.5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>,  $\omega = 2$  u.a., 16 cycles optiques, base  $I$ . Tous les résultats tendent à se stabiliser lorsque la charge  $Z$  augmente. La loi d'échelle (4.5) sur les probabilités est ici bien respectée, car l'ordre zéro de la théorie des perturbations est suffisant pour décrire les processus d'absorption de deux photons.

Bien que la probabilité totale de double ionisation soit constante quel que soit le système ion héliumöide-laser étudié, nous allons tout de même noter une évolution de la répartition de la densité de probabilité. La figure (4.17) donne la distribution énergétique entre les deux électrons éjectés pour l'hélium, l'ion B<sup>3+</sup> et l'ion Ne<sup>8+</sup>. Les paramètres respectifs de chaque système sont toujours définis suivant les lois d'échelles appropriées. Pour  $Z = 2$ , nous observons la forme caractéristique du processus séquentiel, à savoir deux pics bien définis. L'énergie du photon utilisé, 2 u.a., ne permet pourtant pas l'ionisation de He<sup>+</sup>(1s) puisque elle est ici exactement égale à la différence d'énergie entre les seuils de simple et double ionisation. Cependant, la largeur spectrale  $\Delta\omega$  (1.7), égale à 0.25 u.a. dans ce cas, va tout de même permettre au deuxième électron d'être éjecté dans le double continuum. Le comportement de l'ion B<sup>3+</sup> (Z=5) présente une forme similaire mais avec un espacement des pics moins défini, tandis que nous observons une seule "bosse" dans le cas de l'ion Ne<sup>8+</sup> (Z=10). Cette évolution observée le long de la série isoélectronique peut être expliquée du point de vue de la théorie des perturbations. Puisque l'ordre zéro de la théorie des perturbations est suffisant lors des mécanismes d'absorption de deux photons, les calculs seront alors "exacts" pour  $Z$  tendant vers l'infini. Ainsi, tout écart de com-

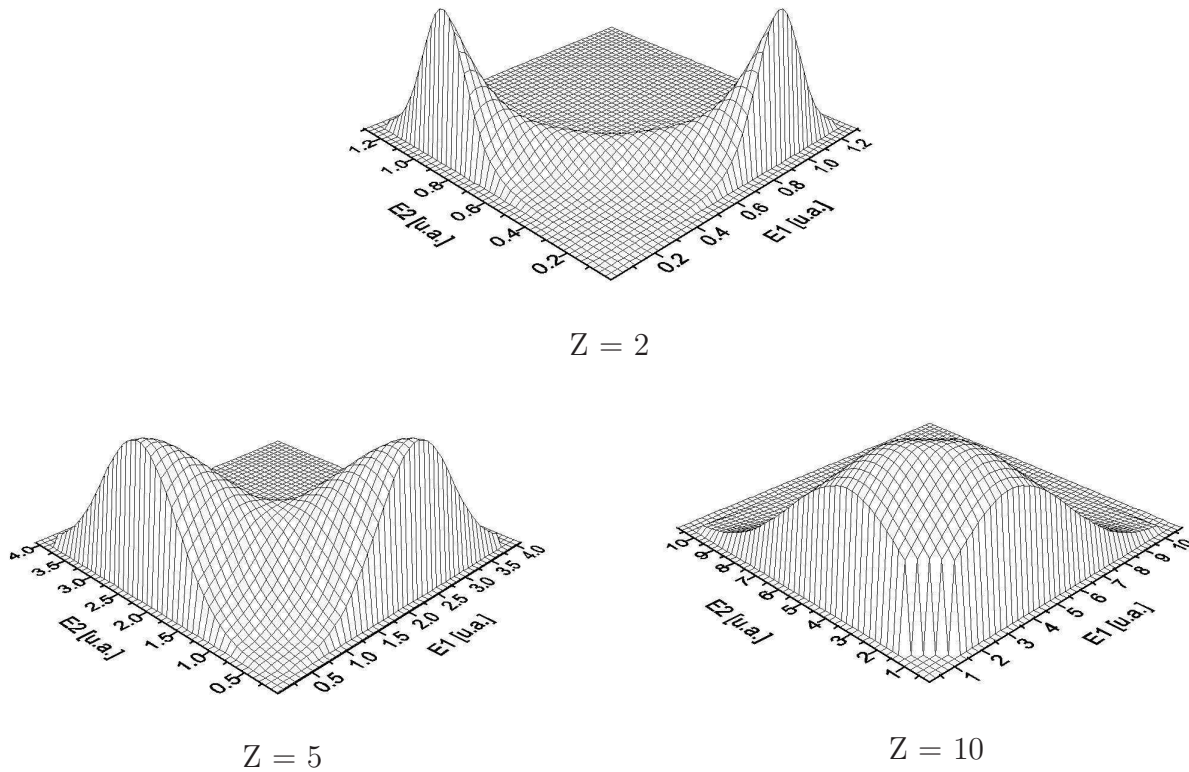


FIGURE 4.17: *Distribution de la densité de probabilité de double ionisation de l'hélium et des ions de sa série isoélectronique par absorption de deux photons, dans le canal dominant ( $L = 2, l_1 = 1, l_2 = 1$ ) - Caractéristiques des systèmes ions-laser : voir tableau (4.4)*

portement d'un ion de charge  $Z$  avec le cas limite exact " $Z \rightarrow \infty$ " serait uniquement dû aux effets de corrélations électron-électron dans le double continuum. Plus pratiquement, tout écart entre nos résultats théoriques et des résultats expérimentaux nous donnerait directement une vision quantitative des effets de corrélations électroniques. Nous pouvons noter également une moins bonne résolution dans la description du système lorsque la charge augmente. Par exemple, pour  $Z = 5$ , la largeur spectrale  $\Delta\omega$  est maintenant de 1.5 u.a., tandis que l'énergie de corrélation  $E_{corr}$  est de l'ordre de 3 u.a.. L'impulsion laser, de part son importante largeur spectrale, va pouvoir exciter une plus grande bande d'états finaux, ce qui va entraîner un élargissement des pics sur le spectre. La distribution énergétique relative à  $Z = 5$  confirme ce raisonnement : les pics sont plus étalés et leur espacement est moins marqué. Cependant, ce point de vue n'explique pas à lui seul l'allure du spectre pour  $Z = 10$ . Nous devrions alors observer une distribution relativement plate, correspondante à deux pics tellement étalés qu'ils se recouvriraient. Ici, nous observons une densité forte en son centre, et qui décroît à mesure que l'énergie des électrons augmente. La largeur spectrale est du même ordre de grandeur que l'énergie de corrélation

dans l'état fondamental de l'ion  $\text{Ne}^{8+}$ . De ce fait, la différenciation entre les processus direct et séquentiel n'est plus pertinente.

## 4.4 Vers des champs lasers de plus en plus brefs

Dans le chapitre 1, nous avons vu que le développement de nouvelles techniques de production de rayonnement laser allait nous amener vers une échelle de temps d'interaction encore plus courte, l'attoseconde. Que va-t-il advenir des différents mécanismes d'ionisation présentés précédemment, avec de telles impulsions attosecondes ?

### 4.4.1 Temps d'interaction et temps de relaxation électronique

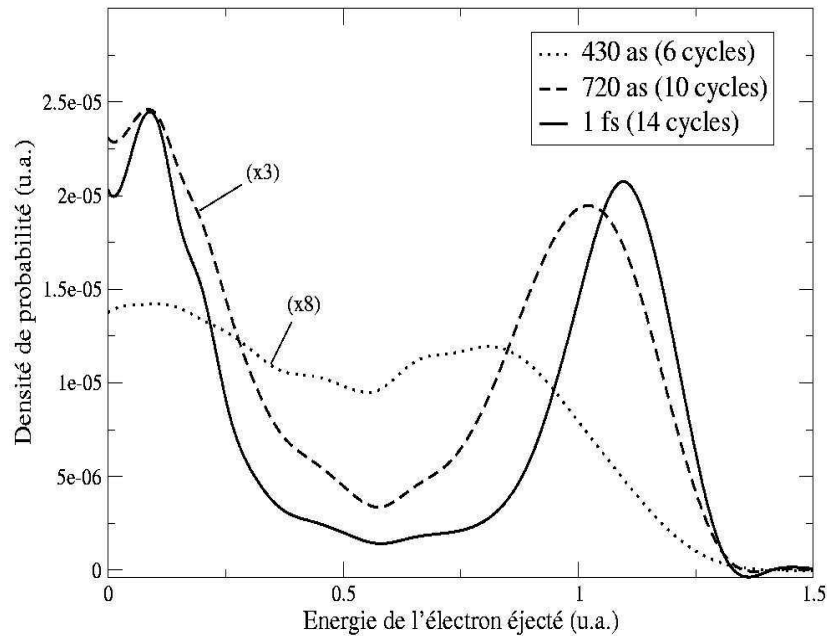


FIGURE 4.18: *Evolution du spectre énergétique de double ionisation séquentielle de l'hélium dans le canal ( $L = 2, l_1 = 1, l_2 = 1$ ) en fonction du temps d'interaction. Par souci de clarté de la figure, les résultats associés à 6 et 10 cycles optiques ont été multipliés respectivement par un facteur 8 et 3 - Caractéristiques du champ laser :  $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$  ;  $\omega = 2.1 \text{ u.a.}$*

La figure (4.18) représente des spectres énergétiques intégrés à un électron de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons de 2.1 u.a., où trois durées d'impulsions laser différentes ont été considérées : 14 cycles optiques (soit à peu près une femtoseconde), 10 cycles optiques (soit 720 attosecondes) et 6 cycles optiques (soit 430

as). Avec une telle énergie de photon, nous avons démontré précédemment que le processus dominant de double ionisation était le processus séquentiel, entraînant la production de l'ion  $\text{He}^+$ . Le spectre correspondant au temps d'interaction le plus long confirme ce fait : nous observons bien deux pics bien distincts aux positions respectives  $E_1$  et  $E_2$ , définies en (4.8) et (4.9). Pour une durée d'impulsion de l'ordre de 720 attosecondes, les pics ont tendance à se rapprocher l'un par rapport à l'autre. Enfin, pour une durée d'impulsion ultra-brève de 430 attosecondes, la position des pics n'est plus définie de façon significative. Pour tenter d'expliquer cette modification de la répartition énergétique, regardons le schéma (4.19). Lors du processus de double ionisation séquentielle, un état non

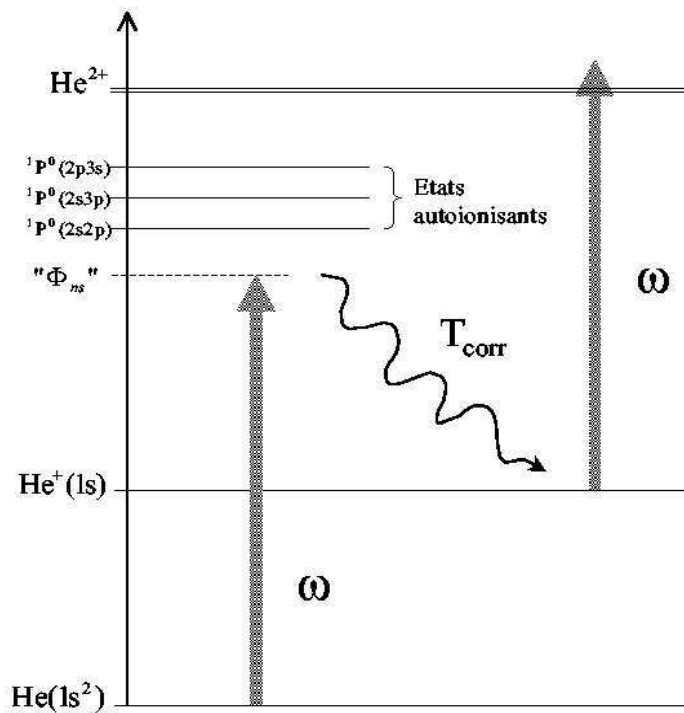


FIGURE 4.19: Schématisation de la relaxation électronique au sein de l'atome d'hélium pendant le processus de double ionisation par absorption de deux photons de 2.1 u.a.

stationnaire intermédiaire  $\Phi_{ns}$  (paquet d'onde) est créé par absorption du premier photon. La transition de l'électron lié vers le seuil  $\text{He}^+(1s)$  met en jeu l'énergie de corrélation électronique  $E_{\text{corr}}$  (4.10) qui est emportée par l'électron du continu. Il est alors raisonnable d'associer à cette transition un temps, nommé temps de corrélation, et défini de la façon suivante :

$$T_{\text{corr}} = \frac{2\pi}{E_{\text{corr}}} \quad (4.11)$$



Il est ici égal à 5.7 u.a., soit 140 attosecondes. Sur la figure (4.18), les temps d'interaction mis en jeu sont à l'échelle subfemtoseconde, ce qui est du même ordre de grandeur que la dynamique électronique au sein de l'atome d'hélium. Cette première remarque peut alors donner un début d'explication quant à la modification de la structure des spectres énergétiques en fonction du temps d'interaction. Pour une impulsion ultra-brève d'une durée comparable au temps de corrélation électronique, la relaxation du paquet d'onde  $\Phi_{ns}$  vers l'état stationnaire He(1skp) n'aura pas le temps de se produire. Ainsi, il deviendra alors impossible de distinguer le processus séquentiel du processus direct : le spectre électronique associé n'aura pas de forme caractéristique. Sur la figure (4.18), nous observons bien ce phénomène pour le temps d'interaction laser le plus bref.

Dans le cas spécifique étudié ici, les photons du champ laser ont une énergie égale à 2.1 u.a.. La position de l'état 1skp atteint avec un photon sera donc à  $-0.8$  u.a.. Dans cette région énergétique, se trouve une série d'états autoionisants de configuration  $^1P^o$  que nous avons représentée sur le schéma (4.19). Un état autoionisant est un état particulier parmi les états du continu de l'atome. Sa structure doublement excitée est couplée de manière résonante aux états du simple continu par le terme d'interaction diélectronique. Le mécanisme physique caractérisant ces états est le suivant : lorsque les deux électrons se trouvent sur des orbitales excitées, il existe une certaine probabilité pour que l'un des électrons se désexcite vers une orbitale plus basse énergétiquement. L'excès d'énergie est alors transférée au deuxième électron, via le couplage diélectronique entre les deux électrons, éjectant ainsi cet électron dans le continu atomique. Le terme autoionisant vient donc du fait que, sans perturbation extérieure, un atome doublement excité décroît naturellement vers un système formé par un ion simplement chargé et un électron libre. Dans le cas de l'hélium, un état autoionisant de configuration  $^1P^o(2s2p)$  se situe à une énergie de  $-0.6928$  u.a. [100]. Avec un champ laser d'une durée d'impulsion de 6 cycles optiques et de fréquence  $\omega = 2.1$  u.a., cet état pourra tout de même être atteint car la largeur spectrale (1.7) d'un tel champ est de l'ordre de 0.7 u.a.. La grande dispersion du champ permet donc de couvrir l'état 1skp mais également la zone des états autoionisants. Ces états ont des durées de vie de l'ordre de la femtoseconde jusqu'à 10 fs. Ils n'ont donc pas le temps de se relaxer durant l'interaction laser-atome, mais ils vont s'autoioniser après cette interaction. On les retrouvera donc sous forme de structures dans le spectre d'ionisation de l'hélium par absorption d'un photon. Il est important de noter que le dipole entre une structure diexcitée  $^1P^o(2ln'l')$  et le double continuum est égal à zéro si

on néglige les corrélations électroniques. L'excitation des états autoionisants ne devrait donc pas avoir d'influence significative sur la double ionisation par absorption de deux photons. Ceci est confirmé par les spectres de double ionisation qui sont dominés par le processus séquentiel. C'est aussi en accord avec des études préliminaires menées sur la double excitation/ionisation de l'hélium [8]. Récemment, Nikolopoulos et coll. [101] ont également fait les mêmes observations.

#### 4.4.2 Cas des impulsions à dérive de fréquence

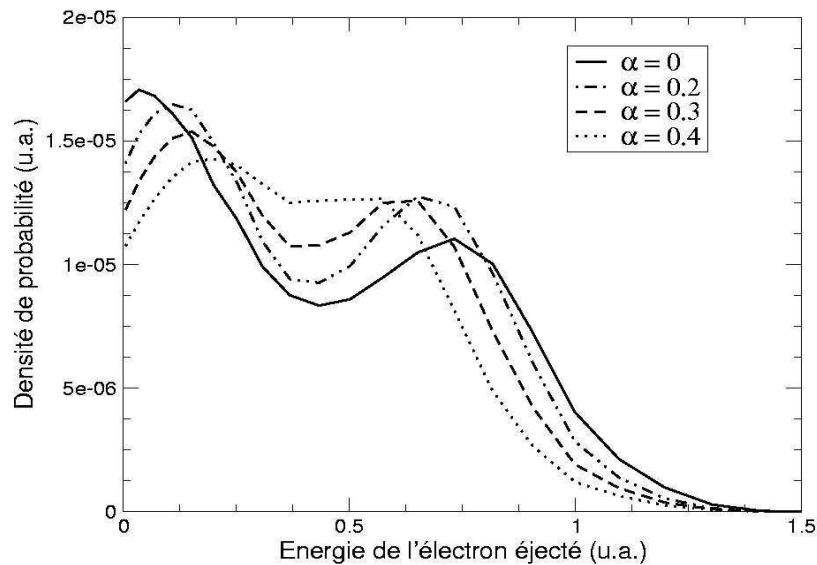


FIGURE 4.20: Evolution du spectre énergétique intégré à un électron suivant la valeur du paramètre de chirp  $\alpha$ , dans le canal d'ionisation ( $L = 2, l_1 = 1, l_2 = 1$ ) - Caractéristiques du champ laser :  $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$  ;  $\omega = 2 \text{ u.a.}$  ; 10 cycles optiques

La représentation semi-classique du champ laser (1.4) possède comme atout majeur un facile réglage de la durée totale de l'impulsion. Pour clore ce chapitre, nous allons appliquer un autre modèle d'impulsion laser que nous avons présenté en (1.8) : il s'agit d'impulsions lasers à dérive de fréquence. Elles sont caractérisées par le fait que les différentes composantes spectrales subissent un léger décalage les unes par rapport aux autres. Ce décalage en fréquence est défini par le paramètre  $\alpha$ , appelé paramètre de "chirp". Elles sont utilisées expérimentalement, notamment lors de la compression de faisceaux lasers. La figure (4.20) présente le spectre intégré à un électron de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons de 2 u.a., en fonction de la valeur du paramètre de chirp. Le nombre de

cycles optiques des impulsions est fixé à 10. Pour  $\alpha = 0$ , l'expression (1.8) nous permet de retrouver la représentation semi-classique de départ (1.4). Ainsi, le spectre associé présente la forme caractéristique de la double ionisation séquentielle. Lorsque le paramètre  $\alpha$  augmente, nous constatons que les deux pics du spectre ont tendance à se rapprocher l'un par rapport à l'autre, pour finalement ne plus être différenciables dans le cas où  $\alpha = 0.4$ . Nous pouvons mettre en parallèle ce comportement avec celui observé sur la figure (4.18), où nous avons diminué la durée d'une impulsion "non chirpée". Pour expliquer ceci, il nous faut regarder le spectre en fréquence des impulsions à dérive de fréquence que nous avons donné précédemment sur la figure (1.11). Nous avons constaté un élargissement de la largeur à mi-hauteur de l'impulsion au fur et à mesure de l'augmentation de la valeur du paramètre de chirp, accompagné d'un abaissement de l'amplitude. Rappelons que la largeur spectrale est inversement proportionnelle à la durée de l'impulsion laser (3.44). Ainsi, nous nous apercevons que plus la dérive en fréquence de l'impulsion laser est importante, plus sa durée est brève. Ceci explique l'évolution des spectres énergétiques de la figure (4.20).

"Jouer" sur la dérive de fréquence de ce type d'impulsions permet finalement d'atteindre plus facilement des échelles de temps d'interaction ultra-brèves, permettant de sonder la dynamique électronique au sein d'un système atomique. Inversement, si le processus de double ionisation est bien connu dans l'atome, il sera alors possible de sonder la structure de l'impulsion.

## 4.5 Conclusion

Nous venons d'aborder dans ce chapitre la double ionisation de l'atome d'hélium par photo-absorption à l'aide d'une approche numérique non perturbative. Dans le paragraphe 4.2, nous avons tout d'abord étudié le cas de la double ionisation de l'hélium par absorption d'un unique photon, avec des durées d'impulsions lasers de l'ordre de la femtoseconde. Nous nous sommes penchés sur l'étude de la répartition de l'énergie photonique entre les deux électrons éjectés dans le double continuum atomique. L'observation des spectres énergétiques des électrons nous a permis de remarquer que les deux électrons avaient tendance à se partager uniformément l'énergie disponible au dessus du seuil de double ionisation, phénomène confirmé par l'expérience. Ce même comportement a également été noté dans le cas des ions de la série isoélectronique de l'hélium. Grâce à l'application des lois d'échelles suivant la charge, nous avons pu constater que l'étude de la double

ionisation des ions héliumoides nous renseignait directement sur les effets de corrélations électroniques par rapport à l'effet de la charge nucléaire. Ce paragraphe nous a essentiellement servi à comparer notre méthode avec les nombreux autres calculs théoriques et expérimentaux existants sur le sujet. Au niveau des sections efficaces totales, les résultats convergent parfaitement.

La double ionisation par absorption de deux photons a été étudiée dans le paragraphe 4.3. Nous avons présenté des calculs de sections efficaces totales, en bon accord avec d'autres résultats théoriques existants. La non linéarité de l'absorption de deux photons offre la possibilité d'atteindre le double continuum depuis l'état fondamental par deux voies différentes : une voie directe et une voie séquentielle. L'étude de la distribution énergétique entre les électrons éjectés nous a alors permis de caractériser chacune d'entre elle de façon systématique. La double ionisation directe est la seule voie permise pour des énergies de photons comprises entre 1.45 et 2 u.a., et le spectre en énergie des électrons relatif à ce cas de figure montre une distribution étalée. Pour des énergies de photons supérieures à 2 u.a., le processus dominant est la double ionisation séquentielle. Le spectre associé présente alors deux pics bien définis ; le pic de plus haute énergie correspond à l'ionisation par le premier photon de l'hélium dans son état fondamental, tandis que le pic de plus basse énergie est la signature de l'ionisation de l'ion  $\text{He}^+(1s)$  par le second photon. L'écart entre les deux pics est associé à l'énergie de corrélation électron-électron agissant dans l'état fondamental atomique. Après absorption de deux photons, un électron a donc tendance à emporter une grande partie de l'énergie disponible par rapport à l'autre électron.

Dans le paragraphe 4.4, nous nous sommes finalement préoccupés de l'influence de la durée de l'impulsion laser sur les mécanismes de double ionisation multiphotonique. Les pics observés sur le spectre de la double ionisation séquentielle se rapprochent l'un par rapport à l'autre au fur et à mesure de la diminution du temps d'interaction. Pour des durées d'impulsions lasers de l'ordre de la centaine d'attoseconde, les échelles de temps de relaxation électronique au sein de l'atome d'hélium sont atteintes, ce qui ne nous permet plus de différencier le processus direct du processus séquentiel. Un rapprochement et un élargissement des pics sont alors observés.

L'objectif du chapitre suivant est maintenant d'étendre notre étude vers des systèmes atomiques plus complexes, tel que l'atome de béryllium, où la présence d'un coeur électronique complique le problème en même temps qu'il l'enrichit.



Chapitre **5**

Ionisation du béryllium par absorption  
photonique

*“Il est plus facile de briser un atome que de briser un préjugé.”*

- Albert Einstein -



## 5.1 Introduction

L'atome de béryllium fait partie de la famille des métaux alcalino-terreux, au même titre que les atomes de magnésium, calcium, ou encore de strontium. Ils présentent tous la particularité de posséder deux électrons sur la couche la plus externe, et un ensemble compact de couches électroniques internes beaucoup plus lié au noyau. Après l'étude de la dynamique des systèmes héliumoides en présence d'un champ laser, la communauté scientifique s'est tournée vers cette famille d'atomes. Quelques récents travaux théoriques et expérimentaux ont abordé la double ionisation des couches de valence du calcium [102, 103] et du magnésium [104, 105]. L'atome de béryllium est cependant un des choix les plus attractifs. Il est composé en effet de deux électrons de valence sur la couche  $2s$ , et de deux électrons sur la couche interne  $1s$ . Les deux couches électroniques étant très séparées d'un point de vue énergétique, nous pouvons supposer que l'interaction d'un champ laser avec la couche  $1s$  et la couche  $2s$  sont deux phénomènes qui ne vont pas interférer entre eux. Le béryllium peut alors être considéré comme un système atomique à deux électrons actifs, suivant la fréquence du champ appliquée. Ainsi, les approches développées pour le cas de l'interaction laser-hélium peuvent s'étendre facilement à l'étude de l'ionisation des électrons de valence du béryllium [106, 107, 108]. Du côté expérimental, le béryllium est le moins réactif de la famille des alcalino-terreux. Son potentiel de double ionisation peu élevé va permettre d'appliquer des rayonnements plus accessibles en terme d'énergie photonique [109].

Le développement actuel des lasers à électrons libres, sources lasers qui vont mettre à notre disposition des énergies photoniques très élevées avec un fort éclairement, permet d'entrevoir la possibilité d'ioniser le coeur électronique des atomes alcalino-terreux. Un électron  $1s$  du béryllium peut être ionisé avec une énergie de photon supérieure à 126 eV. Seule une étude théorique récente a commencé à aborder le sujet en regardant la triple ionisation du béryllium [110].

Dans ce chapitre, nous allons tout d'abord étudier l'ionisation des électrons de valence du béryllium, en mettant l'accent sur la comparaison avec le comportement de l'atome d'hélium. Les mêmes problématiques seront abordées, à savoir l'évolution des sections efficaces totales suivant l'énergie photonique, la caractérisation énergétique des différents processus de double ionisation par absorption de deux photons, ou encore l'influence du temps d'interaction laser sur les spectres électroniques. Puis, nous conclurons ce chapitre en présentant quelques résultats prospectifs sur la dynamique du coeur électronique en



---

champ laser intense et bref.

## 5.2 Ionisation des électrons de valence

### 5.2.1 Configuration “diélectronique”

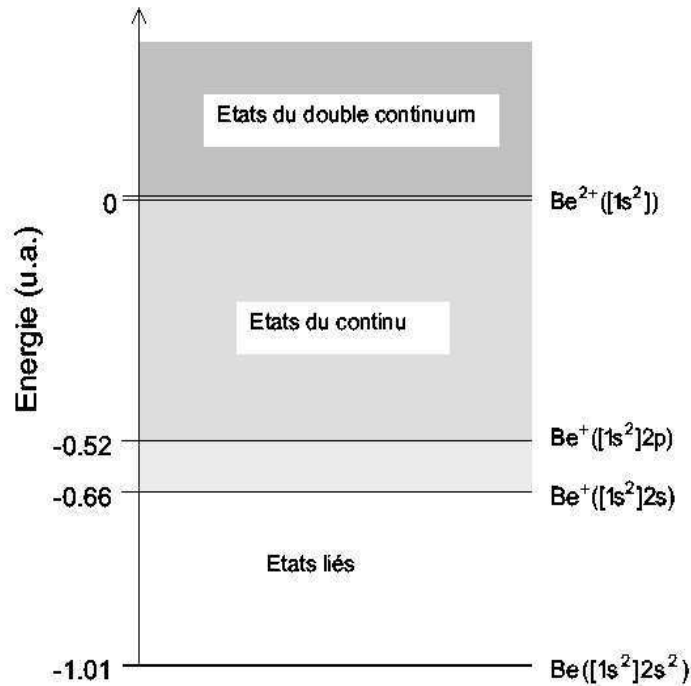


FIGURE 5.1: Structure électronique de l'atome de béryllium

La figure (5.1) schématise la structure électronique de l'atome de béryllium. La méthode que nous avons utilisée pour la représenter a été développée dans la section 2.2.2, où quelques approximations ont été nécessaires. La première est d'avoir choisi de geler la configuration des électrons de la couche interne  $1s$ . Ainsi, il est impossible aux électrons  $1s^2$  de changer d'état sous l'action d'un champ extérieur. Cette approximation vient du fait que les couches  $1s$  et  $2s$  du béryllium sont très séparées énergétiquement l'une par rapport à l'autre. De plus, elle restera valable tant que la fréquence du champ laser que nous allons appliquer sur le système atomique sera suffisamment faible pour ne pas atteindre le coeur électronique. Dans la suite de ce document, nous définirons précisément son domaine de validité. Quoiqu'il en soit, nous considérons ici le béryllium comme un système atomique avec seulement deux électrons actifs, au même titre que l'atome d'hélium. La deuxième approximation s'applique à la prise en compte des effets du coeur électronique sur les électrons  $2s$ . Nous avons utilisé pour cela le potentiel modèle défini en (2.11). La configu-

ration de l'état fondamental du béryllium dans ce cas de figure est alors notée  $[1s^2]2s^2$ , et correspond à l'énergie de l'état diélectronique  $2s^2$  en présence du coeur interne  $1s^2$ . Nous obtenons une énergie située à  $-1.01$  u.a. ( $-27.47$  eV), en positionnant le seuil de double ionisation à zéro. La comparaison avec la valeur expérimentale faite dans le tableau (2.3) s'est avérée très correcte. Sur la figure (5.1), nous distinguons également deux seuils de simple ionisation, situés respectivement à  $-0.66$  u.a. ( $-17.95$  eV) et à  $-0.52$  u.a. ( $-14.14$  eV). Ils représentent la configuration diélectronique dans laquelle un des électrons est libre et où l'autre se trouve sur une des orbitales de l'ion  $\text{Be}^+$ . Ainsi, les états du continu se trouvant au dessus du seuil à  $-0.52$  u.a., à l'exception des états autoionisants, peuvent correspondre à l'une des configurations suivantes :

- un électron sur l'orbitale  $2s$  de l'ion  $\text{Be}^+$  et un électron dans le continu.
- un électron sur l'orbitale  $2p$  de l'ion  $\text{Be}^+$  et un électron dans le continu.

Au-delà de l'énergie "zéro", il existe une infinité de canaux ouverts. D'une part, nous avons les états du simple continuum de type  $(nl,kl')$ , de l'autre les états du double continuum  $(kl,k'l')$  où les deux électrons de valence sont tous les deux libres dans le continu de l'ion  $\text{Be}^{2+}([1s^2])$ .

Grâce à la représentation diélectronique de l'atome de béryllium que nous venons de faire, nous allons dans un premier temps observer de façon générale les possibles similitudes ou différences de comportements entre le béryllium et l'hélium, lorsqu'ils sont soumis tous deux à un champ laser intense et bref.

### 5.2.2 Béryllium et hélium

Mettons en parallèle les deux systèmes atomiques diélectroniques que sont l'hélium et le béryllium. L'énergie de l'état fondamental du premier se situe à  $-2.903$  u.a., tandis que l'énergie de l'état fondamental du second se trouve à  $-1.01$  u.a.. Les processus de double ionisation de l'atome de béryllium vont donc nécessiter des énergies de photons trois fois moins importantes que dans le cas de l'hélium.

La figure (5.2) nous donne le rapport entre la double et la simple ionisation de l'hélium et du béryllium par absorption d'un photon, dans le cas où le champ laser que l'on applique dépose la même énergie au dessus des seuils de double ionisation respectifs (3.36). Ce quotient de probabilités, noté  $R$ , se calcule de la façon suivante :

$$R = \frac{\mathcal{P}_{kk}}{\mathcal{P}_{nk}} \quad (5.1)$$

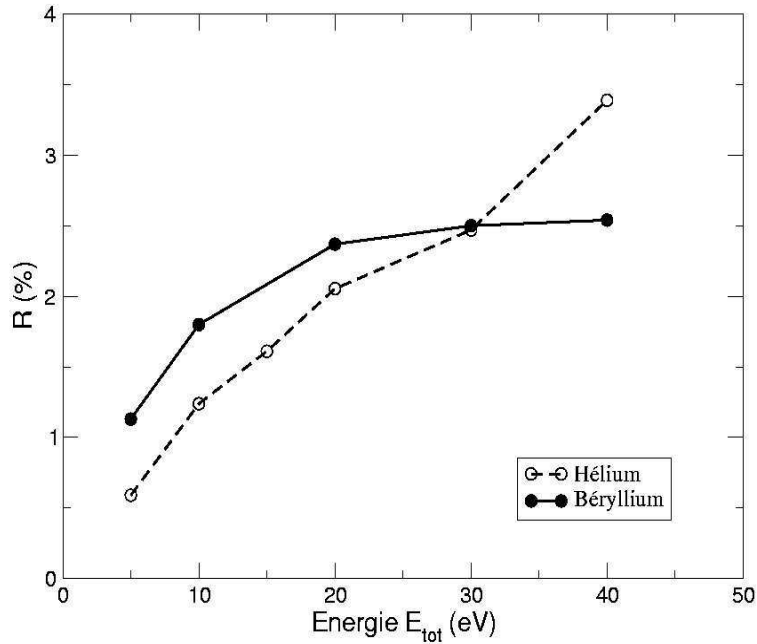


FIGURE 5.2: Rapport des probabilités de double et simple ionisation par absorption d'un photon - Caractéristiques du champ laser :  $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$  ; 10 cycles optiques

$\mathcal{P}_{nk}$  est la probabilité de simple ionisation définie en (4.3).  $\mathcal{P}_{kk}$  est la probabilité totale de double ionisation définie en (3.38), somme des probabilités dans tous les canaux ( $L = 1, l_1, l_2$ ) ouverts dans la base *II* (tableau 2.1). Nous observons que les résultats associés au béryllium sont légèrement supérieurs à ceux de l'hélium pour des énergies totales disponibles dans le double continuum comprises entre 5 et 30 eV. A partir de 30 eV, les deux courbes de résultats se croisent et leurs positions s'inversent l'une par rapport à l'autre.

Concernant l'évolution générale du rapport, il reste pour les deux atomes dans un intervalle de 0.5% à 3.5% environ. Nous pouvons en déduire que, lorsque la simple et la double ionisation sont toutes deux possibles énergétiquement, c'est le processus de simple ionisation qui est largement le plus probable. Notons que dans le cas de l'absorption de deux photons, le rapport  $R$  peut ne plus être aussi faible, voire supérieur à 1. Des résultats concernant l'hélium, présentés dans l'article [111], vérifient ce cas de figure. Le tableau (5.1) donne quelques rapports de simple et double ionisation par deux photons pour le béryllium.  $\mathcal{P}_{kk}$ , utilisée dans le calcul de  $R$  (5.1), est cette fois-ci la somme des probabilités dans les canaux ( $L = 0, l_1, l_2$ ) et ( $L = 2, l_1, l_2$ ), de même que  $\mathcal{P}_{nk}$  fait intervenir les contributions des symétries  $L = 0$  et  $L = 2$  (4.3). Lorsque deux photons sont absorbés, les

$\omega$ (eV)	$R \equiv \frac{(2\gamma, 2e)}{2\gamma, e}$ (sans unités)
14	0.05
15	0.17
16	3.86
18	1.03
20	1.49

TABLEAU 5.1: *Rapport des probabilités de double et simple ionisation du béryllium par absorption de deux photons - Caractéristiques du champ laser :  $I = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> ; 8 cycles optiques*

deux processus ne nécessitent pas l'intervention des corrélations électroniques. Auquel cas rien n'empêche la double ionisation d'être dans certains cas majoritaire, ce qui entraîne un rapport  $R$  supérieur à 1.

La figure (5.3) montre à présent des résultats de sections efficaces de double ionisation de l'hélium et du béryllium par absorption d'un photon, toujours en fonction d'une même énergie totale disponible dans leurs doubles continua respectifs. L'ordre de grandeur général des résultats reste autour de la dizaine de kilobarns. Pour de faibles énergies totales disponibles, c'est-à-dire pour des énergies de photons légèrement supérieures aux potentiels de double ionisation, les sections efficaces du béryllium sont plus élevées que celles de l'hélium de 6 kilobarns environ. Lorsque nous disposons d'une énergie plus importante dans le double continuum, et de ce fait des photons incidents plus énergétiques, les ordres de grandeurs s'inversent : les sections efficaces de l'hélium deviennent plus grandes que celles du béryllium. Le même comportement a été observé par Citrini et coll. [108], avec une méthode numérique de type HRM-SOW (voir section 3.3.1).

Les résultats présentés sur les figures (5.2) et (5.3) nécessitent de plus amples investigations pour donner une explication précise sur les différences de comportements observées entre l'hélium et le béryllium en champ laser. La seule remarque que nous pouvons faire est que leurs comportements restent globalement similaires. Les légers écarts observés peuvent provenir des effets du coeur électronique, et surtout de l'énergie de liaison plus faible des électrons de valence dans le cas du béryllium.

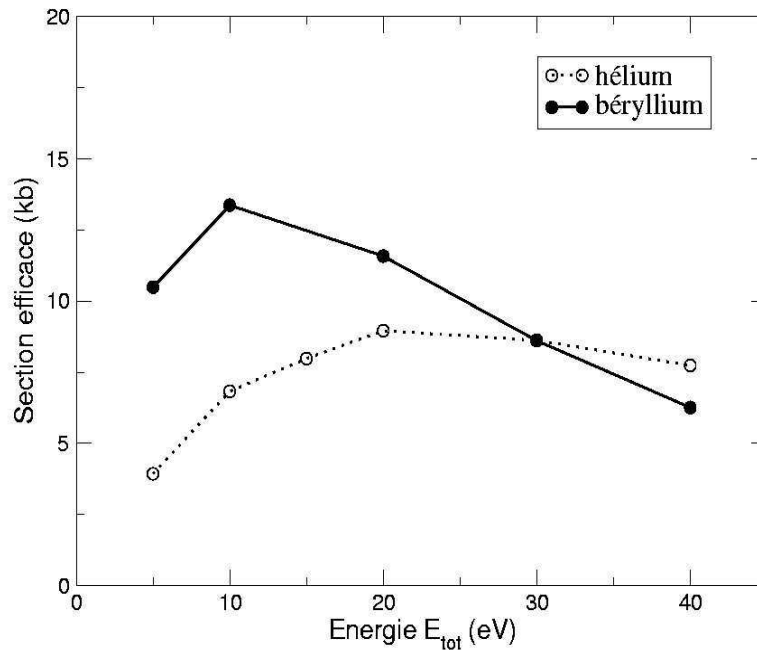


FIGURE 5.3: Sections efficaces de double ionisation de l'hélium et du béryllium par absorption d'un photon

### 5.2.3 Etudes théoriques et expérimentales en cours

L'étude de la double ionisation de l'atome de béryllium, que ce soit du côté théorique ou expérimental, n'a commencé qu'il y a quelques années environ. De plus, seule l'absorption d'un photon a été abordée. La figure (5.4) fait le point sur quelques résultats actuels, en terme de sections efficaces totales. Les méthodes numériques utilisées pour représenter la dynamique du béryllium en champ laser sont une extension des méthodes appliquées à l'interaction laser-hélium, que nous avons décrites dans la section 3.2.1. Les résultats de Kheifets et Bray [106] ont été obtenus en 2001 par une méthode CCC (“Convergent Close Coupling”), définie dans la section 3.3.1. Ils ont décrit le coeur électronique du béryllium avec un potentiel modèle de la même forme que celui utilisé dans ce document (2.11). Colgan et Pindzola [107], en 2002, ont développé une méthode close coupling dépendante du temps. Cependant, ils ont opté pour une autre représentation Hartree-Fock du coeur  $1s^2$ . Citrini et coll. [108], dont nous avons déjà parlé dans la section précédente, ont utilisé en 2003 la méthode HRM-SOW. D'après la figure (5.4), tous ces résultats concordent relativement bien avec ceux obtenus dans notre approche. Les seuls résultats expérimentaux connus à ce jour ont été obtenus par Wehlitz et Whitfield [109] en 2001, au “Synchrotron Radiation Center” de Stoughton aux Etats-Unis. Les mesures ont été effectuées à l'aide

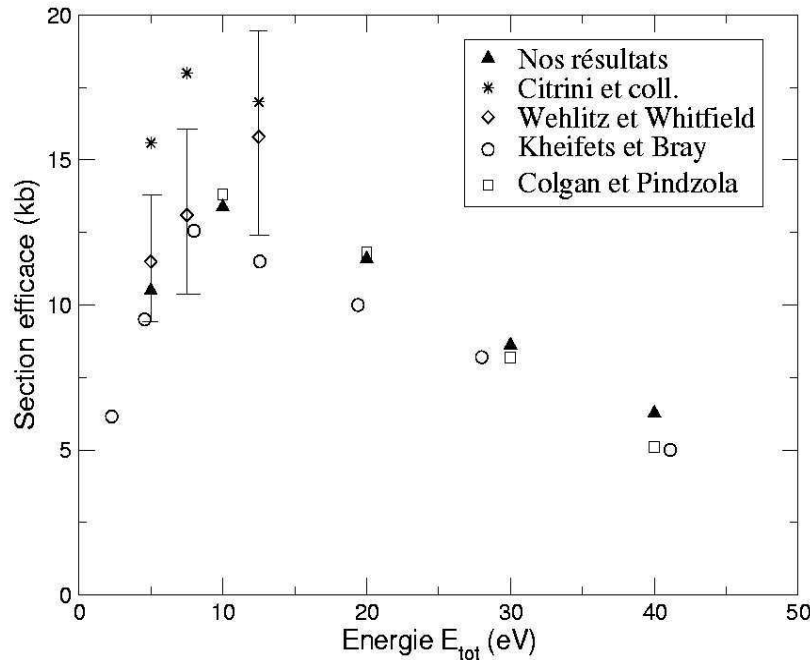


FIGURE 5.4: Sections efficaces de double ionisation du béryllium par absorption d'un photon. Comparaison de nos résultats avec ceux obtenus par Colgan et coll. [107], Kheifets et coll. [106] et Wehlitz et coll. [109]

d'un spectromètre à temps de vol. Les barres d'erreurs liées aux points expérimentaux reportés sur la figure (5.4) recouvrent les différents écarts entre les résultats théoriques. Nous pouvons considérer que l'ensemble des études menées convergent correctement, compte tenu des différents traitements utilisés dans chaque cas.

### 5.2.4 La double ionisation directe et séquentielle

Nous avons remarqué, dans le cas de l'hélium, que la double ionisation par absorption de deux photons était un processus physique non linéaire pouvant se produire selon deux voies différentes : par une voie directe ou par une voie séquentielle (voir section 4.3.2). Nous allons essayer, dans ce qui va suivre, de caractériser ces différents processus dans le cas de l'éjection des deux électrons de valence  $2s$  du béryllium dans le double continuum. Puis nous essaierons de savoir, à l'aide des spectres en énergie des électrons éjectés, quel sera le processus dominant lorsque l'énergie photonique mise en jeu permet d'ouvrir les deux voies. Nous finirons alors notre étude de la double ionisation par absorption de deux photons en donnant des résultats de sections efficaces en fonction de l'énergie photonique du champ laser appliquée.

## Caractérisation énergétique des différents processus

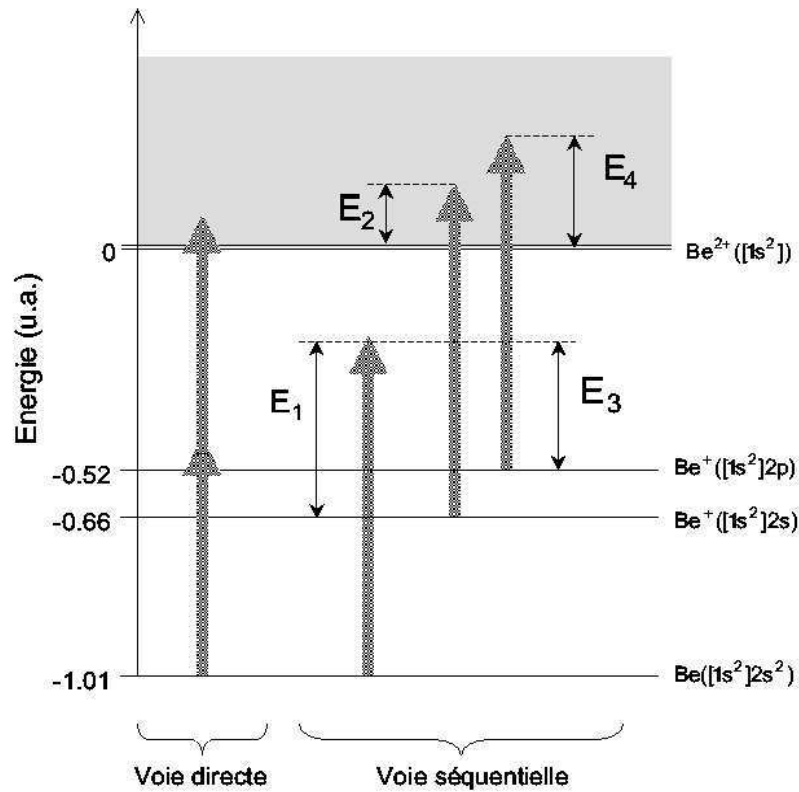


FIGURE 5.5: Schématisation des processus de double ionisation directe et séquentielle du béryllium par absorption de deux photons

Le diagramme (5.5) schématise les différents processus d'absorption de deux photons, permettant d'atteindre le double continuum du béryllium depuis son état fondamental  $[1s^2]2s^2$ . La position énergétique des seuils d'ionisation va nous permettre de les caractériser. Tout d'abord, nous voyons que la double ionisation du béryllium par absorption de deux photons de même énergie sera réalisable si celle-ci est supérieure à  $0.505$  u.a. ( $13.7$  eV), c'est-à-dire à la moitié du potentiel de double ionisation. Deuxièmement, pour des énergies de photons comprises entre  $0.505$  u.a. et  $0.52$  u.a., seule la voie directe sera autorisée. Nous rappelons que cette voie de double ionisation correspond à l'éjection directe des deux électrons dans le double continuum.

Dans le cas où l'énergie du photon est supérieure à  $0.52$  u.a., un deuxième processus va pouvoir entrer en jeu : le processus séquentiel. Déjà défini précédemment pour l'hélium (voir section 4.3.2), il est associé à une succession de deux étapes de simple ionisation : la production d'un ion simplement ionisé par l'absorption du premier photon, et l'ioni-



sation de cet ion par absorption du second photon. Le positionnement des deux seuils de simple ionisation 2s et 2p va entraîner deux cheminement possibles durant le processus séquentiel. Pour des énergies de photons supérieures à 0.66 u.a. (18 eV), l'absorption du premier photon peut éjecter un premier électron avec une énergie  $E_1$  ou  $E_3$ , comme l'indique le schéma (5.5). L'absorption du deuxième photon peut alors produire un ion doublement ionisé  $\text{Be}^{2+}([1s^2])$  à partir du seuil  $\text{Be}^+([1s^2]2s)$  ou  $\text{Be}^+([1s^2]2p)$ . Les énergies possibles de l'électron éjecté par le deuxième photon seront  $E_2$  ou  $E_4$ . Nous appellerons par la suite "processus séquentiel via le canal 2s" la double ionisation par absorption de deux photons éjectant les deux électrons avec les énergies  $E_1$  et  $E_2$ . De même, le "processus séquentiel via le canal 2p" produira le couple d'électrons  $(E_3, E_4)$ .

Pour des énergies de photons comprises entre 0.52 u.a. et 0.66 u.a., cas non représenté sur le schéma (5.5), seul le processus séquentiel via le canal 2p sera possible. En effet, l'ionisation de  $\text{Be}^+([1s^2]2s)$  dans ce cas ne pourra se produire qu'avec l'absorption de deux photons.

Pour résumer, le domaine où la question du processus dominant va se poser sera dans le cas de l'absorption de deux photons d'énergies supérieures à 0.66 u.a., soit 18 eV. La double ionisation du béryllium pourra alors se dérouler de trois façons différentes : par la voie directe, par la voie séquentielle via le canal 2p, par la voie séquentielle via le canal 2s.

### Quel processus dominant pour $\omega > 18$ eV ?

L'analyse de la distribution énergétique entre les électrons éjectés dans le double continuum va nous permettre de répondre à cette question. La figure (5.6) nous donne le spectre intégré total de double ionisation du béryllium par absorption de deux photons d'énergies égales à 0.9 u.a. (24.5 eV). Cette distribution de densité de probabilité a été obtenue à l'aide de l'expression (3.37). Les calculs ont été réalisés avec le potentiel modèle (2.11), et dans la représentation non corrélée du double continuum (voir section 3.3.3). Dans le cas de l'hélium, nous avons observé que la prise en compte des corrélations dans le double continuum n'influait pas de façon significative les résultats.

Nous nous trouvons bien dans un domaine énergétique où les processus direct et séquentiel peuvent avoir lieu. La répartition de la densité de probabilité observée est marquée par deux pics bien distincts. Cette forme du spectre est la forme caractéristique du processus séquentiel (voir section 4.3.2). Pour des énergies de photon permettant la double ionisa-

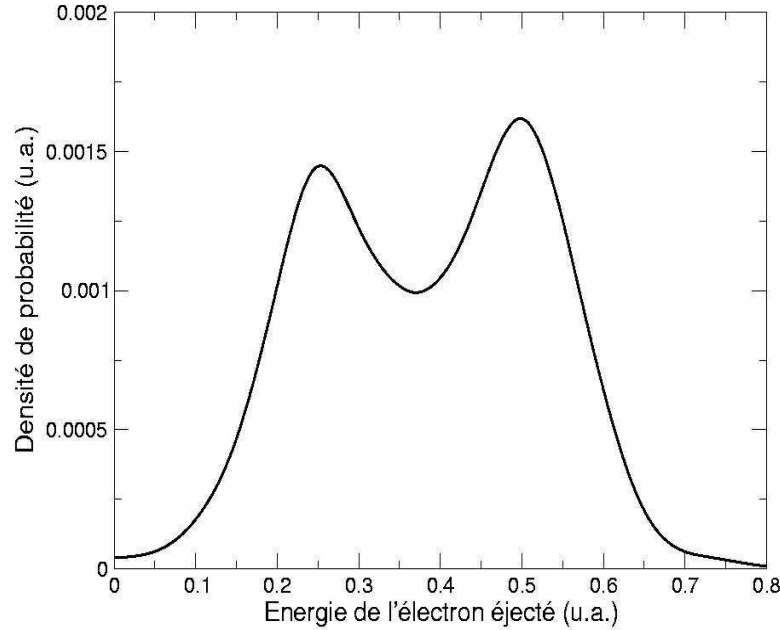


FIGURE 5.6: *Spectre intégré à un électron de double ionisation du béryllium par absorption de deux photons - Caractéristiques du champ laser :  $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$  ;  $\omega = 0.9 \text{ u.a.}$  ; 14 cycles optiques*

tion directe ou séquentielle, le processus dominant est donc la voie séquentielle, comme dans le cas de l'hélium. Les pics du spectre sont positionnés respectivement aux énergies 0.25 u.a. et 0.5 u.a.. Le processus est donc séquentiel via le canal  $2s$ , puisque les énergies théoriquement attendues dans ce cas sont, d'après le schéma (5.5),  $E_1 = 0.55 \text{ u.a.}$  et  $E_2 = 0.24 \text{ u.a.}$ . Ces valeurs théoriques et celles obtenues à partir du spectre ne sont pas exactement les mêmes car nous avons approximé les états finaux du double continuum par un produit d'orbitales  $\text{Be}^+$ . Le pic de plus haute énergie sur le spectre correspond à l'ionisation du béryllium depuis son état fondamental  $2s^2$  par l'absorption du premier photon, conduisant alors à la production de l'ion  $\text{Be}^+$  dans un état  $2s$ . Le pic de plus basse énergie, quant à lui, est la signature de l'ionisation de l'ion  $\text{Be}^+([1s^2]2s)$  par le second photon.

La première remarque importante que nous venons de tirer de la figure (5.6) peut se résumer ainsi :

*Pour des photons d'énergies supérieures à 18 eV, domaine énergétique où les mécanismes de double ionisation par absorption de deux photons peuvent être direct ou séquentiel, c'est le processus séquentiel via le canal  $2s$  qui est domi-*

nant.

Nous avons démontré précédemment, à l'aide du schéma (5.5), qu'il existait une deuxième voie séquentielle possible depuis le canal  $2p$ . Celle-ci entrainerait l'éjection des électrons avec des énergies  $E_3 = 0.41$  u.a. et  $E_4 = 0.38$  u.a.. Bien qu'elle ne soit pas la voie dominante, essayons tout de même de la visualiser. Pour cela, regardons sur la figure (5.7) la contribution de chaque canal de double ionisation pris en compte dans l'obtention du spectre total de la figure (5.6). Le poids de chaque canal est en accord avec les propos

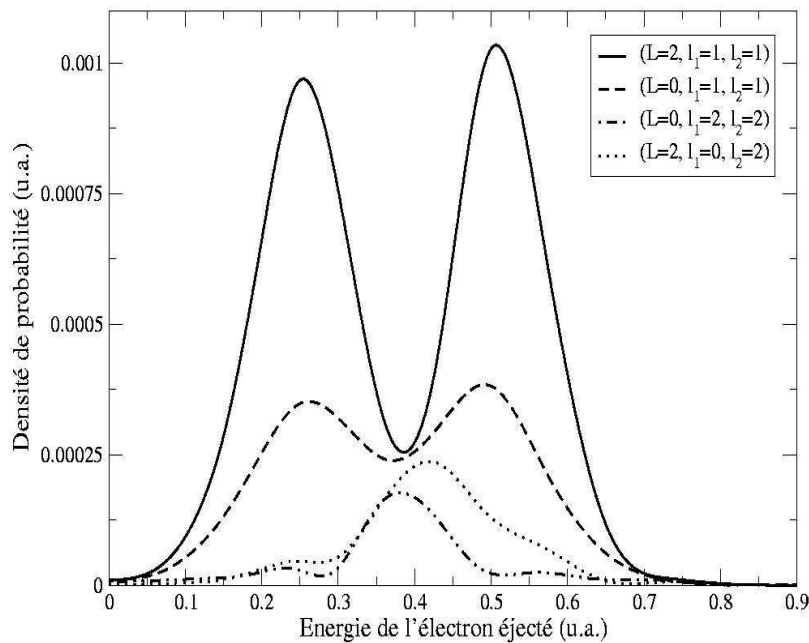


FIGURE 5.7: Spectres intégrés à un électron de double ionisation du béryllium par absorption de deux photons dans les canaux  $(L = 2, l_1 = 1, l_2 = 1)$ ,  $(L = 0, l_1 = 1, l_2 = 1)$ ,  $(L = 0, l_1 = 2, l_2 = 2)$  et  $(L = 2, l_1 = 0, l_2 = 2)$  - Caractéristiques du champ laser :  $I = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> ;  $\omega = 0.9$  u.a. ; 14 cycles optiques

tenus dans la section 3.3.2 dans le cas de l'hélium. Les canaux  $(L = 2, l_1 = 1, l_2 = 1)$  et  $(L = 0, l_1 = 1, l_2 = 1)$  sont ceux qui apportent la plus grande contribution, car ils peuvent être ouverts depuis un état fondamental décrit à l'ordre le plus bas de la théorie des perturbations. Le canal  $(L = 0, l_1 = 1, l_2 = 1)$  est deux fois moins probable que le canal  $(L = 2, l_1 = 1, l_2 = 1)$  pour des raisons purement mathématiques liées aux coefficients de Clebsch-Gordan (3.24). Les canaux  $(L = 0, l_1 = 2, l_2 = 2)$  et  $(L = 2, l_1 = 0, l_2 = 2)$  ont une densité de probabilité faible car ils sont quant à eux ouverts uniquement en prenant en compte la composante  $2p^2$  de l'état fondamental, de moindre contribution que la com-

posante principale  $2s^2$ . Enfin, les canaux  $(L = 0, l_1 = 3, l_2 = 3)$ ,  $(L = 0, l_1 = 0, l_2 = 0)$  et  $(L = 2, l_1 = 1, l_2 = 3)$ , qui sont pourtant compris dans le spectre total (5.6), ne sont pas reportés sur la figure (5.7) car leurs poids sont beaucoup trop faibles pour être représentés. Sur la figure (5.7), les canaux  $(L = 0, l_1 = 2, l_2 = 2)$  et  $(L = 2, l_1 = 0, l_2 = 2)$  sont ouverts uniquement par le processus séquentiel via le canal  $2p$ . Leurs spectres caractéristiques devraient alors présenter deux pics positionnés aux énergies  $E_3 = 0.41$  u.a. et  $E_4 = 0.38$  u.a.. Nous n'observons cependant qu'un seul pic de plus haute probabilité situé aux alentours de  $0.4$  u.a.. Deux points peuvent expliquer cette discordance. Tout d'abord, la faible densité de probabilité de ce processus ne permet pas de bien le caractériser sur la figure (5.7). Ensuite, la densité d'états de notre base radiale n'est pas assez importante pour pouvoir différencier deux pics aux énergies aussi proches l'une de l'autre. Toutefois, l'unique pic du spectre couvre le bon intervalle d'énergie, ce qui laisse à penser qu'avec une très grande densité d'états, nous devrions observer les deux pics caractéristiques.

### Influence sur les sections efficaces

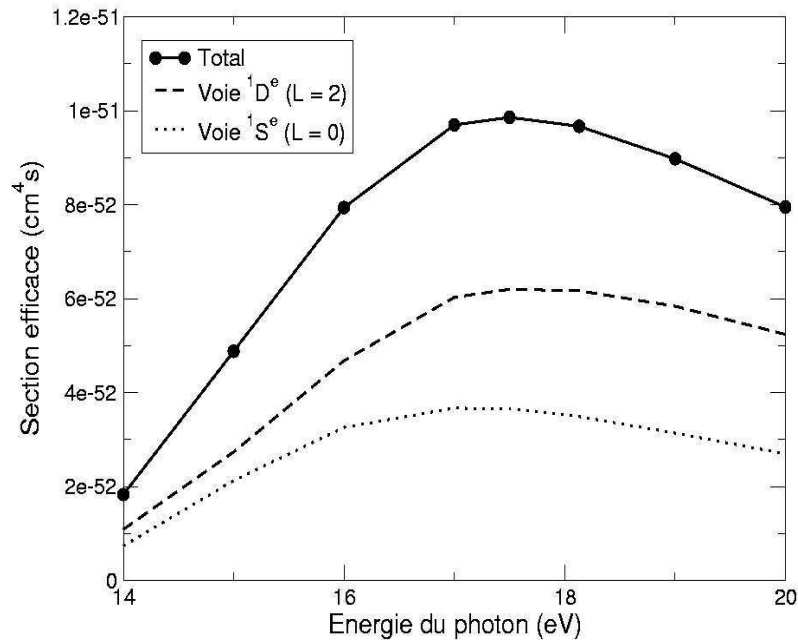


FIGURE 5.8: Sections efficaces totales de double ionisation du béryllium par absorption de deux photons (trait plein). Les contributions des canaux  $^1S^e$  et  $^1D^e$  sont également représentées

Regardons sur la figure (5.8) l'évolution des sections efficaces de double ionisation du

béryllium par absorption de deux photons, au fur et à mesure que l'énergie du photon augmente. Nous avons reporté les résultats de sections efficaces totales, ainsi que ceux relatifs aux canaux de symétries  $^1S^e$  et  $^1D^e$ . Ce sont les voies  $^1S^e$  qui apportent la plus grande contribution, toujours en accord avec les explications de la section 3.3.2. Nous observons que les résultats augmentent avec l'énergie du photon jusqu'aux environs de  $\omega = 18$  eV, puis diminuent progressivement. La section efficace atteint donc un maximum lorsque le processus de double ionisation séquentielle devient possible énergétiquement. A titre de comparaison, la figure (5.9) donne des résultats de sections efficaces dans le cas de l'hélium. Nous pouvons vérifier que la même évolution est observée : l'ouverture

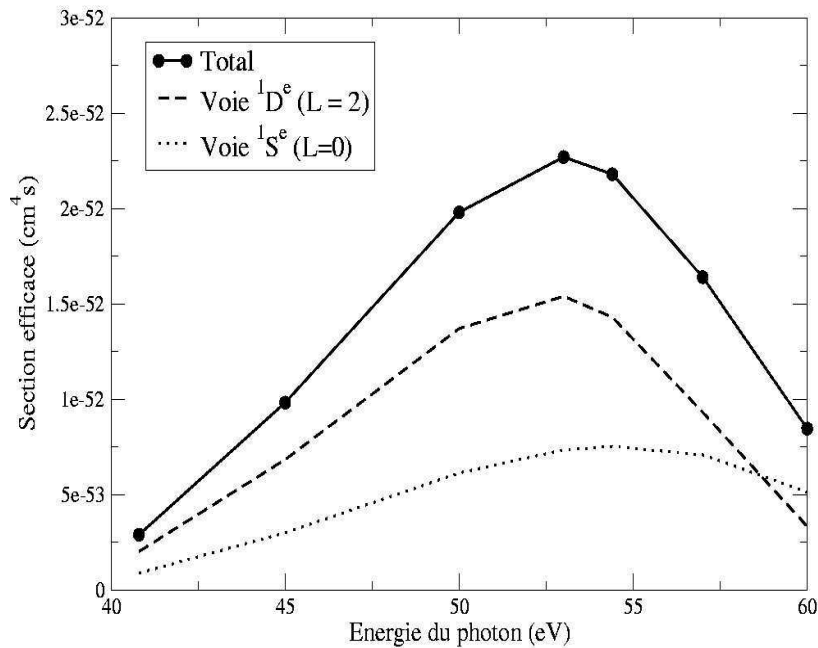


FIGURE 5.9: Sections efficaces totales de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons (trait plein). Les contributions des canaux  $^1S^e$  et  $^1D^e$  sont également représentées

de la voie séquentielle, avec des photons d'énergies de 55 eV dans le cas de l'hélium, entraîne une diminution des sections efficaces. Une étude théorique sur la double ionisation du magnésium, faite par Nikolopoulos et coll. [105], a également obtenue la même caractéristique.

Lorsque la double ionisation passe du régime direct au régime séquentiel, la probabilité de double ionisation devient proportionnelle à  $T^2$ ,  $T$  étant le temps d'interaction. En effet, elle est dans ce cas proportionnelle au produit de la probabilité d'ioniser l'atome  $\Gamma_{at}T$

(3.50) par la probabilité d'ioniser l'ion associé  $\Gamma_{ion}T$ . Dans ces conditions, la définition de la section efficace de double ionisation définie en (3.39) n'est plus pertinente car elle devient dépendante du temps. Aussi convient-il de préciser les paramètres du champ laser utilisés pour calculer les sections efficaces des figures (5.8) et (5.9) avec l'expression (3.39) :  $I = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, 10 cycles optiques. Les taux d'ionisation  $\Gamma_{at}$  et  $\Gamma_{ion}$  décroissant avec l'augmentation de l'énergie du photon, la probabilité de double ionisation pour un temps d'interaction donné doit tout de même décroître au dessus du seuil séquentiel. Nous avons vérifié cela numériquement. L'évolution générale des figures (5.8) et (5.9) reste donc valable. Il est important de noter ici la puissance d'une approche ESDT qui intègre parfaitement les différents régimes de double ionisation.

### 5.2.5 Les échelles de temps d'interaction

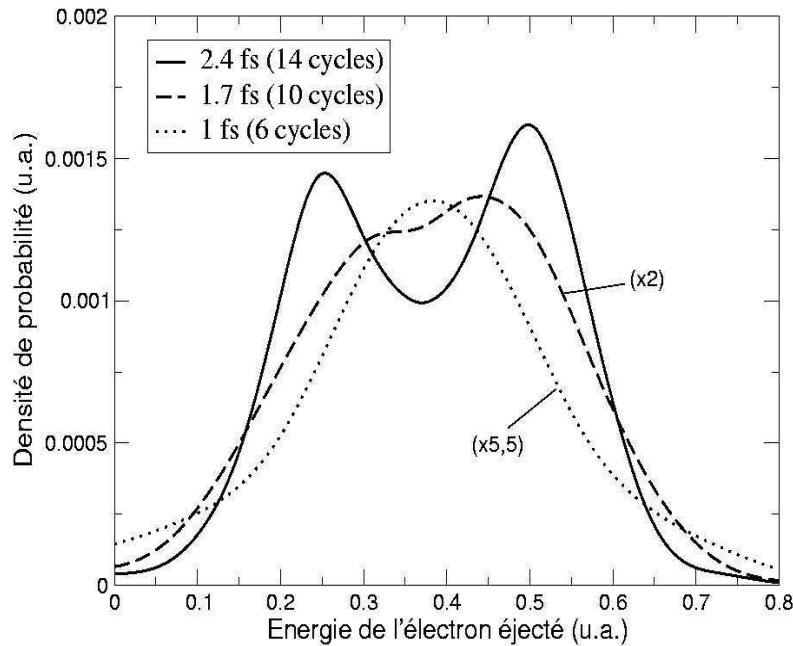


FIGURE 5.10: *Evolution du spectre énergétique de double ionisation séquentielle du béryllium en fonction du temps d'interaction. Par souci de clarté de la figure, les résultats associés à 10 et 6 cycles optiques ont été multipliés respectivement par un facteur 2 et 5.5 - Caractéristiques du champ laser :  $I = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> ;  $\omega = 0.9$  u.a.*

Nous venons d'observer que la distribution énergétique entre les électrons éjectés dans le double continuum était directement liée aux mécanismes d'ionisation multiphotonique. Lors de l'étude faite dans le cadre de l'interaction laser-hélium, nous avons également

constaté que la variation du temps de propagation de l'impulsion laser influait sur les mécanismes de double ionisation. Lorsque les impulsions lasers atteignent une durée d'une centaine d'attosecondes, nous avons observé que les processus de double ionisation directe et séquentielle de l'hélium n'étaient plus différenciables. Avec de tels champs ultra-brefs, nous nous trouvons dans les échelles de temps de la relaxation électronique au sein de l'atome d'hélium.

Etudions maintenant la dynamique des processus d'interaction entre des champs ultra-brefs et l'atome de béryllium. La figure (5.10) représente l'évolution de la densité de probabilité totale de double ionisation du béryllium par absorption de deux photons de 0.9 u.a., en fonction du temps de propagation laser. Trois durées d'impulsions sont considérées ici : une durée correspondant à 14 cycles optiques (soit environ 2.4 femtosecondes), 10 cycles optiques (1.7 fs) et 6 cycles optiques (1 fs). Le spectre associé au temps d'interaction le plus long vient d'être étudié sur la figure (5.6), et caractérise le processus de double ionisation séquentielle via le canal  $2s$ . L'écart entre les deux pics correspond à l'énergie de corrélation dans l'état fondamental du béryllium. La définition de cette énergie, posée dans le cas de l'hélium (4.10), est applicable dans le cas du béryllium :

$$E_{corr} = E_1 - E_2 = E_{Be([1s^2]2s^2)} - 2 \times E_{Be^+([1s^2]2s)} \quad (5.2)$$

D'après le diagramme (5.5), elle est théoriquement égale à 0.31 u.a., soit 8.4 eV. L'écart observé entre les deux pics du spectre relatif au temps d'interaction le plus long, sur la figure (5.10), est de 0.25 u.a. (6.8 eV). La différence notée entre énergie de corrélation théorique et énergie de corrélation "mesurée" peut être légèrement réduite si l'on prend en compte dans les calculs les effets de corrélations au niveau des états du double continuum. Lorsque nous appliquons une impulsion de plus en plus brève, les deux pics caractéristiques du spectre ont tendance à se rapprocher l'un de l'autre. Pour une durée d'impulsion de 6 cycles optiques, soit une femtoseconde environ, les deux pics ne sont plus différenciables. Le temps de relaxation électronique, défini en (4.11), est de l'ordre de 0.49 fs pour le béryllium. Cette échelle de temps correspond à la durée à mi-hauteur de l'impulsion de 6 cycles optiques. Nous sommes donc dans le cas où la durée de l'impulsion est du même ordre de grandeur que le temps de relaxation du paquet d'onde  $\Phi_{ns}$  vers l'état  $Be^+([1s^2]2s)$  (voir section 4.4.1). Les processus direct et séquentiel ne sont donc plus caractérisables, ce qui explique la forme non marquée du spectre.

Les mécanismes de double ionisation multiphotonique du béryllium réagissent donc de la même façon que dans le cas de l'hélium. Cependant, la différence importante entre les deux

atomes est que des impulsions femtosecondes sont maintenant suffisantes pour atteindre la dynamique électronique du béryllium, comparées aux temps attosecondes pour l'hélium. D'un point de vue expérimental, l'atome de béryllium serait donc un meilleur candidat pour observer la dynamique électronique.

### Les impulsions à dérive de fréquence

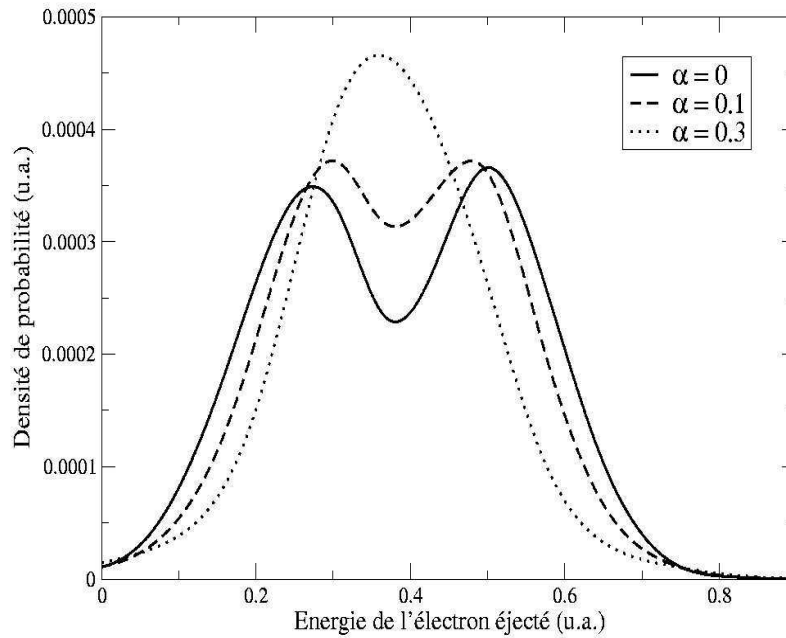


FIGURE 5.11: *Evolution du spectre énergétique à un électron suivant la valeur du paramètre de chirp  $\alpha$ , dans le canal d'ionisation ( $L = 2, l_1 = 1, l_2 = 1$ ) - Caractéristiques du champ laser :  $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$  ;  $\omega = 0.9 \text{ u.a.}$  ; 10 cycles optiques*

Pour conclure l'étude de la dynamique des électrons de valence du béryllium en champ laser intense et bref, regardons sur la figure (5.11) l'évolution du spectre intégré à un électron de double ionisation par absorption de deux photons suivant la valeur du paramètre de chirp (1.8). Lorsque la valeur de ce paramètre augmente, le phénomène de rapprochements des pics l'un par rapport à l'autre est également observé dans ce cas. Pour un "chirp"  $\alpha$  égal à 0.3 u.a., le spectre associé ne différencie plus le processus séquentiel du processus direct. Nous avons constaté dans la section (4.4.2) que l'augmentation de ce paramètre correspondait à une diminution de la durée d'impulsion. Ainsi, une impulsion de 10 cycles optiques, soit environ 1.7 fs, avec une forte dérive en fréquence est suffisante pour atteindre les échelles de temps électronique au sein de l'atome de béryllium.



### 5.3 Vers l'ionisation du coeur électronique

Nous allons dans cette dernière partie explorer la dynamique du coeur électronique  $1s^2$  de l'atome de béryllium. Ioniser la couche électronique interne du béryllium avec une impulsion laser ultra-brève nécessite des énergies de photon extrêmement élevées comparées à celles utilisées pour les électrons de valence. Le développement de sources UV-XUV, comme notamment le laser à électrons libres présenté dans le chapitre 1, va permettre de produire dans un futur proche de tels champs lasers.

Nous allons voir que notre approche théorique est adaptable à la représentation de la dynamique des électrons du coeur. Le potentiel modèle, qui représentait le coeur  $1s^2$  gelé par rapport aux électrons  $2s^2$ , peut être modifié pour définir la configuration inverse : nous verrons que seuls les électrons du coeur seront considérés comme actifs aux énergies de photons et aux temps d'interaction que nous allons considérer. Nous présenterons alors quelques résultats récents sur la double ionisation du coeur du béryllium par absorption d'un photon et de deux photons, prémises d'une étude systématique des atomes alcalino-terreux en champ laser UV-XUV.

#### 5.3.1 "Activation" du coeur $1s^2$

La figure (5.12) représente la structure électronique de l'atome de béryllium, dans le cas où nous avons cette fois-ci fait l'approximation de geler la couche externe  $2s^2$  par rapport à la couche interne  $1s^2$ . Le potentiel modèle utilisé est défini en (2.15). L'état fondamental est alors noté sous la forme  $1s^2[2s^2]$ . Il se situe à  $-11.59$  u.a. ( $-315.5$  eV), en positionnant toujours le seuil de double ionisation à zéro. Le potentiel de simple ionisation est égal à  $4.64$  u.a. ( $126.2$  eV). Les énergies de quelques états liés ainsi que des états du continu ont été données dans le tableau (2.4).

Afin de tester la validité d'une telle approximation, regardons les résultats de sections efficaces de simple ionisation du béryllium par absorption d'un photon présentés sur la figure (5.13). Pour une énergie de photon supérieure à  $126.2$  eV, énergie nécessaire pour arracher un électron  $1s$  du coeur du béryllium, nous constatons que le processus d'ionisation du coeur est largement dominant par rapport au processus d'ionisation des électrons de valence. Le fait d'avoir gelé la configuration des électrons  $2s^2$  est donc légitime : avec de telles énergies, le système atomique du béryllium peut être considéré comme un système avec seulement deux électrons actifs  $1s$ . Les résultats de sections efficaces présentés sur la figure (5.13) pour la couche  $1s^2$  sont en bon accord avec d'autres résultats théoriques

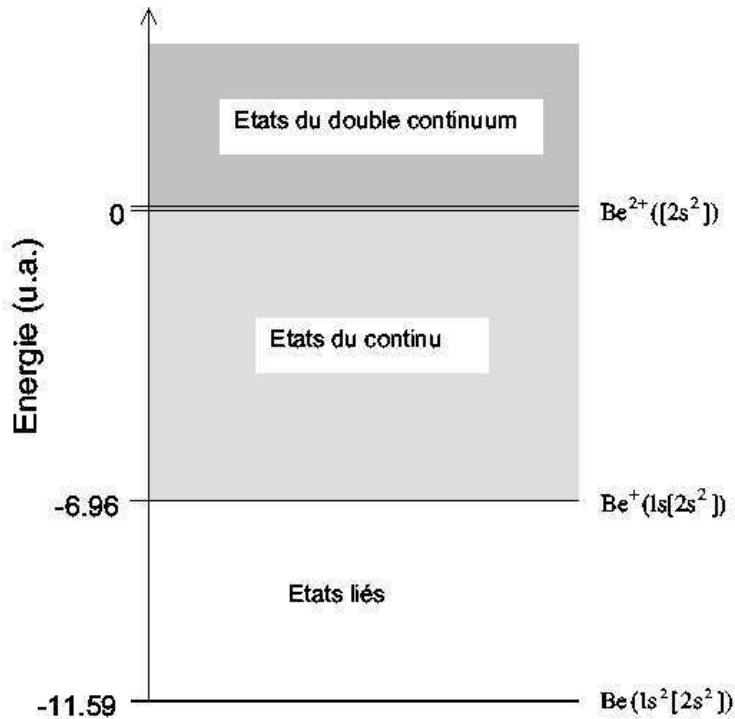


FIGURE 5.12: *Diagramme énergétique du coeur électronique du béryllium en présence de la configuration gelée des électrons de valence*

obtenus récemment par Kheifets et coll. [110].

### 5.3.2 Quelques résultats

Nous présentons maintenant sur la figure (5.14) des résultats de sections efficaces de double ionisation du coeur électronique du béryllium par absorption d'un photon. La ligne en pointillé indique l'énergie minimale requise pour qu'un seul photon produise la double éjection des deux électrons du coeur. Elle est égale à 315.5 eV (11.59 u.a.), d'après le diagramme (5.12). Les résultats ont été obtenus à partir de l'ESDT en représentation Schrödinger et en représentation interaction. Les deux calculs convergent relativement bien, et restent inférieurs au kilobarn. Ce processus est beaucoup moins probable que la simple ionisation dans une gamme d'énergie où ils sont tous deux possibles. En effet, les sections efficaces relatives à la simple ionisation, présentées sur la figure (5.13), sont de l'ordre du mégabarn.

La figure (5.15) montre pour sa part des résultats de sections efficaces de double ionisation du coeur  $1s^2$  du béryllium par absorption de deux photons. Les énergies des photons

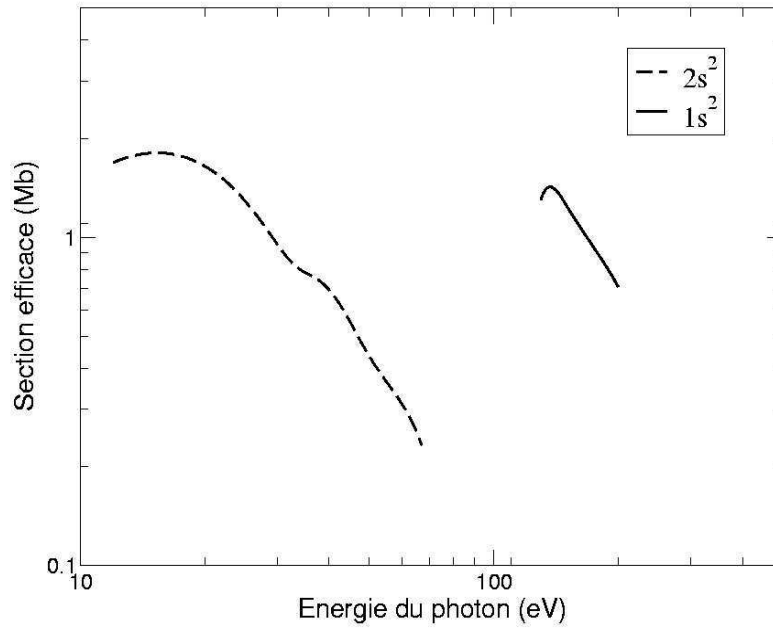


FIGURE 5.13: Sections efficaces de simple ionisation des couches  $1s^2$  et  $2s^2$  du béryllium par absorption d'un photon

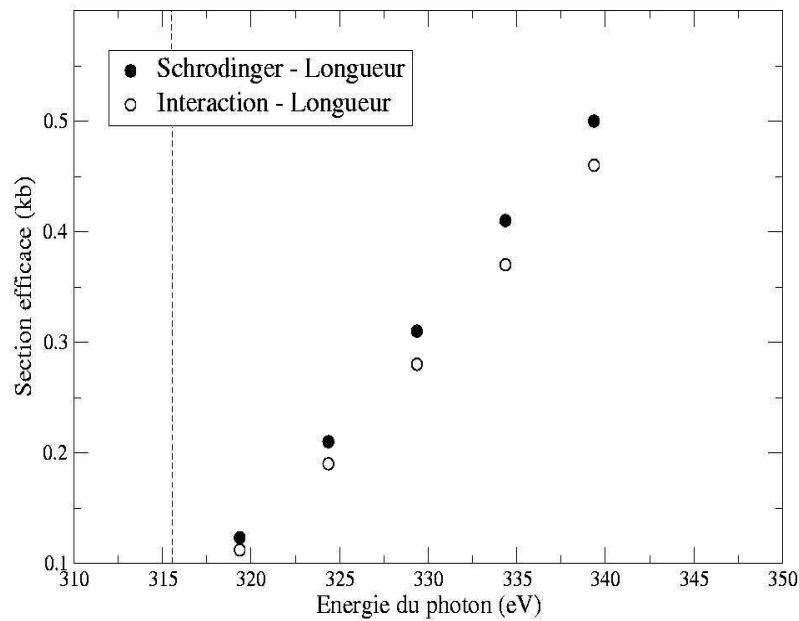


FIGURE 5.14: Sections efficaces de double ionisation du coeur  $1s^2$  du béryllium par absorption d'un photon. La ligne en pointillé définit la position du seuil de double ionisation par un photon

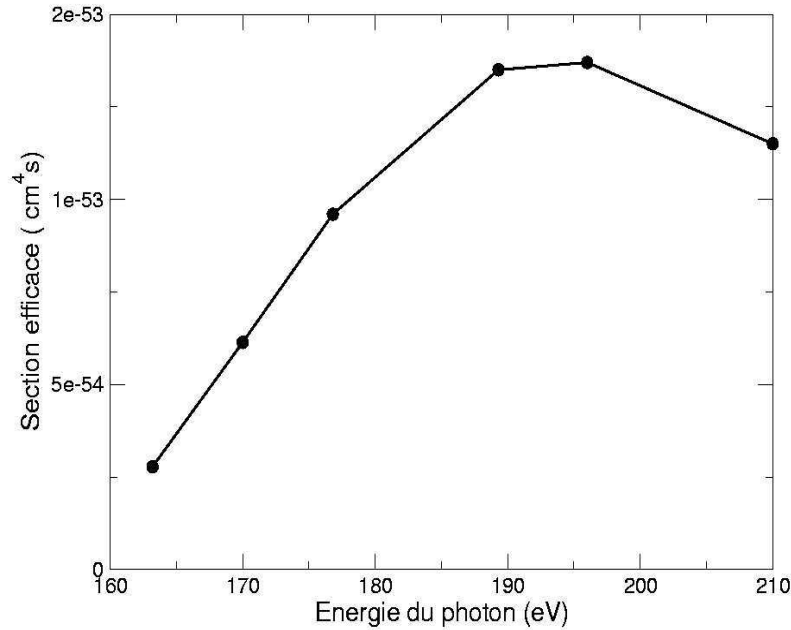
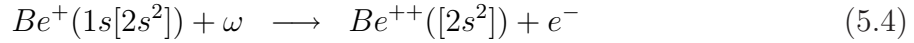
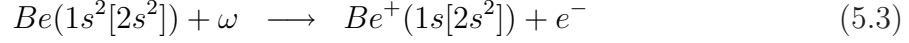


FIGURE 5.15: *Sections efficaces de double ionisation du coeur  $1s^2$  du béryllium par absorption de deux photons*

considérées sont comprises entre 160 eV et 210 eV. Les résultats ont été calculés en jauge longueur et en représentation Schrödinger. Avant d'examiner l'évolution des sections efficaces, caractérisons énergétiquement les processus de double ionisation à deux photons dans le cas du coeur  $1s^2$ . D'après la diagramme (5.12), la double ionisation directe sera la seule voie possible pour des énergies de photons comprises entre 158 eV (5.8 u.a.) et 189 eV (6.96 u.a.). Au delà de 189 eV, le processus de double ionisation séquentielle deviendra possible. En tenant compte des conclusions que nous avons faites lors des études précédentes sur l'atome d'hélium et sur la couche  $2s^2$  du béryllium, il est raisonnable de penser que le processus séquentiel sera également dominant par rapport au processus direct dans ce cas. Sur la figure (5.15), nous observons que la valeur de la section efficace est maximale pour une énergie de photon de 190 eV environ, ce qui correspond au seuil du processus séquentiel. L'ouverture de cette voie entraîne donc une diminution de la section efficace de double ionisation du coeur électronique, phénomène déjà observé dans les cas précédents. Il faut cependant traiter prudemment ces résultats, comme expliqué précédemment pour les figures (5.8) et (5.9), et préciser les caractéristiques du champ laser utilisées ici :  $I = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> et 10 cycles optiques.

Le processus de double ionisation séquentielle du coeur  $1s^2$  du béryllium peut être schématisé

de la façon suivante :



L'absorption du premier photon produit l'ion  $Be^+(1s[2s^2])$  et éjecte un électron  $1s$ . Le deuxième photon ionise alors cet ion et éjecte le deuxième électron  $1s$ , laissant un ion résiduel doublement chargé  $Be^{++}([2s^2])$ . Nous avons vu que la dynamique du processus séquentiel, défini par les étapes (5.3) et (5.4), dépendait fortement de la durée d'interaction avec le champ laser. L'énergie de corrélation dans l'état fondamental  $1s^2$  est égale à 2.3 u.a., ce qui correspond à un temps de corrélation de l'ordre de 0.06 femtosecondes (4.11). La relaxation de l'état non stationnaire  $1skp$  atteint par le premier photon, vers l'état  $Be^+(1s[2s^2])$ , se produira si la durée de l'impulsion laser est suffisamment longue par rapport à ce temps de corrélation. Cette condition est respectée par les lasers à électrons libres, seules sources capables de fournir des énergies de photon pouvant ioniser le coeur électronique, dont la durée moyenne d'impulsion est (ou sera) de l'ordre de la centaine de femtosecondes (voir tableau (1.1)).

A ce niveau, il est nécessaire de vérifier que l'approximation que nous avons faite dans notre approche, c'est-à-dire de geler la configuration de la couche  $2s^2$ , est toujours valide. En effet, l'état  $Be^+(1s,2s^2)$  est un état non stationnaire qui peut se relaxer vers la série d'états autoionisants  $Be^+(1s,2lnl)$ . Par définition, un état autoionisant a une certaine probabilité que l'un des électrons sur une orbitale excitée se désexcite vers une orbitale plus basse énergétiquement, sans perturbation extérieure. Un état autoionisant  $(1s,2lnl)$  peut donc se relaxer vers le continu  $1s^2ks$  pendant un certain temps. Ainsi, lors de la double ionisation séquentielle, la configuration gelée des électrons  $2s^2$  restera valable tant que la relaxation de l'état  $Be^+(1s,2s^2)$  vers les états  $Be^+(1s^2,ks)$  ne pourra pas se produire avant l'absorption du deuxième photon. Le temps de vie de l'état autoionisant  $(1s,2s^2)$  est estimé dans un ordre de grandeur de la dizaine de femtosecondes [112]. La conclusion que nous pouvons en tirer est que notre approche permet d'appréhender des impulsions lasers en régime subfemtoseconde. A ces échelles de temps, la relaxation de la couche externe  $2s^2$  du béryllium n'aura lieu que longtemps après la fin de l'interaction avec l'impulsion, c'est-à-dire à un temps  $t \gg T/2$ .

## 5.4 Conclusion

Dans le premier paragraphe de ce chapitre, nous nous sommes intéressés à l'ionisation des électrons de valence du béryllium en champ laser intense et bref. Nos résultats concernant des sections efficaces de double ionisation par absorption d'un photon se sont tout d'abord avérés en parfaite adéquation avec ceux obtenus par différentes approches théoriques ou expérimentales récentes. En focalisant notre attention sur la double ionisation par absorption de deux photons, nous avons alors constaté les mêmes comportements que ceux déjà observés dans le cas de l'hélium :

- Lorsque les processus direct et séquentiel sont possibles, le processus dominant est séquentiel.
- Le spectre en énergie des électrons éjectés est dans ce cas défini par deux pics distincts, séparés par l'énergie de corrélation électronique dans l'état fondamental atomique.
- Lorsque le temps d'interaction laser diminue, la distribution énergétique des électrons ionisés n'est plus caractérisée par deux pics.

Les différences majeures viennent des ordres de grandeurs énergie et temps mis en jeu. Les processus de double ionisation du béryllium nécessitent des énergies photoniques trois fois moins importantes que dans le cas de l'hélium. De plus, des impulsions femtosecondes sont suffisantes pour sonder la relaxation électronique au sein du béryllium, comparées aux temps attosecondes pour l'hélium.

Dans le paragraphe 5.3, nous avons débuté l'étude de la dynamique des électrons du coeur électronique de l'atome de béryllium. L'ionisation de la couche interne nécessite un rayonnement laser de fort éclairement et de haute énergie. En effet, la double ionisation du coeur par absorption de deux photons requiert des énergies de photons supérieures à 160 eV. Les lasers à électrons libres, en plein développement actuellement, peuvent prétendre à fournir de tels photons. Au niveau de notre représentation théorique, la configuration des électrons de valence a été gelée, et leurs interactions avec le coeur électronique définies par un potentiel modèle adapté. Les quelques résultats que nous avons présentés nécessitent de plus amples investigations, et ouvrent la voie vers l'étude des processus non linéaires dans les couches internes des atomes alcalino-terreux.



# Conclusion

La motivation du travail que nous venons de présenter dans ce document a été d'étudier les processus de double ionisation de systèmes atomiques diélectroniques en présence de champs lasers intenses et brefs. Pour cela, nous nous sommes basés sur une approche numérique non perturbative de l'interaction laser-atome, où nous avons résolu de façon complète l'équation de Schrödinger dépendante du temps. Quatre points sont essentiels pour définir correctement notre méthode : une modélisation adaptable de l'impulsion laser, une description précise de la structure électronique de l'atome isolé, des calculs efficaces pour la propagation du champ laser, et enfin un choix adéquat de la représentation des états finaux atteints après interaction.

Nous avons tout d'abord défini dans le chapitre 1 la forme de l'impulsion laser que nous avons utilisée dans notre travail. Il s'agit d'une impulsion unique, décrite dans une représentation semi-classique et dans le cadre de l'approximation dipolaire, avec une enveloppe temporelle qui englobe les oscillations du champ électrique durant un temps de propagation fini, avec un temps de montée progressif jusqu'à une intensité crête. Cette représentation est bien adaptée pour décrire une impulsion ultra-brève et intense. Les rayonnements lasers qui nous ont en effet intéressés tout au long de ce document sont des impulsions femto- ou subfemtosecondes dans le domaine UV-XUV, capables d'être produits actuellement, ou dans un futur proche, par les sources harmoniques ou les lasers à électrons libres.

Le chapitre 2 s'est alors axé sur le calcul de l'ensemble du spectre électronique d'un système atomique à deux électrons actifs. Nous avons pour cela utilisé une méthode de configuration d'interaction de fonctions diélectroniques, dans laquelle le terme de corrélations électron-électron est pris en compte de façon très précise. Les fonctions diélectroniques de base sont définies par un produit antisymétrisé de fonctions B-splines



pour leur partie radiale, et de fonctions harmoniques sphériques pour leur partie angulaire. L'utilisation des B-splines s'est avérée être un outil très efficace, souple, peu demandeur en mémoire de stockage, pour le calcul des états atomiques. Le spectre énergétique de l'atome d'hélium, ainsi que de certains ions de sa série isoélectronique, ont été ainsi parfaitement établis. La flexibilité de notre méthode a également permis d'introduire la description d'un coeur électronique dans la structure, pour pouvoir étudier l'atome de béryllium. La configuration gelée du coeur électronique par rapport aux électrons de valence, ou inversement suivant le domaine énergétique étudié, est représentée par un potentiel modèle.

L'interaction laser-atome proprement dite a été résolue par un traitement non perturbatif de type spectral. Lors de la résolution de l'équation de Schrödinger non relativiste dépendante du temps, les fonctions d'onde dépendantes du temps sont en effet développées sur la base des états stationnaires de l'atome non perturbé. Ce qui confère à cette approche des temps de calculs peu élevés, et une facile extraction de nombreuses quantités physiques.

La description des différents couplages possibles avec un ou deux photons entre l'état fondamental atomique et les états du double continuum, ainsi que la représentation de ces derniers, ont été les points importants du chapitre 3. Nous avons constaté que, contrairement à la double ionisation par absorption d'un photon, le processus à deux photons n'avait pas besoin des corrélations électroniques pour se produire. Nous avons donc choisi dans un premier temps de négliger les interactions entre les deux électrons libres dans le double continuum, en définissant les états doublement ionisés par un simple produit d'orbitales  $\text{He}^+$  dans le cas de l'hélium,  $\text{Be}^+$  pour le béryllium. En étendant notre approche, nous avons alors introduit une partie des corrélations radiales (écranage) pour affiner la description du double continuum atomique.

Dans les chapitres 4 et 5, nous avons finalement appliqué notre méthode numérique à l'étude de la double ionisation de l'hélium et du béryllium par absorption d'un photon et de deux photons. Les nombreux résultats que nous avons présentés se sont focalisés principalement sur des calculs de sections efficaces totales d'ionisation, et sur la distribution énergétique entre les électrons éjectés dans le double continuum. Grâce à l'analyse des spectres en énergie des électrons, nous avons pu caractériser de façon systématique les processus de double ionisation directe et séquentielle. La diminution de la durée de l'impulsion laser nous a également permis d'appréhender les échelles de temps de relaxation électronique au sein de ces atomes. Des impulsions femtosecondes sont suffisantes

pour sonder la dynamique électronique du béryllium, comparées aux temps attosecondes pour l'atome d'hélium. L'étude du comportement des ions de la série isoélectronique de l'hélium a servi à "visualiser" les effets des corrélations électron-électron, et à mieux comprendre leur rôle dans les processus non linéaires. Enfin, nous avons terminé notre travail en proposant quelques résultats sur la dynamique des électrons de la couche interne du béryllium en champ laser intense et bref.



# Perspectives

Hautes énergies photoniques, forts éclaircissements lasers, impulsions ultra-brèves, autant de caractéristiques qui ouvrent la voie vers une nouvelle physique de l'interaction laser-matière. Par exemple, l'étude des processus non linéaires dans les couches électroniques internes des atomes alcalino-terreux n'est qu'à ses premiers pas. Les résultats sur l'ionisation du coeur du béryllium, que nous avons présentés dans la section 5.3.2, méritent de plus amples investigations.

Les travaux effectués dans les sections 4.4.1 et 5.2.5 ont montré que des durées d'impulsions femtosecondes ou subfemtosecondes pouvaient sonder la relaxation électronique au sein des atomes. La dynamique ultra-rapide non linéaire est un sujet très intéressant à approfondir. En particulier, l'influence des états autoionisants dans les processus de double ionisation multiphotonique en régime ultra-bref. Un processus de type pompe-sonde pourrait être envisagé pour cerner plus précisément le rôle de ces états particuliers. Un photon "pompe" amorcerait le premier pas de la double ionisation séquentielle de l'atome, en ionisant celui-ci dans son état fondamental. L'énergie de ce photon serait tout d'abord suffisamment faible pour ne pas atteindre la zone des états autoionisants. Le second photon "sonde" aurait alors une énergie assez importante pour ioniser l'ion simplement chargé. Le spectre en énergie des électrons éjectés devrait être dans ce cas de la forme caractéristique attendue, à savoir marqué par deux pics. En faisant varier maintenant l'énergie de la pompe jusqu'à atteindre les niveaux des états autoionisants, et toujours en gardant une énergie de la sonde suffisante pour atteindre le double continuum depuis le seuil de simple ionisation, les possibles différences observées entre les spectres obtenus seraient une visualisation directe des effets des états autoionisants.

Un dernier point important peut être envisagé comme perspective du travail développé dans ce document. Après l'étude de la distribution énergétique des électrons éjectés lors

des processus de double ionisation, il serait intéressant de se pencher sur leur distribution angulaire. Nous avons constaté qu’une représentation du double continuum par un simple produit d’orbitales monoélectroniques donnait de très bons résultats au niveau des sections efficaces totales. Concernant le calcul de sections efficaces différentielles, le sujet est plus ouvert. Sans effets de corrélations entre eux, deux électrons emportant la même énergie auraient tendance à être éjectés dans un sens opposé l’un par rapport à l’autre [96]. Par contre, une étude récente de Makris et coll. [113] montre le rôle important des interactions électroniques radiales et angulaires, en observant que deux électrons cette fois-ci corrélés devraient être éjectés majoritairement dans un même sens. Il serait donc intéressant d’étendre notre méthode pour inclure de façon complète les corrélations électron-électron dans le double continuum. En effet, l’approche dite “ordre 1” développée dans la section 3.3.4 nous permet de représenter uniquement une partie des corrections radiales, et néglige les corrections angulaires. Nous pourrions nous baser sur l’idée de départ des méthodes de type 2SC (“Two-Screened Coulomb wavefunctions”), définies dans la section 3.2.1, qui consiste à utiliser les fonctions d’onde de Rudge et Seaton [114] affectées des conditions de charges effectives de Peterkop [115]. Celles-ci se résument par l’expression suivante :

$$\frac{Z_1}{k_1} + \frac{Z_2}{k_2} = -\frac{Z}{k_1} - \frac{Z}{k_2} + \frac{1}{k_{12}} \quad (5.5)$$

$Z_1$  et  $Z_2$  sont les charges effectives,  $k_1$  et  $k_2$  les normes des vecteurs impulsions des électrons. Un choix efficace pour prendre en compte de bonnes conditions asymptotiques [116] serait de définir les charges effectives de la façon suivante :

$$Z_1 = -Z + \frac{k_1(\vec{k}_1 \cdot \vec{k}_{12})}{(k_{12})^3} \quad (5.6)$$

$$Z_2 = -Z + \frac{k_2(\vec{k}_2 \cdot \vec{k}_{12})}{(k_{12})^3} \quad (5.7)$$

Ainsi, nous aurions un double continuum atomique défini par un produit de fonctions coulombiennes écrantées, où toutes les interactions électroniques seraient prises en compte.

# Annexes



## Les fonctions B-splines

### A.1 Construction numérique d'une base de B-splines

Une fonction B-spline  $j$  d'ordre  $k$  est un polynôme par morceaux d'ordre  $k-1$  défini dans une région finie  $[\xi_j, \xi_{j+1}]$  de l'espace  $[a, b]$ , soit :

$$B_j^k(r) = a_0 + a_1 r + \dots + a_{k-1} r^{k-1} \quad (\text{A.1})$$

La séquence de points  $\{\xi_j\}_{j=a,\dots,b}$  est appelée séquence de points d'arrêts. Une famille de fonctions B-splines sera alors notée  $B_i^k(r)$ , avec  $i = 1, \dots, N_b$ ,  $N_b$  étant le nombre total de B-splines considéré. Il est important de bien définir les conditions de continuités aux points d'arrêts délimitant les supports de chaque B-spline. Pour cela, nous construisons une séquence de noeuds  $t = \{t_i\}_{i=1,\dots,N_b+k}$ , avec :

$$\begin{cases} B(r) > 0 & \text{pour } r \in ]t_i, t_{i+k}[ \\ B(r) = 0 & \text{pour } r \notin [t_i, t_{i+k}] \end{cases}$$

Etant donné que les fonctions B-splines sont en tout point égales à un polynôme de degré  $k-1$ , on choisira la condition de continuité maximale : la dérivée  $k-2$  de la fonction est maximale aux points d'arrêts.

La construction numérique d'une base complète de B-splines peut alors se faire grâce à une relation de récurrence donnant la  $i$ ème B-spline d'ordre  $k$  sous la forme d'une combinaison de deux B-splines d'ordre immédiatement inférieur, soit :

$$B_i^k(r) = \frac{r - t_i}{t_{i+k-1} - t_i} B_i^{k-1}(r) + \frac{t_{i+k} - r}{t_{i+k} - t_{i+1}} B_{i+1}^{k-1}(r) \quad (\text{A.2})$$

La condition initiale de cette relation est donnée par le fait qu'une fonction B-spline d'ordre 1 est égale à 1 à l'intérieur de son support, et égale à zéro à l'extérieur. Le schéma



(A.1) nous donne un aperçu de la construction d'une base d'ordre 3 à partir de la relation de récurrence (A.2).

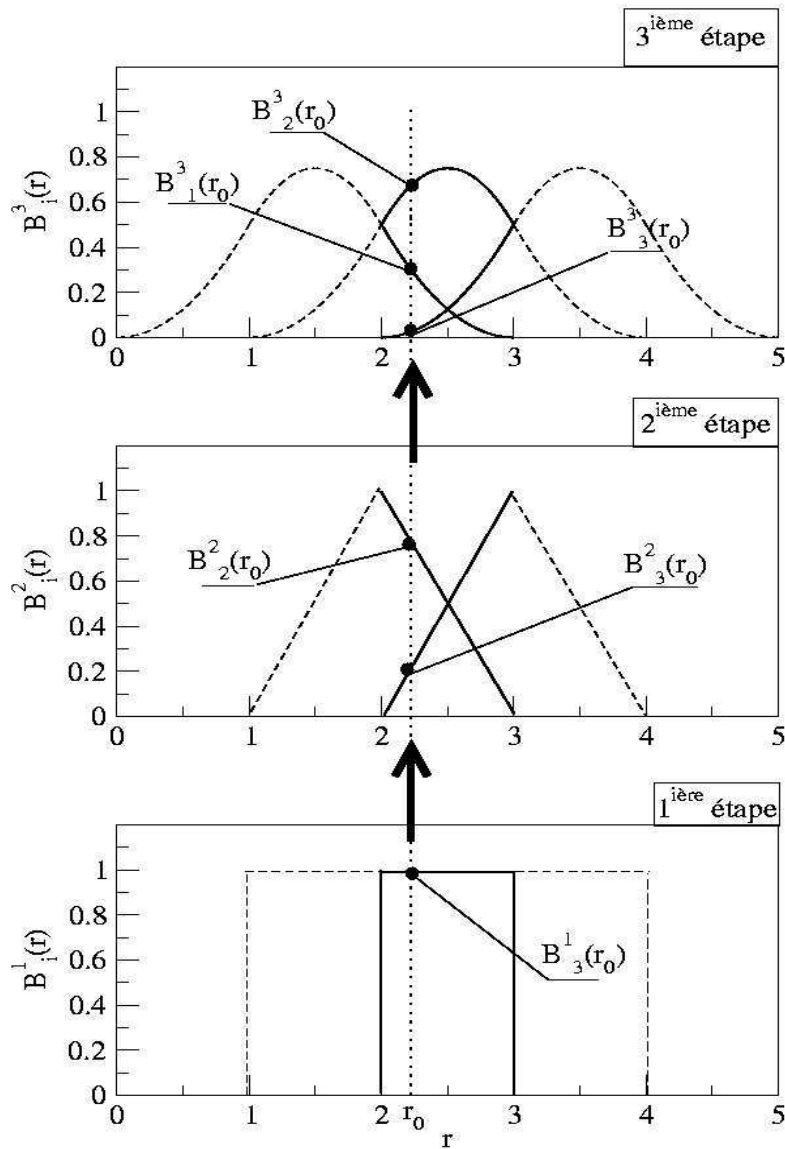


FIGURE A.1: Construction d'une base numérique de fonctions B-splines d'ordre 3 associée à la séquence de points d'arrêts  $\{0, 1, 2, 3, 4, 5\}$

## A.2 Application des B-splines à la base radiale atomique

Les principaux paramètres servant à définir une base de fonctions B-splines sont l'ordre  $k$  des polynômes, la séquence de points d'arrêts  $\{\xi_j\}_{j=a,\dots,b}$ , l'intervalle de travail  $[a, b]$  ainsi que le nombre total  $N_b$  de fonctions considérées. Regardons plus en détails ces différentes composantes et appliquons les à décrire correctement la base radiale d'un système atomique diélectronique.

### – Les bornes de l'espace de travail :

L'espace total  $[a, b]$  dans lequel sont définis les fonctions B-splines doit représenter l'espace radial atomique. La borne minimale  $a$  sera donc prise égale à zéro, la borne maximale fixée avec le paramètre  $R_{max}$ . Les fonctions B-splines sont nulles en ces bornes. Ce paramètre important fixe donc le rayon maximal de l'espace sphérique dans lequel nous allons décrire les états diélectroniques. Il va donc imposer un nombre fini d'états propres lors de la diagonalisation du Hamiltonien à deux électrons.

### – Le nombre $N_b$ de fonctions B-splines :

La structure électronique de l'atome sera d'autant mieux définie que ce nombre sera important. Cependant, il est indispensable d'ajuster ce paramètre par rapport à la dimension de la sphère numérique ; plus la densité de fonctions B-splines par unité de longueur sera importante, plus on obtiendra une structure précise. Le rapport  $N_b/R_{max}$  va ainsi fixer l'énergie maximale des états du double continuum correctement décrits.

### – La séquence de points d'arrêts :

Elle définit la disposition des points séparant les intervalles nécessaires à la construction des B-splines sur l'intervalle  $[0, R_{max}]$ . Plusieurs types de séquences peuvent être envisagés :

*Séquence linéaire* : Les points d'arrêts sont séparés par une distance constante. Cette répartition homogène permet une bonne représentation des états du continu. Nous avons dans ce cas :

$$\xi_i = \frac{R_{max}}{l}(i - 1) \quad \forall i = 1 \dots l$$

*Séquence exponentielle* : Les points d'arrêts sont séparés par des intervalles dont la longueur croît avec des  $r$  croissants. Cette répartition exponentielle permet d'avoir plus

d'états près de l'origine  $r = 0$ . Nous avons alors :

$$\xi_i = \frac{R_{max}}{e^{\frac{b(i-1)}{l}} - 1} (e^{\frac{b(i-1)}{l}} - 1) \quad \forall i = 1 \dots l$$

## Les lois d'échelle suivant la charge $Z$

### L'hydrogène et les ions de sa série isoélectronique

Des relations simples peuvent être établies pour étudier directement le comportement des ions hydrogénoïdes en régime d'ionisation multiphotonique, à partir de l'atome d'hydrogène. Pour cela, partons de l'équation de Schrödinger dépendante du temps d'un ion hydrogénoïde plongé dans un champ électromagnétique :

$$\left[ -\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} - \frac{1}{r} \frac{d}{dr} + \frac{l(l+1)}{2r^2} - \frac{Z}{r} - \vec{r} \cdot \vec{E}(t) - i \frac{\partial}{\partial t} \right] \Psi(\vec{r}, t) = 0 \quad (\text{B.1})$$

L'équation (B.1) est exprimée en unités atomiques. En divisant par  $Z^2$ , et en utilisant l'expression de  $\vec{E}(t)$  définie en (1.4), nous obtenons :

$$\left[ -\frac{1}{2} \frac{d^2}{d(Zr)^2} - \frac{1}{Zr} \frac{d}{d(Zr)} + \frac{l(l+1)}{2(Zr)^2} - \frac{1}{Zr} - (Z\vec{r}) \cdot \frac{\vec{E}_0(t)}{Z^3} \sin(\omega t) - i \frac{\partial}{\partial(Z^2t)} \right] \Psi(\vec{r}, t) = 0 \quad (\text{B.2})$$

Posons maintenant les nouvelles variables suivantes :

$$\vec{\rho} = Z\vec{r} \quad ; \quad \tau = Z^2t \quad (\text{B.3})$$

$$\vec{\mathcal{E}}_0 = \frac{\vec{E}_0}{Z^3} \quad ; \quad \Omega = \frac{\omega}{Z^2} \quad (\text{B.4})$$

L'équation (B.2) devient finalement :

$$\left[ -\frac{1}{2} \frac{d^2}{d\rho^2} - \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} + \frac{l(l+1)}{2\rho^2} - \frac{1}{\rho} - \vec{\rho} \cdot \vec{\mathcal{E}}_0 \sin(\Omega\tau) + i \frac{\partial}{\partial\tau} \right] \Phi(\vec{\rho}, \tau) = 0 \quad (\text{B.5})$$

Ce sont les transformations (B.3) et (B.4) que nous allons appeler "lois d'échelles suivant la charge  $Z$ ". Les nouvelles quantités  $\vec{\rho}$ ,  $\tau$ ,  $\vec{\mathcal{E}}_0$ , et  $\Omega$  utilisées dans l'équation (B.5) sont les quantités "vraies" pour  $Z = 1$ . Pour connaître la solution de l'équation de Schrödinger

(B.1) pour une charge  $Z \neq 1$ , il suffit de remplacer les variables  $\vec{r}$ ,  $t$ ,  $\vec{E}_0$ ,  $\omega$  par  $\vec{\rho}$ ,  $\tau$ ,  $\vec{E}_0$ ,  $\Omega$  en suivant les relations (B.3) et (B.4). En d'autres termes, la solution de l'équation (B.1) à l'instant  $t$  et à la position  $\vec{r}$  sera  $\Phi(Z\vec{r}, Z^2t)$  si le champ appliqué a pour amplitude  $Z^3\vec{E}_0$  et pour fréquence  $Z^2\Omega$ .

Le tableau (B.1) donne les lois d'échelles concernant différents paramètres utilisés lors de la représentation de l'interaction d'un système atomique avec un champ laser. Les paramètres dotés d'une tilde sont ceux relatifs à l'hydrogène.

Taille de la boîte	$R_{max} = \tilde{R}_{max} \times Z^{-1}$
Energie du photon	$\omega = \tilde{\omega} \times Z^2$
Durée de l'impulsion	$T = \tilde{T} \times Z^{-2}$
Intensité du champ	$I = \tilde{I} \times Z^6$
Amplitude du champ	$E = \tilde{E} \times Z^3$
Potentiel d'ionisation	$I_P = \tilde{I}_P \times Z^2$
Probabilité d'ionisation	$\mathcal{P}^{(N)} = \tilde{\mathcal{P}}^{(N)}$
Taux d'ionisation	$\Gamma^{(N)} = \tilde{\Gamma}^{(N)} \times Z^2$
Amplitude de transition	$D_{fg}^{(N)} = \tilde{D}_{fg}^{(N)} \times Z^{(1-3N)}$

TABLEAU B.1: *Lois d'échelles suivant la charge  $Z$ . Les paramètres dotés d'une tilde sont ceux relatifs à l'hydrogène*

La conclusion que nous pouvons en tirer est que :

*Le comportement d'un ion multichargé hydrogénoïde en présence d'un champ laser, dont les paramètres du système vérifieront les lois d'échelles posées dans le tableau (B.1), sera le même que celui de l'atome d'hydrogène en champ laser.*

## L'hélium et les ions de sa série isoélectronique

L'équation de Schrödinger dépendante du temps définissant l'interaction de l'atome d'hélium avec un champ laser est donnée en unités atomiques par l'expression suivante :

$$\left[ -\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr_1^2} - \frac{1}{r_1} \frac{d}{dr_1} + \frac{l_1(l_1+1)}{2r_1^2} - \frac{Z}{r_1} - \frac{1}{2} \frac{d^2}{dr_2^2} - \frac{1}{r_2} \frac{d}{dr_2} + \frac{l_2(l_2+1)}{2r_2^2} - \frac{Z}{r_2} + \frac{1}{r_{12}} - (\vec{r}_1 + \vec{r}_2) \cdot \vec{E}(t) - i \frac{\partial}{\partial \tau} \right] \Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t) = 0 \quad (\text{B.6})$$

En appliquant les transformations (B.3) et (B.4), nous obtenons finalement :

$$\left[ -\frac{1}{2} \Delta_{\rho_1} - \frac{1}{2} \Delta_{\rho_2} - \frac{1}{\rho_1} - \frac{1}{\rho_2} + \frac{\mathbf{1}}{\mathbf{Z}} \frac{1}{\rho_{12}} - (\vec{\rho}_1 + \vec{\rho}_2) \cdot \vec{\mathcal{E}}_0(\tau) - i \frac{\partial}{\partial \tau} \right] \Phi_Z(\vec{\rho}_1, \vec{\rho}_2, \tau) = 0 \quad (\text{B.7})$$

Nous constatons que l'interaction diélectronique échappe aux lois d'échelle, par un terme dont l'influence décroît quand la charge  $Z$  augmente.

*Les différences de comportements entre des ions multichargés de type héliumoides et l'atome d'hélium en champ laser, dont les paramètres respectifs vérifieront les lois d'échelles, seront l'observation directe des effets des corrélations électron-électron.*



## Le système d'unités atomiques

Le système d'unités internationales (S.I.) est bien adapté aux grandeurs décrivant des systèmes macroscopiques, et exprime les quantités en mètres, kilogrammes, secondes, etc... Les phénomènes agissant à l'échelle atomique, quant à eux, ont besoin d'un système d'unités mieux adapté. Le système d'unités atomiques, noté u.a., a ainsi été créé pour simplifier les calculs atomiques ou moléculaires. Il est basé sur le choix d'associer à l'unité les principales grandeurs fondamentales de la physique atomique, telles que la charge de l'électron  $e$ , sa masse  $m_e$ , le rayon atomique de Bohr  $a_0$ , ou encore la constante de Planck  $h$ . Nous avons donc l'égalité suivante :

$$m_e = a_0 = e = \hbar = 1 \quad (\text{C.1})$$

Auquel s'associe les expressions des constantes fondamentales en unités atomiques suivantes :

$$c = \frac{1}{\alpha} \quad (\text{C.2})$$

$$\epsilon_0 = \frac{1}{4\pi} \quad (\text{C.3})$$

$$\mu_0 = \frac{4\pi}{c^2} \quad (\text{C.4})$$

Nous présentons dans le tableau (C.1) les unités atomiques de quelques grandeurs physiques rencontrées dans ce document, avec leur correspondance en unités S.I..

(\*) Un champ électromagnétique est défini par son champ électrique et son champ magnétique :

$$\vec{E} = -E_0 \vec{e} \sin(\vec{k}\vec{r} - \omega t) \quad (\text{C.5})$$

$$\vec{B} = -A_0 (\vec{k} \wedge \vec{e}) \sin(\vec{k}\vec{r} - \omega t) \quad (\text{C.6})$$



Quantité en unités atomiques (notation)	$\iff$	Valeur en unité S.I.
1 u.a. de masse ( $m$ )		$9.10953 \times 10^{-31}$ kg
1 u.a. de charge ( $e$ )		$1.60219 \times 10^{19}$ C
1 u.a. de longueur ( $a_0$ )		$5.29177 \times 10^{-11}$ m
1 u.a. de vitesse ( $v_0 = \alpha c$ )		$2.18769 \times 10^6$ m.s <sup>-1</sup>
1 u.a. d'impulsion ( $p_0 = mv_0$ )		$1.99288 \times 10^{-24}$ kg.m.s <sup>-1</sup>
1 u.a. de temps ( $\tau_0 = \frac{a_0}{v_0}$ )		$2.41889 \times 10^{-17}$ s
1 u.a. d'énergie ( $\omega = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 a_0}$ )		27.2116 eV
1 u.a. de champ électrique ( $\mathcal{E}_0 = \frac{e}{a_0^2}$ )		$5.14224 \times 10^{11}$ V.m <sup>-1</sup>
1 u.a. d'intensité (*) ( $\mathcal{I}_0 = \frac{\hbar}{\tau_0^2 a_0^2 8\pi\alpha}$ )		$3.509338 \times 10^{16}$ W.cm <sup>-2</sup>

TABLEAU C.1: *Correspondance entre les unités atomiques et les unités du système international*

---

Où  $\vec{\epsilon}$  est la direction de polarisation du champ électrique,  $E_0 = \omega A_0$  son amplitude maximale. L'éclairement  $I$  de la radiation est définie par la moyenne dans le temps du vecteur de Poynting :

$$\mathcal{P} = \frac{\vec{E} \wedge \vec{B}}{\mu_0} \quad (\text{C.7})$$

Ce qui nous donne finalement en unités atomiques :

$$I = \epsilon_0 c \omega^2 A_0^2 = \epsilon_0 c E_0^2 \quad (\text{C.8})$$

Ainsi, d'après les différentes définitions établies dans cette annexe, l'éclairement laser en  $\text{W}/\text{cm}^2$  que nous utilisons dans ce document se calcule à partir de l'amplitude maximale du champ  $E_0$  en u.a. de la façon suivante :

$$I_{(\text{W}/\text{cm}^2)} = (E_{0(\text{u.a.})})^2 \times 3.509338 \times 10^{16} \quad (\text{C.9})$$



# Liste des tableaux

1.1	Caractéristiques de quelques sources lasers actuelles . . . . .	13
2.1	Bases numériques de travail . . . . .	41
2.2	Energies des états liés et états du continu de l'hélium . . . . .	42
2.3	Energies des états liés et états du continu du béryllium . . . . .	43
2.4	Energies des états liés et états du continu du coeur électronique du béryllium	44
2.5	Energies des ions bore $B^{3+}$ et néon $Ne^8$ . . . . .	45
4.1	Probabilités totales de simple ionisation de He, $B^{3+}$ et $Ne^{8+}$ par absorption d'un photon . . . . .	84
4.2	Probabilités totales de double ionisation de He, $B^{3+}$ et $Ne^{8+}$ par absorption d'un photon . . . . .	87
4.3	Sections efficaces de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons . . . . .	90
4.4	Probabilités totales de double ionisation de He, $B^{3+}$ et $Ne^{8+}$ par absorption de deux photons . . . . .	98
5.1	Rapport des probabilités de double et simple ionisation du béryllium par absorption de deux photons . . . . .	114
B.1	Lois d'échelle suivant la charge $Z$ . . . . .	146
C.1	Les unités atomiques . . . . .	150



# Table des figures

1.1	Domaine spectral des rayons X et ultra-violets . . . . .	7
1.2	Comparaison de quelques sources lasers . . . . .	9
1.3	Principe d'un laser à électrons libres . . . . .	11
1.4	Schématisation du processus de la génération de photons harmoniques . . .	14
1.5	Spectre harmonique théorique . . . . .	15
1.6	Spectre harmonique expérimental . . . . .	16
1.7	Train d'impulsions attosecondes . . . . .	18
1.8	Profil temporel d'une impulsion laser . . . . .	19
1.9	Spectre en énergie de photon d'une impulsion laser . . . . .	20
1.10	Evolution du profil temporel suivant la valeur du paramètre de chirp . . .	21
1.11	Evolution du spectre en énergie de photon suivant le paramètre de chirp .	22
2.1	Schéma d'un système atomique diélectronique . . . . .	29
2.2	Représentation schématique de la discrétisation des états du continu . . . .	37
2.3	Densité des états du simple continu de $\text{He}^+$ . . . . .	39
3.1	Schématisation des processus d'ionisation par absorption multiphotonique et par effet tunnel . . . . .	67
3.2	Probabilité d'ionisation totale de l'hélium en fonction de l'éclairement laser	69
3.3	Probabilité d'ionisation totale du béryllium en fonction de l'éclairement laser	70
4.1	Schématisation de la double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon	77
4.2	Sections efficaces totales de double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon . . . . .	78

4.3	Sections efficaces totales de double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon . . . . .	80
4.4	Distribution de la densité de probabilité totale de double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon : résultat théorique . . . . .	81
4.5	Distribution totale de la densité de probabilité de double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon : résultat expérimental . . . . .	82
4.6	Distribution de la densité de probabilité de double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon pour chaque canal pris en compte dans la figure (4.4) . . . . .	83
4.7	Probabilité totale de simple ionisation de He et B <sup>3+</sup> en fonction de l'éclairement laser . . . . .	85
4.8	Population des états du continu de He et B <sup>3+</sup> après absorption d'un photon	86
4.9	Distribution de la densité de probabilité totale de double ionisation de l'hélium et des ions de sa série isoélectronique par absorption d'un photon .	88
4.10	Sections efficaces de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons . . . . .	89
4.11	Schématisation de la double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons . . . . .	91
4.12	Distribution de la densité de probabilité totale de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons de 1.6 u.a. . . . .	92
4.13	Distribution de la densité de probabilité totale de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons de 2.1 u.a. . . . .	93
4.14	Spectre intégré à un électron de double ionisation de l'hélium par absorption d'un photon . . . . .	94
4.15	Spectre intégré à un électron de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons (ordre 0 / ordre 1) . . . . .	96
4.16	Distribution de la densité de probabilité totale de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons (ordre 0 / ordre 1) . . . . .	97
4.17	Distribution de la densité de probabilité de double ionisation de l'hélium et des ions de sa série isoélectronique par absorption de deux photons . . .	99
4.18	Evolution du spectre énergétique de double ionisation séquentielle de l'hélium en fonction du temps d'interaction . . . . .	100
4.19	Schématisation de la relaxation électronique au sein de l'atome d'hélium .	101

4.20	Evolution du spectre énergétique intégré à un électron suivant la valeur du paramètre de chirp . . . . .	103
5.1	Structure électronique de l'atome de béryllium . . . . .	111
5.2	Rapport des probabilités de double et simple ionisation de He et Be par absorption d'un photon . . . . .	113
5.3	Sections efficaces de double ionisation de He et Be par absorption d'un photon	115
5.4	Sections efficaces de double ionisation du béryllium par absorption d'un photon . . . . .	116
5.5	Schématisation des processus de double ionisation directe et séquentielle du béryllium par absorption de deux photons . . . . .	117
5.6	Spectre intégré total à un électron de double ionisation du béryllium par absorption de deux photons . . . . .	119
5.7	Spectres intégrés à un électron de double ionisation du béryllium par absorption de deux photons . . . . .	120
5.8	Sections efficaces totales de double ionisation du béryllium par absorption de deux photons . . . . .	121
5.9	Sections efficaces totales de double ionisation de l'hélium par absorption de deux photons . . . . .	122
5.10	Evolution du spectre énergétique de double ionisation séquentielle du béryllium en fonction du temps d'interaction . . . . .	123
5.11	Evolution du spectre énergétique à un électron du béryllium suivant la valeur du paramètre de chirp . . . . .	125
5.12	Diagramme énergétique du coeur électronique du béryllium . . . . .	127
5.13	Sections efficaces de simple ionisation des couches $1s^2$ et $2s^2$ du béryllium par absorption d'un photon . . . . .	128
5.14	Sections efficaces de double ionisation du coeur $1s^2$ du béryllium par absorption d'un photon . . . . .	128
5.15	Sections efficaces de double ionisation du coeur $1s^2$ du béryllium par absorption de deux photons . . . . .	129
A.1	Construction d'une base numérique de fonctions B-splines . . . . .	142





# Bibliographie

- [1] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, and G. Petite. Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms. *Physical Review Letters*, **42** :1127, 1979.
- [2] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T.S. Luk, I.A. McIntyre, K. Boyer, and C.K. Rhodes. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *Journal of the Optical Society of America B*, **4** :595, 1987.
- [3] J.S. Briggs and V. Schmidt. Differential cross sections for photo-double-ionization of the helium atom. *Journal of Physics B*, **33** :R1, 2000.
- [4] A.Hibbert. Model potentials in atomic structure theory. *Advances in Atomic and Molecular Physics*, **18** :309, 1982.
- [5] P. Lambropoulos. Multiphoton processes. *Advances in Atomic and Molecular Physics*, **87** :12, 1976.
- [6] H. Bachau, E. Cormier, P. Decleva, J.E. Hansen, and F. Martín. **Applications of B-splines in Atomic and Molecular Physics**. Reports on Progress in Physics, 2001.
- [7] R. Nuter Hasbani. Processus non linéaires associés à l'interaction entre un atome et un champ laser intense : étude théorique de l'ionisation multiple. Thèse de Doctorat, Université Bordeaux 1, 2000. n° d'ordre : 2236.
- [8] R. Hasbani, E. Cormier, and H. Bachau. Resonant and non-resonant ionization of helium by XUV ultrashort and intense laser pulses. *Journal of Physics B*, **33** :2101, 2000.
- [9] M. Drescher, M. Hentschel, R. Klenberger, M. Ulberacker, V. Yakoviev, A. Scrinzi, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, and F. Krausz. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. *Nature*, **419** :803, 2002.

- [10] J. Andruszkow et coll. First observation of self-amplified spontaneous emission in a free-electron laser at 109 nm wavelength. *Physical Review Letters*, **85** :3825, 2000.
- [11] H. Wabnitz, L. Bittner, A.R.B. de Castro, R. Döhrmann, P. Gürtler, T. Laarman, W. Laasch, J. Schulz, A. Swiderski, K. von Haefen, T. Möller, B. Faatz, A. Fateev, J. Feldhaus, C. Gerth, U. Hahn, E. Saldin, E. Schneidmiller, K. Sytchev, K. Tiedtke, R. Treusch, and M. Yurkov. Multiple ionization of atom clusters by intense soft X-rays from a free-electron laser. *Nature*, **420** :482, 2002.
- [12] M. Wittmann, A. Nazarkin, and G. Korn. Synthesis of periodic femtosecond pulse trains in the ultraviolet by phase-locked Raman sideband generation. *Optics Letters*, **26** :298, 2001.
- [13] N. Zhavoronkov and G. Korn. Generation of single intense short optical pulses by ultrafast molecular phase modulation. *Physical Review Letters*, **88** :203901, 2002.
- [14] M. Ferray, A. L'Huillier, X.F. Li, L.A. Lompré, G. Mainfray, and C. Manus. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *Journal of Physics B*, **21** :L31, 1988.
- [15] P.B. Corkum. Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization. *Physical Review Letters*, **71** :1994, 1993.
- [16] P.M. Paul, E.S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H.G. Muller, and P. Agostini. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, **292** :1689, 2001.
- [17] M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, G.A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz. Attosecond metrology. *Nature*, **414** :509, 2001.
- [18] O. Tcherbakoff, E. Mével, D. Descamps, J. Plumridge, and E. Constant. Time-gated high-order harmonic generation. *Physical Review A*, **68** :043804, 2003.
- [19] J.C. Diels and W. Rudolph. **Ultrashort laser pulse phenomena : fundamentals, techniques, and applications on a femtosecond time scale (optics and photonics)**. Academic press, 1996.
- [20] J. Norin, J. Mauritsson, A. Johansson, M.K. Raarup, S. Buil, A Persson O. Dühr, M.B. Gaarde, K.J. Schafer U. Keller, C.G. Wahlström, and A. L'Huillier. Time-frequency characterization of femtosecond extreme ultraviolet pulses. *Physical Review Letters*, **88** :193901, 2002.

- [21] S. Bashkin and J.O. Stoner. **Atomic Energy Levels and Gortian Diagrams**, volume 1. North-Holland Amsterdam, 1975.
- [22] K.C. Kulander. Time-dependent theory of multiphoton ionization of xenon. *Physical Review A*, **38** :778, 1988.
- [23] J.S. Parker, L.R. Moore, E.S. Smyth, and K.T. Taylor. One- and two-electron numerical models of multiphoton ionization of helium. *Journal of Physics B*, **33** :1057, 2000.
- [24] T.N. Chang and Y.S. Kim. Theoretical study of the two-electron interaction in alkaline-earth atoms. *Physical Review A*, **34** :2609, 1986.
- [25] L.A.A. Nikolopoulos and P. Lambropoulos. Time-dependent nonperturbative theory of  $H^-$  in a strong laser field. *Physical Review Letters*, **82** :3771, 1999.
- [26] A. Scrinzi and B. Piraux. Ionization and double excitation of helium by short intense laser pulses. *Physical Review A*, **56** :R13, 1997.
- [27] C. de Boor. **A Practical Guide to Splines**. Springer-Verlag, 1978.
- [28] B. Piraux and R. Shakeshaft. Norm of the wave function on a complex basis. *Physical Review A*, **49** :3903, 1994.
- [29] J. Parker, K.T. Taylor, C.W. Clark, and S. Blodgett-Ford. Intense-field multiphoton ionization of a two-electron atom. *Journal of Physics B*, **29** :L33, 1996.
- [30] H. Bachau, P. Galan, and F. Martín. Feshbach-model potential approach for the study of resonant and bound states of Be-like ions. *Physical Review A*, **41** :3534, 1990.
- [31] H. Bachau, P. Galan, F. Martín, A. Riera, and M. Yáñez. Resonance parameters and properties of heliumlike doubly excited states. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, **48** :167, 1991.
- [32] C.J. Joachain. **Quantum Collision Theory**. American Elsevier Publishing co., 1975.
- [33] A. Macías, F. Martín, A. Riera, and M. Yáñez. A practical solution to the “unknown normalization” problem. *International Journal of Quantum Chemistry*, **23** :279, 1988.
- [34] M. Abramowitz and I. Stegun. **Handbook of Mathematical Functions**.

- [35] V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Soviet Physics JETP*, **20** :1307, 1965.
- [36] K.J. LaGattuta and J.S. Cohen. Quasiclassical modelling of helium double photoionization. *Journal of Physics B*, **31** :5281, 1998.
- [37] V. Véniard and B. Piraux. Continuum-continuum dipole transitions in femtosecond-laser-pulse excitation of atomic hydrogen. *Physical Review A*, **41** :4019, 1990.
- [38] K.C. Kulander. Time-dependent Hartree-Fock theory of multiphoton ionization : Helium. *Physical Review A*, **36** :2726, 1987.
- [39] M.S. Pindzola, P. Gavras, and T.W. Gorczyca. Time-dependent unrestricted Hartree-Fock theory for the multiphoton ionization of atoms. *Physical Review A*, **51** :3999, 1995.
- [40] M.S. Pindzola, D.C. Griffin, and C. Bottcher. Validity of time-dependent Hartree-Fock theory for the multiphoton ionization of atoms. *Physical Review A*, **66** :2305, 1991.
- [41] R. Grobe and J.H. Eberly. Photoelectron spectra for a two-electron system in a strong laser field. *Physical Review Letters*, **68** :2905, 1992.
- [42] D.A. Wasson and S.E. Koonin. Molecular-dynamics simulations of atomic ionization by strong laser fields. *Physical Review A*, **39** :5676, 1989.
- [43] M. Brewczyk, K. Rzażewski, and C.W. Clark. Appearance intensities for multiply charged ions in a strong laser field. *Physical Review A*, **52** :1468, 1995.
- [44] E.S. Smyth, J.S. Parker, and K.T. Taylor. Numerical integration of the time-dependent Schrödinger equation for laser-driven helium. *Computer Physics Communications*, **114** :1, 1998.
- [45] A. Temkin. Nonadiabatic theory of electron-hydrogen scattering. *Physical Review*, **126** :130, 1962.
- [46] M.S. Pindzola and F. Robicheaux. Time-dependent close-coupling calculations of correlated photoionization processes in helium. *Physical Review A*, **57** :318, 1998.
- [47] X. Tang, H. Rudolph, and P. Lambropoulos. Nonperturbative approach to atomic multiphoton processes under intense short laser pulses. *Physical Review Letters*, **65** :3269, 1990.
- [48] J. Zhang and P. Lambropoulos. Non-perturbative time-dependent theory and ATI in two-electron atoms. *Journal of Physics B*, **28** :L101, 1995.

- [49] P.G. Burke, P. Francken, and C.J. Joachain. R-matrix-Floquet theory of multiphoton processes. *Journal of Physics B*, **24** :761, 1991.
- [50] L. Feng and H.W. van der Hart. Two-photon double ionisation of He. *Journal of Physics B*, **36** :L1, 2003.
- [51] W.H. Press, W.T. Vetterling, S.A. Teukolsky, and B.P. Flannery. **Numerical Recipes in Fortran**. Cambridge University Press, 1992.
- [52] E. Hairer and G. Wanner. **Solving ordinary differential equations II : stiff and differential-algebraic problems**. Springer Verlag, 1991.
- [53] E. Cormier and P. Lambropoulos. Above-threshold ionization spectrum of hydrogen using B-spline functions. *Journal of Physics B*, **30** :77, 1997.
- [54] P.L. Altick. Asymptotic forms of two-electron wave functions with a monopole interaction. *Physical Review A*, **21** :1381, 1980.
- [55] P.L. Altick. Asymptotic form of wave functions for two continuum electrons in a Coulomb field. *Physical Review A*, **25** :128, 1982.
- [56] G.H. Wannier. The threshold law for single ionization of atoms or ions by electrons. *Physical Review*, **90** :817, 1953.
- [57] A.K. Kazansky, V.N. Ostrovsky, and L. Yu Sergeeva. Excess energy partition between the electrons in the double electron escape processes. *Journal of Physics B*, **27** :5197, 1994.
- [58] J.M. Feagin and J.S. Briggs. Molecular-orbital description of the states of two-electron systems. *Physical Review A*, **37** :4599, 1988.
- [59] D. Proulx and R. Shakeshaft. Two- and excess-photon ionization of helium. *Journal of Physics B*, **26** :L7, 1993.
- [60] D. Proulx and R. Shakeshaft. Double ionization of helium by a single photon with energy 89 – 140 eV. *Physical Review A*, **48** :R875, 1993.
- [61] M. Brauner, J.S. Briggs, and H. Klar. Triply-differential cross sections for ionization of hydrogen atoms by electrons and positrons. *Journal of Physics B*, **22** :2265, 1989.
- [62] M.A. Kornberg and J.E. Miraglia. Double photoionization of helium : use of a correlated two-electron continuum wave function. *Physical Review A*, **48** :3714, 1993.

- [63] I. Bray and A.T. Stelbovics. Convergent close-coupling calculations of electron-hydrogen scattering. *Physical Review A*, **46** :6995, 1992.
- [64] A.S. Kheifets and I. Bray. Effect of the ground-state correlations on the helium double photoionization and ionization with excitation. *Physical Review A*, **57** :2590, 1998.
- [65] A.S. Kheifets, A. Ipatov, M. Arifin, and I. Bray. Double-photoionization calculations of the helium metastable  $2^{1,3}S$  states. *Physical Review A*, **62** :052724, 2000.
- [66] T.N. Rescigno and C.W. McCurdy. Numerical grid methods for quantum-mechanical scattering problems. *Physical review A*, **62** :032706, 2000.
- [67] T.N. Rescigno, M. Baertschy, W.A. Isaacs, and C.W. McCurdy. Collisional breakup in a quantum system of three charged particules. *Science*, **286** :2474, 1999.
- [68] L. Malegat, P. Selles, and A.K. Kazansky. Absolute differential cross sections for photo double ionization of helium from the *ab initio* hyperspherical R-matrix method with semiclassical outgoing waves. *Physical Review Letters*, **85** :4450, 2000.
- [69] H. Bachau and P. Lambropoulos. Theory of the photoelectron spectrum in double ionization through two-photon absorption from He( $2s^2$ ). *Physical Review A*, **44** :R9, 1991.
- [70] S. Laulan, H. Bachau, B. Piraux, J. Bauer, and G. Lagmago Kamta. The helium atom and helium-like ions interaction with Xfel radiation. *Journal of Modern Optics*, **50** :353, 2003.
- [71] O. Schwarzkopf, B. Krässig, J. Elmiger, and V. Schmidt. Energy- and angle-resolved double photoionization in helium. *Physical Review Letters*, **70** :3008, 1993.
- [72] J. Ullrich, R. Moshhammer, R. Dörner, O. Jagutzki, V. Mergel, H. Schmidt-Böcking, and L. Spielberger. Recoil-ion momentum spectroscopy. *Journal of Physics B*, **30** :2917, 1997.
- [73] A. Huetz and J. Mazeau. Double photoionization of helium down to 100 meV above threshold. *Physical Review Letters*, **85** :530, 2000.
- [74] R.J. Bartlett, P.J. Walsh, Z.X. He, Y. Chung, E-M Lee, and J.A.R. Samson. Single-photon double ionization of He and Ne. *Physical Review A*, **46** :5547, 1992.
- [75] M. Pont and R. Shakeshaft. Absolute cross sections for double ionization of helium at energies from 0 to 80 eV above threshold. *Journal of Physics B*, **28** :L571, 1995.

- [76] R. Dörner, T. Vogt, V. Mergel, H. Khemliche, S. Kravis, C.L. Cocke, J. Ullrich, M. Unverzagt, L. Spielberger, M. Damrau, O. Jagutzki, I. Ali, B. Weaver, K. Ullmann, C.C. Hsu, M. Jung, E.P. Kanter, B. Sonntag, M.H. Prior, E. Rotenberg, J. Denlinger, T. Warwick, S.T. Manson, and H. Schmidt-Böcking. Ratio of cross sections for double to single ionization of He by 80 – 400 eV photons. *Physical Review Letters*, **76** :2654, 1996.
- [77] J.C. Levin, G. Bradley Armen, and I.A. Sellin. Photoionization and Compton double ionization of helium from threshold to 20 keV. *Physical Review Letters*, **76** :1220, 1996.
- [78] H. Kossmann, V. Schmidt, and T. Andersen. Test of Wannier threshold laws : double-photoionization cross section in helium. *Physical Review Letters*, **60** :1266, 1988.
- [79] J.A.R Samson, W.C. Stolte, Z.X. He, J.N. Cutler, Y. Lu, and R.J. Bartlett. Double photoionization of helium. *Physical Review A*, **57** :1906, 1998.
- [80] M. Pont, R. Shakeshaft, F. Maulbetsch, and J.S. Briggs. Angular distributions for double photoionization of helium : discrepancies between theory and experiment. *Physical Review A*, **53** :3671, 1996.
- [81] A.S. Kheifets and I. Bray. Application of the CCC method to the calculation of helium double-photoionization triply differential cross sections. *Journal of Physics B*, **31** :L447, 1998.
- [82] M. Pont and R. Shakeshaft. Asymmetry parameter and momentum distribution of the nucleus in double photoionization of helium. *Physical Review A*, **54** :1448, 1996.
- [83] H. Braüning, R. Dörner, C.L. Cocke, M.H. Prior, B. Krässig, A. Braüning-Demian, K. Carnes, S. Dreuil, V. Mergel, P. Richard, J. Ullrich, and H. Schmidt-Böcking. Recoil ion and electronic angular asymmetry parameters for photo double ionization of helium at 99 eV. *Journal of Physics B*, **30** :L649, 1997.
- [84] J. Viefhaus, L. Avaldi, G. Snell, M. Wiedenhöft, R. Hentges, A. Rüdell, F. Schäfers, D. Menke, U. Heinzmann, A. Engelns, J. Berakdar, H. Klar, and U. Becker. Experimental evidence for circular dichroism in the double photoionization of helium. *Physical Review Letters*, **77** :3975, 1996.
- [85] A.S. Kheifets and I. Bray. Calculation of circular dichroism in helium double ionization. *Physical Review A*, **81** :4588, 1998.



- [86] K. Soejima, A. Danjo, K. Okuno, and A. Yagishita. Linear and circular dichroism in the double photoionization of helium. *Physical Review Letters*, **83** :1546, 1999.
- [87] R. Wehlitz, F. Heiser, O. Hemmers, B. Langer, A. Menzel, and U. Becker. Electron-energy and -angular distributions in the double photoionization of helium. *Physical Review Letters*, **67** :3764, 1991.
- [88] P. Lablanquie, J. Mazeau, L. Andric, P. Selles, and A. Huetz. Effect of electron energy sharing on the double photoionization of helium near threshold. *Physical Review Letters*, **74** :2192, 1995.
- [89] J. Viefhaus, L. Avaldi, F. Heiser, R. Hentges, O. Gessner, A. Rüdell, M. Wiedenhöft, K. Wieliczek, and U. Becker. Energy and angle resolved studies of double photoionization of helium by electron time-of-flight coincidence spectroscopy. *Journal of Physics B*, **29** :L729, 1996.
- [90] J.S. Parker, L.R. Moore, K.J. Meharg, D. Dundas, and K.T. Taylor. Double-electron above threshold ionization of helium. *Journal of Physics B*, **34** :L69, 2001.
- [91] M. Achler, V. Mergel, L. Spielberger, R. Dörner, Y. Azuma, and H. Schmidt-Böcking. Photo double ionization of He by circular and linear polarized single-photon absorption. *Journal of Physics B*, **34** :965, 2001.
- [92] J. Colgan, M.S. Pindzola, and F. Robicheaux. Fully quantal ( $\gamma, 2e$ ) calculations for absolute differential cross sections of helium. *Journal of Physics B*, **34** :L457, 2001.
- [93] M.A. Kornberg and P. Lambropoulos. Photoelectron energy spectrum in 'direct' two-photon double ionization of helium. *Journal of physics B*, **32** :L603, 1999.
- [94] H.W. van der Hart and L. Feng. Double photoionization of excited He-like atoms. *Journal of Physics B*, **34** :L601, 2001.
- [95] B. Piraux, J. Bauer, S. Laulan, and H. Bachau. Probing electron-electron correlation with attosecond pulses. *European Physical Journal D*, **26** :7, 2003.
- [96] J. Colgan and M.S. Pindzola. Core-excited resonance enhancement in the two-photon complete fragmentation of helium. *Physical Review Letters*, **88** :173002, 2002.
- [97] L.A.A Nikolopoulos and P. Lambropoulos. Multichannel theory of two-photon single and double ionization of helium. *Journal of Physics B*, **34** :545, 2001.

- [98] T. Mercouris, C. Haritos, and C.A. Nicolaides. Theory and computation of the rate of multiphoton two-electron ionization via the direct mechanism. *Journal of Physics B*, **34** :3789, 2001.
- [99] S. Laulan and H. Bachau. Correlation effects in two-photon single and double ionization of helium. *Physical Review A*, **68** :013409, 2003.
- [100] D.H. Oza. Phase shifts and resonances for electron scattering by  $\text{He}^+$  below the  $N = 2$  threshold. *Physical Review A*, **33** :824, 1986.
- [101] L.A.A. Nikolopoulos, T. Nakajima, and P. Lambropoulos. Influence of the helium autoionization structures on the single/double ionization signal. *European Physical Journal D*, **20** :297, 2002.
- [102] L. Malegat, F. Citrini, P. Selles, and P. Archirel. Double photoionization of Ca : a theoretical study. *Journal of Physics B*, **33** :2409, 2000.
- [103] H-J. Beyer, J.B. West, K.J. Ross, and A. De Fanis. A study of resonance free double photoionization ( $\gamma, 2e$ ) in atomic calcium for equal electron energy sharing. *Journal of Physics B*, **33** :L767, 2000.
- [104] B. El-Marji, J.P. Doering, J.H. Moore, and M.A. Coplan. Impulsive electron-impact double ionization and the two-electron momentum density. *Physical Review Letters*, **83** :1574, 1999.
- [105] L.A.A. Nikolopoulos, T. Nakajima, and P. Lambropoulos. Direct versus sequential double ionization of Mg with extreme-ultraviolet radiation. *Physical Review Letters*, **90** :043003, 2003.
- [106] A.S. Kheifets and I. Bray. Frozen-core model of the double photoionization of beryllium. *Physical Review A*, **65** :012710, 2001.
- [107] J. Colgan and M.S. Pindzola. Double photoionization of beryllium. *Physical Review A*, **65** :022709, 2002.
- [108] F. Citrini, L. Malegat, P. Selles, and A.K. Kazansky. Direct double photoionization of the valence shell of Be. *Physical Review A*, **67** :042709, 2003.
- [109] R. Wehlitz and S.B. Whitfield. Valence double photoionization of beryllium. *Journal of Physics B*, **34** :L719, 2001.
- [110] A.S. Kheifets and I. Bray. Double shake-off model for the triple photoionization of beryllium. *Journal of Physics B*, **36** :L211, 2003.

- [111] S. Laulan and H. Bachau. Single and double ionization of helium interacting with XUV lasers. In **Proceedings of the international Conference on Electron and Photon impact ionization and Related Topics**, 172. Institute of Physics Publishing, 2002.
- [112] L.A. Vainshtein and U.I. Safronova. Wavelengths and transition probabilities of satellites to resonance lines of  $H^-$  and He-like ions. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, **21** :49, 1978.
- [113] M.G. Makris, L.A.A. Nikolopoulos, and P. Lambropoulos. Electron angular distributions in two-photon double ionization of helium. *Europhysics letters*, **54** :722, 2001.
- [114] M.R.H Rudge and M.J. Seaton. Ionization of atomic hydrogen by electron impact. *Proceedings of the Royal Society series A*, **283** :262, 1965.
- [115] R. Peterkop. WKB approximation and threshold law for electron-atom ionization. *Journal of Physics B*, **4** :513, 1971.
- [116] M. Schulz. Evaluation of a Coulomb integral for particle scattering. *Journal of Physics B*, **4** :1476, 1971.

**Résumé :** Nous présentons une étude théorique de l'interaction entre un atome à deux électrons actifs et un champ laser de fort éclairement ( $10^{14}$  à  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>) et de durée d'impulsion ultra-brève (quelques  $10^{-15}$  à quelques  $10^{-18}$  s). Nous décrivons dans un premier temps les techniques expérimentales actuelles capables de produire un rayonnement cohérent de haute puissance dans le domaine spectral UV-XUV, et de durée d'impulsion de l'ordre de la femtoseconde ou subfemtoseconde. Un modèle semi-classique d'une impulsion laser avec de telles caractéristiques est alors défini. Puis, nous développons une méthode numérique basée sur l'utilisation des fonctions B-splines pour décrire la structure électronique d'un atome à deux électrons actifs. Un traitement non perturbatif de type spectral est alors proposé pour représenter la propagation dans le temps de la fonction d'onde du système irradié, où le point important est de définir le plus précisément possible la région du double continuum atomique. Nous exposons finalement des résultats sur la double ionisation des atomes d'hélium et de béryllium en présence d'un champ laser intense et bref, issus de notre approche numérique. Ils concernent en particulier des calculs de sections efficaces totales d'ionisation, et de distributions énergétiques entre les électrons éjectés dans le double continuum après absorption d'un photon et de deux photons.

***Study of helium and beryllium atoms with strong and short laser field***

**Abstract :** We present a theoretical study of the interaction between a two-active electron atom and an intense ( $10^{14}$  à  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>) and ultrashort (from a few  $10^{-15}$  to a few  $10^{-18}$  s) laser field. In the first part, we describe the current experimental techniques able to produce a coherent radiation of high power in the UV-XUV regime and with femtosecond time duration. A theoretical model of a laser pulse is defined with such characteristics. Then, we develop a numerical approach based on B-spline functions to describe the atomic structure of the two-active electron system. A spectral non perturbative method is proposed to solve the time dependent Schrödinger equation. We focalize our attention on the description of the atomic double continuum states. Finally, we expose results on the double ionization of helium and beryllium atoms with intense and short laser field. In particular, we present total cross section calculations and ejected electron energy distributions in the double continuum after one- and two-photon absorption.

**Discipline : physique atomique.**

**Mots-Clés :**

Systèmes atomiques à deux électrons actifs  
Fonctions B-Splines  
Méthode non perturbative spectrale  
Double continuum atomique  
Double ionisation multiphotonique  
Distribution énergétique des électrons éjectés

**CEntre Lasers Intenses et Applications (CELIA)**

UMR 5107 du CNRS-CEA-Université Bordeaux I  
Université Bordeaux I  
351 cours de la Libération  
33405 TALENCE