



**HAL**  
open science

# Interaction d'un rayonnement X-XUV intense avec la matière : cinétique atomique associée

Basil Deschaud

► **To cite this version:**

Basil Deschaud. Interaction d'un rayonnement X-XUV intense avec la matière : cinétique atomique associée. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université de Bordeaux, 2015. Français. NNT : 2015BORD0453 . tel-01293617

**HAL Id: tel-01293617**

**<https://theses.hal.science/tel-01293617v1>**

Submitted on 25 Mar 2016

**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.

THÈSE PRÉSENTÉE  
POUR OBTENIR LE GRADE DE

**DOCTEUR DE**  
**DE L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX**

ÉCOLE DOCTORALE DE SCIENCES PHYSIQUES ET DE  
L'INGÉNIEUR

Spécialité : Astrophysique, plasma, nucléaire

par **Basil Deschaud**

---

**Interaction d'un rayonnement  
X-XUV intense avec la matière**

-

**cinétique atomique associée**

---

Soutenue le 21 décembre 2015 à Talence (France)

**Membres du jury :**

<b>M. V. Tikhonchuk</b>	Professeur à l'Université de Bordeaux	<b>Président</b>
<b>M. T. Blenski</b>	Directeur de recherche CEA, CEA Saclay	<b>Rapporteur</b>
<b>M. G. Maynard</b>	Directeur de recherche CNRS, Université Paris-Sud	<b>Rapporteur</b>
<b>M. H. Jouin</b>	Professeur à l'Université de Bordeaux	<b>Examineur</b>
<b>M. O. Peyrusse</b>	Professeur à l'Université d'Aix-Marseille	<b>Directeur de thèse</b>
<b>M. F. Rosmej</b>	Professeur à l'Université Pierre et Marie Curie	<b>Co-directeur de thèse</b>



# Remerciements

## Remerciements

Tout d'abord je remercie la direction du CELIA qui m'a permis d'effectuer ma thèse dans le groupe Fusion. Cette thèse a été financée par le CEA. Je souhaite remercier toutes les personnes qui y ont contribué, d'un point de vue professionnel ou personnel.

Je tiens tout d'abord à remercier Olivier Peyrusse qui m'a encadré depuis mon stage de master 2. Il a toujours été très disponible tout en me laissant explorer ce sujet de thèse que j'ai pu vraiment m'approprier ce qui m'a permis de prendre confiance en moi. Nos discussions, souvent improvisées, des fois même au détour d'un couloir, m'ont permis de me sentir jeune chercheur plutôt que stagiaire.

Je tiens aussi à remercier Frank Rosmej qui a coencadré cette thèse, à distance mais avec beaucoup de disponibilité, surtout pendant la période de rédaction de ce manuscrit. Cette étroite collaboration a pour moi été très fructueuse et très formatrice.

Je tiens également à remercier Frank Rosmej pour son encadrement, au-delà du cadre de son rôle de professeur, depuis mon année de master 1. Sa tendance à aider les étudiants et à leur faire confiance m'a particulièrement aidé dans mon parcours.

Je remercie les rapporteurs de ce manuscrit Thomas Blenski et Gilles Maynard ainsi que les examinateurs Hervé Jouin et Vladimir Tikhonchuk d'avoir accepté d'évaluer mon travail. Je les remercie pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail.

Je remercie Marion Harmand de m'avoir permis de participer à une expérience et de concrétiser ainsi un peu plus mon travail. J'ai ainsi pu découvrir l'installation FLASH à Hambourg, la bière Allemande, et m'éloigner pendant quelque temps de ma chaise de bureau.

Je souhaite remercier Arnaud Colaïtis pour son soutien en programmation, en fortran, Python, pour la parallélisation. Il a toujours été disponible pour répondre à une question ou refiler un bout de code. Je remercie aussi Ludovic Barilleau pour ces quelques discussions sur le terme de collision électron-électron, Mathieu Dumergue pour son aide sur Inkscape et autres logiciels. Je remercie Dario Del Sorbo, Pierre Forestier-Colleoni, Yohann Maheut, Mokrane Hadj-Bachir pour l'aide qu'ils ont pu m'apporter tout au long de cette thèse.

Merci aux membres du secrétariat, au(x) membre(s) du service informatique et à l'ensemble des membres du CELIA que j'ai pu côtoyer et apprécier pendant ces trois ans.

Je souhaite remercier ensuite les thésards du CELIA pour leur bonne humeur. Pierre Forestier-Colleoni pour ses tee-shirts moches, ses faux tiramisus, les parties de Donjon, de fantasy pub et autres "petits jeux", d'avoir poussé ma voiture puis de m'avoir prêté la sienne. Arnaud Colaïtis de m'avoir expliqué pourquoi je n'aimais pas Star Wars 1, 2 et 3, pour ses superbes maps faites maison et pour m'avoir invité à son excellente soirée (qui s'est avérée, d'après les photos, être son mariage). Dario Del Sorbo pour les soirées Erasmus, de m'avoir fait découvrir les coutumes du continent italien, pour ses cours d'histoire française sur la période 1852-1857. Merci à Yohann Maheut l'adepte du débat et des potins de nous motiver pour aller à la piscine, Mokrane Hadj-Bachir avec qui j'ai maltraité ma

voiture. Je remercie aussi François Cloux, Julien Morreau, Aurore Chataignier, Takaya Sakaki (et ses cadeaux étranges) et Mathieu Dumergue.

Merci également à Manue Lesage, Guillaume Duchateau, Xavier Ribeyre, Wikipédia, ma chaise de bureau, la SNCF, monsieur café (Sebastien puis Guillaume), le restaurant du CNRS, la team mots fléchés, mon équipe de foot persévérante devant l'échec.

J'ai aussi un certain nombre de Parisiens à remercier. Merci à Jeremy, Arnaud, Kevin (dits "JAK") et Joo (dits "JAK et Joo"). Merci aux maîtres de la fusion : Andréa, Dimitri (parisien d'Allemagne), Nico, Florian, Raph, Mai et Thibault. Merci à Thibaud le brancheur de fil d'avoir découvert les joies de Bordeaux avec moi.

Enfin, encore merci à Andréa pour son soutien, son aide et ses encouragements, ses cinq tentatives d'explication des FFTs, son registre d'accents et d'imitations et pour les visites touristiques en N122.

## Contre-remerciements

Je souhaite contre-remercier dans cette partie les personnes, entités, animaux ou objets ayant participé à la diminution de ma productivité.

Ainsi, je contre-remercie 9gag, la team mots fléchés, les vendredis, la cafétéria du CELIA et ses occupants, le bar "The rose" (222 Cours Gambetta, 33400 Talence, Quiz le lundi), la SNCF, la préfecture, deux sangliers qui ont percuté un train dans lequel je travaillais, Pierre (deux fois plus que les autres), Arnaud, Dario, Yohann, Mokrane, Julien, François, encore Pierre, D&D, les lundis, ma voiture, la chimie, mon voisin du dessous, la piscine universitaire.

Oh... and Hugh Jackman!

# Publications liées à cette thèse

1. O. Peyrusse, B. Deschaud, D. Rolles. *A superconfiguration approach to multi-electron ionization of Xe under strong x-ray irradiation*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics 47, no. 1, 011001, (2014).
2. B. Deschaud, O. Peyrusse et F. B. Rosmej. *Generalized atomic processes for interaction of intense femtosecond XUV- and X-ray radiation with solids*. EPL (Europhysics Letters) 108, 5, page 53001, (2014).
3. B. Deschaud, O. Peyrusse et F.B. Rosmej. *Atomic kinetics for isochoric heating of solid aluminum under short intense XUV free electron laser irradiation*. High Energy Density Physics 15, page 22, (2015).
4. F. B. Rosmej, R. Dachicourt, B. Deschaud, D. Khaghani, M. Dozières, M. Šmíd, O. Renner. *Exotic x-ray emission from dense plasmas*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics 48, no. 22, page 224005, (2015).
5. B. Deschaud, O. Peyrusse et F.B. Rosmej. *Simulation of 2D X-ray-induced fluorescence spectra and estimation of ionization potential depression in dense plasmas*. in preparation, (2016).

Ce travail de thèse a également été présenté en conférence :

1. Conférence XFEL "X-ray Free Electron Laser symposium", Dinard (France), 2013.
2. 6ème forum ILP (fédération française d'interaction laser plasma), Orcières (France), 2014.
3. Sciences@FEL 2014, Paul Scherrer Institut, Villigen (Suisse), 2014.
4. Radiative properties of hot dense matter (RPHDM), Vienne (Autriche), 2014.
5. 7ème forum ILP (fédération française d'interaction laser plasma), Porquerolles (France), 2015.
6. 1 st International Workshop on Actual Topics in Atomic Physics and Spectroscopy - IWATAPS, UPMC, Paris (France), 2015.



# Résumé

Ce travail de thèse suit l'apparition récente de ces nouvelles sources intenses et courtes de rayonnement dans la gamme X/XUV que sont les lasers X/XUV à électrons libres (XFEL). Contrairement aux sources optiques qui déposent principalement leur énergie via les électrons libres, les photons X/XUV déposent leur énergie dans la matière par la photoionisation de couches internes avec éjection de photo-électrons, suivie par l'éjection d'électrons Auger et d'électrons de recombinaison à trois corps dans la distribution d'électrons libres. Le chauffage se fait donc par l'intermédiaire de la structure atomique. La forte intensité des XFELs permet de faire jusqu'à un trou par atome dans un solide produisant ainsi, sur une échelle femtoseconde, un état exotique fortement hors-équilibre appelé solide *creux*. Cet état exotique instable se désexcite via un ensemble de processus atomiques élémentaires. Nous nous sommes intéressés dans cette thèse au développement d'outils permettant de calculer la cinétique des populations atomiques, couplée à la cinétique des électrons libres, pendant la transition à densité ionique constante, de solide à plasma dense en passant par l'état de solide creux, induit par le rayonnement XFEL irradiant une cible solide. Tout le défi ici a été de calculer cette cinétique couplée hors-équilibre entre ces états de la matière de nature très différente.

Pour répondre à ce défi nous avons développé deux modèles cinétiques d'interaction XFEL-solide, pour lesquels la description d'un solide comme un plasma froid dégénéré nous a permis d'utiliser une même approche plasma pendant l'ensemble de la transition du solide au plasma. L'ensemble de la physique atomique HETL d'intérêt ayant lieu à densité du solide, bien avant la détente de la matière, nous avons développé deux codes associés à ces modèles pour une utilisation à densité ionique constante.

Pour aborder l'étude nous nous sommes d'abord concentrés sur la cinétique des électrons liés en supposant une distribution d'électrons libres à l'équilibre (ce qui suppose une thermalisation instantanée des électrons libres). Dans le cadre de l'approche de plasma dense étendue jusqu'au solide, nous avons développé un modèle collisionnel-radiatif généralisé. Cette généralisation passe par l'identification d'un lien entre état solide et plasma au niveau des processus atomiques élémentaires. Le code développé à partir de ce modèle nous a permis d'étudier des résultats expérimentaux et ainsi d'améliorer notre description des effets de densités dans les plasmas denses.

Dans une seconde partie nous avons ajouté à l'étude la cinétique des électrons libres en considérant une distribution d'électrons libres hors-équilibre. Le code associé, basé sur la discrétisation de cette distribution et son couplage avec les états liés, nous a permis d'étudier le rôle des processus atomiques élémentaires dans la thermalisation de la distribution d'électrons libres.

**Mots-clés :** XFEL, physique atomique, matière à haute densité d'énergie, matière dense et tiède, interaction rayonnement matière





# Abstract

This work follows the recent development of the free electron lasers in the X-ray and XUV-ray range (XFEL). Unlike optical sources that deposit their energy via the free electrons, the X/XUV photons deposit their energy directly via photoionization of inner shell electrons with the ejection of photo-electrons, followed by the ejection of Auger electrons and three body recombination electrons in the free electron distribution. The matter is thus heated via the atomic structure.

The high XFEL intensity allows one to make up to one hole per atom in a solid, thus producing, on a femtosecond time scale, an exotic state, highly out of equilibrium, called hollow crystal. This unstable exotic state decays via a set of elementary atomic processes. In this work we were interested in the development of tools to calculate the atomic population kinetics, coupled to the free electron kinetics, during the transition at constant ionic density, from solid to dense plasma, induced by an XFEL irradiating a solid target. The goal here was to calculate this out of equilibrium coupled kinetics between states of matter having a very different nature.

To address this problem we have developed two kinetics models of XFEL interaction with solids. In both these models the description of the solid as a cold degenerated plasma allowed us to use the same plasma approach during all the solid-plasma transition. Considering the fact that all the atomic physics takes place at solid density, way before the matter relaxation, we have developed two codes, associated with these two models, for a use at constant ionic density.

To approach this study, we first focused on the bound electron kinetics assuming a free electron distribution at equilibrium (i.e. hypothesis of instantaneous thermalization of the free electrons). In the framework of the dense plasma approach extended up to the solid state, we have developed a generalized collisional radiative model. This generalization goes through the identification of a link between the solid state and the plasma state for the elementary atomic processes. The code associated with this model allowed us to study experimental results and to improve our description of the density effects in dense plasmas.

In a second part the free electron kinetics is included in the model with a free electron distribution out of thermodynamic equilibrium. The associated code, based on the discretization of this distribution and its coupling with bound atomic states allowed us to study the role of the atomic elementary processes in the free electron distribution thermalization.

**Keywords:** XFEL, atomic physics, high energy density matter, HEDM, warm dense matter, WDM, light matter interaction

**Title:** Interaction of an intense X/XUV-ray with matter - associated atomic physics



# Sommaire

<b>I</b>	<b>Contexte</b>	<b>1</b>
<b>1</b>	<b>Interaction d'un rayonnement X intense avec la matière</b>	<b>3</b>
1.1	Lasers X/XUV à électrons libres . . . . .	3
1.2	Interaction avec les solides . . . . .	4
1.2.1	Mécanismes d'interaction dans la gamme X . . . . .	4
1.2.2	Interaction d'un XFEL avec un solide . . . . .	6
1.2.3	Matière à haute densité d'énergie . . . . .	7
1.3	Problématique . . . . .	8
1.4	État de l'art . . . . .	9
<b>II</b>	<b>Rayonnement et physique atomique hors-équilibre</b>	<b>11</b>
<b>2</b>	<b>Physique atomique hors-équilibre</b>	<b>13</b>
2.1	Cinétique des populations continue du solide au plasma . . . . .	13
2.1.1	Modèle collisionnel radiatif pour l'interaction XFEL-matière . . . . .	13
2.1.2	Effets de densité . . . . .	14
2.1.3	Approche des processus généralisés . . . . .	15
2.1.4	Approche de plasma dilué modifiée . . . . .	17
2.1.5	Calcul des taux . . . . .	19
2.1.6	Lien entre taux Maxwelliens et taux Fermi-Dirac . . . . .	20
2.1.7	Conservation des propriétés de l'ETL . . . . .	22
2.1.8	Amélioration de l'approche plasma . . . . .	23
2.2	Modélisation numérique de l'interaction . . . . .	24
2.2.1	Modèle adapté pour un chauffage isochores . . . . .	25
2.2.2	Équation pour l'énergie interne . . . . .	25
2.2.3	Regroupement en configuration . . . . .	26
2.2.4	Traitement de la densité . . . . .	26
2.2.5	Spectres d'émission . . . . .	30
2.2.6	Résolution numérique . . . . .	30
2.2.7	Version 1D sans détente . . . . .	31
<b>3</b>	<b>Simulations de la cinétique des populations atomiques et comparaison avec des expériences.</b>	<b>33</b>
3.1	Interaction dans la gamme XUV . . . . .	33
3.1.1	Transparence induite . . . . .	33
3.1.2	Émission de fluorescence . . . . .	37
3.1.3	Influence de la statistique de FD sur le chauffage . . . . .	38
3.1.4	Variation du chauffage avec l'énergie des photons . . . . .	39
3.1.5	Comparaison avec l'expérience au niveau de la température électronique . . . . .	40
3.2	Interaction dans la gamme X (keV) . . . . .	41
3.2.1	Spectre de fluorescence de la couche K . . . . .	41

3.2.2	Méthode spectroscopique utilisant des spectres 2D . . . . .	43
3.2.3	Transmission en fonction de l'énergie . . . . .	53
3.3	Conclusion sur le modèle . . . . .	55
<b>III Fonctions de distribution électronique hors-équilibre</b>		<b>57</b>
<b>4</b>	<b>Cinétique des électrons liés et libres</b>	<b>59</b>
4.1	Couplage entre niveaux liés et états libres . . . . .	59
4.1.1	Système d'équation . . . . .	61
4.1.2	Terme de collision électron-électron . . . . .	62
4.1.3	Termes de couplage . . . . .	63
4.1.4	Expression des taux . . . . .	65
4.2	Section efficace différentielle d'ionisation collisionnelle . . . . .	66
4.3	Conclusion sur le modèle . . . . .	68
4.4	Développement d'un code . . . . .	68
4.4.1	Discrétisation . . . . .	68
4.4.2	Effets de densité et lien solide-plasma . . . . .	69
4.4.3	Évolution de l'énergie interne et calcul d'une température effective . . . . .	69
4.4.4	Schéma numérique . . . . .	70
4.4.5	Conservation de l'énergie et du nombre de particules . . . . .	70
<b>5</b>	<b>Simulations du couplage entre cinétique des populations atomiques et cinétique hors-équilibre des électrons libres</b>	<b>73</b>
5.1	Interaction dans la gamme XUV . . . . .	73
5.1.1	Équilibration de la distribution d'électrons libres due à la physique atomique . . . . .	73
5.1.2	Influence de la sélection de niveaux liés . . . . .	76
5.1.3	Influence de l'intensité . . . . .	77
5.1.4	Influence de la section efficace différentielle d'ionisation collisionnelle . . . . .	78
5.2	Interaction dans la gamme X . . . . .	78
5.3	Comparaison avec le modèle supposant une thermalisation instantanée des électrons libres : influence de la largeur spectrale du XFEL . . . . .	81
<b>Conclusion et perspectives</b>		<b>83</b>
5.4	Conclusion . . . . .	83
5.5	Perspectives . . . . .	87
<b>Annexe</b>		<b>89</b>
<b>A</b>	<b>Densité d'état d'un gaz d'électrons libres dégénérés</b>	<b>91</b>
<b>B</b>	<b>Détails numériques</b>	<b>93</b>
B.1	Abaissement du potentiel d'ionisation . . . . .	93
B.2	Code couplant la cinétique des populations atomiques à la cinétique des électrons liés . . . . .	93
B.2.1	Intégration numérique des taux . . . . .	93

B.2.2	Parallélisation . . . . .	94
<b>C</b>	<b>Processus élémentaires de physique atomique</b>	<b>95</b>
C.1	Processus élémentaires . . . . .	95
C.2	Relations de microréversibilité . . . . .	96
C.3	Expression des taux avec prise en compte de la dégénérescence des électrons libres . . . . .	97
C.4	Structure atomique de l'atome isolé . . . . .	100
C.4.1	Méthode du champ central . . . . .	100
C.5	Calcul des données structurelles et méthodes statistiques . . . . .	101
C.5.1	Regroupement en configuration et super-configuration . . . . .	101
C.5.2	Énergie des (super-)configurations moyennée . . . . .	102
C.5.3	Méthodes statistiques de sommation directe . . . . .	103
C.6	Critère d'utilisation de la théorie des perturbations . . . . .	104
C.7	Modèles analytiques d'abaissement du continu . . . . .	105
C.7.1	Modèle d'Ecker et Kroll . . . . .	105
C.7.2	Modèle de Stewart et Pyatt . . . . .	106
C.7.3	Modèle de sphère ionique analytique à température finie . . . . .	106
<b>D</b>	<b>Modèle d'émission radiative</b>	<b>109</b>
D.1	Transfert radiatif . . . . .	109
D.2	Émissivité . . . . .	109
D.3	Opacité . . . . .	110
D.4	Bords de recombinaison . . . . .	111
<b>E</b>	<b>Terme de collision électron-électron avec potentiel de Thomas-Fermi</b>	<b>113</b>
E.1	Règle d'or de Fermi . . . . .	113
E.2	Potentiel de diffusion électron-électron . . . . .	113
E.3	Calcul de l'élément de matrice . . . . .	114
E.4	Probabilité de diffusion électron-électron . . . . .	115
	<b>Bibliographie</b>	<b>119</b>



# Première partie

## Contexte





# Interaction d'un rayonnement X intense avec la matière

---

L'interaction laser-matière est très étudiée depuis des dizaines d'années dans la gamme optique. Les applications sont en général liées à la création d'échantillons de matière dans des conditions particulières. En fusion par confinement inertiel, on cherche par exemple à produire de la matière dans des conditions qui permettent d'augmenter le nombre de réactions de fusion nucléaire. Les lasers optiques femtoseconde, ainsi que les chocs nanosecondes créés par laser, permettent également de reproduire (par exemple) des conditions astrophysiques en laboratoire.

Jusqu'à récemment les sources X existantes étaient, quant à elles, utilisées principalement comme sonde en tirant profit de la forte pénétration des photons X dans la matière.

Ce travail de thèse suit le développement récent des lasers X/XUV à électrons libres (XFEL) qui sont des sources intenses de nouvelle génération. Les XFELs ont ouvert des thématiques de recherche dans de nombreux domaines de la physique, de la chimie et de la biologie.

Notre intérêt se porte ici sur l'interaction des XFELs avec la matière dense avec comme application la création et l'étude d'états exotiques fortement hors-équilibre et l'étude de la matière à haute densité d'énergie.

## 1.1 Lasers X/XUV à électrons libres

Il existe plusieurs types de sources dans la gamme X-XUV qui diffèrent par leurs caractéristiques, leur mode de fonctionnement mais aussi leur accessibilité à l'utilisateur. On peut citer par exemple les sources synchrotrons, la génération d'harmoniques d'ordre élevé, les lasers XUV créés par plasma, les sources issues du rayonnement thermique des plasmas ou encore les sources  $K_\alpha$ . Récemment, le développement de sources ultra-intenses dans la gamme optique avec des intensités supérieures à  $10^{18} \text{ W/cm}^2$  a permis d'atteindre le domaine d'interaction laser-plasma en régime relativiste. Dans ce cadre, plusieurs mécanismes de génération de rayonnement X ont été identifiés et sont activement étudiés pour produire des sources exploitables [Corde 2013].

Les XFELs constituent un nouveau type de sources X-XUV de quatrième génération qui ont permis d'atteindre un nouveau domaine d'intensité en tirant bénéfice du développement récent de la technologie des accélérateurs. Les XFELs sont principalement constitués d'un accélérateur linéaire et d'un onduleur magnétique. L'accélérateur linéaire accélère des paquets d'électrons d'énergie de un à une vingtaine de GeV suivant la longueur d'onde du rayonnement voulu. Chaque paquet passe ensuite dans l'onduleur et interagit avec son propre rayonnement et le champ magnétique de l'onduleur. Les électrons

se regroupent ainsi en tranches qui émettent un rayonnement cohérent par rayonnement synchrotron. Cet effet est désigné par le terme SASE pour *Self-Amplified Spontaneous Emission* [Kondratenko 1980, Bonifacio 1984].

Il existe plusieurs installations de type XFEL et plusieurs sont en construction. Parmi les installations existantes les trois plus importantes sont l'installation FLASH [FLASH] à Hambourg dans la gamme XUV, l'installation LCLS [LCLS] à Stanford dans la gamme X mou à X dur et l'installation SACLA [SACLA] au Japon dans la gamme X dur. Leurs caractéristiques sont données dans le tableau 1.1.

	$h\nu$ (eV)	$\lambda$ (nm)	durée d'impulsion (fs)
FLASH	28 - 295	4.2 - 45	30 - 300
LCLS (X mou)	285 - 2000	0.62 - 4.37	70 - 400
LCLS (X dur)	2000-9600	0.13 - 0.62	50 - 250
SACLA	4000-20000	0.062-0.3	2-10

**Table 1.1** – Caractéristiques des sources FLASH et LCLS.

Ces sources fournissent un rayonnement de courte longueur d'onde – jusqu'à la taille d'un atome – avec des courtes durées d'impulsions – de l'ordre de la durée des plus courts processus atomiques – et avec des intensités fournissant, après focalisation, jusqu'à 1 photon par atome dans un solide (avec des intensités qui peuvent aller jusqu'à  $10^{18} - 10^{19} \text{ W/cm}^2$ ). Le rayonnement est de plus ajustable en longueur d'onde.

Les intensités atteintes avec les XFELs posent la question de l'utilisation de ces sources, non plus comme sonde, mais directement pour le chauffage de la matière.

## 1.2 Interaction avec les solides

### 1.2.1 Mécanismes d'interaction dans la gamme X

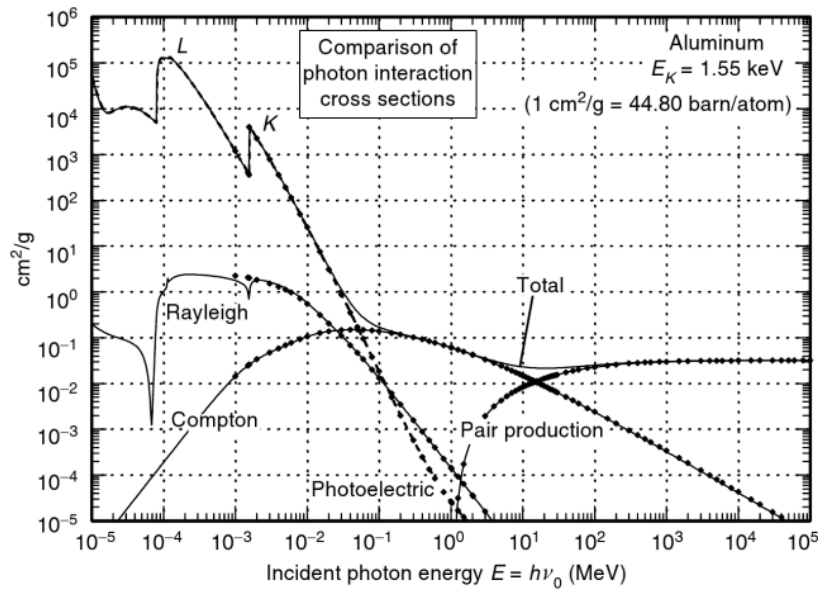
L'interaction laser-matière est très étudiée depuis des dizaines d'année dans la gamme optique. Nous allons montrer que la situation est très différente dans la gamme X. L'absorption par les électrons libres se fait principalement par bremsstrahlung inverse ou bien par absorption résonante à la densité critique associée au rayonnement. La densité critique associée à un rayonnement de longueur d'onde  $\lambda$  est donnée par

$$n_c = \frac{1.1 \times 10^{27}}{\lambda^2 [\text{nm}^2]} [\text{cm}^{-3}]. \quad (1.1)$$

Cette densité correspond à la densité électronique pour laquelle la fréquence plasma électronique est égale à la fréquence du rayonnement. Une onde électromagnétique ne peut se propager dans un plasma si la densité est supérieure à la densité critique. En considérant une gamme de longueur d'onde  $\lambda < 18 \text{ nm}$  (ou  $h\nu > 70 \text{ eV}$ ) on obtient une densité critique supérieure à  $3.10^{24} \text{ cm}^{-3}$ . Nous pouvons en conclure que, pour les densités qui nous intéressent (inférieures ou égales à la densité du solide), le rayonnement n'atteindra jamais une densité égale à la densité critique et l'absorption résonante n'aura pas lieu.

De plus, pour une énergie de photon supérieure au premier seuil d'ionisation d'un électron lié, l'absorption par bremsstrahlung inverse (absorption libre-libre) est également négligeable. Nous pouvons en conclure que les photons X interagissent principalement avec les électrons liés aux atomes.

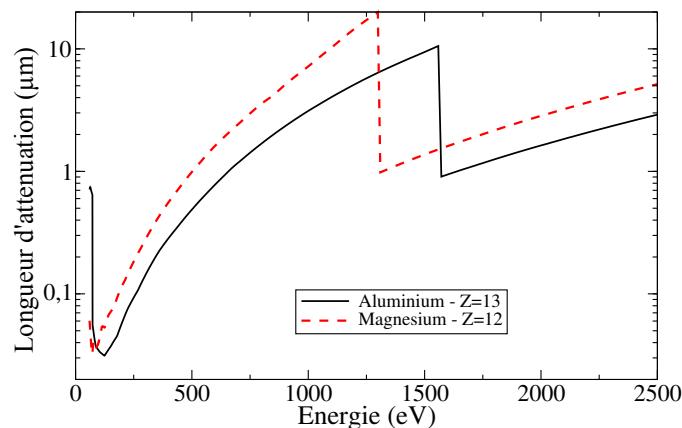
L'interaction d'un photon avec un atome se fait principalement par diffusion ou par absorption. Sur la Fig. 1.1 est représentée la section efficace totale d'absorption de photons



**Figure 1.1** – Importance relatives des différents mécanismes d'interaction de photons avec la matière dans la gamme X. Figure issue de la Réf. [Carron 2006].

X dans l'aluminium solide. On peut voir que la contribution majoritaire, pour des énergies de photons inférieures à 10 KeV, est due à la photoionisation.

L'absorption de photons dans la gamme X produit donc majoritairement des trous en couches internes par photoionisation selon par exemple  $K^2L^8M^Y + h\nu \rightarrow K^1L^8M^Y + e^-$  ou bien  $K^2L^8M^Y + h\nu \rightarrow K^2L^7M^Y + e^-$ . L'énergie est déposée à travers la struc-



**Figure 1.2** – Influence de l'élément sur l'absorption dans la gamme X. La longueur d'atténuation expérimentale de l'aluminium solide, en fonction de l'énergie des photons incidents, est comparée à la longueur d'atténuation du magnésium solide [CXRO].

ture atomique et le chauffage dépend donc fortement de l'élément. On peut voir sur la Fig. 1.2 la comparaison entre les longueurs d'absorption expérimentales de l'aluminium et du magnésium dans leur état solide. La position des seuils photo-électriques est très différente pour ces deux éléments qui ont pourtant un  $Z$  très proche (cette différence est encore plus importante dans un plasma fortement ionisé). Au contraire, dans la gamme

optique l'interaction avec la matière se fait principalement avec les électrons libres par bremsstrahlung inverse et la dépendance en  $Z$  est plus linéaire.

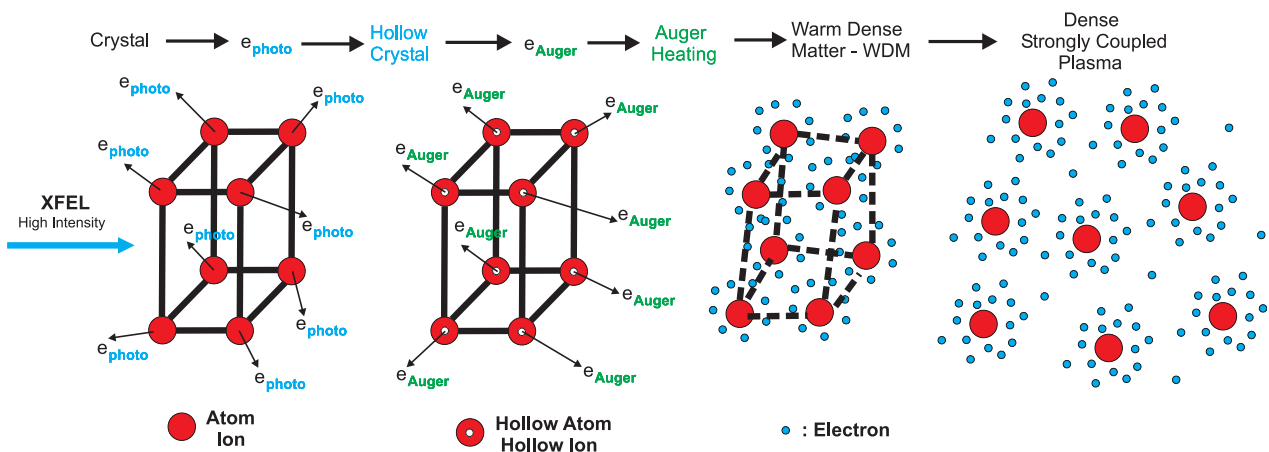
De plus, les forts gradients de densité et de température – liés à l'absorption par les électrons libres jusqu'à la densité critique – qui sont produits lors de l'interaction laser-plasma dans la gamme optique (par exemple en fusion par confinement inertiel) sont diminués avec l'utilisation de rayonnements de faible longueur d'onde pour lesquels la longueur de pénétration des photons est grande.

Pour conclure la problématique de l'absorption dans la gamme X n'est pas la même que dans la gamme optique. De plus, l'utilisation d'un rayonnement dans la gamme X pour la mise en condition de la matière semble être favorable car la diminution des gradients facilite le diagnostic expérimental. Nous allons voir dans la suite que l'utilisation de courtes longueurs d'onde amène de nouvelles difficultés au niveau de la simulation du chauffage.

### 1.2.2 Interaction d'un XFEL avec un solide

Les sources X/XUV présentées au dessus, comme par exemple les synchrotrons, sont accessibles depuis de nombreuses années pour des expériences d'interaction avec les solides. Pourtant la situation est très différente avec l'utilisation de XFELs. Les XFELs fournissent des intensités supérieures aux autres sources X/XUV de plusieurs ordres de grandeurs combinées avec une durée de l'ordre de quelques dizaines de fs. Nous allons montrer que cela permet de créer des états de la matière fortement hors de l'équilibre thermodynamique local (ETL) qui n'étaient pas accessibles précédemment.

L'interaction XFEL-solide est illustrée Fig. 1.3. L'impulsion X/XUV d'une durée de l'ordre de 10 à 100 fs ionise des électrons de couches internes par photoionisation. À haute intensité, on peut produire jusqu'à un trou sur chaque atome d'un solide ce qui produit un état de la matière fortement hors-ETL (HETL), sur une échelle de temps bien inférieure au temps de réaction de la structure cristalline. Cet état peut être désigné par le terme



**Figure 1.3** – Schéma de l'interaction d'un rayonnement X/XUV intense et court de type XFEL avec un solide. Figure issue de la Réf. [Rosmej 2012a]

*solide creux*. Les trous créés sont recombinés principalement par effet Auger en éjectant un électron dans et au dessus de la bande de valence avec l'énergie résiduelle. On a donc une éjection massive de photo-électrons et d'électrons Auger dans/au dessus de la bande

de valence sur des échelles de l'ordre de la durée d'impulsion [Rosmej 2012a]. Ces photo-électrons et électrons Auger se thermalisent par collision avec les électrons de la bande de valence avec une durée typique de l'ordre de 1 fs à plusieurs dizaines de fs. La bande de valence est donc HETL sur ces échelles de temps.

Après recombinaison des trous en couche internes et thermalisation, les électrons libres commencent à céder leur énergie aux phonons puis aux ions avec des temps caractéristiques de l'ordre de la centaine de fs. Les ions de la structure solide commencent alors à bouger et le solide passe à l'état de plasma dense qui se détend.

### 1.2.3 Matière à haute densité d'énergie

Suivant l'intensité du XFEL la température électronique atteinte à la fin de l'interaction peut aller de quelques eV à plusieurs dizaines voir centaines d'eV. L'état ainsi créé est un solide à une température de cent à plusieurs milliers de fois sa température de fusion. On désigne cet état par matière à haute densité d'énergie (MHDE). La MHDE correspond à l'état de la matière tel que la densité d'énergie est supérieure à  $10^{11} \text{ W/cm}^3$  [Drake 2006b] ce qui correspond, dans le cas de l'aluminium à densité du solide, à une température minimale de l'ordre de 1 eV.

Dans un solide froid l'interaction Coulombienne domine et l'énergie thermique est négligeable. Dans un plasma dilué l'énergie d'interaction Coulombienne est négligeable devant l'énergie thermique. La MHDE se situe entre ces deux états avec une énergie Coulombienne qui est de l'ordre de l'énergie thermique. Pour des températures assez faibles et des densités élevés, des effets de dégénérescences peuvent apparaître. Ainsi la MHDE peut être divisée en deux parties. On désigne en général l'état tel que les effets de dégénérescence sont non négligeables par le terme matière dense et tiède (MDT). Lorsque les effets de dégénérescence sont négligeables on parle de matière dense et chaude (MDC).

Pour décrire la MHDE deux paramètres sont pertinents, le paramètre de couplage  $\Gamma$  et le paramètre de dégénérescence  $\Theta$ .

Le paramètre de couplage ion-ion est donné par

$$\Gamma_{ii} = \frac{E_c}{E_{th}} = \left(\frac{4\pi}{3}\right)^{1/3} (Ze)^2 \frac{n_i^{1/3}}{k_B T_i} \quad (1.2)$$

avec  $T_i$  la température ionique,  $n_i$  la densité ionique,  $E_c$  l'énergie d'interaction Coulombienne et  $E_{th}$  l'énergie thermique des ions. Ce facteur rend compte de l'importance de l'énergie d'interaction coulombienne entre les ions  $E_c$  par rapport à l'énergie thermique des ions  $E_{th}$  et rend donc compte des corrélations entre les ions. Dans un solide froid on a  $\Gamma_{ii} \gg 1$  et dans un plasma chaud dilué on a  $\Gamma_{ii} \ll 1$ . La MHDE correspond à un état pour lequel  $\Gamma_{ii}$  de l'ordre de 1.

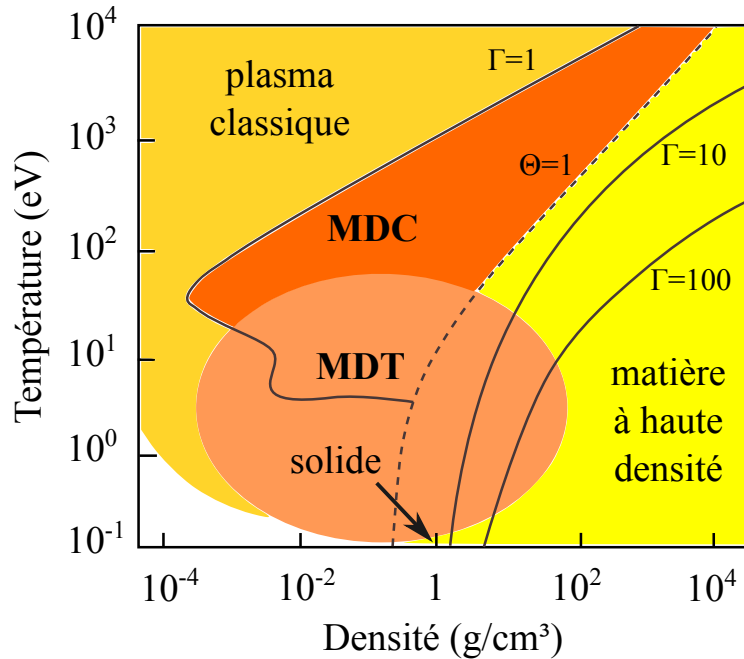
Le paramètre de dégénérescence  $\Theta$  est donné par

$$\Theta = \frac{E_{th}}{E_F} = \frac{2m_e k_B T_e}{\hbar^2 (3\pi^2 n_e)^{2/3}} \quad (1.3)$$

avec  $E_F$  l'énergie de Fermi et  $E_{th}$  l'énergie thermique des électrons. L'énergie de Fermi donne une idée de l'énergie thermique électronique d'une distribution de Fermi-Dirac à température nulle, c'est-à-dire une idée de l'énergie thermique minimale électronique,

compte tenu du respect du principe de Pauli. Le facteur  $\Theta$  nous permet donc d'estimer l'importance des effets de dégénérescence. Dans un solide froid  $\Theta \approx 1$  et dans un plasma chaud  $\Theta \gg 1$ .

La MDT est donc caractérisée par  $\Theta$  de l'ordre de 1 et la MDC par  $\Theta \gg 1$ . Sur la Fig 1.4



**Figure 1.4** – Diagramme de phase situant les états de MDT et de MDC.

sont représentés les états de MDT et de MDC dans un diagramme de phase donnant la température en fonction de la densité.

À partir du solide (autour de 1 g/cm<sup>3</sup> et faibles températures) le XFEL provoque un chauffage isochore qui permet d'aller tout droit verticalement dans le diagramme de phase et de passer par l'état de MDT puis, si l'énergie déposée est suffisante, vers l'état de MDC.

Dans le cas de la compression par choc laser optique nanoseconde, le chemin dans l'espace des phases, le long d'une courbe Hugoniot, est complexe à modéliser en terme d'équation d'état dans cette zone de MHDE. Avec un XFEL, même en restant à densité du solide, cela devient plus complexe encore avec des populations atomiques et des électrons libres fortement hors-équilibre et où même le concept de température électronique n'est pas forcément justifié.

### 1.3 Problématique

On peut donc conclure qu'au niveau théorique l'utilisation de XFELs pour la création d'échantillon de matière à haute densité d'énergie amène de nouveaux sujets d'étude. Le rayonnement créé de la matière dans des conditions exotiques nouvelles, fortement hors-équilibre, dont l'étude est en elle-même intéressante.

La modélisation du chauffage, qui est illustrée Fig. 1.3, passe par le calcul de la cinétique des électrons liés et libres, dirigée par l'irradiation du XFEL, continuellement depuis

l'état de solide froid jusqu'à l'état de plasma dense. Il existe des modèles de cinétiques des populations atomiques dans l'état de solide froid, d'autres pour les plasmas peu denses, certains modèles ont même été développés pour les plasmas denses. Pourtant, il n'existe actuellement aucun modèle qui permette de relier continuellement le solide au plasma dense.

L'ensemble de la discussion se généralise à la gamme XUV pour laquelle l'absorption par bremsstrahlung inverse est négligeable quand on se situe après le premier seuil photo-électrique (voir Fig. 1.1).

Dans une première partie nous étudions la cinétique des populations atomiques et nous nous concentrons sur le lien entre solide et plasma. Nous faisons dans ce cadre l'hypothèse d'une thermalisation instantanée des électrons libres. Ces derniers sont donc décrits par une température et une densité. Dans une seconde partie cette hypothèse est levée à l'aide d'un modèle qui traite conjointement la cinétique des électrons libres et celle des électrons liés.

## 1.4 État de l'art

L'étude au niveau théorique de l'interaction d'un rayonnement X avec la matière a commencé avec des modèles hydrodynamiques [Hau-Riege 2007], [Whittaker 2011]. Dans ces modèles l'absorption du rayonnement le long de sa propagation est calculée à l'aide d'opacités ETL – et sont donc valables dans le cas où les populations atomiques sont proches de l'ETL. Dans le cas d'un XFEL utilisé à haute intensité, la création d'un grand nombre de trous en couches internes implique une absorption très différente de celle calculée à l'ETL.

Un modèle a également été créé pour suivre l'évolution HETL des populations atomiques [Chung 2007]. Le chauffage isochore induit par le rayonnement XFEL – ainsi que l'hypothèse d'un transport électronique négligeable sur une échelle de l'ordre de la dizaine de femtosecondes – permet de suivre cette cinétique HETL sans dimension spatiale, en considérant une structure cristalline figée. Le calcul de la cinétique atomique est effectué à l'aide d'un modèle collisionnel radiatif de type plasma, utilisant des données d'atome isolé modifiées avec un abaissement des potentiels d'ionisation. Cette approche est donc une approche de type plasma dense. Les populations atomiques sont décrites à l'aide de complexes de Lazer et l'ensemble des données structurales nécessaires sont calculées à l'aide de formules semi-empiriques.

On peut ensuite mentionner une étude du caractère hors équilibre de la fonction de distribution [Medvedev 2011] utilisant le modèle décrit dans la référence [Medvedev 2010]. Ce modèle permet de calculer la cinétique des électrons libres, pendant l'interaction XFEL-matière et les quelques femtosecondes suivantes. Ce modèle est également sans dimension spatiale et fait donc également les hypothèses de chauffage isochore et d'un transport électronique négligeable. L'absorption du rayonnement est ici calculée à l'aide de longueurs d'atténuation expérimentales (correspondant à l'absorption dans le solide froid) qui dépendent seulement de la longueur d'onde du rayonnement et de l'élément constituant la cible. Les processus élémentaires pris en compte sont la photoionisation, l'ionisation collisionnelle, l'effet Auger et les collisions électrons-électrons. Le modèle calcule le nombre moyen de trous créés en couches internes pour estimer le nombre de recombinaison Auger



moyen. Les taux Auger ainsi que les taux d'ionisation collisionnelle ne dépendent pas de la couche (ou même sous couche) internes dans laquelle le trou est rempli ou créé. Les fortes hypothèses faites au niveaux de ces processus élémentaires correspondent à celles faites habituellement dans le solide froid. Cette description est valable, comme mentionné dans la référence [Medvedev 2011], pour des fluences assez faibles pour ne pas trop s'éloigner de la structure atomique du solide froid.

Pour finir un modèle hydrodynamique à une dimension spatiale et deux températures (ionique et électronique) composé d'un module de physique atomique HETL a été développé pour modéliser l'interaction XFEL-solide [Peyrusse 2012]. Le module de physique atomique permet à la fois de calculer l'absorption du XFEL le long de sa propagation (terme source d'énergie) mais également l'ionisation moyenne nécessaire à la partie hydrodynamique. Il permet donc de calculer une partie de l'équation d'état électronique. Ce module est un modèle collisionnel radiatif de type plasma dense modifié pour être utilisé jusqu'au solide. La physique atomique est à tous les niveaux plus évoluée que celle du modèle [Chung 2007]. Les niveaux atomiques sont regroupés en configurations ou super-configurations et les données structurales nécessaires (énergie des (super-)configurations atomiques, sections efficaces et taux des processus élémentaires) sont calculées (directement moyennées en (super-)configurations) à l'aide de méthodes quantiques dédiées [Peyrusse 1999, Peyrusse 2000]. Ce code hydrodynamique permet donc de suivre l'interaction sur une échelle femtoseconde avec des populations atomiques fortement HETL ainsi que la détente de la matière sur une échelle picoseconde.

Dans cette thèse on s'est intéressé particulièrement à l'interaction sur une échelle femtoseconde et aux processus atomiques élémentaires en jeu. Le but a été d'améliorer la description de la physique atomique lors de la transition isochore de solide à plasma à densité du solide.

## Deuxième partie

# Rayonnement et physique atomique hors-équilibre



# Physique atomique hors-équilibre

---

Suite au développement des XFELs, de nombreuses expériences ont été faites sur des cibles d'aluminium [Zastrau 2008, Nagler 2009, Vinko 2010, Galtier 2011, Vinko 2012, Zastrau 2012, Cho 2012, Vinko 2015, Rackstraw 2015, Sperling 2015]. Cet élément a été choisi pour ses avantages au niveau expérimental (prix/accessibilité des cibles, longueur d'onde du rayonnement coïncident avec celle des spectromètres etc...). D'un point de vue théorique, l'aluminium est également un très bon candidat. Sa structure de bande simple dans l'état solide, composée d'une bande de valence dont la densité d'état est proche de celle d'un gaz d'électrons libres dégénérés. Nous nous sommes donc concentrés sur l'aluminium pour étudier l'interaction XFEL-solide. Les méthodes développées dans ce travail de thèse peuvent être appliquées à d'autres éléments. Par contre, les mécanismes en jeu lors de l'interaction, mis en avant dans ce travail, peuvent dépendre fortement de l'élément. Par exemple l'aluminium est un élément léger ce qui implique qu'un niveau autoionisant se désexcite préférentiellement via effet Auger. Dans un élément lourd, la désexcitation d'un tel état se fait plutôt par transition radiative. Dans cette première partie nous supposons une thermalisation instantanée des électrons libres et donc des photo-électrons et électrons Auger éjectés. On décrit alors les électrons libres par une température  $T_e$  et une densité  $n_e$ . Cette hypothèse sera levée dans la partie III.

Le modèle décrit dans ce chapitre est décrit dans les Réfs. [Deschaud 2014, Deschaud 2015].

## 2.1 Cinétique des populations continue du solide au plasma

### 2.1.1 Modèle collisionnel radiatif pour l'interaction XFEL-matière

La modélisation de l'interaction XFEL-solide passe par la quantification de l'éjection de photo-électrons et d'électrons Auger au dessus (ou à l'intérieur) de la bande de valence, couplée à l'ensemble des autres processus atomiques en jeu. Cela passe par le calcul de la cinétique des électrons liés et des électrons de la bande de valence, sur une échelle femtoseconde depuis l'état de solide froid jusqu'au plasma. Cette cinétique peut être calculée via la résolution du système des  $N_{lies}$  equations de taux couplées (modèle collisionnel-radiatif (MCR)) [Griem 1964] [Griem 1997] [Lee 1997] [Peyrusse 1999] [Fujimoto 2004] [Drake 2006a] [Rosmej 2012b]

$$\frac{dN_c}{dt} = -N_c \sum_{c'} W_{cc'} + \sum_{c''} N_{c''} W_{c''c} \quad (2.1)$$

où  $W_{cc'}$  est le taux total entre les niveaux  $c$  et  $c'$  et  $N_c$  la population du niveau  $c$ . Pour coupler cette cinétique à l'évolution de l'énergie interne électronique, et donc de la

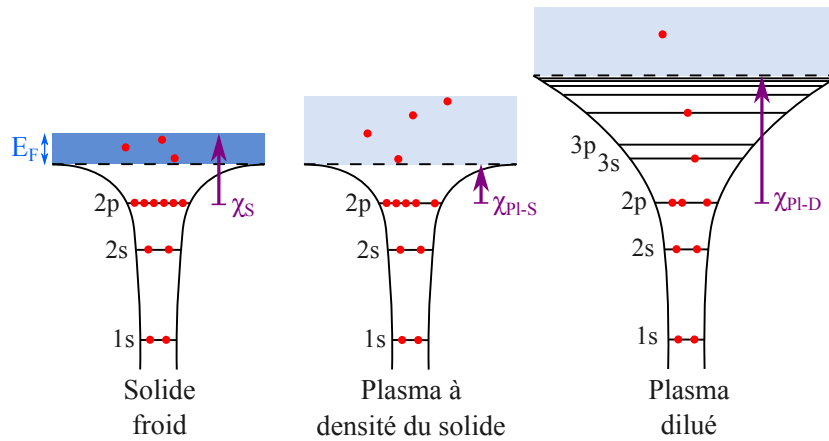
température, nous couplons le système d'équations couplées selon l'Éq. (2.1) à l'équation

$$\frac{dE}{dt} = E_{abs} + E_{rad}, \quad (2.2)$$

où  $E$  est l'énergie interne électronique par unité de volume,  $E_{abs}$  l'énergie absorbée par unité de temps et de volume et  $E_{rad}$  l'énergie perdue par le système par radiation, par unité de temps et de volume.

### 2.1.2 Effets de densité

La résolution du système d'équation de la forme Éq. (2.1) nécessite la connaissance des taux globaux  $W$ , mais également des niveaux d'énergie  $E_c$ , depuis l'état solide, jusqu'à l'état de plasma. Sur la Fig. 2.1 est schématisée la structure atomique dans l'état



**Figure 2.1** – Schéma de la structure atomique de l'aluminium dans un solide froid, un plasma à densité du solide et un plasma dilué.

de solide, de plasma à densité du solide et dans l'état de plasma dilué. On peut voir que la densité modifie fortement la structure atomique. Le potentiel lié à l'interaction entre les ions et les électrons est fortement modifié par la réduction de la place normalement disponible pour un ion de sorte que les orbitales externes deviennent des orbitales libres. Cet effet est appelé ionisation par la pression. Également, la corrélation entre les ions et la pression due aux électrons libres produisent un abaissement des potentiels d'ionisation (API, *ionisation potential depression* en anglais). À des densités proches ou supérieures à celles du solide les électrons externes sont ionisés et se retrouvent délocalisés dans une structure de bande plus ou moins complexe.

On peut noter que cette séparation nette entre états liés et états libres (approche chimique) n'est pas forcément justifiée. Pour une densité variable les orbitales ne passent pas brusquement de liées à libres (ou l'inverse). De plus, à haute densité, les états liés discrets les plus externes sont très élargis par les champs électriques et les états du continuum de faible énergie ont une densité d'état qui est perturbée par le potentiel atomique [Vallotton 2010]. Tous ces effets de densité compliquent fortement l'utilisation d'un même modèle reliant solide et plasma.

Pour un métal simple la structure de bande est une simple bande de valence (BV) qui

peut-être vue comme une distribution d'électrons libres décrite par la statistique de Fermi-Dirac (FD). Cela revient à décrire le métal comme un plasma dégénéré. On peut ainsi utiliser une approche plasma depuis le solide jusqu'au plasma dilué. Ce modèle est désigné dans la suite par le terme modèle collisionnel-radiatif généralisé (MCRG). Revenons à l'Éq. (2.1). Les taux globaux contiennent la contribution d'un ensemble de processus atomiques élémentaires, collisionnels et radiatifs. Dans un plasma, on a

$$W_{cc'} = W_{cc'}^{coll} + W_{cc'}^{rad} + A_{cc'} + \Gamma_{cc'} \quad (2.3)$$

avec  $W_{cc'}^{coll}$  contenant les processus de collisions

$$W_{cc'}^{coll} = C_{cc'} + I_{cc'} + T_{cc'} + R_{cc'} + D_{cc'} + R_{cc'}^{stim} \quad (2.4)$$

et  $W_{cc'}^{rad}$  contenant les processus dus au champ radiatif

$$W_{cc'}^{rad} = P_{cc'} + B_{cc'}. \quad (2.5)$$

Dans ce qui précède  $A$  est le taux d'émission radiative spontanée,  $\Gamma$  est le taux Auger,  $C$  est le taux d'excitation/désexcitation collisionnelle,  $I$  est le taux d'ionisation collisionnelle,  $T$  est le taux de recombinaison à trois corps,  $R$  est le taux de recombinaison radiative,  $D$  est le taux de capture resonante,  $R^{stim}$  est le taux de recombinaison radiative stimulée,  $P$  est le taux de photoionisation et  $B$  contient les taux de photoexcitation et d'émission stimulée. Ces processus sont explicités en annexe Sec. C.1.

### 2.1.3 Approche des processus généralisés

La description du solide comme un plasma froid nous permet de traiter les processus de l'Éq. (2.3) de manière continue depuis le solide froid jusqu'au plasma. Pour une partie de ces processus la continuité entre solide et plasma est évidente. Par exemple une transition radiative entre deux niveaux de couches internes est clairement définie de manière continue. C'est également le cas pour l'effet Auger entre niveaux de couches internes ou encore la photoionisation de couche interne. Pour ces processus l'environnement de l'atome change depuis le solide jusqu'au plasma mais le processus est le même. Pour les processus solide mettant en jeu la BV, ce lien avec le plasma est moins évident. Commençons par le processus d'effet Auger core-valence-valence (CVV) (différent de l'effet Auger "atomique", voir Éq. (C.4)) qui met en jeu deux électrons de la bande de valence et recombine un trou en couche interne, ici 1s, 2s ou 2p

$$1s^1 2s^2 2p^6 (BV)^3 \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 (BV)^1 + e_{Auger}^- \quad (2.6)$$

$$1s^2 2s^1 2p^6 (BV)^3 \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 (BV)^1 + e_{Auger}^- \quad (2.7)$$

$$1s^2 2s^2 2p^5 (BV)^3 \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 (BV)^1 + e_{Auger}^- \quad (2.8)$$

Ce processus est important en physique du solide et peut en plus, dans notre cas, recombiner des électrons éjectés par le XFEL. Des méthodes existent pour calculer le taux associé à ce processus dans le solide froid. On ne peut pourtant pas inclure directement un tel taux dans l'Éq. (2.3). En effet on ne sait pas, à ce niveau, ce que devient l'effet Auger CVV à haute température.

Considérons la recombinaison à trois corps recombinant un trou en couche  $1s$ ,  $2s$  ou  $2p$

$$1s^1 2s^2 2p^6 + 2e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 + e_{rtc}^- \quad (2.9)$$

$$1s^2 2s^1 2p^6 + 2e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 + e_{rtc}^- \quad (2.10)$$

$$1s^2 2s^2 2p^5 + 2e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 + e_{rtc}^- \quad (2.11)$$

En comparant les Éqs. (2.6-2.8) et Éqs. (2.10-2.11) on peut remarquer que ces deux processus sont équivalents du coté des états liés. Cette observation nous amène à l'idée que l'effet Auger CVV tend naturellement vers une recombinaison à trois corps en même temps que les électrons de la BV gagnent en température. Avec notre approche plasma unifiée on traite donc l'effet Auger CVV comme une recombinaison à trois corps.

Ce lien peut aussi être identifié pour le processus Auger core-core-valence (CCV). L'effet Auger CCV qui recombine un trou en couche  $1s$  ou  $2s$  nous donne

$$1s^1 2s^2 2p^6 (BV)^3 \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^5 (BV)^2 + e_{Auger}^- \quad (2.12)$$

$$1s^2 2s^1 2p^6 (BV)^3 \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^5 (BV)^2 + e_{Auger}^- \quad (2.13)$$

Ce processus tend vers une désexcitation collisionnelle à haute température

$$1s^1 2s^2 2p^6 + e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^5 + e^- \quad (2.14)$$

$$1s^2 2s^1 2p^6 + e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^5 + e^-. \quad (2.15)$$

Également, la fluorescence à partir de la BV vers un trou en couche  $1s$ ,  $2s$  ou  $2p$

$$1s^1 2s^2 2p^6 (BV)^3 \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 (BV)^2 + h\nu \quad (2.16)$$

$$1s^2 2s^1 2p^6 (BV)^3 \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 (BV)^2 + h\nu \quad (2.17)$$

$$1s^2 2s^2 2p^5 (BV)^3 \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 (BV)^2 + h\nu \quad (2.18)$$

devient une recombinaison radiative

$$1s^1 2s^2 2p^6 + e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 + h\nu \quad (2.19)$$

$$1s^2 2s^1 2p^6 + e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 + h\nu \quad (2.20)$$

$$1s^2 2s^2 2p^5 + e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 + h\nu. \quad (2.21)$$

Le même raisonnement s'applique pour les processus inverses.

Pour compléter ce lien solide-plasma, il semble maintenant logique de désigner chaque couple de processus reliés par un terme unique. On choisit d'utiliser le terme de processus 'généralisé'. On définit ainsi la recombinaison à trois corps généralisée, l'ionisation collisionnelle généralisée, la recombinaison radiative généralisée, la désexcitation collisionnelle généralisée et l'excitation collisionnelle généralisée.

### 2.1.4 Approche de plasma dilué modifiée

Dans le cadre de l'atome isolé, il existe des méthodes pour calculer l'énergie des niveaux  $c$  mais aussi les taux de processus inclus dans l'Éq. (2.3). Toutes ces données structurales sont généralement calculées à l'aide de méthodes de type champ central, soit au niveau détaillé [Cowan 1981, Bar-Shalom 2001, Gu 2008], soit avec des méthodes moyennées [Peyrusse 1999, Peyrusse 2000]. Le principe de ces méthodes est détaillé en annexe Sec. C.4.

Les effets de densité décrits au dessus rendent les modèles de calcul de structure atomique avec une approche d'atome isolé inadaptés pour traiter les plasmas denses et donc la MHDE. Des méthodes de champ central ont été développées pour calculer l'effet du plasma environnant sur la structure atomique [Lieberman 1979, Salzmann 1987, Blenski 1995, Vallotton 2010, Li 2012]. Dans ces modèles une contribution liée au plasma est ajoutée dans le potentiel central autocohérent.

Le problème est que l'on obtient des données structurales qui dépendent des paramètres plasmas et leur utilisation dans un MCR est très compliquée. En effet, la première solution serait de recalculer régulièrement les données structurales, en parallèle avec le calcul des populations, ce qui est très lourd numériquement. L'autre solution serait de précalculer un ensemble de données pour différents paramètres plasmas et trouver des lois d'interpolation. Cela devient en plus très compliqué quand on veut relier les états de solide froid et de plasma dense avec un même modèle. Dans les deux cas ce type d'approches peut poser des problèmes de continuité au niveau des propriétés thermodynamiques et de l'émission du plasma dus à l'apparition abrupte de niveaux [Hummer 1988].

Faisons une comparaison rapide entre solide et plasma. Un calcul rapide avec le code Cowan [Cowan 1981], pour l'aluminium, prenant en compte seulement les configurations  $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2$ ,  $1s^2 2s^2 2p^5 3s^2 3p^1$ ,  $1s^2 2s^1 2p^6 3s^2 3p^1$  et  $1s^1 2s^2 2p^6 3s^2 3p^1$  donne une raie  $K_\alpha$  située à 0.833 nm alors que sa position expérimentale, dans le solide, est à 0.834 nm. Pour la raie  $K_\beta$  on obtient 0.793 nm pour une mesure de 0.796 nm dans le solide.

On peut en conclure que, même si le potentiel atomique est très perturbé par l'environnement, il semble raisonnable d'utiliser les données structurales d'atome isolé, étendues jusqu'au solide. Les applications faites dans la partie *résultats* indique également que cette approche est raisonnable. Par contre, ces données doivent être modifiées pour tenir compte des propriétés des plasmas denses et de l'état solide, comme par exemple l'abaissement des potentiels d'ionisation ou encore la dégénérescence des électrons de la bande de valence. Cette approche est beaucoup moins sophistiquée que les méthodes de type champ central avec prise en compte de la densité, utilisées à l'ETL, mais permet de suivre la cinétique HETL des populations atomiques avec un modèle unique qui relie le solide au plasma.

L'utilisation de méthodes d'atome isolé pour l'interaction XFEL-matière suppose que le rayonnement n'est pas assez intense pour perturber de manière significative les états stationnaires du système électron-noyau isolé. Le rayonnement peut alors être traité en perturbation. Ce critère est discuté en annexe Sec. C.6. On fait également l'hypothèse que l'onde électromagnétique liée au rayonnement XFEL a une variation négligeable sur la taille de l'atome.

On décrit ci-dessous les modifications faites au modèle d'atome isolé.

On assimile, dans le cadre de notre modèle plasma étendu, la BV à la distribution classique



d'électrons libres mais décrite par une distribution de Fermi-Dirac

$$f_{FD}(\epsilon, T_e) = \frac{g(\epsilon)}{1 + e^{(\epsilon-\mu)/kT}}, \quad (2.22)$$

avec

$$g(\epsilon) = \frac{2}{(2\pi)^2 n_e} \left( \frac{2m_e}{\hbar^2} \right)^{3/2} \sqrt{\epsilon} \quad (2.23)$$

la densité d'état d'un gaz d'électrons dégénérés (voir annexe A) et  $n_e$  la densité électronique.

Cette distribution rejoint naturellement une distribution de Maxwell-Boltzman assurant le passage continu de solide à plasma. On assimile ainsi la configuration solide  $1s^2 2s^2 2p^6 (BV)^3$  à la configuration atomique de type plasma  $1s^2 2s^2 2p^6$  avec trois électrons par atome dans la distribution.

Comme schématisé sur la Fig. 2.1, on note  $\chi_{Pl-S}$  le potentiel d'ionisation d'un niveau dans le plasma à densité du solide et

$$\chi_S = \chi_{Pl-S} + E_F \quad (2.24)$$

dans le solide froid<sup>1</sup>.  $\chi_S$  correspond à l'ionisation d'un électron au dessus de l'énergie de Fermi  $E_F$ . On rappelle que l'énergie de Fermi est définie par  $E_F = \mu(T_e = 0)$  avec  $\mu$  le potentiel chimique calculé d'après la normalisation

$$\int_0^\infty f_{FD}(\epsilon, T_e) d\epsilon = 1. \quad (2.25)$$

À température nulle la distribution est remplie jusqu'à  $E_F$  et aucun électron atomique ne peut donc être ionisé sous cette énergie. À haute température des espaces libres en énergie se créent dans la distribution de FD sous  $E_F$  et permettent donc des ionisations pour des énergies plus faibles. Dans le solide chaud les seuils du solide se retrouvent ainsi diminués de l'énergie de Fermi.

Pour gérer ce décalage, des facteurs de Pauli-blocking selon

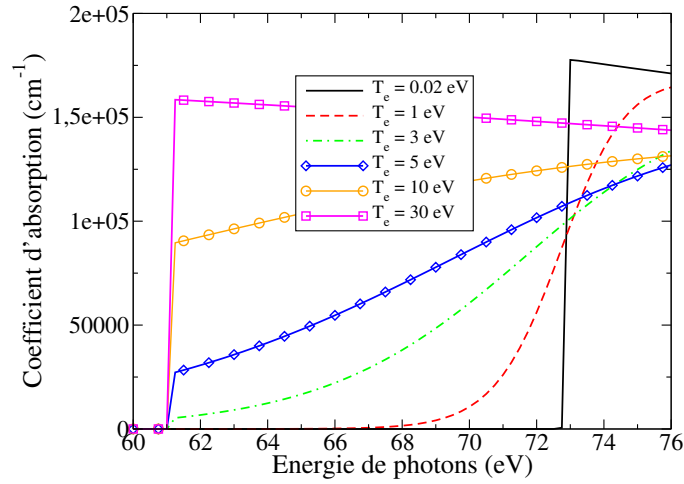
$$(1 - F(\epsilon, T_e)) = \left( 1 - \frac{1}{1 + e^{(\epsilon-\mu)/kT}} \right), \quad (2.26)$$

doivent être introduits. À haute température ce facteur vaut un et décroît pour les faibles températures en même temps que l'occupation des états libres augmente. Ce facteur est introduit de manière cohérente dans les processus inclus dans l'Éq. (2.3) de manière à prendre en compte l'occupation des états libres. L'utilisation de ce facteur est courante en physique du solide et il est notamment inclus dans l'équation de Boltzmann pour traiter la cinétique des électrons de la structure de bande [Ridley 1999, Snoke 1992, Sun 1994, Kaiser 2000]. Ce facteur vaut  $(1 + F(\epsilon, T_e))$  dans le cas de bosons [Snoke 1989].

Regardons maintenant comment ce facteur permet de gérer le décalage du seuil d'ionisation par exemple pour la photoionisation. Dans le cas d'une source X monochromatique

---

1. On suppose ici, pour la discussion, que la valeur du potentiel d'ionisation ne varie pas avec la température et la densité électronique pour se concentrer sur les effets de dégénérescence.



**Figure 2.2** – Évolution du coefficient d'absorption donné par l'Éq. (2.29) autour du premier seuil de la couche 2p pour différentes températures électroniques (voir texte).

de fréquence  $\nu$ , l'absorption des photons par photoionisation est habituellement calculée à l'aide du taux (sans effet induit)

$$P = \sigma^{ph}(h\nu) \frac{I_X}{h\nu} \quad (2.27)$$

où  $\sigma^{ph}$  est la section efficace de photoionisation et  $I_X$  est l'intensité de la source X. Dans le cadre de notre modèle, on ajoute un facteur de Pauli-blocking et le taux devient

$$P = \sigma^{ph}(h\nu) \frac{I_{XFEL}}{h\nu} (1 - F(\epsilon, T_e)) \quad (2.28)$$

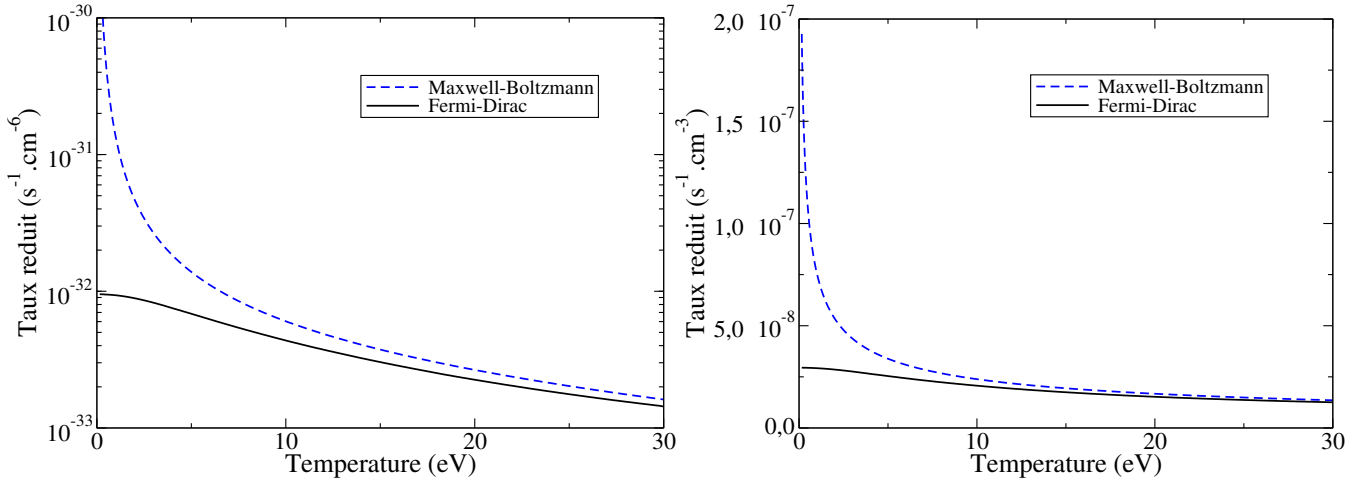
avec  $\epsilon$  l'énergie du photo-électron qui est égale à  $h\nu - \chi$  avec  $\chi$  le potentiel d'ionisation. Si les états libres sont entièrement occupés à l'énergie d'arrivée des photo-électrons, le taux vaut 0. On peut maintenant regarder l'effet de ce facteur sur la position du seuil de photoionisation. Cette position peut être étudiée grâce à l'expression suivante du coefficient d'absorption

$$Abs(h\nu) = n_i \sigma^{ph}(h\nu) (1 - F(h\nu - \chi)) \quad (2.29)$$

où  $n_i$  est la densité ionique. Par exemple pour le seuil de la couche 2p, correspondant à l'ionisation  $1s^2 2s^2 2p^6 + h\nu \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^5 + e^-$ , on utilise la section efficace de l'atome isolé, avec un seuil fixé manuellement à  $\chi = \chi_{plasma}$ . Pour déterminer ce dernier, on remarque que les potentiels  $\chi_S$  sont accessibles expérimentalement dans le cas de la première ionisation de chaque couche. Par exemple, pour l'aluminium solide, l'énergie de première ionisation de la couche 2p est  $\chi_S^{2p} = 72.8 \text{ eV}$  [Henke 1993] et l'énergie de Fermi vaut  $E_F = 11.6 \text{ eV}$ . On obtient ainsi  $\chi_{plasma} = 72.8 - 11.6 = 61.2 \text{ eV}$ . Sur la Fig. 2.2 est représentée l'absorption autour du seuil solide de la couche 2p pour différentes températures. On peut clairement voir le décalage progressif du seuil, dû au Pauli-blocking, de 61.5 eV à 72.8 eV.

### 2.1.5 Calcul des taux

L'utilisation de la statistique de FD se généralise pour l'ensemble des taux des processus mettant en jeu la BV. D'une part on utilise une distribution de Fermi-Dirac – à la place d'une distribution Maxwellienne dans les MCRs standards – d'autre part on



**Figure 2.3** – Comparaison entre les taux réduits calculés avec la statistique de Fermi-Dirac et ceux calculés avec la statistique de Maxwell-Boltzmann. À gauche, taux réduit de recombinaison à trois corps selon  $1s^2 2s^2 2p^5 + 2e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 + e^-$ . À droite, taux réduit de désexcitation collisionnelle selon  $1s^2 2s^1 2p^6 + e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^5 + e^-$ .

ajoute des facteurs de Pauli-blocking, quand c'est nécessaire, pour réguler l'entrée ou le déplacement d'électrons dans la distribution en fonction de la place disponible dans l'état d'arrivée.

On prend l'exemple de l'ionisation collisionnelle. Son taux, pour l'ionisation de  $c$  vers  $c'$  avec un électron incident d'énergie  $\epsilon$  et deux électrons sortants d'énergie  $\epsilon'$  et  $\epsilon''$  s'exprime selon

$$I_{cc'} = n_e \int_{\chi_{cc'}}^{\infty} \sqrt{\frac{2\epsilon}{m_e}} f_{FD}(\epsilon) \xi(\epsilon) d\epsilon \quad (2.30)$$

avec  $\xi(\epsilon)$  donné par

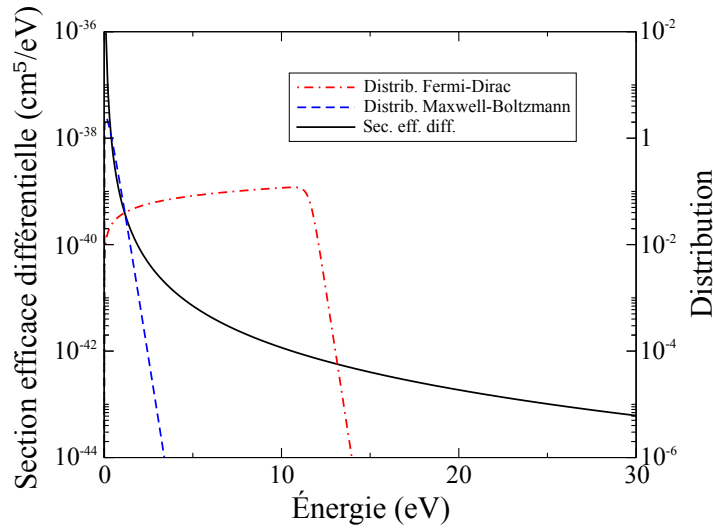
$$\xi(\epsilon) = \int_0^{\epsilon - \chi_{cc'}} \frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon')(1 - F(\epsilon', T_e))(1 - F(\epsilon - \chi_{cc'} - \epsilon', T_e)) d\epsilon'. \quad (2.31)$$

$\chi_{cc'}$  est le potentiel d'ionisation  $\chi_{cc'} = E_{c'} - E_c$  et  $\frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon')$  est la section efficace différentielle d'ionisation collisionnelle. Les deux facteurs de Pauli-blocking tiennent compte de la place disponible à l'énergie des deux électrons sortants.

L'expression des taux de l'ensemble des processus du MCRG Éq. (2.1) est détaillé en annexe Sec. C.3.

### 2.1.6 Lien entre taux Maxwelliens et taux Fermi-Dirac

Regardons maintenant l'influence de la prise en compte des effets de dégénérescence sur les taux collisionnels. La Fig. 2.3 compare, pour les processus de recombinaison à trois corps selon  $1s^2 2s^2 2p^5 + 2e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 + e^-$  (gauche) et de désexcitation collisionnelle selon  $1s^2 2s^1 2p^6 + e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^5 + e^-$  (droite), les taux en fonction de la température calculés de manière classique (avec des distributions de Maxwell-Boltzmann (MB)) aux taux FD. Les section efficaces sont calculées à l'aide de méthodes quantiques dédiées directement moyennées en configuration [Peyrusse 1999]. On peut voir que les deux taux divergent dans le cas MB et que cette divergence est supprimée dans le cas FD. Pour expliquer cet effet on peut regarder par exemple la forme de la section efficace différentielle de recombinaison à trois corps. En effet, bien que les taux de recombinaison



**Figure 2.4** – Section efficace différentielle de recombinaison à trois corps correspondant à la transition de la Fig. 2.3 (gauche) en fonction de l'énergie pour deux énergies d'électrons incidents égales (voir texte). En bleu est représentée la distribution de Maxwell-Boltzmann et en rouge la distribution de Fermi-Dirac, toutes les deux pour  $T_e = 0.5 \text{ eV}$  et normalisées à 1 (comme dans l'Éq. (2.25)).

à trois corps sont calculés en utilisant l'équilibre détaillé (voir annexe Sec. C.3)

$$T_{c'c} = \frac{g_c}{g_{c'}} e^{(\chi_{cc'} + \mu)/kT} I_{cc'}, \quad (2.32)$$

une approche alternative (mais équivalente) est l'intégration de la section efficace différentielle de recombinaison à trois corps  $\frac{d\Sigma_{cc'}^{3b}}{d\epsilon'}$  selon

$$T_{c'c} = n_e^2 \int_0^\infty \int_0^\infty \frac{d\Sigma_{cc'}^{3b}}{d\epsilon'} \sqrt{\frac{4\epsilon'\epsilon''}{m_e^2}} f(\epsilon') f(\epsilon'') (1 - F(\epsilon, T_e)) d\epsilon' d\epsilon''. \quad (2.33)$$

Dans cette expression  $\frac{d\Sigma_{cc'}^{3b}}{d\epsilon'}$  est calculée en utilisant (voir annexe Sec. C.2)

$$\frac{g_c}{g_{c'}} \frac{\epsilon}{\epsilon'\epsilon''} \frac{h^3}{16\pi m_e} \frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'} = \frac{d\Sigma_{c'c}^{3b}}{d\epsilon'}. \quad (2.34)$$

Pour calculer le taux "Fermi-Dirac" selon l'Éq. (2.33),  $f(\epsilon)$  est la distribution de Fermi-Dirac. Pour le taux "Maxwell-Boltzmann", l'intégration est faite sur une distribution Maxwellienne avec un facteur de Pauli-Blocking égal à 1.

Nous expliquons dans la suite la raison de la divergence des taux. La section efficace différentielle dépend de l'énergie des deux électrons incidents  $\epsilon'$  et  $\epsilon''$  ainsi que de l'énergie de l'électron diffusé  $\epsilon$ . Pour avoir une idée de son comportement, la section efficace différentielle est tracée Fig. 2.4 pour  $\epsilon' = \epsilon''$  (et donc  $\epsilon = 2\epsilon' + \chi_{cc'}$ ). La section efficace différentielle de recombinaison à trois corps correspondant à la transition sur la partie gauche de la Fig. 2.3 est tracée Fig. 2.4 superposée à la distribution de FD et MB pour  $T_e = 0.5 \text{ eV}$ . Pour les faibles températures la distribution Maxwellienne est de plus en plus piquée proche de  $\epsilon' = 0$  et l'intégrale selon Éq. (2.33) est donc très divergente. Par contre, la distribution de Fermi-Dirac ne change pas trop pour des températures inférieures à l'énergie de Fermi et le nombre d'électrons proche de  $\epsilon' = 0$  est limité. Cela explique les

ordres de grandeur d'écart entre les approches FD et MB. La même comparaison peut être faite pour la désexcitation collisionnelle mais également pour la recombinaison radiative. Par contre, pour l'ionisation collisionnelle et l'excitation collisionnelle, l'intégration sur la distribution ne commence pas à zéro (voir Éqs. (C.18) (C.20)) et la différence entre les deux approches est donc moins importante.

Pour résumer la divergence des taux Maxwelliens à faible température est due au fait que les électrons peuvent se tasser dans les états de faibles énergies. Pour une température tendant vers 0 les électrons tendent tous vers une énergie nulle. Cette situation est bien sûr non physique et le principe de Pauli impose une énergie cinétique minimum telle que les électrons soient rangés dans chaque état accessible jusqu'à l'énergie de Fermi. L'utilisation de la statistique de Fermi-Dirac est donc primordiale dans notre modèle.

### 2.1.7 Conservation des propriétés de l'ETL

En plus de la distribution de Fermi-Dirac, nous avons introduit de manière *ad hoc* les facteurs de Pauli-blocking dans le calcul des taux pour respecter le principe de Pauli lors de chaque échange d'électrons dans la distribution. Nous devons vérifier que les propriétés de l'équilibre détaillé sont maintenues après ce changement de taux. On rappelle que, selon l'équilibre détaillé, à l'ETL le nombre d'événement d'un processus est égal au nombre d'événement du processus inverse.

Prenons l'exemple de l'ionisation collisionnelle et de la recombinaison à trois corps. Le nombre d'événement d'ionisation collisionnelle par unité de volume  $N^{ion}$  depuis la configuration  $c$  vers la configuration  $c'$  produite par des électrons incidents d'énergie  $\epsilon$  dans l'intervalle  $d\epsilon$  et produisant des électrons secondaires d'énergie  $\epsilon'$  dans l'intervalle  $d\epsilon'$  est donné par

$$N^{ion} = n_e N_c \frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'} \sqrt{\frac{2\epsilon}{m_e}} f_{FD}(\epsilon) (1 - F(\epsilon', T_e)) (1 - F(\epsilon'', T_e)) d\epsilon' d\epsilon \quad (2.35)$$

avec  $n_e$  la densité électronique,  $N_c$  la population du niveau  $c$  et  $\frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}$  la section efficace différentielle d'ionisation collisionnelle. Les deux facteurs de Pauli-blocking tiennent compte de l'espace disponible à l'énergie des deux électrons secondaires. De la même manière, le nombre d'événement de recombinaison à trois corps par unité de volume  $N^{3b}$  de  $c'$  vers  $c$  est

$$N^{3b} = N_{c'} n_e^2 \frac{d\Sigma_{c'c}^{3b}}{d\epsilon'} (1 - F(\epsilon, T_e)) \sqrt{\frac{2\epsilon'}{m_e}} f_{FD}(\epsilon') d\epsilon' \sqrt{\frac{2\epsilon''}{m_e}} f_{FD}(\epsilon'') d\epsilon'' \quad (2.36)$$

avec  $\frac{d\Sigma_{c'c}^{3b}}{d\epsilon'}$  la section efficace différentielle de recombinaison à trois corps,  $\epsilon'$  et  $\epsilon''$  l'énergie des deux électrons incidents et  $\epsilon$  l'énergie de l'électron secondaire. À l'ETL les deux quantités selon Éqs. (2.35) et (2.36) sont égales. Avec la conservation de l'énergie  $\epsilon = \epsilon' + \epsilon'' + \chi_{cc'}$ , pour laquelle on a  $d\epsilon = d\epsilon'$  pour une valeur fixe de  $d\epsilon'$ , on obtient

$$\frac{N_c}{N_{c'} n_e} \frac{f_{FD}(\epsilon) (1 - F(\epsilon', T_e)) (1 - F(\epsilon'', T_e))}{f_{FD}(\epsilon') f_{FD}(\epsilon'') (1 - F(\epsilon, T_e))} \frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'} \sqrt{\frac{\epsilon}{\epsilon' \epsilon''}} \sqrt{\frac{m_e}{2}} = \frac{d\Sigma_{c'c}^{3b}}{d\epsilon'}. \quad (2.37)$$

À l'équilibre thermodynamique, le rapport des populations est donné par l'équation Saha-Boltzmann (avec prise en compte de la dégénérescence des électrons libres)

$$\frac{N_c}{N_{c'}} = \frac{g_c}{g_{c'}} e^{(\chi_{cc'} + \mu)/kT}, \quad (2.38)$$

avec  $g_c$  le poids statistique du niveau  $c$ . Après simplification on obtient

$$\frac{g_c}{g_{c'}} \frac{\epsilon}{\epsilon' \epsilon''} \frac{h^3}{16\pi m_e} \frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'} = \frac{d\Sigma_{c'c}^{3b}}{d\epsilon'} \quad (2.39)$$

Cette expression est équivalente à la relation de microreversibilité Éq. (2.34) confirmant ainsi la cohérence de l'introduction des facteurs de Pauli-blocking. Elle est obtenue seulement si on ajoute les facteurs de Pauli-blocking. Cette relation ne dépend pas des paramètres du plasma et ne doit donc pas dépendre de la description statistique du milieu. Dans le cas d'un plasma dégénéré, les relations d'équilibre détaillé sont différentes du cas Maxwellien mais les relations de microreversibilité restent bien les mêmes.

On peut conclure en insistant sur le fait que les taux obtenus en utilisant la statistique de Fermi-Dirac ne correspondent pas à un cas particulier. On a ici généralisé l'expression des taux calculés en régime Maxwellien dans le but de respecter le principe de Pauli.

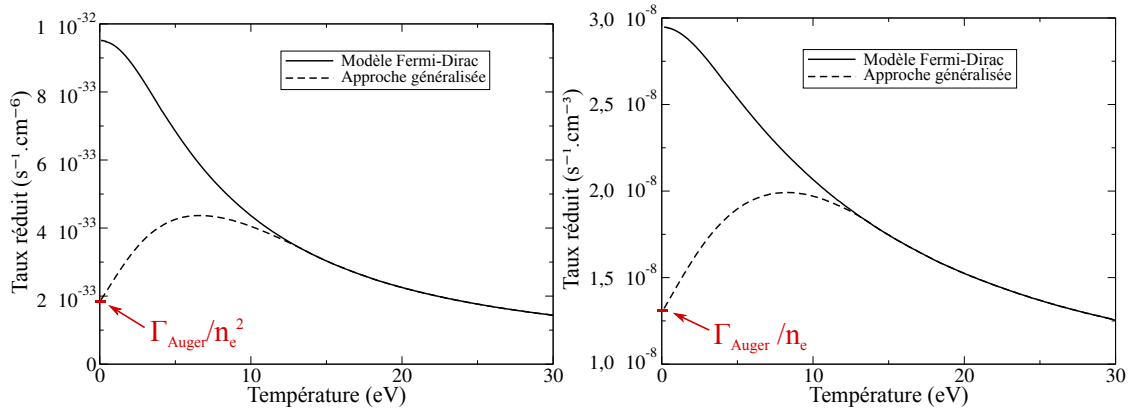
### 2.1.8 Amélioration de l'approche plasma

Revenons sur l'approche des processus généralisés qui permet de faire le lien entre processus de l'état solide et processus plasma. On peut comparer les taux plasma, obtenus avec l'approche décrite au dessus, à température ambiante, aux taux des processus de l'état solide. La table 2.1 compare, pour les transitions  $CVV_{2s}$ ,  $CVV_{2p}$  et  $CCV_{2s}$  Éqs. ((2.7),

	taux Auger solide	taux plasma FD	taux plasma MB
$CCV_{2s}$	$2 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$ [Kobayasi 1970]	$5 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$	$1 \times 10^{17} \text{ s}^{-1}$
$CVV_{2s}$	$3 \times 10^{13} \text{ s}^{-1}$ [Kobayasi 1970]	$1 \times 10^{14} \text{ s}^{-1}$	$4 \times 10^{18} \text{ s}^{-1}$
$CVV_{2p}$	$6 \times 10^{13} \text{ s}^{-1}$ [Kobayasi 1970, Citrin 1977]	$3 \times 10^{14} \text{ s}^{-1}$	$4 \times 10^{18} \text{ s}^{-1}$

**Table 2.1** – Taux Auger correspondant aux trois transitions selon Éq. (2.7), (2.8) et (2.13) trouvés dans la littérature et les taux des processus plasmas correspondants, calculés avec notre modèle pour  $T_e = 0.025 \text{ eV}$ , dans le cas FD et dans le cas MB.

(2.8) et (2.13)), les taux Auger trouvés dans la littérature et les taux correspondants calculés avec notre modèle plasma, à température ambiante dans le cas FD et dans le cas MB. L'utilisation de taux FD permet de se rapprocher fortement des taux solide. On peut toutefois voir que la différence entre l'approche plasma FD et l'approche solide peut être non-négligeable. Cela est dû au fait que, formellement, les taux à l'état solide dépendent de la nature des électrons de valence c'est-à-dire de l'environnement chimique de l'atome [Citrin 1977]. Dans notre modèle cet effet est pris en compte de manière approchée comparé à des approches de physique du solide dédiées (valides seulement pour le solide froid). Donc, pour améliorer notre modèle, nous relient les approches solide et plasma à l'aide d'un formalisme de probabilité [Rosmej 2006]. Dans le cas présent la probabilité est logiquement liée à la dégénérescence des électrons libres. Le taux généralisé  $R_{c'c}^G$  est ainsi



**Figure 2.5** – Comparaison entre le modèle plasma et l’approche généralisée. À gauche, taux FD réduit de recombinaison à trois corps et taux réduit de la recombinaison à trois corps généralisée correspondante en fonction de la température. À droite, taux FD réduit de désexcitation collisionnelle et taux réduit de désexcitation collisionnelle généralisée correspondante en fonction de la température. Les taux Auger depuis la BV utilisés pour calculer les taux généralisés selon Éq. (2.40) sont en rouge.

donné par

$$R_{c'c}^G = (1 - p(T_e))R_{c'c}^S + p(T_e)R_{c'c}^{Pl} \quad (2.40)$$

avec  $R_{c'c}^S$  le taux de référence de l’état solide et  $R_{c'c}^{Pl}$  le taux calculé avec notre approche de plasma dégénéré. La probabilité  $p(T_e)$  est calculée selon

$$p(T_e) = \int_{\mu}^{\infty} f_{FD}(\epsilon) d\epsilon. \quad (2.41)$$

À température nulle  $p(T_e = 0) = 0$  et le taux est égal à  $R_{c'c}^S$ . À haute température  $p(T_e)$  s’approche de 1 et le taux tend vers  $R_{c'c}^{Pl}$ . Cette formulation *ad hoc* du taux généralisé est un peu plus élaborée qu’un simple lien graphique – par exemple avec une droite où une moyenne harmonique (voir par exemple [Chimier 2007]). En effet le formalisme de probabilité permet d’ajouter un critère physique dans ce lien.

La Fig. 2.5 donne deux exemples de taux généralisés pour les transitions  $CVV_{2s}$  et  $CVV_{2p}$ . On représente des taux réduits (divisés soit par la densité, soit par la densité au carré) pour éviter le fait que la densité électronique varie avec la température. On peut clairement voir que le lien via Éq. (2.40) assure la continuité entre l’état solide et l’état de plasma.

Pour conclure on peut dire que la définition de processus généralisés est plus qu’une solution numérique. On a ici identifié un lien entre les processus atomiques de l’état solide et de l’état plasma. Ce lien est une étape importante dans la compréhension de la physique atomique dans l’état de WDM.

## 2.2 Modélisation numérique de l’interaction

Nous présentons dans la suite l’intégration du modèle décrit au dessus dans un code numérique.

### 2.2.1 Modèle adapté pour un chauffage isochores

On se concentre sur la cinétique des populations atomiques pendant l'interaction et les quelques dizaines de femtosecondes suivantes, pour des durées d'impulsions XFEL n'excédant pas 100 fs FWHM. Suivant la discussion Sec. 1.2.2, nous faisons l'hypothèse d'un chauffage isochores. Nous faisons aussi l'hypothèse que les ions restent fixes à température nulle. Nous avons en effet vu que l'ensemble de l'interaction et des processus élémentaires induits a lieu sur des temps bien inférieurs au temps de réaction du solide.

Pour avoir un modèle indépendant, nous complétons le système suivant Éq. (2.1) d'une équation supplémentaire sur l'énergie interne pour fermer le système. Cela nous permet de calculer l'évolution de la température électronique, avec le XFEL comme source d'énergie. Dans ce modèle la structure cristalline (et plus généralement les ions) n'est donc pas prise en compte.

Nous devons également trouver des solutions pour traiter concrètement les effets de densités.

### 2.2.2 Équation pour l'énergie interne

Pour modéliser le chauffage dû au rayonnement, on ajoute au système d'équations suivant Éq. (2.1) l'évolution de l'énergie interne

$$\frac{dE}{dt} = E_{abs} + E_{rad}, \quad (2.42)$$

où  $E_{abs}$  est l'énergie absorbée par photoionisation et photoexcitation par unité de temps et  $E_{rad}$  est l'énergie émise sous forme de radiation par émission spontanée, émission stimulée, recombinaison radiative et Bremsstrahlung, par unité de temps.

Nous négligeons donc ici les pertes par transfert de chaleur vers l'extérieur du système. Pour vérifier cette hypothèse, on remarque que la conductivité thermique dans l'aluminium froid est de l'ordre de  $\kappa_{solide} = 2.3 \text{ J} \cdot (\text{cm} \cdot \text{s} \cdot \text{K})^{-1}$  [Eidmann 2000]. La taille typique du système est de l'ordre du micromètre (taille des taches focales typiques de XFEL après focalisation) et les températures atteintes peuvent aller jusqu'à 150-200 eV [Peyrusse 2012]. Considérons donc un cube de  $1 \mu\text{m}^3$  dont deux faces opposées sont à la température électronique de 0 et 200 eV respectivement. Ce gradient de température correspond à celui rencontré entre le centre et l'extérieur d'une tache focale typique. Pendant une durée de 100 fs, on obtient un transfert d'énergie par conduction de  $3 \cdot 10^8 \text{ eV}$ . L'énergie électronique moyenne contenue dans ce cube, pour une température moyenne de l'ordre de 100 eV est d'environ  $2 \cdot 10^{16} \text{ eV}$  ce qui représente une perte par conduction largement négligeable. La valeur retenue pour la conductivité est valable dans le solide froid mais même en prenant en compte une valeur plus réaliste de la conductivité (voir par exemple [Eidmann 2000]), les pertes restent largement négligeables.

L'énergie interne totale  $E$  est composée de l'énergie des électrons liés et de l'énergie des électrons libres

$$E = E_{th} + E_l, \quad (2.43)$$

avec  $E_{th}$  l'énergie thermique et  $E_l$  l'énergie de liaison.

L'énergie de liaison est la somme de l'énergie de chaque configuration multipliée par sa population

$$E_l = \sum E_c N_c, \quad (2.44)$$



avec  $E_c$  l'énergie de la configuration atomique  $c$ . Les populations sont normalisées selon

$$\sum N_c = n_i \quad (2.45)$$

avec  $n_i$  la densité ionique.

L'énergie thermique est calculée à partir des Éqs. (2.42), (2.43) et (2.44). La température est ensuite déterminée en inversant l'équation

$$E_{th} = n_e \int_0^\infty \epsilon f_{FD}(\epsilon, T_e) d\epsilon, \quad (2.46)$$

avec  $n_e$  la densité électronique.

### 2.2.3 Regroupement en configuration

Plus le numéro atomique de l'élément d'intérêt est important plus le nombre de niveaux devient important. De plus, dans le cas de l'interaction XFEL-matière, les trous en couches internes produisent des configurations atomiques très dégénérées. L'inversion de la matrice des taux  $W$  et le calcul des données structurales, des taux et des sections efficaces peuvent devenir très lourds numériquement. Une solution consiste à regrouper les niveaux dit détaillés en groupes de niveaux en supposant un ETL partiel à l'intérieur de ces groupes, ce qui est valable pour des niveaux proches en énergie par rapport à  $k_B T_e$ . On choisit ici de travailler en *configurations* c'est-à-dire que les niveaux détaillés de même nombres quantiques  $n$  et  $l$  sont groupés dans un même niveau global appelé *configuration*. L'ensemble des données structurales utilisées dans le code est calculé suivant les méthodes décrites dans la Réf. [Peyrusse 1999]. On peut mentionner le fait que ces méthodes permettent de calculer directement les données moyennées en configuration, sans passer par le calcul préalable des données détaillées. Le principe de ces méthodes statistiques est détaillé en annexe Sec. C.5.

### 2.2.4 Traitement de la densité

Nous devons traiter l'abaissement des potentiels d'ionisation et la réduction du nombre d'états liés.

#### Modèle d'abaissement du continu

L'abaissement du continu est traité en abaissant les potentiels d'ionisation d'une certaine quantité appelée abaissement du potentiel d'ionisation (API). Le potentiel d'ionisation dans un plasma dense (ici à densité du solide) est donné par

$$\chi_{PI-S} = \chi_{AI} - \Delta E \quad (2.47)$$

avec  $\chi_{AI}$  le potentiel d'ionisation dans l'atome isolé (sur la Fig. 2.1 on a plutôt représenté  $\chi_{PI-D} \simeq \chi_{AI}$ ) et  $\Delta E$  la valeur de l'API à appliquer. Dans le cas général, l'API est différent pour chaque configuration car l'effet de l'environnement sur un ion dépend de l'écrantage. En particulier différents décalages sont induits sur les niveaux haut et bas d'une transition radiative ce qui induit un décalage des raies d'émission à haute densité. Pourtant ce décalage est négligeable comparé au décalage des deux niveaux en jeu. Cela est dû au

fait que l'API ne varie pas beaucoup entre différentes configurations d'un même état de charge. On fait donc l'hypothèse d'un API qui dépend des paramètres plasmas et de l'état de charge (mais pas de l'état d'excitation).

Il existe deux modèles répandus pour calculer la valeur de l'API en fonction de l'état de charge, de la température et de la densité. Le premier est le modèle d'Ecker et Kroll (EK) [Ecker 1963] et le second est le modèle de Stewart et Pyatt [Stewart 1966]. Ces modèles, détaillés en annexe Sec. C.7, ne sont pas valables pour traiter l'abaissement des plasmas à densité du solide. On ne va donc pas les utiliser dans le code. Dans la sec. 3.2.2 nous comparons notre modèle d'API à ces deux modèles.

Pour que notre modèle d'abaissement tende vers le solide on peut utiliser les potentiels d'ionisation du solide froid  $\chi_S$  qui sont accessibles expérimentalement [CXRO]. En effet, en utilisant les Éqs. (2.24) et (2.47) avec le potentiel de première ionisation  $\chi_S$  on peut en déduire l'API pour le premier état de charge. À partir de  $\chi_S^{2p} = 72.7 \text{ eV}$  et  $\chi_{AI}^{2p} = 118.3 \text{ eV}$  on obtient  $\Delta E(3)^{2p} = 57.2 \text{ eV}$ . À partir de  $\chi_S^{2s} = 118 \text{ eV}$  et  $\chi_{AI}^{2s} = 164.9 \text{ eV}$  on obtient  $\Delta E(3)^{2s} = 58.5 \text{ eV}$ . À partir de  $\chi_S^{1s} = 1559.6 \text{ eV}$  et  $\chi_{AI}^{1s} = 1608.6 \text{ eV}$  on obtient  $\Delta E(3)^{1s} = 60.6 \text{ eV}$ . Comme décrit précédemment on a des valeurs d'API légèrement différentes pour un même état de charge avec des écrantages différents.

Ces valeurs ne sont pas suffisantes et on doit trouver des solutions pour les états de charges suivants. Nous tirons profit du temps très court d'interaction qui induit un chauffage isochore. À haute densité le modèle de la sphère ionique donne un API qui ne dépend que de la densité ionique. Suivant cette hypothèse nous obtenons une valeur constante de l'API qui ne dépend que de l'état de charge. Cette hypothèse est très forte mais permet d'aborder simplement le problème. Sa validité sera discutée dans la partie *résultat*. Nous définissons donc un API en fonction de l'état de charge paramétré selon la droite

$$\Delta E(\xi) = a \times \xi + b, \quad (2.48)$$

avec  $a$  la pente,  $b$  l'ordonnée à l'origine et  $\xi$  l'état de charge. Nous pouvons fixer le paramètre  $b$  en utilisant les valeurs  $\Delta E(3)$  données au dessus. On obtient alors

$$\Delta E(\xi) = a(\xi - 3) + \Delta E(3), \quad (2.49)$$

avec  $a$  variable et  $\Delta E(3)$  fixe. Dans la partie résultat on utilisera soit la valeur  $\Delta E(3)^{2p}$ , soit la valeur  $\Delta E(3)^{1s}$  suivant le cas d'intérêt.

Enfin l'API est utilisé pour décaler les sections efficaces de photoionisation et d'ionisation collisionnelle suivant

$$\sigma_{cc'}^{pl}(\epsilon) = \sigma_{cc'}^{ai}(\epsilon + \Delta E) \quad (2.50)$$

avec  $\sigma^{pl}$  la section efficace dans le plasma dense,  $\sigma^{ai}$  dans l'atome isolé,  $\epsilon$  l'énergie de l'électron ou du photon incident et  $\Delta E$  l'API associé à la transition de  $c$  vers  $c'$ .

## Réduction du nombre d'orbitales liées

Le choix de l'ensemble de configurations liées utilisées dans un calcul HETL est déterminant. On ne veut pas inclure trop de niveaux pour ne pas augmenter inutilement les temps de calcul mais on veut en inclure assez pour reproduire les phénomènes physiques d'intérêt. C'est déjà une question non triviale dans le cas d'un plasma peu dense.

Une réduction nette du nombre de niveaux avec un critère dépendant des paramètres plasma implique un nombre variable de configurations dans les calculs ce qui pose des problèmes de continuité. Cette solution n'est donc pas envisageable par exemple quand on veut suivre la détente d'un plasma (durant laquelle cet effet est très important). Un modèle heuristique très simple dit de "réduction de dégénérescence" a été développé pour pouvoir traiter continuellement la relocalisation des orbitales externes avec une densité variable. Ce modèle s'applique dans le cadre des modèles d'atome moyen hydrogéniques écrantés. Le poids statistique de chaque orbitale est multiplié par un facteur qui varie continuellement avec la densité [Zimmerman 1980]

$$P = \frac{1}{1 + (\alpha \frac{r_n}{R_0})^\beta}. \quad (2.51)$$

Ici  $r_n$  est le rayon de l'orbitale en question dans le modèle de Bohr et  $R_0$  le rayon de la sphère ionique. Les facteurs  $\alpha$  et  $\beta$  doivent être fixés en comparaison avec des résultats expérimentaux. On peut voir que le facteur  $P$  agit sur les poids statistiques avec un critère qui compare le rayon de l'orbitale au rayon de la sphère ionique.

Dans le cadre de notre MCRG utilisé pour l'interaction XFEL-solide, avec des temps d'interaction avec le milieu de l'ordre de quelques dizaines de fs, on va négliger la variation du nombre d'orbitales liées et donc utiliser un nombre fixe de configuration. À partir de la sélection faite pour un plasma dilué, on supprime les niveaux contenant des électrons sur des orbitales externes. Le tableau 2.2 donne le nombre de configurations suivant la couche  $n$  maximum autorisée ( $n_{max}$ ) (on inclus tous les ions de  $Al^{3+}$  à  $Al^{13+}$ ). On distingue le cas où on utilise un rayonnement XFEL dans la gamme XUV du cas d'un rayonnement X pour lequel des trous en couche K sont possibles. On voit bien que le nombre de niveaux

	gamme XUV	gamme X (KeV)
$n_{max} = 5$	338	2568
$n_{max} = 3$	248	1002
$n_{max} = 2$	33	63

**Table 2.2** – Nombre de configurations incuses dans les calculs HETL en fonction de la couche  $n$  maximum et de la gamme du rayonnement utilisé.

est très sensible à la couche  $n_{max}$ .

Un critère sur la couche  $n$  maximum prenant en compte l'élargissement des niveaux proches du continuum dû aux microchamps électriques est donné dans la Réf. [Hummer 1988], pour un ion hydrogénoïde

$$n_{max} = 1.20 \times 10^3 \frac{\xi^{3/5}}{n_e^{2/15}} \quad (2.52)$$

avec  $\xi$  la charge de l'ion. On peut adapter cette équation pour des ions non hydrogénoïdes en remplaçant  $\xi$  par une charge effective. Si on considère une orbitale assez éloignée du

reste des électrons on peut prendre  $Z = Z^* - 1$  avec  $Z^*$  l'état de charge de l'ion. Le tableau 2.3 donne le  $n_{max}$  obtenu pour différents états de charge de l'aluminium. Pour chaque état de charge on prend une densité  $n_e = (Z-1) \times n_i$ . On peut voir que pour l'état de charge

état de charge $\xi$	$Z$	$n_{max}$	$n_{max}$ utilisé
$Al^{3+}$	4	2.18	2
$Al^{4+}$	5	2.4	2
$Al^{5+}$	6	2.6	3
$Al^{6+}$	7	2.8	3
$Al^{7+}$	8	2.96	3
$Al^{8+}$	9	3.12	3
$Al^{9+}$	10	3.27	3
$Al^{10+}$	11	3.42	3
$Al^{11+}$	12	3.55	4
$Al^{12+}$	13	3.69	4

**Table 2.3** – Évolution de  $n_{max}$  calculé avec l'Éq. (2.52) pour différents états de charge  $\xi$ . Pour chaque état de charge est aussi donné le  $Z$  vu par un électron de cette configuration supposé externe (voir texte). Dans la quatrième colonne est donnée l'arrondi de la valeur de  $n_{max}$ .

$Al^{3+}$  le  $n_{max}$  obtenu est proche de la valeur espérée de 2 dans le solide froid. On observe également le fait que les orbitales se relocalisent pour les états de charge plus élevés.

La solution que l'on adopte consiste à supprimer les configurations qui se retrouvent avec une énergie d'ionisation négative après application de l'API. Ce critère s'exprime donc

$$\chi_{plasma} = \chi_{AI} - \Delta E > 0. \quad (2.53)$$

L'API constant pendant les simulations assure un nombre de niveaux constant. Ce critère ne s'applique pas pour les états autoionisants pour lesquels  $\chi_{AI} < 0$ . On ajoute alors le critère  $n_{max}$ , qui s'applique à tous les niveaux, mais qui permet surtout de limiter le nombre d'états autoionisants. Pour les calculs présentés plus loin, nous définissons trois cas pour ce critère. Pour le premier  $n_{max} = 2$ , pour le second cas  $n_{max} = 3$ , pour le troisième cas on définit un  $n_{max}$  différent pour chaque état de charge en prenant l'arrondi de la valeur donnée par le critère de l'Éq. (2.52). Cette valeur est donnée dans le tableau 2.3 dans la quatrième colonne.

Pour conclure, la prise en compte des effets de densité fait intervenir deux paramètres, le paramètre  $a$  de l'API et le paramètre  $n_{max}$  qui donne le nombre quantique maximal considéré. Les paramètres utilisés dans les simulations sont détaillé en annexe Sec. B.1 pour chaque section.

Concernant l'utilisation de l'Éq. (2.40) pour corriger les taux plasma dans le solide froid nous n'utilisons dans le code cette formule que pour les trois transitions du tableau 2.1.

### 2.2.5 Spectres d'émission

Le modèle utilisé pour produire les spectres d'émission est détaillé en annexe D. L'équation utilisée pour calculer l'intensité radiative en sortie de notre cellule 0D est donnée par

$$I_\nu(L) = \frac{j_\nu}{k_\nu}(1 - e^{-k_\nu L}), \quad (2.54)$$

avec  $I_\nu(L)$  l'intensité radiative à la fréquence  $\nu$ , en sortie de la cellule de longueur  $L$ ,  $j_\nu$  l'émissivité et  $k_\nu$  l'opacité. L'émissivité et l'opacité contiennent les contributions lié-lié, libre-libre et libre-lié qui sont détaillées en annexe Secs. D.2 et D.3. La longueur  $L$  utilisée est la longueur typique du volume irradié et cette valeur est fixée indépendamment. On considère une ligne de visée différente de celle du XFEL pour négliger sa contribution sur l'émission.

Cette équation, justifiée en annexe Sec. D.1, contient des hypothèses très fortes. Nous faisons tout d'abord l'hypothèse d'un rayonnement qui ne dépend que de la ligne de visée considérée. On néglige donc ici l'influence non-locale du rayonnement. L'intensité radiative est transportée du point  $x=0$  au point  $x=L$ . Les quantités  $j_\nu$  et  $k_\nu$  calculées localement en un point  $x=a$  ne dépendent que du rayonnement issu de la partie entre  $x=0$  et  $x=a$ . Ensuite on néglige les effets de diffusion. Enfin on considère une longueur  $L$  de plasma homogène.

Les largeurs de raies utilisées sont simplement les largeurs UTA (voir annexe Sec. C.5.1).

### 2.2.6 Résolution numérique

Le système d'équations couplées selon Éq. (2.1) est mis sous forme matricielle

$$\frac{d\mathbf{N}(t)}{dt} = \mathbf{W} \cdot \mathbf{N}(t). \quad (2.55)$$

avec  $\mathbf{N}$  le vecteur des populations de dimension  $N_{lies}$  et  $\mathbf{W}$  la matrice des taux. Cette équation est ensuite discrétisée selon

$$\frac{\mathbf{N}(t + \Delta t) - \mathbf{N}(t)}{\Delta t} = \mathbf{W}(t) \cdot \mathbf{N}(t + \Delta t). \quad (2.56)$$

Ce schéma est donc explicite par rapport à la température car les nouvelles populations sont calculées avec des taux dépendants de la température du pas de temps précédent. On obtient finalement

$$(\mathbb{I} - \mathbf{W}\Delta t) \cdot \mathbf{N}(t + \Delta t) = \mathbf{N}(t) \quad (2.57)$$

avec  $\mathbb{I}$  la matrice unité.

Un pas de temps est donc constitué de quatre étapes :

- calcul des taux avec  $T_e(t)$
- calcul des nouvelles populations  $\mathbf{N}(t + \Delta t)$  avec Éq. (2.57) puis de  $E_i(t + \Delta t)$
- calcul de la nouvelle énergie interne  $E(t + \Delta t)$  avec Éq. (2.42)
- calcul de  $E_{th}(t + \Delta t)$  avec Éq. (2.43) puis  $T_e(t + \Delta t)$  avec Éq. (4.34)

Il est possible de rendre le schéma complètement implicite (cela n'a pas été fait ici). Pour cela il faut ajouter au système une équation pour la température. Dans ce cas on ne peut plus mettre directement le système d'équations sous forme matricielle car des

termes non linéaires, couplant les niveaux liés à la température, apparaissent. Il faut alors linéariser les équations par rapport à la température à l'aide d'une méthode de Newton-Raphson. Le système linéarisé peut ensuite être mis sous forme matricielle pour résolution. On verra que le modèle développé dans la Part. III, qui permet d'aller plus loin que la thermalisation instantanée des électrons libres (et donc plus loin que la description des électrons libres par une température et une densité) est basé sur la même idée mais avec plus d'équations pour décrire les électrons libres.

### 2.2.7 Version 1D sans détente

Pour calculer précisément l'absorption le long de la propagation du rayonnement, on peut modéliser le caractère 1D de l'absorption en accolant plusieurs cellules 0D. L'atténuation du rayonnement en fonction de la profondeur traversée est calculée, dans chaque cellule, avec la loi de Beer-Lambert

$$I(x) = I_0 e^{-\kappa x} \quad (2.58)$$

avec  $x$  la profondeur de la cellule,  $I_0$  l'intensité en entrée de la cellule et  $\kappa$  l'opacité locale du rayonnement qui est calculé par le MCRG local. Numériquement le pas de temps commence par le calcul de l'opacité puis de l'intensité au centre de la première cellule en face avant. Puis on calcule l'évolution des populations dans cette cellule pendant ce pas de temps. On peut ensuite faire de même de proche en proche jusqu'à la dernière cellule. On peut ainsi obtenir la transmission de l'échantillon par comparaison d'intensité entre face avant et face arrière.



# Simulations de la cinétique des populations atomiques et comparaison avec des expériences.

---

## 3.1 Interaction dans la gamme XUV

Dans cette partie nous fixons, dans le cas général, le nombre d'états liés avec  $n_{max} = 2$ . Suivant le tableau 2.3 on sait que cette suppression est drastique. Par contre, dans notre cas, on s'attend à ce que l'absorption ne soit pas très sensible à la présence de la couche M pour les états de charge supérieurs. En effet, dans la gamme XUV ces états de charge ne sont pas atteints par photoionisation mais par ionisation collisionnelle.

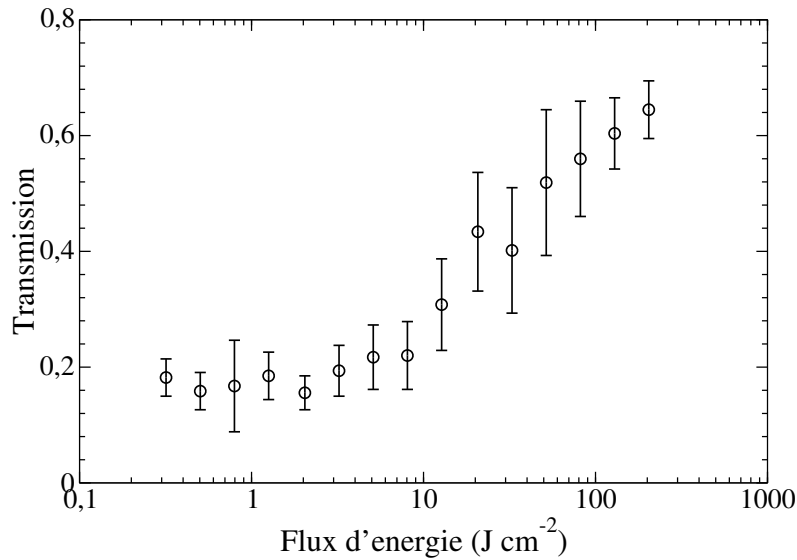
### 3.1.1 Transparence induite

La transparence induite de l'aluminium sous irradiation XUV intense a été pour la première fois démontrée expérimentalement sur l'installation FLASH [Nagler 2009]. Des cibles de 53 nm d'épaisseur ont été irradiées par le XFEL, avec une énergie de photon  $h\nu = 92 \text{ eV}$ , une durée d'impulsion de 15 fs de largeur à mi-hauteur (FWHM), une tache focal de  $1.5 \mu\text{m}$  et pour une énergie sur cible variant entre  $0,3 \text{ J/cm}^2$  et  $200 \text{ J/cm}^2$  ce qui correspond environ à une intensité variant entre  $10^{13} \text{ W/cm}^2$  et  $10^{16} \text{ W/cm}^2$ . L'énergie transmise a été mesurée à l'aide d'une photodiode, donnant ainsi accès à la transmission de l'échantillon en fonction de l'énergie sur cible. Le résultat de l'expérience est reproduit Fig. 3.2. On peut voir que la transmission passe de 0.2 à presque 0.7 quand le flux d'énergie passe de  $0,3 \text{ J/cm}^2$  à  $200 \text{ J/cm}^2$ .

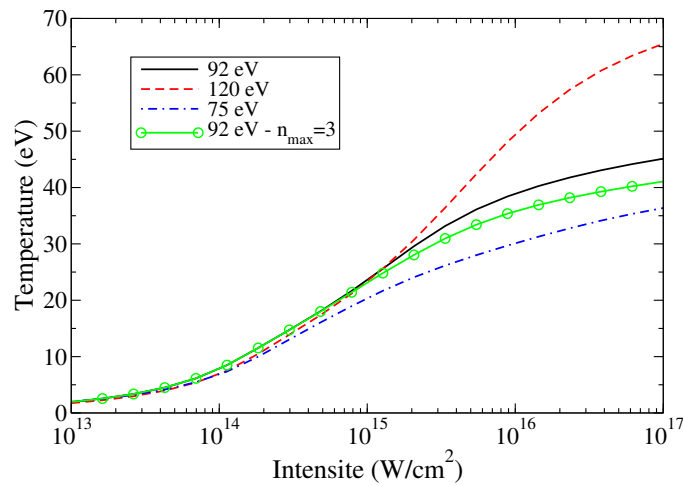
Sur la Fig. 3.2 est représentée une simulation de l'évolution de la température finale (à  $t=100 \text{ fs}$ ) en fonction de l'intensité du XFEL pour trois énergies de photons XFEL différentes 75 eV, 92 eV et 120 eV. Chaque point est donc le résultat d'une simulation indépendante. On observe bien ici la saturation de l'absorption avec, dans le cas à 92 eV, une augmentation d'un facteur 10 en température pour une augmentation de quatre ordres de grandeurs en intensité. On peut voir que la saturation est également présente pour les cas à 75 eV et 120 eV. En vert avec des cercles est aussi représentée l'évolution de la température en fonction de l'intensité, pour une énergie de photon de 92 eV mais cette fois avec la couche M incluse dans la sélection de niveaux. On peut voir que les températures obtenues avec ou sans couche M sont très proches.

Pour expliquer cet effet de transparence induite on examine l'évolution des populations atomiques. On peut se contenter pour cela d'étudier l'évolution de la population des deux





**Figure 3.1** – Transmission expérimentale en fonction du flux d'énergie pour une énergie de photon de 92 eV, une épaisseur de cible de 53 nm et une durée d'impulsion de 15 fs [Nagler 2009].

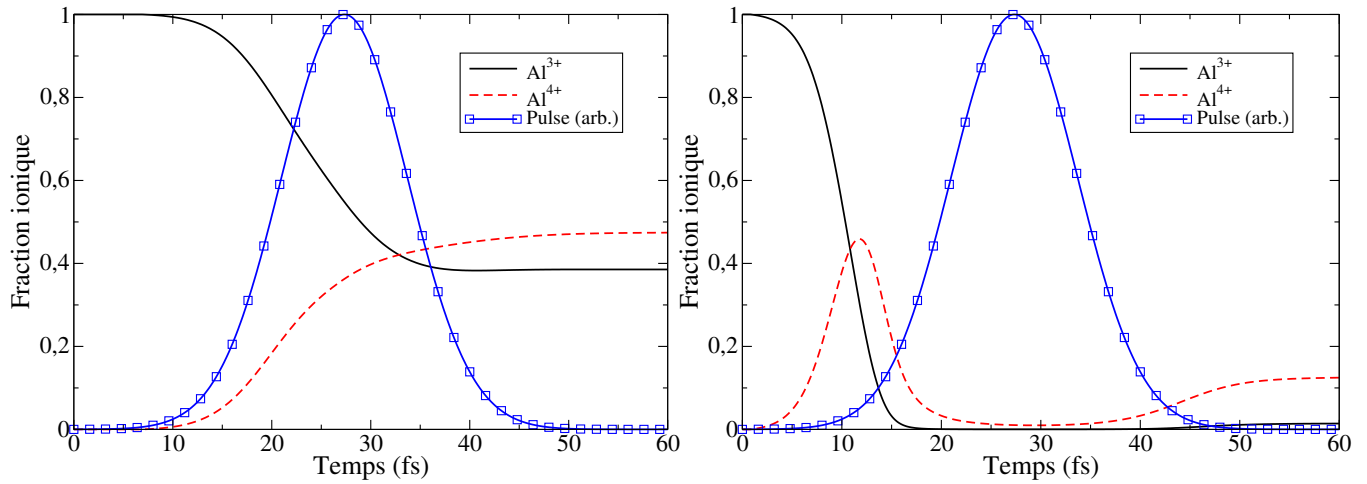


**Figure 3.2** – Évolution de la température finale (à  $t=100$  fs) en fonction de l'intensité sur cible pour une durée d'impulsion de 15 fs et pour différentes énergies de photons. En noir et trait plein l'énergie des photons est égale à 92 eV, en tiret rouge l'énergie est de 120 eV et en bleu et trait mixte l'énergie est de 75 eV. En vert avec des cercles les simulations sont faites pour une énergie de photon de 92 eV avec  $n_{max} = 3$  (couche M incluse) (voir texte). Chaque point de chaque courbe est le résultat d'une simulation indépendante.

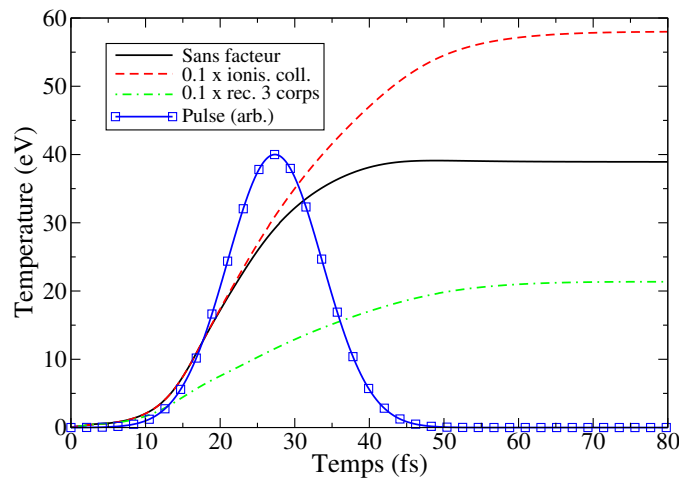
premiers états de charge  $Al^{3+}$  et  $Al^{4+}$  qui sont les seuls accessibles par les photons de 92 eV. En effet le premier seuil d'ionisation est situé vers 60 eV (voir Sec. 2.2.4) et le second seuil vers 81 eV (voir Sec. B.1).

La Fig. 3.3 montre l'évolution de la population des ions  $Al^{3+}$  et  $Al^{4+}$  pour une intensité de  $10^{15} \text{ W/cm}^2$  (gauche) et pour une intensité de  $10^{17} \text{ W/cm}^2$  (droite). On voit que pour le cas à faible intensité, il reste une quantité non négligeable d'ion  $Al^{3+}$  et  $Al^{4+}$  pendant toute la durée de l'impulsion. Par contre, pour le cas à haute intensité, la population de ces deux ions est très faible pendant la plus grande partie de l'impulsion. L'absorption étant directement proportionnelle à la population du niveau de départ de la photoionisation, on voit bien ici l'effet de transparence induite sur les populations. On s'intéresse maintenant aux processus responsables de cet effet.

La Fig. 3.4 montre l'influence des processus d'ionisation collisionnelle et de recombinaison



**Figure 3.3** – Influence de l'intensité du XFEL sur l'évolution temporelle des populations des ions  $Al^{3+}$  et  $Al^{4+}$  pour  $h\nu_{XFEL} = 92$  eV, une durée d'impulsion de 15 fs et pour une intensité de  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> (gauche) et  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> (droite).



**Figure 3.4** – Influence de l'ionisation collisionnelle et de la recombinaison à trois corps sur le chauffage pour une intensité de  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>, une durée d'impulsion de 15 fs et une énergie de photon de 92 eV. La courbe noire montre l'évolution de la température en fonction du temps. La courbe verte montre l'évolution de la température quand on multiplie les taux de recombinaison à trois corps par un facteur 0.1. La courbe rouge montre l'évolution de la température quand on multiplie le taux d'ionisation collisionnelle par un facteur 0.1. En bleu avec des carrés est superposé la forme de l'impulsion.

à trois corps sur l'absorption. On multiplie pour cela les taux de ces deux processus par un facteur pour voir l'effet correspondant sur l'évolution de la température. Le système prend clairement un chemin – une évolution de populations atomiques – non-physique quand on modifie un taux mais cela donne une idée de l'importance du processus en question. On peut voir que réduire les taux de recombinaison à trois corps induit une température plus faible. On rappelle ici que la recombinaison à trois corps inclut l'effet Auger solide à température faible comme décrit Sec. 2.1.3. La recombinaison à trois corps peut recombiner un électron, par exemple suivant  $1s^2 2s^2 2p^5 + 2e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 + e^-$ , après chaque ionisation de la couche 2p. Sans processus de recombinaison le XFEL ne peut arracher que deux électrons par atome, ce qui limite fortement l'absorption d'énergie. Par contre, on peut voir que la recombinaison à trois corps permet de recombiner de nouvelles "cibles". Le solide peut ainsi absorber beaucoup plus de deux photons par atomes. La réduction

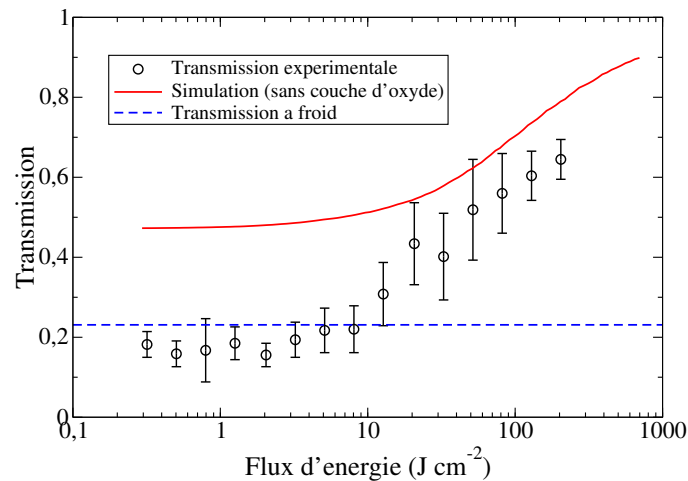
des taux de recombinaison à trois corps réduit donc cet apport de nouvelles cibles et donc l'absorption.

Au contraire l'ionisation collisionnelle, par exemple suivant  $1s^22s^22p^6 + e^- \rightarrow 1s^22s^22p^5 + 2e^-$  a l'effet inverse et supprime des cibles potentielles pour les photons XFEL. Quand on réduit les taux d'ionisation collisionnelle on augmente donc l'absorption.

Dans ces conditions expérimentales l'absorption est donc principalement le résultat de la compétition entre la photoionisation, la recombinaison à trois corps et l'ionisation collisionnelle. Quand on augmente l'intensité XFEL, le taux de photoionisation augmente (voir Éq. (C.21)) et progressivement la photoionisation devient plus efficace que la recombinaison à trois corps. Dans ce cas on passe dans un régime où le nombre de photoionisation est limité par la recombinaison à trois corps. C'est ce qu'on observe Fig. 3.3 à haute intensité. Dès qu'un électron est recombiné il est immédiatement photoionisé et l'ionisation moyenne est donc égale à 4.

Le rôle de l'effet Auger dans la saturation de l'absorption dans la gamme XUV a été précédemment identifié [Galtier 2011] par une étude spectroscopique. Ce rôle a été généralisé ici par l'identification du lien entre recombinaison à trois corps et effet Auger solide.

Utilisons maintenant la version 1D du code pour calculer la variation de la transmission en fonction de l'intensité. On prend en compte la répartition en intensité de la tache



**Figure 3.5** – En rouge et trait plein est représentée la transmission en fonction de l'intensité XFEL obtenue avec la version 1D du code pour une énergie de photons de 92 eV, une durée d'impulsion de 15 fs FWHM. La transmission expérimentale est représentée par des points avec leurs barres d'erreur. En bleu et tiret est représentée la transmission à froid issue de la Réf. [CXRO].

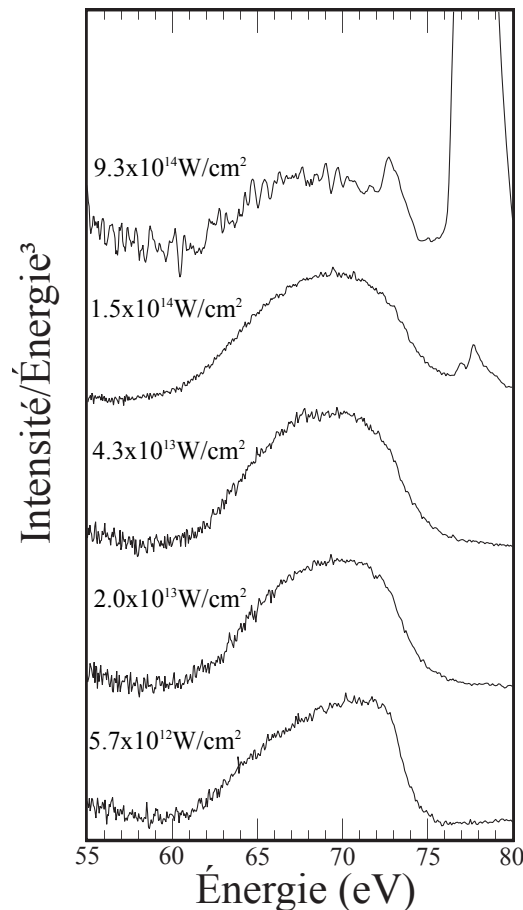
focale en faisant une moyenne pondérée de la contribution de plusieurs simulations. Le résultat est donné sur la Fig. 3.5, superposé avec les valeurs expérimentales et, pour comparaison, avec une transmission à froid expérimentale [CXRO]. On peut voir que la tendance générale de saturation de l'absorption est bien reproduite. Également la gamme d'intensité pour laquelle apparaît la saturation est bien reproduite. Par contre on peut voir un décalage général de la courbe de transmission vers le haut. Pour expliquer ce décalage, on peut mentionner le fait que la présence d'une couche d'oxyde de chaque côté de la cible expérimentale ne peut être évitée. Cette couche a été estimée à 10 nm de chaque côté de la cible [Nagler 2009]. Elle peut induire un décalage mais aussi une déformation de la courbe de transmission. À basse intensité on obtient par simulation une transmis-

sion de 47 % ce qui donne une longueur d'atténuation de 70.2 nm. Pour une épaisseur de 33 nm ( $53 \text{ nm} - 2 \times 10 \text{ nm}$ ) on obtient donc une transmission de 62.5 %. La transmission à froid d'une couche d'alumine de 20 nm est de 48.4 % [CXRO]. On obtient donc une transmission corrigée qui est égale à 30 % ce qui est beaucoup plus proche de la valeur expérimentale.

On peut finalement remarquer que la saturation, qui est le résultat d'une compétition entre processus élémentaires au niveau microscopique, explique la transparence observée au niveau macroscopique.

### 3.1.2 Émission de fluorescence

Une autre expérience d'interaction avec l'aluminium réalisée à l'installation FLASH, portant sur la fluorescence de la bande de valence, pour différentes intensités, une durée d'impulsion de 35 fs, et une énergie de photons de 92 eV, a été rapportée [Vinko 2010]. Les spectres obtenus sont reproduits sur la Fig. 3.6. L'émission observée pour les plus

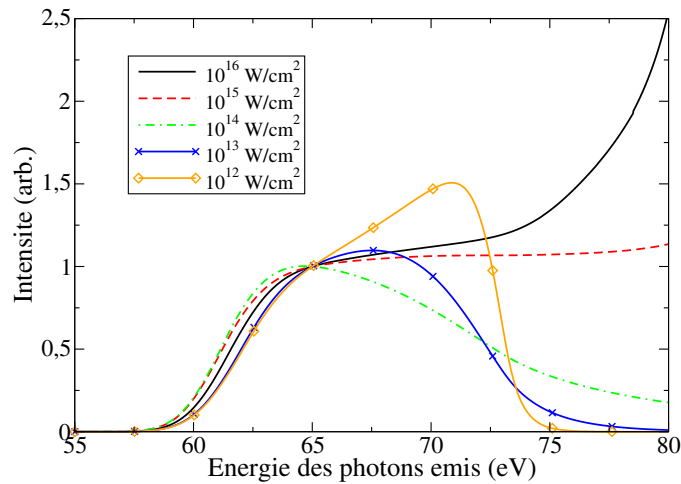


**Figure 3.6** – Spectres expérimentaux de fluorescence de la bande de valence issus de la Réf. [Vinko 2010], obtenus pour des intensités variables reportées sur la figure, une énergie de photons de 92 eV et une durée d'impulsion de 35 fs FWHM.

faibles intensités n'est pas de l'émission de raie mais de l'émission de fluorescence de la bande de valence. Suivant la discussion précédente on sait qu'à cette énergie de photon, et à faible intensité (inférieure à  $10^{14} \text{ W/cm}^2$ ), les ions majoritaires sont les ions  $Al^{3+}$  et  $Al^{4+}$ . L'émission que l'on observe sur la Fig. 3.6 correspond à la fluorescence selon  $1s^2 2s^2 2p^5 (BV)^X \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 (BV)^{X-1} + h\nu$ . Dans le cadre de notre modèle généralisé ce processus devient de la recombinaison radiative selon  $1s^2 2s^2 2p^5 + e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 + h\nu$

(voir Sec. 2.1.3). On peut observer de l'émission de raie sur le spectre obtenu pour  $I = 1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  pour une énergie comprise entre 75 eV et 80 eV. Cette émission est produite pendant la détente du plasma. Pour une intensité de  $I = 9.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  l'émission produite pendant la détente est très présente et ne sera pas discutée ici. La forme de l'émission observée est directement liée à la forme et au remplissage de la bande valence. À mesure que l'intensité augmente la forme change en même temps que la température atteinte augmente.

Sur la Fig. 3.7 est représenté le spectre simulé de recombinaison radiative, obtenu pour des intensités variables, une énergie de photons de 92 eV et une durée d'impulsion de 20 fs. L'émission est normalisée à 1 pour une énergie de photons émis égale à 65 eV pour

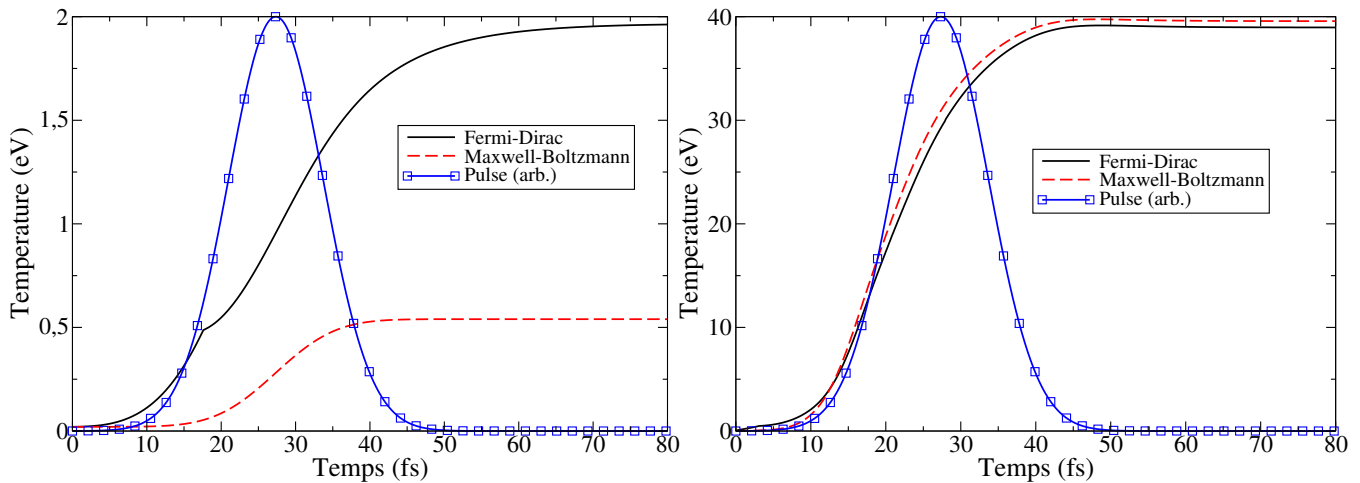


**Figure 3.7** – Spectres simulés, intégrés en temps, obtenus pour différentes intensités XFEL, une énergie de photons de 92 eV et une durée d'impulsion de 20 fs FWHM. Les intensités sont normalisés pour avoir une émission égale à 1 pour une énergie de photons émis égale à 65 eV.

comparaison. Le but ici est de comparer qualitativement la variation de l'émission avec l'intensité. On observe bien la même tendance que sur les spectres expérimentaux. Pour les intensités supérieures à  $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$  on voit que l'émission augmente fortement à partir entre 75 et 80 eV. Cette émission est due à la recombinaison radiative de l'ion  $Al^{5+}$  vers l'ion  $Al^{4+}$ . Cela peut expliquer en partie l'émission observée dans cette zone sur les spectres expérimentaux même si l'émission de cette zone est produite également en partie pendant la détente. Les spectres simulés sont obtenus à l'aide des méthodes détaillés en annexe D. Notamment, les bords de recombinaison sont pris en compte de manière *ad hoc* avec une largeur effective comme détaillé Sec. D.4.

### 3.1.3 Influence de la statistique de FD sur le chauffage

Nous regardons maintenant l'influence de la prise en compte de la statistique de FD sur le chauffage. Sur la Fig. 3.8 est représentée l'évolution temporelle de la température calculée avec notre modèle comparée au cas où l'on utilise la statistique de Maxwell-Boltzmann, pour une énergie de photons de 92 eV et une durée d'impulsion de 15 fs FWHM. À gauche l'intensité vaut  $10^{13} \text{ W/cm}^2$  et à droite  $10^{16} \text{ W/cm}^2$ . À faible intensité la différence entre les deux approches est très importante avec un facteur 4 sur la température à la fin de l'impulsion. À haute intensité, les deux approches sont quasiment équivalentes. Cela est dû au fait que dans ce cas, le chauffage est plus rapide et plus important qu'à

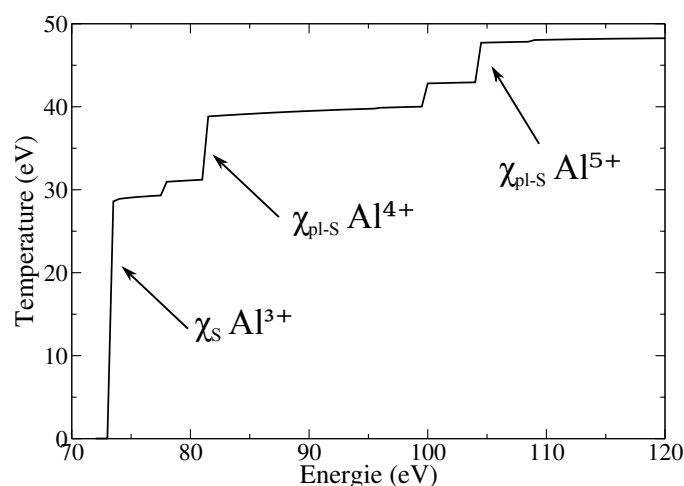


**Figure 3.8** – L'évolution de la température pendant l'impulsion est comparée dans le cas où elle est calculée en utilisant notre modèle, noté "Fermi-Dirac", au cas utilisant des taux classiques calculés avec la statistique de Maxwell-Boltzmann, noté "Maxwell-Boltzmann" (voir texte). L'énergie des photons XFEL est de 92 eV, la durée d'impulsion de 15 fs FWHM et l'intensité est de  $10^{13} \text{ W/cm}^2$  (gauche) et  $10^{16} \text{ W/cm}^2$  (droite).

faible intensité. La température est donc grande devant la température de Fermi pendant l'ensemble de l'impulsion. À faible intensité on reste durant toute l'impulsion dans un domaine de température où les effets de dégénérescence sont importants.

### 3.1.4 Variation du chauffage avec l'énergie des photons

Nous regardons ici l'influence de l'énergie des photons sur le chauffage. Nous balayons une gamme d'énergie qui commence au premier seuil d'ionisation de la couche 2p dans le solide froid  $\chi_s^{2p} = 72.8 \text{ eV}$  et qui se termine à 120 eV. Sur la Fig. 3.9 est donnée la température finale (à  $t=100 \text{ fs}$ ) atteinte en fonction de l'énergie des photons XFEL. Chaque point est le résultat d'une simulation indépendante. L'intensité est de  $10^{16} \text{ W/cm}^2$  et la durée d'impulsion de 15 fs FWHM. On voit apparaître plusieurs seuils sur la figure,



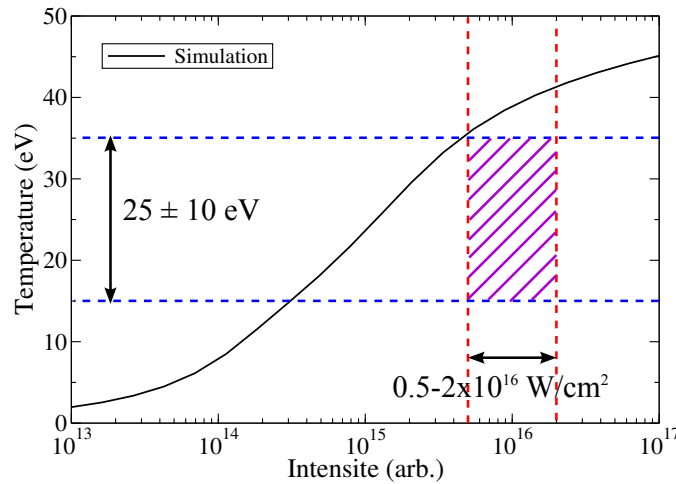
**Figure 3.9** – Variation du chauffage avec l'énergie des photons XFEL. La figure donne la température finale (à  $t=100 \text{ fs}$ ) obtenue en fonction de l'énergie de photons XFEL pour  $I = 10^{16} \text{ W/cm}^2$  et une durée d'impulsion de 15 fs FWHM. Chaque point de la courbe est une simulation indépendante.

dont les principaux sont notés sur la figure suivant la notation de la Fig. 2.1. Le premier

est le seuil  $\chi_S^{2p}$  puis apparaissent les seuils de seconde et troisième ionisation de la couche 2p pour un ion dans son état fondamental (le seuil de l'ion  $Al^{4+}$  correspond à l'ionisation  $1s^2 2s^2 2p^5 + h\nu \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^4 + e^-$ ). Ces seuils sont notés  $\chi_{pl-S}$  car ils apparaissent à partir d'une certaine ionisation et donc une température non nulle. Ce n'est pas le cas pour le premier seuil qui n'est pas accessible avant 72.8 eV car aucun mécanisme inclus dans le modèle ne permet de chauffer sous ce seuil pour produire un décalage vers  $\chi_{pl-S}^{2p}$ <sup>1</sup>. Les seuils intermédiaires sont des seuils correspondants à l'ionisation d'états excités.

### 3.1.5 Comparaison avec l'expérience au niveau de la température électronique

Nous faisons ici une comparaison de la température obtenue avec notre code à des résultats obtenus par une étude spectroscopique à partir de spectres expérimentaux [Galtier 2011]. L'expérience associée à ces résultats expérimentaux a été faite avec une énergie de photon de 92 eV, une durée d'impulsion de 15 fs et une intensité sur cible dans la gamme  $0.5-2 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$  (incertitude expérimentale). L'étude spectroscopique a fournie, à partir des mêmes spectres (voir Réf. [Galtier 2011, Petitdemange 2013]), une gamme de température  $T_e = 25 \pm 10 \text{ eV}$  et une densité électronique entre  $0.5 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$  et  $5 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ , c'est-à-dire au début de la détente. La gamme de température est représentée sur la Fig. 3.10 par une zone hachurée. Sur cette figure est aussi représentée l'évolution de la



**Figure 3.10** – Comparaison de la température finale obtenue par simulation à des résultats obtenus par une étude spectroscopique à partir de spectres expérimentaux [Galtier 2011]. Les simulations sont faites dans les mêmes conditions que l'expérience de référence, c'est-à-dire avec une durée d'impulsion de 15 fs et une énergie de photons de 92 eV. La courbe noire correspond aux résultats de simulation, chaque point de cette courbe correspondant à une simulation indépendante. La température obtenue par l'étude spectroscopique, avec son incertitude, est représentée par la zone hachurée. La largeur de cette zone hachurée est due à l'incertitude expérimentale sur l'intensité du XFEL. La densité électronique associée à cette gamme de température est comprise entre  $0.5 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$  et  $5 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ , c'est-à-dire pendant la détente alors que les températures simulées sont obtenues avant la détente.

température finale (à  $t=100 \text{ fs}$ ) en fonction de l'intensité XFEL, pour une énergie de photons de 92 eV et une durée d'impulsion de 15 fs. On peut voir que la température obtenue par simulation, pour la gamme d'intensité correspondant à l'expérience, est supérieure d'un facteur 1.5-2 environ. Nous obtenons donc ici une température assez proche

1. le bremsstrahlung inverse, qui n'est pas inclus ici, peut jouer un rôle sous le seuil

de celle déterminée expérimentalement (mais en dehors des barres d'erreur). Néanmoins, si on prend en compte le fait que la gamme de température expérimentale a été obtenue pendant la détente, la température obtenue par simulation doit être diminuée.

On a montré ici que les températures obtenues avec notre MCRG sont cohérentes (au moins du même ordre de grandeur) avec des mesures expérimentales indépendantes.

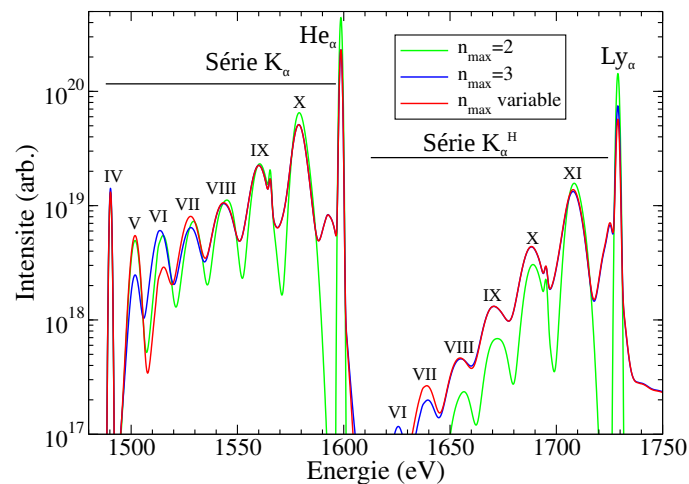
## 3.2 Interaction dans la gamme X (keV)

Nous nous intéressons ici à l'interaction XFEL-aluminium solide dans des conditions expérimentales correspondant à celles de l'installation LCLS. L'énergie des photons XFEL considérée est comprise dans une gamme entre 1.5 keV (seuil de première ionization de la couche K dans l'aluminium solide) et 3 keV. Ces conditions permettent potentiellement (surtout pour les fortes énergies de photons) d'atteindre, directement par photoionisation, des états de charges beaucoup plus élevés que dans la gamme XUV. Dans le cas général, l'API joue donc un rôle important dans le calcul de l'absorption pour l'ensemble des états de charges. Une partie des spectres simulés présentés ici est publiée dans la Réf. [Rosmej 2015].

### 3.2.1 Spectre de fluorescence de la couche K

La longueur de réabsorption  $L$  utilisée ici pour les spectres est de 200 nm (voir Sec. 2.2.5). Cette longueur est celle utilisée dans la Sec. 3.2.2 et est issue de la Réf. [Ciricosta 2012].

Sur la Fig. 3.11 est représenté le spectre obtenu, dans les trois cas  $n_{max} = 2$ ,  $n_{max} = 3$  et  $n_{max}$  variable, pour une énergie de photon  $h\nu_{XFEL} = 3000 \text{ eV}$ , une intensité  $I = 5 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  et une durée d'impulsion de 80 fs. Le spectre est composé de deux parties. Entre 1480 eV



**Figure 3.11** – Influence de la sélection de configurations atomiques sur le spectre d'émission intégré en temps, obtenu pour  $I = 5 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ , une durée d'impulsion de 80 fs, une énergie de photons de 3 keV et une largeur spectrale du XFEL de 0,2 %. Les critères pour la sélection de configurations sont  $n_{max} = 2$ ,  $n_{max} = 3$  et  $n_{max}$  variable (voir texte).

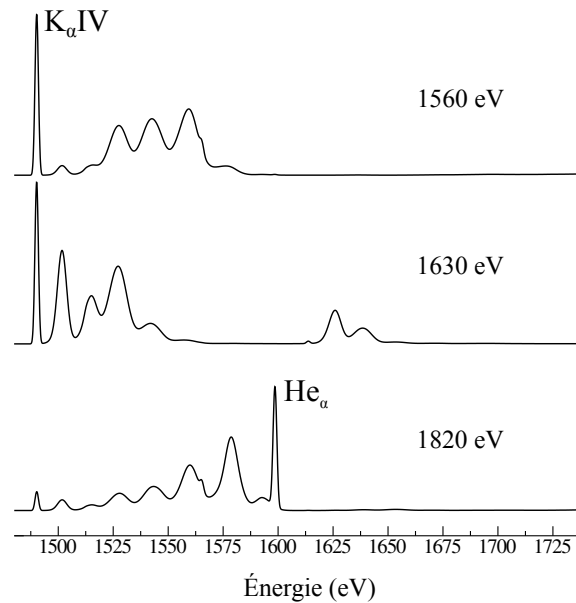
et 1610 eV se situe la série des raies  $K_\alpha$  qui se termine avec la raie  $He_\alpha$  située à 1600 eV. Chaque raie est désignée sur la figure par son état de charge en chiffre romain. À partir de 1610 eV commence la série des raies de la forme  $K^0L^X \rightarrow K^1L^{X-1} + h\nu$  pour différents états de charge. Cette série se termine par la raie  $Ly_\alpha$ . Les ions de type  $K^0L^X$  avec une



couche K complètement vide sont appelés *ions creux*. Pour plus de détails sur les ions creux voir la Réf. [Rosmej 2015]. On désigne cette deuxième série par le terme  $K_\alpha^C$  (avec  $C$  pour *creux*).

On peut voir sur la Fig. 3.11 que les spectres sont assez différents suivant l'ensemble de niveaux inclus dans le MCRG. La présence de couche M induit notamment un élargissement des raies  $K_\alpha$  et  $K_\alpha^C$ . Cet élargissement est dû à l'écrantage des électrons de couche M. Par exemple la raie  $K_\alpha$  selon  $1s^1 2s^2 2p^2 \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^1 + h\nu$  est située à 1546.9 eV et la raie  $1s^1 2s^2 2p^2 3d^2 \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^1 3d^2 + h\nu$  est située à 1545.8 eV. L'écrantage étant faible, la raie correspondant à la transition écrantée est assez proche de la raie non écrantée pour que la somme des deux forme une seule raie élargie. L'état de charge indiqué sur la figure pour chaque raie correspond donc à l'état de charge de la raie principale non écrantée. Pour les raies  $He_\alpha$  et  $Ly_\alpha$  les raies écrantées sont assez décalées pour former des raies isolées de la raie principale. On observe ainsi la raie selon  $2p3s \rightarrow 1s3s + h\nu$  à 1725.3 eV et les raies de type  $K^1 L^1 M^2 \rightarrow K^2 M^2 + h\nu$  entre 1590 eV et 1595 eV.

Dans la suite les simulations sont faites avec le critère  $n_{max}$  variable. On regarde maintenant comment varie le spectre en fonction des paramètres du XFEL. Sur la Fig. 3.12 sont représentés des spectres intégrés en temps obtenus pour  $I = 10^{17} \text{ W/cm}^2$ , une durée d'impulsion de 80 fs, une largeur spectrale du XFEL de 0,2 % et pour différentes énergies de photons XFEL. On peut voir que les spectres varient fortement avec l'énergie de photons



**Figure 3.12** – Influence de l'énergie des photons XFEL sur le spectre d'émission intégré en temps pour une intensité  $I = 10^{17} \text{ W/cm}^2$ , une durée d'impulsion de 80 fs FWHM et une largeur spectrale du XFEL de 0,2 %. Un critère  $n_{max}$  variable est utilisé. Les énergies de photons XFEL sont données sur la figure pour chaque spectre. L'échelle d'intensité est linéaire et différente pour chaque spectre.

XFEL utilisés. Cela est dû au fait qu'en changeant l'énergie on sonde en quelque sorte la structure atomique. Pour une énergie de photon égale à 1560 eV on se situe juste au niveau du seuil de la couche K de l'aluminium solide (seuil d'ionisation de l'ion  $Al^{3+}$ ). À cette énergie seule la première ionisation de la couche K est possible. En effet l'énergie nécessaire pour faire un trou en couche K à partir de l'ion  $Al^{4+}$  est supérieure à 1560 eV car l'écrantage est différent. Cela est confirmé par le fait que sur le spectre la  $K_\alpha$  IV est

beaucoup plus intense que la  $K_\alpha$  V. On remarque également que les raies  $K_\alpha$  VII, VIII et IX sont très intenses alors que l'énergie nécessaire pour les produire par photoionisation est encore plus grande. Cette émission est proche de la résonance, c'est-à-dire pour une énergie de photons XFEL égale à l'énergie des photons émis. Cela nous indique que ces raies sont produites par photoexcitation selon



La prise en compte du recouvrement entre la largeur spectrale du XFEL et la largeur de raie dans l'Éq. (C.30) permet ici de produire un pompage de partiel des raies  $K_\alpha$  VIII et IX. La raie  $K_\alpha$  VII peut quant à elle être produite via ionisation – collisionnelle ou photoionisation – des électrons de couche L et M à partir de l'état haut de la raie  $K_\alpha$  VIII ou des raies écrantée en couche M qui sont proches.

Pour une énergie de photon égale à 1630 eV on est plus loin du seuil et donc plusieurs états de charge peuvent être ionisés en couche K. Ici on produit des  $K_\alpha$  jusqu'à la VIII. À la résonance on produit cette fois des raies  $K_\alpha^C$  via photoexcitation selon



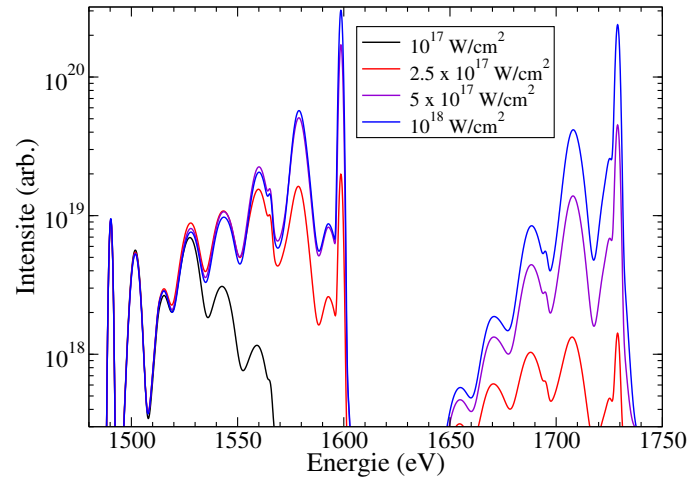
Pour une énergie de photon égale à 1820 eV on a maintenant accès à toutes les raies de la série  $K_\alpha$ . Par contre dans ce cas la résonance est en dehors de la gamme d'énergie de la figure.

La variation de l'énergie de photon XFEL permet en quelques sortes d'illuminer progressivement différentes parties du spectre. L'apparition progressive des raies nous apporte des informations sur l'effet de la densité sur la structure atomique. En effet cette apparition dépend des énergies d'ionisation et donc de l'API. Il est pourtant difficile de faire des déductions claires ici dû au fait que l'apparition des raies, avec une énergie des photons XFEL qui varie, est progressive. On verra que ce problème va être résolu dans la Sec. 3.2.2 à l'aide de spectres 2D.

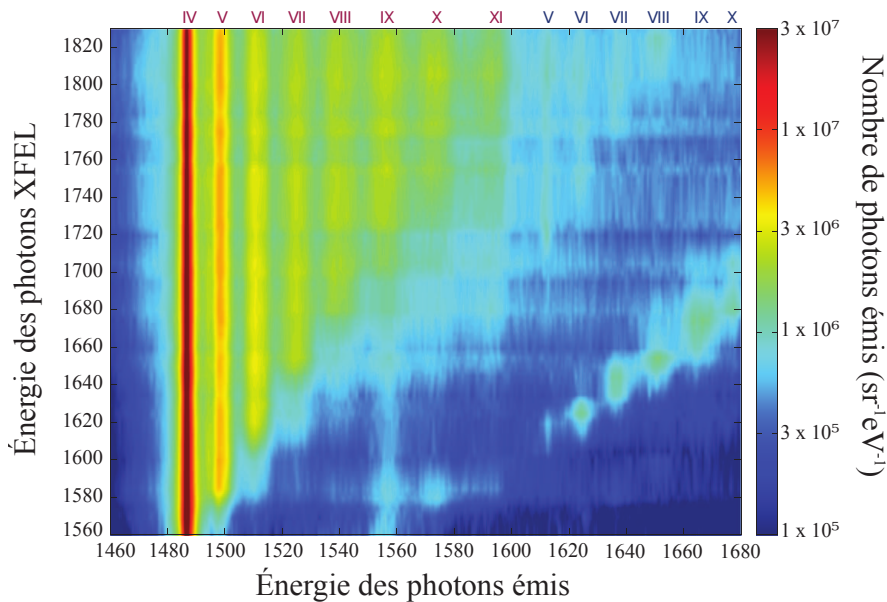
On regarde maintenant la variation de l'émission avec l'intensité du XFEL. Sur la Fig. 3.13 sont représentés des spectres intégrés en temps obtenus pour différentes intensités, une énergie de photons XFEL de 3000 eV, une durée d'impulsion de 80 fs et une largeur spectrale du XFEL de 0,2 %. On peut voir que l'émission change fortement avec l'intensité. La variation la plus importante correspond au passage de  $I = 10^{17} \text{ W/cm}^2$  à  $I = 2.5 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ . Pour une augmentation de l'intensité d'un facteur 2.5 l'intensité de toute une partie du spectre augmente de plusieurs ordres de grandeur. Les spectres expérimentaux étudiés dans la suite sont une somme de plusieurs contributions, correspondant à différentes intensités le long du rayon de la tache focale. Cela correspond à une somme de spectres obtenus pour différentes intensités sur cible. Cet effet doit être pris en compte pour les comparaisons avec l'expérience.

### 3.2.2 Méthode spectroscopique utilisant des spectres 2D

On présente ici une nouvelle méthode spectroscopique qui exploite les propriétés de l'installation LCLS et plus particulièrement le fait que le faisceau est accordable en longueur d'onde [Deschaud 2016]. L'expérience de référence est présentée dans la Réf. [Vinko 2012].



**Figure 3.13** – Variation du spectre d’émission en fonction de l’intensité sur cible, pour une énergie de photons XFEL de 3000 eV, une durée d’impulsion de 80 fs et une largeur spectrale du XFEL de 0,2 %. Un critère  $n_{max}$  variable est utilisé.



**Figure 3.14** – Spectre 2D expérimental obtenu sur l’installation LCLS avec une intensité de  $1.1 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ , une durée d’impulsion de 80 fs et une tache focale de  $9.1 \mu\text{m}^2$ . La figure est prise de la Réf. [Vinko 2012].

Une cible d’aluminium de  $1 \mu\text{m}$  a été irradiée par le faisceau X à une intensité de  $1.1 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  avec une durée d’impulsion de 80 fs et une tache focale de  $9.1 \mu\text{m}^2$ . Plusieurs tirs ont été effectués pour une énergie de photons variant de 1560 eV à 1830 eV. On est donc dans les mêmes conditions que pour la Fig. 3.12. Durant cette expérience, pour chaque tir a été recueilli le spectre de fluorescence de la couche K pour des énergies de photons émis entre 1460 eV et 1680 eV. Cet ensemble a été regroupé dans un même graphe pour obtenir un spectre 2D. Le spectre 2D obtenu pendant l’expérience est reproduit sur la Fig. 3.14.

Sur le spectre chaque ligne horizontale est donc un spectre de fluorescence intégré en temps correspondant à un tir effectué à l’énergie de photon donnée en ordonnée. Au niveau spectral, on reconnaît les deux séries  $K_\alpha$  et  $K_\alpha^C$ , qui sont identifiées sur la Fig. 3.11, avec leur état de charge indiqué en chiffres romains. On retrouve également l’émission

produite par photoexcitation à la résonance autour de la ligne  $h\nu_{XFEL} = h\nu$ . L'apparition progressive des raies  $K_\alpha$  – qui n'était pas facile à déterminer sur les simples spectres de la Fig. 3.12 – est ici beaucoup plus claire. L'échelle logarithmique permet aussi de suivre l'apparition progressive des raies  $K_\alpha^C$  à partir de  $h\nu_{XFEL} \sim 1700 \text{ eV}$  (elles étaient invisibles sur la Fig. 3.12).

Cette nouvelle méthode de représentation des spectres d'émission est très intéressante pour étudier l'évolution des propriétés de la matière et particulièrement les effets de densité sur la structure atomique. Avec un spectre simple intégré en temps on peut avoir accès à l'évolution temporelle de la matière grâce à la dispersion spectrale des raies issues de temps différents i.e. de paramètres plasma différents. Ici la dimension de l'énergie des photons X permet d'illuminer progressivement différentes parties du spectre ce qui apporte des informations supplémentaires. Comme on va le voir une application de ce spectre 2D est l'étude de l'ionisation par la pression et de l'API.

Une étude présentée dans la Réf. [Ciricosta 2012] a permis de déterminer l'API en fonction de l'état de charge à partir du spectre 2D expérimental de la Fig. 3.14. Cette méthode consiste à comparer des sections du spectre 2D expérimental, c'est-à-dire des spectres simples, à des spectres simulés. Ces spectres simulés sont obtenus avec le code SCFLY [Chung 2007] qui est une adaptation du code FLYCHK [Chung 2005] pour traiter l'interaction XFEL-solide. Ce MCR utilise des formules semi-empiriques hydrogéniques écrantées pour calculer les taux des processus collisionnels et radiatifs. Également il utilise un regroupement des niveaux en complexe de Layzer. Les sections du spectre 2D expérimental sont comparées à des spectres obtenus en utilisant, pour la formule d'API, soit la formule de SP, soit une formule non justifiée qui reprend une partie de la formule d'EK.

Ici nous avons cherché à reproduire directement le spectre 2D de la Fig. 3.14. De la sorte, on exploite le spectre 2D dans sa globalité pour avoir accès à la réduction du nombre d'états liés, ainsi qu'à l'API. On n'utilise pas de formulation existante pour l'API. Comme précédemment, on fait à la place l'hypothèse que l'API dépend de l'état de charge linéairement

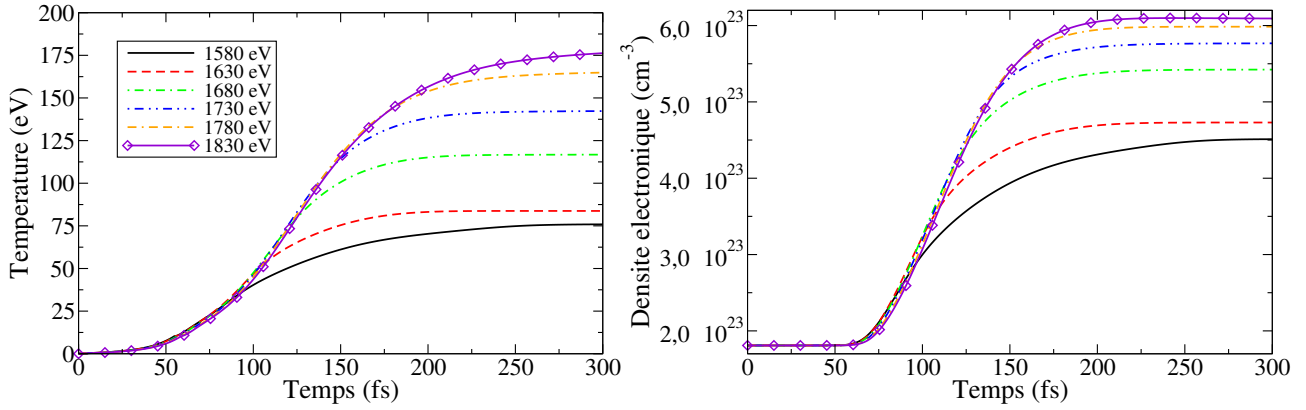
$$\Delta E(\xi) = a(\xi - 3) + \Delta E(3) \quad (3.3)$$

avec  $a$  variable et  $\Delta E$  fixe. On a donc un API indépendant des paramètres plasmas. Cette linéarité est une hypothèse de travail qui va nous permettre d'étudier l'API indépendamment de tout modèle existant. Contrairement aux Secs. 3.1 et 3.2.1, on ne fixe ici que le premier point  $\Delta E(3)$ . Le deuxième point  $\Delta E(4)$  n'est en effet qu'approximatif. Nous obtenons une expression avec un seul paramètre

$$\Delta E(\xi)[\text{eV}] = a(\xi - 3) + 60.6. \quad (3.4)$$

Pour résumer il y a deux paramètres dans notre modèle, la pente  $a$  de l'API et le nombre  $n_{max}$ .

La distribution d'intensité de la tache focale est prise en compte en calculant le spectre d'émission pour différentes intensités puis ces contributions sont sommées avec un poids lié à l'aire correspondante sur la tache focale. Enfin la longueur d'absorption utilisée ici pour produire les spectres est de 200 nm [Ciricosta 2012].



**Figure 3.15** – Évolution temporelle de la température électronique (gauche) et de la densité électronique (droite) pour différentes énergies de photons XFEL données sur la figure, pour une pente  $a=20$  eV, un paramètre  $n_{max} = 2$  (sans couche M), une durée d’impulsion de 80 fs FWHM, une intensité de  $1.1 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  et une largeur spectrale du XFEL de 0,2 %.

Regardons dans un premier temps dans quelles conditions de densité et de températures se retrouve l’aluminium dans de telles conditions de chauffage. L’évolution de la température et de la densité électronique suivant l’énergie des photons XFEL est tracée sur la Fig. 3.15. Les simulations sont faites pour le centre de la tache focale c’est-à-dire pour  $1.1 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  et on choisit ici comme critère  $n_{max} = 2$  et  $a = 20 \text{ eV}$ . On peut voir que les conditions sont assez différentes suivant l’énergie de photons XFEL. Cela est dû au fait que plus l’énergie de photons est importante, plus on peut accéder à des états de charges importants par photoionisation, et donc plus le chauffage est important. Les températures montent très vite au dessus de la température de Fermi (qui vaut 11.6 eV). Cela indique que les effets de dégénérescence ne seront pas très importants ici, au moins pour le centre de la tache focale.

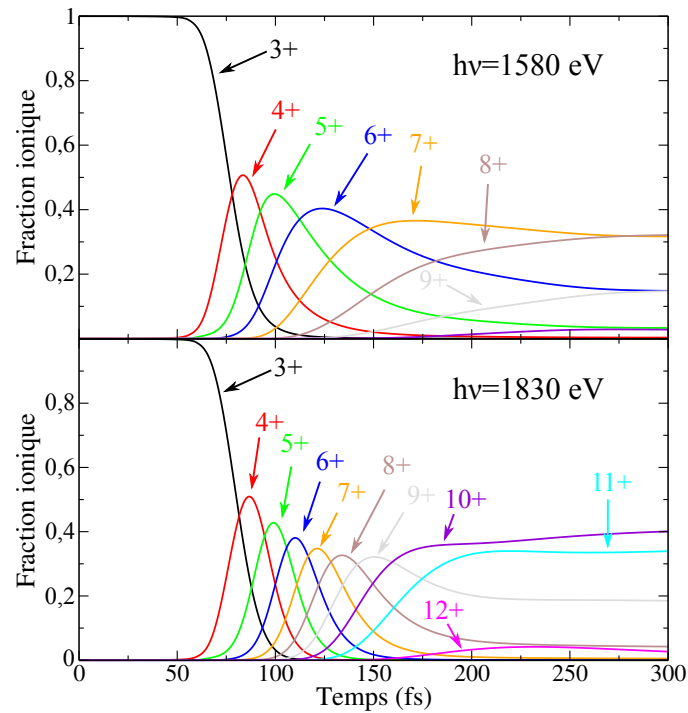
Sur la Fig. 3.16 est tracée l’évolution temporelle des fractions ioniques pour une énergie de photon XFEL égale à 1580 eV (haut) et égale à 1830 eV (bas). On peut voir que la cinétique des populations est très différente suivant l’énergie de photons XFEL. Cela est cohérent avec la très importante variation des spectres avec l’énergie des photons XFEL observée sur la Fig. 3.12.

Après une étude générale de l’émission, on va commencer par fixer  $a$  pour regarder la dépendance de l’émission par rapport au nombre de niveaux du MCRG. On va ensuite fixer  $n_{max}$  pour regarder la dépendance de l’émission par rapport à l’API.

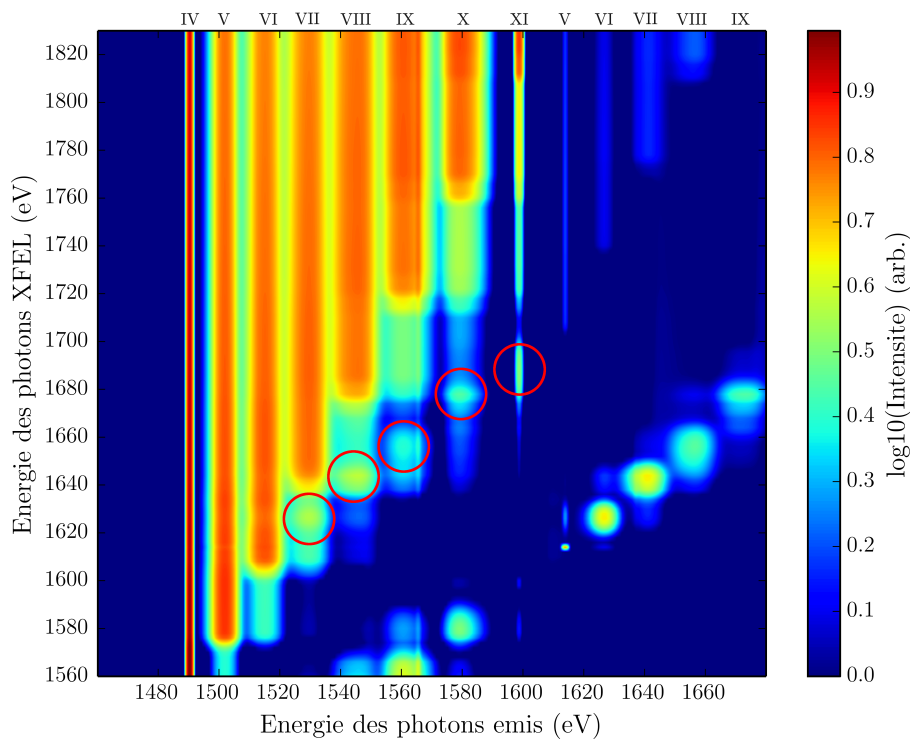
### Étude de l’émission

Le spectre 2D obtenu pour la pente  $a = 20 \text{ eV}$  et  $n_{max} = 2$  est représenté Fig. 3.17. Comme sur le spectre expérimental on peut observer l’apparition progressive des raies  $K_\alpha$  et  $K_\alpha^C$  avec une énergie de photon XFEL qui augmente. Dans le cas des raies  $K_\alpha$ , on observe également de l’émission sous les seuils de photoionisation. Cette émission n’étant pas due à la photoionisation, un ou plusieurs autre processus doivent être responsables de cet émission. Étudions donc cette partie des spectres 2D.

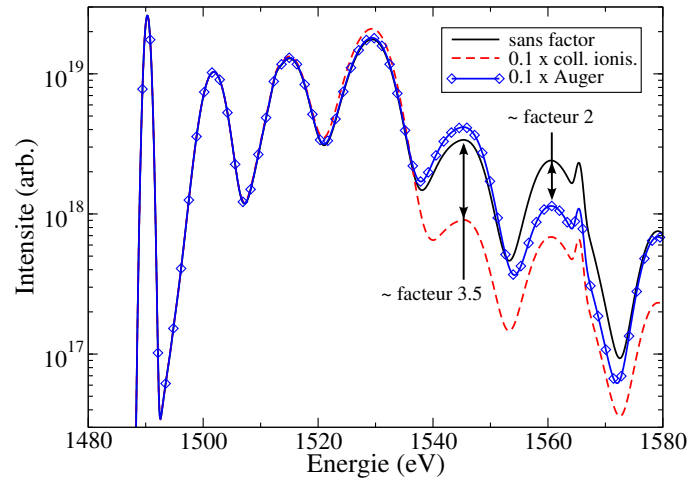
L’ionisation collisionnelle peut à priori produire des trous en couche K mais avec des températures de l’ordre de 100 à 200 eV obtenues ici et un seuil de couche K situé environ



**Figure 3.16** – Évolution temporelle des fractions ioniques obtenues pour une énergie de photon XFEL de 1580 eV (haut) et de 1830 eV (bas), une pente  $a=20$  eV, un paramètre  $n_{max} = 2$  (sans couche M), une durée d’impulsion de 80 fs FWHM, une intensité de  $1.1 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ , une largeur spectrale du XFEL de 0,2 %.



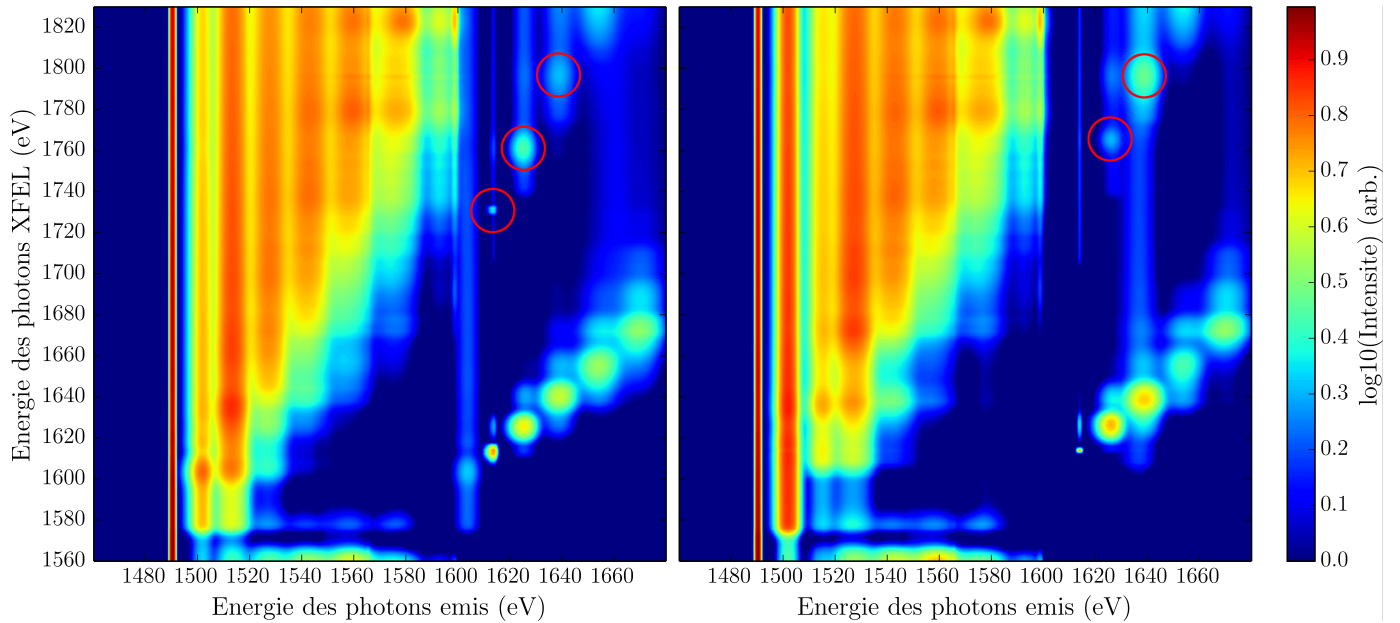
**Figure 3.17** – Spectre 2D en fonction de l’énergie des photons du XFEL simulé pour une pente  $a=20$  eV, un paramètre  $n_{max} = 2$  (sans couche M), une tache focale de  $9.1 \mu\text{m}^2$ , une durée d’impulsion de 80 fs FWHM, une intensité au centre de la tache focale de  $1.1 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  et une largeur spectrale du XFEL de 0,2 %.



**Figure 3.18** – Étude des mécanismes de production de l'émission sous les seuils de photoionisation. Les spectres sont obtenus avec une énergie de photons de 1660 eV, une intensité de  $1.10^{17} \text{ W/cm}^2$ , une largeur spectrale du XFEL de 0,2 %, une durée d'impulsion de 80 fs,  $n_{max} = 2$  et  $a=20$  eV. On compare le cas où les taux d'ionisation collisionnelle selon  $K^1L^3 + e^- \rightarrow K^1L^2 + 2e^-$  sont multipliés par un facteur 0.1 à un cas où le taux Auger selon  $K^0L^5 \rightarrow K^1L^3 + e^-$  est multiplié par un facteur 0.1 à un cas sans facteur (voir texte).

entre 1550 eV et 1850 eV ce processus est très improbable. Par contre l'ionisation collisionnelle d'un électron de couche L avec un seuil de l'ordre de 100 eV est très probable. Prenons par exemple le cas où l'énergie des photons XFEL est réglée pour que la photoionisation selon  $K^2L^x + h\nu \rightarrow K^1L^x + e^-$  soit possible mais que la photoionisation selon  $K^2L^{x-1} + h\nu \rightarrow K^1L^{x-1} + e^-$  soit impossible. La raie  $K_\alpha$  provenant de  $K^1L^{x-2} \rightarrow K^2L^{x-3}$  ne peut donc pas être provoquée par photoionisation. Par contre l'ionisation collisionnelle selon  $K^1L^{x-1} + e^- \rightarrow K^1L^{x-2} + 2e^-$  est possible. L'émission ainsi provoquée est située sous le seuil et va donc être proportionnelle à la population du niveau haut de la raie  $K_\alpha$  précédente. Cela explique le seuil secondaire de chaque  $K_\alpha$  qui est aligné avec le seuil principal de la  $K_\alpha$  adjacente. Ce mécanisme de production de  $K_\alpha$  sous le seuil est illustré sur la Fig. 3.18, pour  $x = 6$  et une énergie de photons XFEL égale à 1650 eV, en multipliant le taux de l'ionisation collisionnelle responsable de l'émission sous le seuil par un facteur 0.1. À cette énergie la raie  $K_\alpha$  VII est accessible par photoionisation alors que la raie VIII est inaccessible. On voit bien que l'émission située à une énergie de photons émis de 1580 eV, c'est-à-dire sous le seuil, est très réduite lorsque le taux d'ionisation collisionnelle est réduit.

Un autre mécanisme de production de  $K_\alpha$  sous le seuil est l'effet Auger à partir d'ion creux. Avec le même exemple que précédemment la photoionisation selon  $K^2L^{x-1} + h\nu \rightarrow K^1L^{x-1} + e^-$  est impossible. Par contre, des ions  $K^1L^{x-1}$  peuvent être créés. Si on se situe à la résonance avec la photoexcitation  $K^1L^{x-1} + h\nu \rightarrow K^0L^x$ , on peut produire un nombre important d'ion  $K^0L^x$  qui vont eux pouvoir se désexciter par effet Auger selon  $K^0L^x \rightarrow K^1L^{x-2} + e^-$ . On obtient ainsi une  $K_\alpha$  à partir de l'état haut de la  $K_\alpha$  précédente, par l'intermédiaire d'un ion creux. Ce mécanisme est illustré sur la Fig. 3.18 pour  $x=5$ . L'effet Auger depuis les ions creux produits par photoexcitation est responsable de l'émission entourée en rouge. Ces surintensités sont une image de l'émission à la résonance.



**Figure 3.19** – Spectres 2D en fonction de l'énergie des photons du XFEL simulé pour une pente  $a=20$  eV, un paramètre  $n_{max} = 3$  (gauche) et  $n_{max}$  variable (droite), une tache focale de  $9.1 \mu\text{m}^2$ , une durée d'impulsion de 80 fs FWHM, une intensité au centre de la tache focale de  $1.1 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  et une largeur spectrale du XFEL de 0,2 %.

### Influence de la sélection de niveaux

Dans cette partie nous étudions le spectre 2D simulé en fonction de la sélection des niveaux inclus dans le MCRG. Pour cela nous fixons le paramètre  $a$  et gardons le paramètre  $n_{max}$  libre. Sur la Fig. 3.19, à gauche, est représenté le spectre 2D obtenu dans les mêmes conditions que le spectre 2D de la Fig. 3.17 mais avec ici  $n_{max} = 3$ . En comparant les cas  $n_{max} = 2$  (sans couche M, Fig. 3.17) et  $n_{max} = 3$  (avec couche M, Fig. 3.19 à gauche) on voit que la composition générale, décrite précédemment, est la même. Au premier abord le spectre avec couche M peut sembler plus ressemblant au spectre expérimental. Pourtant, si on regarde en détail on voit que l'ajout de la couche M produit de l'émission supplémentaire, qui n'est ni sur le spectre expérimental, ni sur le spectre sans couche M. On décrit dans la suite l'origine de cette émission supplémentaire.

Commençons par l'émission parasite en bas à gauche, pour une énergie de photons XFEL égale à 1560 eV. La couche M étale l'émission produite à la résonance, vers le rouge. Cet étalement est dû à l'ionisation des électrons de couche L et M (voir discussion Fig. 3.12). Pour le cas sans couche M, on voit que ce processus est moins important. On retrouve également cet étalement sur le côté rouge de chaque raie produite à la résonance.

Également, pour une énergie de photons émis égale à 1604 eV, une raie apparaît sur presque toute la gamme d'énergie de photons XFEL. Cette raie est une  $K_\beta$  issue de la transition  $1s^1 2s^2 2p^5 3p \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^5 + h\nu$ . Son état de charge est le même que la  $K_\alpha$  IV mais l'état haut de cette raie  $K_\beta$  est peuplé depuis l'état de charge supérieur, d'où le seuil d'apparition aligné avec celui de la  $K_\alpha$  V. Sur le spectre simulé on peut aussi observer une surintensité de cette raie à la résonance (et donc due à la photo-excitation). Cette zone est vide sur le spectre expérimental.

On peut aussi voir des surintensités, entourées en rouge, sur les  $K_\alpha^C$  V, VI et VII. Cette émission est produite d'une façon similaire aux surintensités de la Fig. 3.17. Un état du



type  $K^0L^XM^2$  qui est produit par photoexcitation à la résonance, mais en dehors de la gamme observée ici, se désexcite via effet Auger selon  $K^0L^XM^2 \rightarrow K^0L^{X-1} + e^-$ .

Sur la droite du spectre entre 1650 eV et 1680 eV et entre  $h\nu_{XFEL}=1700$  eV  $h\nu_{XFEL}=1820$  eV on retrouve de l'émission parasite. Cette partie est due à des raies  $K_\beta$ .

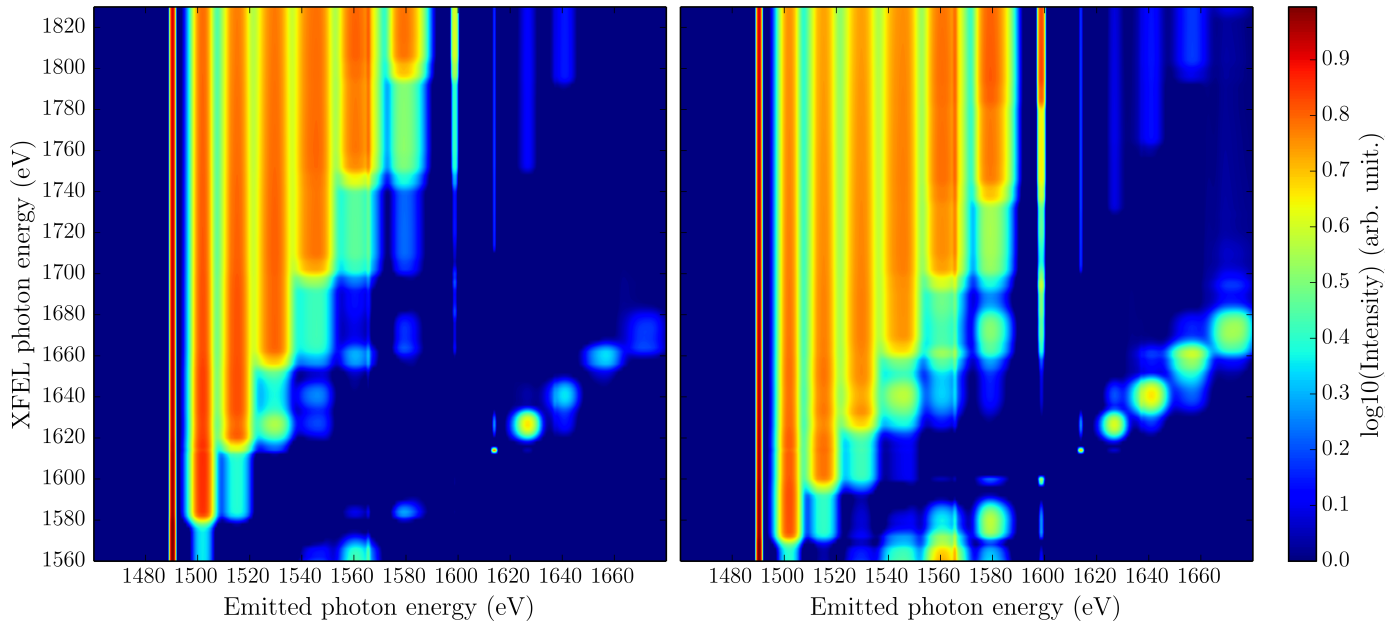
Une autre différence avec le spectre expérimental concerne les largeurs de raies du spectre obtenu pour  $n_{max} = 3$  qui sont trop importantes. Ces largeurs de raies ont été discutées précédemment en rapport avec la Fig. 3.11. Ce sont les électrons de couche M qui écrantent les raies  $K_\alpha$  et  $K_\alpha^C$ .

À droite de la Fig. 3.19 est représenté le spectre 2D obtenu dans les mêmes conditions que le spectre de gauche (et que le spectre de la Fig. 3.17) mais avec ici  $n_{max}$  variable. On remarque également beaucoup d'émission parasite comparé au spectre expérimental. Cette émission est globalement due au mêmes mécanismes que dans le cas  $n_{max} = 3$  même si on remarque quelques différences. Les largeurs de raies sont aussi trop importantes. Nous pouvons donc dire que le critère  $n_{max}$  variable n'améliore pas de manière notable le spectre 2D.

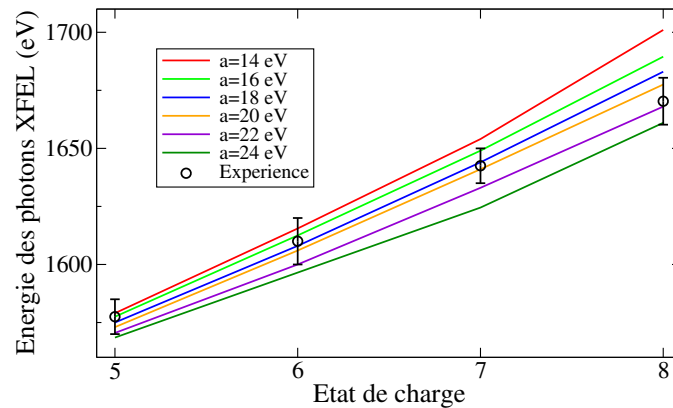
Pour conclure, le spectre obtenu Fig. 3.17 pour  $n_{max} = 2$  est globalement en meilleur accord avec le spectre expérimental. La présence de la couche M ajoute des configurations avec des électrons spectateurs dont l'émission apparaît dans des zones vides sur le spectre expérimental. La présence des électrons induit des largeurs effectives de raies trop importantes. Ces résultats indiquent que la couche M semble fortement impactée par la pression. En conséquence nous choisissons dans la suite le paramètre  $n_{max} = 2$  pour l'étude de l'API.

### Influence de l'API

On souhaite dans cette partie déterminer l'API, par comparaison de spectres 2D simulés avec le spectre 2D expérimental, pour différentes valeurs de la pente  $a$ . À la place d'une comparaison classique d'intensité ou de largeur de raie on va ici utiliser l'ensemble du spectre 2D. Sur la Fig. 3.20 sont représentés deux spectres 2D pour deux pentes différentes  $a=14$  eV (gauche) et  $a=24$  eV (droite). La principale différence est la position des seuils d'apparition des raies  $K_\alpha$  et  $K_\alpha^C$ . On voit même que la raie  $K_\alpha^C$  VIII disparaît du cadre pour  $a=14$  eV alors qu'elle est visible pour la pente  $a=24$  eV. Nous choisissons donc comme critère de comparaison la position des seuils. D'après la Réf. [Rosmej 2007a] l'émission des ions creux (c'est-à-dire les raies  $K_\alpha^C$ ) est particulièrement adaptée pour diagnostiquer la matière lors de l'interaction XFEL-matière. Cela est dû aux très faibles temps de désexcitation des ions creux qui est de quelques fs (le niveau  $2s^22p^5$  a une durée de vie  $\tau = 2.3$  fs dû à l'effet Auger). On sait donc que cette émission, bien qu'elle soit intégrée en temps, intègre moins de variation des paramètres plasma. De plus on peut voir sur les Figs. 3.20 que l'émission "parasite", sous les seuils d'ionisation, décrite précédemment est très faible dans le cas des ions creux grâce justement à leur faible temps de vie. La variation des seuils de  $K_\alpha^C$  est donc un critère adapté pour notre étude. Néanmoins on peut voir sur le spectre expérimental reproduit Fig. 3.14 que cette région est fortement perturbée par des artefacts horizontaux qui rendent la détermination des seuils très compliquée. Ces artefacts sont beaucoup moins problématiques pour les seuils des raies  $K_\alpha$ . La durée de vie des niveaux de type  $K^1L^X$  est un peu plus longue (le niveau  $1s2s^22p^5$  a une durée de



**Figure 3.20** – Spectres 2D en fonction de l'énergie des photons du XFEL simulé pour une pente  $a=14$  eV (gauche) et  $a=24$  eV (droite), un paramètre  $n_{max} = 2$  (sans couche M), une tache focale de  $9.1 \mu m^2$ , une durée d'impulsion de 80 fs FWHM, une intensité au centre de la tache focale de  $1.1 \times 10^{17} W/cm^2$  et une largeur spectrale du XFEL de 0,2 %.

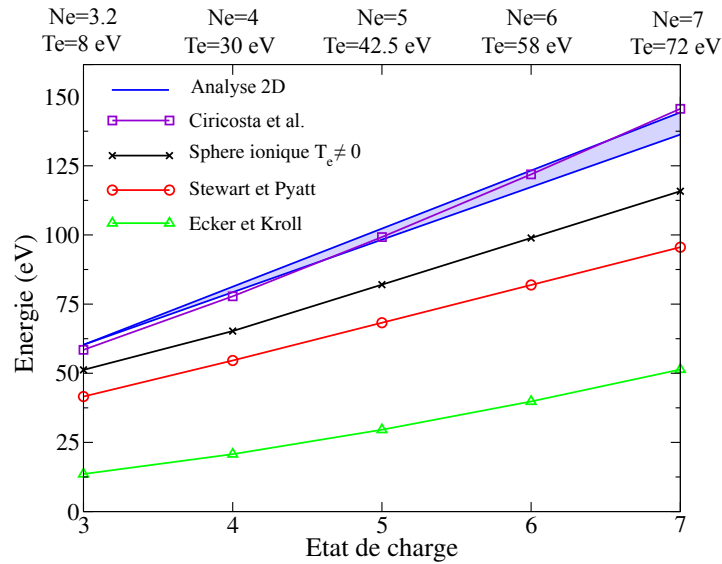


**Figure 3.21** – Position des seuils de  $K_\alpha$  expérimentaux issus de la Réf. [Circicosta 2012] comparée à la position des seuils des spectres simulés obtenus pour différentes pentes  $a$ . L'état de charge donné en ordonnée est celui de la  $K_\alpha$  dont on regarde le seuil.

vie  $\tau = 5$  fs) mais reste toujours assez courte pour notre diagnostic. Également, l'émission sous les seuils décrite précédemment étant très importante pour les états de charge les plus élevés on choisit de comparer les seuils des  $K_\alpha$  de V à VIII.

Sur la Fig. 3.21 est représentée la position des seuils  $K_\alpha$  de V à VIII, pour différentes valeurs de la pente  $a$ , comparées à la position des seuils du spectre expérimental. Ces seuils expérimentaux avec leurs barres d'erreur (liées à l'incertitude sur la détermination graphique de la position des seuils) sont issues de la Réf. [Circicosta 2012]. On peut voir que pour une valeur de pente comprise entre  $a = 19$  eV et  $a = 21$  eV les seuils des spectres simulés se trouvent dans les barres d'erreur. On a donc obtenu une gamme de pente  $a$  qui permet de reproduire le spectre expérimental, dans le cadre de notre hypothèse de dépendance linéaire de l'API.

Sur la Fig. 3.22 est représentée en bleu la gamme d'API obtenue en fonction de l'état



**Figure 3.22** – Comparaison de la gamme d’API obtenue pour le meilleur fit avec d’autres modèles d’API. La gamme d’API comprise entre  $a=19$  eV et  $a=21$  eV, obtenue pour le meilleur fit avec l’expérience, représentée en bleu et notée ”analyse 2D”, est comparée, en fonction de l’état de charge, avec différents modèles *ab initio* d’API et avec le résultat obtenu dans la Réf. [Ciricosta 2012] (à partir des même résultats expérimentaux). Au dessus de la figure, pour chaque état de charge, sont indiqués les températures et les densités normalisées à la densité ionique qui sont utilisées pour calculer l’API de chaque modèle (voir texte).

de charge. Notre résultat est comparé à différents modèles et au résultat obtenu dans la Réf. [Ciricosta 2012]. En noir est représenté l’API obtenu avec un modèle de sphère ionique à température finie [Li 2012], en rouge est représenté l’API donné par le modèle SP, en bleu l’API donné par le modèle EK et en vert l’API donné par la formule de la Réf. [Ciricosta 2012], qui est obtenue à partir de la carte 2D de la Fig. 3.14. Pour ces quatre formules – dont les trois premières sont détaillées en annexe Sec. C.7 – l’API dépend de l’état de charge mais aussi de la densité et de la température. Pour comparer ces formules à notre résultat, on doit prendre en compte la variation temporelle de ces paramètres. Pour cela on utilise les simulations qui nous permettent d’obtenir la température et la densité en fonction du temps. Sur la Fig. 3.16 on peut voir que la durée de vie des différents états de charge est assez courte. Nous utilisons dans ce cas la température et la densité à l’instant où la population de l’ion est au maximum. Pour le cas de l’ion  $Al^{3+}$ , le temps de vie de l’ion est plus long. Dans ce cas nous faisons une moyenne de la température et de la densité sur la durée de vie de l’ion. Les températures et densités obtenues sont données sur le dessus de la Fig. 3.22 au dessus de chaque état de charge. Les densités sont normalisées à la densité ionique. Nous faisons donc ici une reconstruction de l’API pour prendre en compte l’évolution temporelle des paramètres plasma.

Une polémique existe au sujet de la formule d’API la plus adaptée pour les plasmas denses parmi les modèles EK et SP [Hoarty 2013, Ciricosta 2012]. Dans la Réf. [Ciricosta 2012], les auteurs concluent que le modèle qui permet une meilleur reproduction des résultats (pour la même expérience que celle étudiée ici) est le modèle EK. Pourtant, dans la formule qu’ils utilisent le facteur  $C$  de l’Éq. (C.46) est arbitrairement fixé à 1 sans raison particulière. Les valeurs d’API correspondantes, notée *Ciricosta et al.* sur la Fig. 3.22, sont donc calculées avec la formule Éq. (C.46) avec  $C$  fixé à 1. On peut d’ailleurs voir que cette formule donne des valeurs qui ne sont pas du tout proches des valeurs obtenues pour le modèle EK original. On peut même conclure ici que le modèle SP est en meilleur accord.

Nous pouvons cependant remarquer que la formule obtenue dans la Réf. [Ciricosta 2012] est en très bon accord avec la gamme d'API obtenue ici. Pourtant, la méthode présentée ici pour obtenir cette gamme d'API est plus transparente. Les hypothèses fortes faites sur la dépendance de l'API nous ont permis d'arriver au résultat par variation d'un paramètre libre. Nous savons que, dans le cadre de nos hypothèses faites pour l'API, tout point situé en dehors de notre gamme ne permet pas de reproduire l'expérience. Dans la Réf. [Ciricosta 2012], la formule d'API mise en avant est simplement proposée comme résultat, sans justification.

Parmi les modèles d'API comparés ici c'est le modèle de la Réf. [Li 2012] qui est le plus proche de nos résultats. Il serait intéressant de le tester dans d'autres conditions. Ce modèle est en plus très simple à utiliser et à implémenter dans un code.

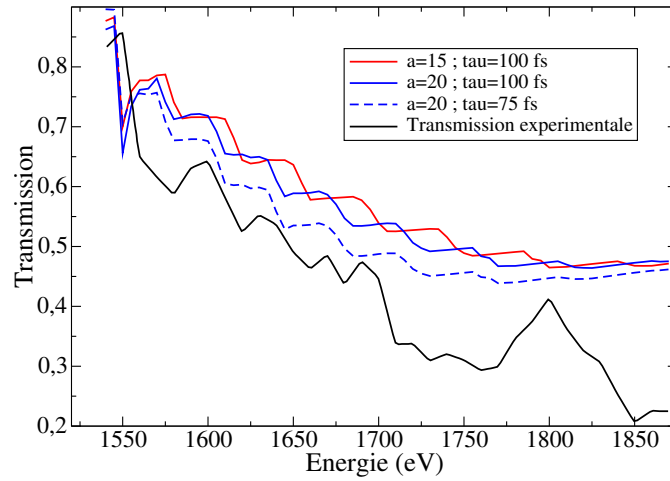
On peut aussi remarquer que, pour les quatre formules d'API comparées à notre résultat, on obtient une dépendance quasi-linéaire suivant l'état de charge de l'ion malgré le fait que ces formules (contrairement à notre modèle d'API) dépendent dans le cas général de la densité électronique, de l'ionisation, de la température et de l'état de charge de l'ion. On peut en fait vérifier que dans nos conditions la dépendance de ces expressions suivant la température est très faible (voir inexistante). Également, les paramètres plasmas obtenus (et indiqués au dessus de la Fig. 3.22) nous donnent une ionisation moyenne qui est très proche de la charge de l'ion. On peut vérifier que cette égalité induit, avec l'hypothèse de chauffage isochore et dans les conditions qui nous intéressent ici, une dépendance linéaire suivant l'état de charge de l'ion. Cela revient à dire que l'abaissement effectif moyen (au sens de moyenne sur la durée de vie de l'ion) d'un ion (dans un plasma qui évolue temporellement) avec un état de charge donné ne dépend que de la densité ionique, ou autrement dit de la place disponible pour chaque ion.

Pour conclure, nous avons montré que le regroupement des spectres d'émissions en spectres 2D permet d'obtenir des informations sur les effets de densités sur la structure atomique. La représentation en 2D permet d'avoir une vision plus globale de la variation de l'émission avec l'énergie des photons XFEL. En plus des critères de comparaison sur l'intensité et les largeurs des raies, on peut ici faire des comparaisons de structures en deux dimensions.

### 3.2.3 Transmission en fonction de l'énergie

La transmission de l'aluminium sous irradiation XFEL a été étudiée sur l'installation LCLS mais cette fois dans la gamme X et pour une énergie de photons variable, pour une gamme comprise entre  $h\nu = 1550 \text{ eV}$  et  $h\nu = 1875 \text{ eV}$  [Rackstraw 2015] c'est-à-dire juste après le seuil de première ionisation de la couche K (situé à  $1560 \text{ eV}$  [Henke 1993]). Le XFEL, d'une durée d'impulsion dont la valeur maximale est de  $100 \text{ fs}$  (incertitude expérimentale), était orienté avec un angle de  $45^\circ$  par rapport à une cible de  $1 \mu\text{m}$  d'épaisseur. Pour simuler cette expérience on utilise la version 1D du code qui nous permet de calculer l'absorption du rayonnement en profondeur. Pour prendre en compte l'angle on prend une épaisseur de cible de  $1.4 \mu\text{m}$ .

La transmission simulée, pour différentes pentes d'API  $a$  et différentes durées d'impulsion, une épaisseur de cible de  $1.4 \mu\text{m}$  et une intensité de  $1 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  est comparée à la transmission expérimentale sur la Fig. 3.23. En rouge et trait plein est représentée la transmission pour une pente d'API  $a=15 \text{ eV}$  et une durée d'impulsion  $\tau = 100 \text{ fs}$ , en bleu et trait plein pour  $a=20 \text{ eV}$  et  $\tau = 100 \text{ fs}$  et en bleu et tiret pour  $a=20 \text{ eV}$



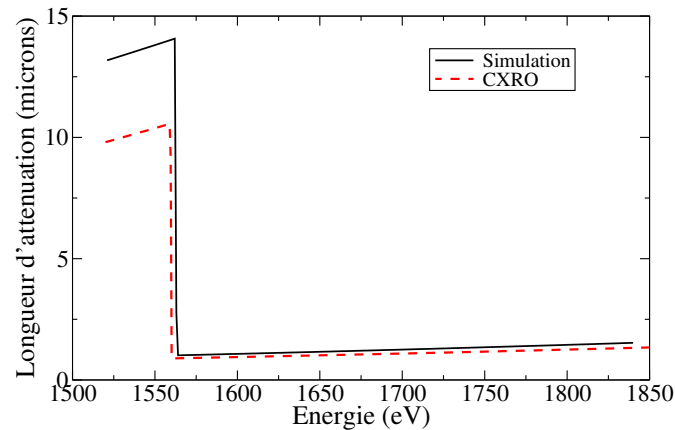
**Figure 3.23** – Comparaison de la transmission expérimentale d’une cible d’aluminium solide de  $1 \mu\text{m}$  d’épaisseur orientée à  $45^\circ$  par rapport au XFEL en fonction de l’énergie des photons, issue de la Ref. [Rackstraw 2015], avec des résultats de simulation. La transmission expérimentale est en noir et trait plein. Les autres courbes sont les transmissions simulées pour  $I = 1 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ , une épaisseur de  $1.4 \mu\text{m}$ , et différente valeur de pentes d’API et différentes durée d’impulsion indiquées sur la figure.

et  $\tau = 75 \text{ fs}$ . Tout d’abord on constate que l’on reproduit bien la tendance générale de la variation de la transmission avec l’énergie. Ensuite, si on compare les deux cas pour lesquels  $\tau = 100 \text{ fs}$  mais avec deux pentes d’API différentes on voit que la position des structures dépend de l’API. Cela nous indique que ces structures sont alignées avec les seuils de photoionisation et non avec les positions des résonances de photoexcitation. On peut vérifier que dans les conditions expérimentales qui nous intéressent ici, le nombre de photons absorbés par photoionisation est au moins 10 fois supérieur au nombre de photons absorbés par photoexcitation. Cela explique donc que l’on observe pas de résonance sur la courbe de transmission. Un seuil de photoionisation est atteint lorsqu’une chute de transmission apparaît. On peut voir que la position des structures semble globalement mieux reproduite pour  $a=20 \text{ eV}$ , ce qui confirme les résultats obtenus avec les spectres 2D.

On a aussi fait varier la durée des impulsions car seule une limite haute de  $100 \text{ fs}$  est donnée dans la Réf. [Rackstraw 2015]. La transmission obtenue pour  $\tau = 75 \text{ fs}$  est plus proche encore de la transmission expérimentale. Compte tenu des incertitudes sur les paramètres expérimentaux, on peut dire que les simulations sont en bon accord avec l’expérience.

On remarque par contre que le pic de transmission expérimentale situé à  $1800 \text{ eV}$  n’est pas du tout reproduit avec les simulations. Également la diminution importante de la transmission expérimentale à  $1700 \text{ eV}$  n’est pas reproduite. De manière générale la partie haute énergie de la courbe n’est pas bien reproduite. Cette zone correspond d’une part à des états de charges élevés pour lesquels les seuils d’apparition de  $K_\alpha$  sur le spectre 2D expérimental (voir Fig. 3.14) ne sont pas facilement identifiables. Les valeurs d’API obtenue Sec. 3.2.2 sont donc assez incertaines pour ces états de charges élevés. D’autre part la partie haute énergie est plus difficile à modéliser car on balaye en énergie une zone qui contient des seuils de  $K_\alpha$  mais aussi des seuils de  $K_\alpha^C$ . Le pic observé expérimentalement à  $1800 \text{ eV}$  peut par exemple être dû à la superposition d’un seuil de  $K_\alpha$  avec un seuil de  $K_\alpha^C$  qui n’est pas bien reproduite par les simulations.

L'accord avec la transmission expérimentale est meilleur ici que dans la gamme XUV. Outre le fait que la couche d'oxyde est transparente dans la gamme X, notre approche d'atome isolé est plus adaptée pour traiter les transitions mettant en jeu les électrons de couches internes, ces derniers étant moins affectés par les effets de densité. Pour vérifier cette affirmation on compare sur la Fig. 3.24 la longueur d'atténuation à froid obtenue avec le code à une longueur d'atténuation expérimentale en fonction de l'énergie, autour du seuil de la couche K. On voit tout de suite que la longueur d'atténuation obtenue après le



**Figure 3.24** – Longueur d'atténuation obtenue avec notre modèle comparée à la longueur d'atténuation expérimentale de la Réf. [CXRO] en fonction de l'énergie.

seuil de la couche K est beaucoup plus proche de la longueur d'atténuation expérimentale que pour la partie avant le seuil.

### 3.3 Conclusion sur le modèle

Le modèle collisionnel radiatif généralisé présenté au chapitre précédent nous a permis de reproduire des résultats expérimentaux. Nous avons obtenu un accord entre simulation et expérience pour une interaction dans les gammes X et XUV. D'une part nous avons obtenu un accord très satisfaisant au niveau du calcul de l'absorption d'énergie, avec les comparaisons de température et de transmission. Cet accord est déjà très positif quand on considère les approximations faites dans ce modèle. D'autre part nous avons obtenu un accord important au niveau des spectres d'émissions ce qui est encore plus significatif. En effet la reproduction du spectre est plus complexe que celle de l'absorption car la dépendance du spectre selon la description de la structure atomique est très importante. Le code développé est donc un outils adapté pour l'étude de résultats expérimentaux et la conception d'expériences.

Dans la suite on étudie la validité de l'hypothèse de thermalisation instantannée des électrons libres faite dans ce premier modèle.



## Troisième partie

# Fonctions de distribution électronique hors-équilibre



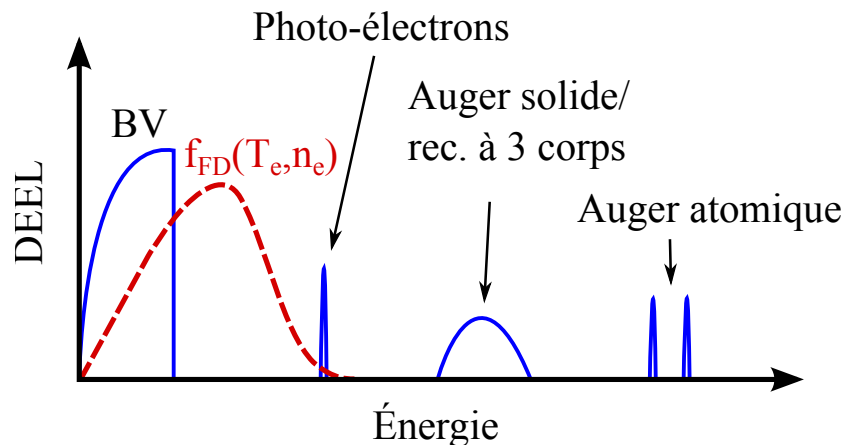


# Cinétique des électrons liés et libres

## 4.1 Couplage entre niveaux liés et états libres

Lors de l'irradiation de la matière solide par un rayonnement X/XUV intense, des photo-électrons et des électrons Auger sont éjectés dans la distribution d'électrons libres. Les collisions électron-électron assurent la thermalisation de la distribution. Jusque là on supposait cette thermalisation instantanée ce qui permet d'utiliser une distribution à l'équilibre, décrite par une distribution de Fermi-Dirac. Cette hypothèse nous a permis d'étudier la cinétique des populations atomiques sans se préoccuper du caractère hors-équilibre de la distribution.

Sur la Fig. 4.1 est schématisé l'état de la distribution en énergie d'électrons libres (DEEL) pendant l'irradiation XFEL comparée à la distribution de Fermi-Dirac à l'équilibre à la température  $T_e$  et à la densité  $n_e$ . On voit apparaître sur la DEEL hors-équilibre des



**Figure 4.1** – Schéma de la fonction de distribution d'électrons libres hors-équilibre sous irradiation XFEL.

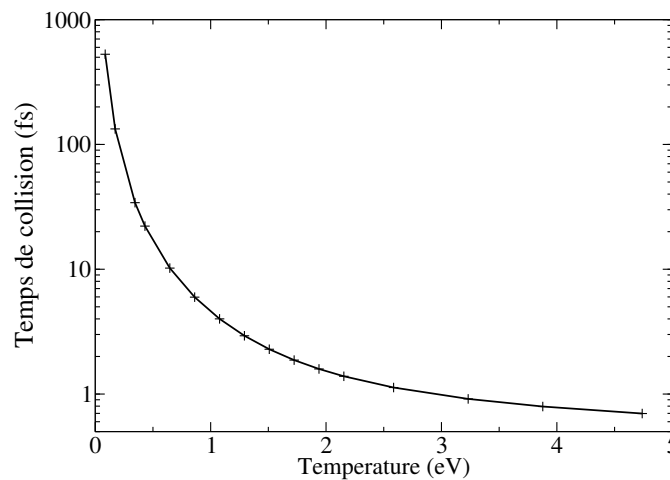
pics de photo-électrons, des pics d'électrons Auger "atomiques", et des électrons de recombinaison à trois corps généralisée. Pour ce dernier processus le pic est très large car ce sont les électrons libres qui produisent la recombinaison, ce qui induit une dispersion en énergie du pic d'électrons éjectés. Pendant l'interaction le XFEL alimente les pics de photo-électrons puis, indirectement, les autres pics. Pendant ce même temps les collisions électrons-électrons et l'ensemble des autres processus atomiques vident ces pics et les redistribuent dans la DEEL.

La description de la DEEL hors-équilibre peut avoir une influence importante sur la cinétique des populations atomiques et sur l'absorption. On peut remarquer tout d'abord que, si l'alimentation d'un pic est efficace, on va pouvoir remplir complètement la DEEL dans l'intervalle d'énergie de ce pic. Le principe de Pauli induit alors un blocage de l'alimentation de ce pic et donc, pour un pic de photo-électron, une diminution directe de l'absorption. Dans le cas d'une DEEL à l'équilibre ce blocage n'est possible que si la zone

d'arrivée du pic est pleine à l'équilibre. Cela n'est le cas que pour une énergie inférieure à l'énergie de Fermi, pour des faibles températures.

La présence de pics sur la DEEL, pour des énergies élevées, peut aussi influencer la cinétique des populations et, indirectement, l'absorption. En effet, les pics représentés à haute énergie sur la Fig. 4.1 (ici pour l'exemple ce sont des électrons Auger "atomique"), peuvent avoir une énergie suffisante pour participer à des processus collisionnels qui, avec une description de la DEEL à l'équilibre, seraient très improbables. Ces pics peuvent donc à priori modifier le spectre de fluorescence. Expérimentalement, il semble donc possible d'accéder à la thermalisation de la DEEL en étudiant le spectre.

Tout le problème est donc de quantifier les taux d'alimentation des pics ainsi que leur taux de redistribution pour évaluer l'influence du caractère hors-équilibre de la DEEL sur la cinétique atomique et donc sur l'absorption. Le temps typique de collision électron-électron en fonction de la température dans l'aluminium solide est tracé sur la Fig. 4.2. Ces données sont issues de la Réf. [Petrov 2013]. À température ambiante le temps de



**Figure 4.2** – Temps de collision en fonction de la température dans l'aluminium solide. Les données sont issues de la Réf. [Petrov 2013].

collision est de l'ordre de la centaine de femtoseconde et descend jusqu'à la femtoseconde dans l'aluminium solide à une température de quelques eV. Nous avons vu Sec. 3.2.2 que les temps de relaxation par effet Auger, pour les ions creux sont de l'ordre de quelques femtosecondes. Également, les temps typiques d'éjection de photoélectrons peuvent descendre en dessous de la fs dans les conditions étudiées dans le chapitre 3.

À ce niveau aucune conclusion n'est possible et un calcul de la cinétique des populations atomiques couplée à la cinétique hors-équilibre de la DEEL est nécessaire.

Il existe un modèle, détaillé dans [Bretagne 1982], qui réalise un tel couplage mais, comme on va le voir, avec une hypothèse qui simplifie le schéma numérique, mais qui n'est pas valable dans notre cas d'intérêt. Il a été repris et adapté pour plusieurs applications [Marchand 1991, Town 1995, Colonna 2001, Abdallah 2012] et même récemment appliqué à l'interaction d'un XFEL avec un gaz [Abdallah 2013].

Dans le MCRG détaillé dans le chapitre 2, chaque processus élémentaire couple deux

niveaux atomiques. Dans l'Éq. (2.1) on a en effet

$$\frac{dN_c}{dt} \propto N_{c'}. \quad (4.1)$$

Cette équation peut donc être mise sous forme matricielle car la température et la densité sont traitées de manière explicite (on prend celles du pas de temps précédent). Lorsque l'on couple les populations atomiques aux états libres de la DEEL (états d'énergies de la DEEL), dont l'occupation à l'énergie  $\epsilon$  est notée  $f(\epsilon)$  avec  $0 < f(\epsilon) < 1$ , on obtient des termes quadratiques de la forme

$$\frac{dN_c}{dt} \propto N_{c'} f(\epsilon) \text{ et } \frac{df(\epsilon)}{dt} \propto N_c f(\epsilon'), \quad (4.2)$$

mais également des termes d'ordre 3 de la forme

$$\frac{dN_c}{dt} \propto N_{c'} f(\epsilon) f(\epsilon') \text{ et } \frac{df(\epsilon)}{dt} \propto N_c f(\epsilon) f(\epsilon') \quad (4.3)$$

Ce dernier cas correspond à la recombinaison à trois corps et à l'ionisation collisionnelle. Dans le modèle de *Bretagne et al* cité au dessus la recombinaison à trois corps est négligée et l'ionisation collisionnelle simplifiée pour obtenir un terme quadratique de la forme Éq. (4.2). Ensuite, pour résoudre le système d'équation numériquement, le problème est traité de manière explicite en séparant chaque pas de temps en deux parties. La première permet de faire évoluer les populations atomiques et la deuxième les états libres. Chacune de ces deux parties ne traite alors que des termes linéaires et sont mises sous forme matricielle.

Dans le cadre de notre modélisation de l'interaction XFEL-solide les termes d'ordre 3 selon Éq. (4.3) ne peuvent être négligés car nous avons vu Sec. 3.1.1 que l'ionisation collisionnelle et la recombinaison à trois corps sont des processus très importants. Nous présentons ci dessous un modèle dans lequel on fait une linéarisation de l'ensemble des termes pour pouvoir prendre en compte tous les processus nécessaires – et notamment l'ionisation collisionnelle et la recombinaison à trois corps – ainsi que la dégénérescence des électrons libres, sans hypothèses supplémentaires par rapport au modèle supposant une thermalisation instantanée des électrons libres.

### 4.1.1 Système d'équation

Le système d'équations est composé de  $N_{lies}$  équations de la forme

$$\frac{dN_c}{dt} = Q_c + Q_c^I + Q_c^{II} + Q_c^{III} \quad (4.4)$$

couplées à une équation d'évolution de la DEEL de la forme

$$\frac{df(\epsilon)}{dt} = \frac{S^I(\epsilon) + S^{II}(\epsilon) + S^{III}(\epsilon)}{G(\epsilon)d\epsilon} + \frac{C^{ee}(\epsilon)}{G(\epsilon)d\epsilon}, \quad (4.5)$$

avec  $f(\epsilon)$  l'occupation de la DEEL dans l'intervall d'énergie  $d\epsilon$ . Les populations des configurations atomiques sont normalisées selon

$$\sum_{c=1}^{N_b} N_c = n_i \quad (4.6)$$

Les états libres sont normalisés selon

$$\int G(\epsilon)f(\epsilon)d\epsilon = n_e \quad (4.7)$$

avec  $G(\epsilon)$  la densité d'état donnée par (voir annexe A)

$$G(\epsilon) = \frac{2}{(2\pi)^2} \left( \frac{2m}{\hbar^2} \right)^{3/2} \sqrt{\epsilon}, \quad (4.8)$$

et  $f(\epsilon)$  l'occupation des états libres à l'énergie  $\epsilon$ . Les électrons libres sont maintenant décrits par la fonction  $f(\epsilon)$  à la place des deux variables  $n_e$  et  $T_e$  précédemment.

Les termes  $Q$  et  $S$  contiennent les couplages entre les états libres et les états liés.  $I$ ,  $II$  et  $III$  correspondent aux termes couplants un, deux et trois états libres respectivement.  $Q_c$  contient les termes qui ne mettent en jeu aucun état libre. Le terme  $C^{ee}(\epsilon)$  est le terme de collision électron-électron.

L'Éq. (4.5) correspond à une équation de Boltzmann sans dimension spatiale dans laquelle on a négligé les champs électriques et magnétiques. Le terme dominant de cette équation est à priori le terme de collision électron-électron, avec, dans les cas qui nous intéressent ici, des temps de collisions typiques de l'ordre de la femtoseconde. Ce terme est très utilisé notamment en physique du solide (voir par exemple [Ridley 1999, Snoke 1992, Kaiser 2000]).

#### 4.1.2 Terme de collision électron-électron

Pour le terme  $C^{ee}(\epsilon)$  on tire profit du fait que l'on n'a pas de dimension spatiale pour calculer toutes les combinaisons possibles de collisions de la DEEL. Ce terme est donné par

$$\begin{aligned} G(\epsilon_1)d\epsilon_1 C^{ee}(\epsilon_1) = & \int_{\epsilon_2} \int_{\epsilon_{1'}} \left[ -\tilde{P}(\epsilon_1, \epsilon_2; \epsilon_{1'}, \epsilon_{2'}) G(\epsilon_1) f(\epsilon_1) G(\epsilon_2) f(\epsilon_2) (1 - f(\epsilon_{1'})) (1 - f(\epsilon_{2'})) d\epsilon_1 d\epsilon_2 \right. \\ & \left. + \tilde{P}(\epsilon_{1'}, \epsilon_{2'}; \epsilon_1, \epsilon_2) G(\epsilon_1) f(\epsilon_1) G(\epsilon_2) f(\epsilon_2) (1 - f(\epsilon_1)) (1 - f(\epsilon_2)) d\epsilon_1 d\epsilon_{2'} \right], \end{aligned} \quad (4.9)$$

où  $\tilde{P}(\epsilon_1, \epsilon_2; \epsilon_{1'}, \epsilon_{2'})$  est le taux de collision électron-électron.

La section efficace de Rutherford n'est pas adaptée pour le calcul de  $\tilde{P}$  car elle diverge pour les paramètres d'impact forts. Cette divergence est due au potentiel coulombien qui ne prend pas en compte l'écrantage à longue portée. Suivant les Réfs. [Snoke 1992, Kaiser 2000], on peut calculer  $\tilde{P}$  à l'aide de la règle d'or de Fermi, en utilisant deux ondes planes et un potentiel de type Yukawa. Ce potentiel prend en compte l'écrantage et supprime la portée infinie du potentiel Coulombien. Le calcul de cette section efficace est détaillé en Annexe E pour le cas d'un potentiel de Thomas-Fermi.

### 4.1.3 Termes de couplage

On peut maintenant détailler les termes  $Q$  et  $S$ . Dans la suite les lettres qui désignent les taux et les taux réduits sont les mêmes que pour le premier modèle sans forçement que les taux soit définis de la même manière. Ces taux seront également détaillés dans la suite. Plusieurs sommes sur plusieurs indices peuvent apparaître dans l'expression des termes  $Q$  et  $S$ . Pour simplifier les expressions ces indices sont désignés par les mêmes lettres dans chaque somme de chaque terme. Également, toutes les sommes ne sont pas ici forçement explicitées pour réduire la taille des expressions. Potentiellement les sommes couplent tous les niveaux entre eux mais la majorité des couplages sont nuls.

Le terme  $Q$  qui ne met en jeu aucun niveau libre est donné par

$$Q_c = \sum_{c'} N_{c'}(A_{c'c} + B_{c'c}) - N_c \sum_{c'} (A_{cc'} + B_{cc'}) \quad (4.10)$$

où  $A$  est le taux de transition radiative spontanée et  $B$  contient les taux d'émission stimulée et d'absorption. Un taux de la forme  $J_{cc'}$  correspond à la transition d'un état lié  $c$  vers un autre état lié  $c'$ .

Le terme  $Q_c^I$  est donné par

$$\begin{aligned} Q_c^I &= \sum_{c'} \int_{\epsilon} N_{c'}(1 - f(\epsilon))(\tilde{\Gamma}_{c'c}(\epsilon) + P_{c'c}(\epsilon))d\epsilon \\ &+ \sum_{c'} \int_{\epsilon} N_{c'}G(\epsilon)f_k(RC_{c'c}(\epsilon) + R_{c'c}(\epsilon))d\epsilon \\ &- N_c \sum_{c'} \int_{\epsilon} (1 - f(\epsilon))(\tilde{\Gamma}_{cc'}(\epsilon) + P_{cc'}(\epsilon))d\epsilon \\ &- N_c \sum_{c'} \int_{\epsilon} G(\epsilon)f(\epsilon)(RC_{cc'}(\epsilon) + R_{cc'}(\epsilon))d\epsilon \end{aligned} \quad (4.11)$$

où  $\tilde{\Gamma}$  est le taux Auger,  $P$  est le taux de photoionisation,  $RC$  est le taux réduit de capture résonante et  $R$  est le taux réduit de recombinaison radiative. Un taux (ou taux réduit) de la forme  $J_{cc'}(\epsilon)$  correspond à la transition d'un état lié  $c$  vers un autre état lié  $c'$  mettant en jeu un électron libre d'énergie  $\epsilon$ . Le taux de photoionisation est intégré pour prendre en compte la largeur spectrale du rayonnement X/XUV incident. Pour l'effet Auger l'éjection de l'électron Auger se fait avec une certaine largeur et nécessite également une intégration sur  $\epsilon$ .

Le terme  $Q_c^{II}$  est donné par

$$\begin{aligned} Q_c^{II} &= \sum_{c'} \int_{\epsilon} N_{c'}G(\epsilon)f(\epsilon)(1 - f(\epsilon'))C_{c'c}(\epsilon)d\epsilon \\ &+ \sum_{c'} \int_{\epsilon} N_{c'}G(\epsilon)f(\epsilon)(1 - f(\epsilon'))D_{c'c}(\epsilon)d\epsilon \\ &- N_c \sum_{c'} \int_{\epsilon} G(\epsilon)f(\epsilon)(1 - f(\epsilon'))C_{cc'}(\epsilon)d\epsilon \\ &- N_c \sum_{c'} \int_{\epsilon} G(\epsilon)f(\epsilon)(1 - f(\epsilon'))D_{cc'}(\epsilon)d\epsilon \end{aligned} \quad (4.12)$$

où  $C$  est le taux réduit d'excitation collisionnelle et  $D$  est le taux réduit de désexcitation collisionnelle. Les énergies  $\epsilon$  et  $\epsilon'$  sont reliées par  $\epsilon - \epsilon' = \pm(E_c - E_{c'})$  suivant le terme.

Le terme  $Q_c^{III}$  est donné par

$$\begin{aligned}
Q_c^{III} &= \sum_{c'} \int_{\epsilon} \int_{\epsilon'} N_{c'} G(\epsilon) f(\epsilon) (1 - f(\epsilon')) (1 - f(\epsilon'')) I_{c'c}(\epsilon, \epsilon') d\epsilon d\epsilon' \\
&+ \sum_{c'} \int_{\epsilon} \int_{\epsilon'} N_{c'} G(\epsilon) f(\epsilon) G(\epsilon') f(\epsilon') (1 - f(\epsilon'')) T_{c'c}(\epsilon, \epsilon') d\epsilon d\epsilon' \\
&- N_c \sum_{c'} \int_{\epsilon} \int_{\epsilon'} G(\epsilon) f(\epsilon) (1 - f(\epsilon')) (1 - f(\epsilon'')) I_{cc'}(\epsilon, \epsilon') d\epsilon d\epsilon' \\
&- N_c \sum_{c'} \int_{\epsilon} \int_{\epsilon'} G(\epsilon) f(\epsilon) G(\epsilon') f(\epsilon') (1 - f(\epsilon'')) T_{cc'}(\epsilon, \epsilon') d\epsilon d\epsilon'
\end{aligned} \tag{4.13}$$

où  $I$  est le taux réduit d'ionisation collisionnelle et  $T$  est le taux réduit de recombinaison à trois corps. Le taux réduit d'ionisation  $I_{\alpha\beta}(\epsilon, \epsilon')$  correspond à l'ionisation depuis un niveau lié  $\alpha$  vers un autre niveau lié  $\beta$  et mettant en jeu un électron libre incident d'énergie  $\epsilon$  et deux électrons diffusés après collision d'énergie  $\epsilon'$  et  $\epsilon''$ . De la même manière, le taux inverse de recombinaison à trois corps  $T_{\beta\alpha}(\epsilon, \epsilon')$  correspond à la recombinaison depuis  $\beta$  vers  $\alpha$  et mettant en jeu deux électrons libres incidents d'énergie  $\epsilon$  et  $\epsilon'$  et un électron diffusé d'énergie  $\epsilon''$ . Les énergies sont reliées par  $E_{\beta} - E_{\alpha} = \epsilon - (\epsilon' + \epsilon'')$  pour l'ionisation et par  $E_{\beta} - E_{\alpha} = \epsilon'' - (\epsilon + \epsilon')$  pour la recombinaison à trois corps.

Le terme  $S^I(\epsilon)$  est donné par

$$\begin{aligned}
S^I(\epsilon) &= (1 - f(\epsilon)) \sum_{c,c'} N_c (\tilde{\Gamma}_{cc'}(\epsilon) + P_{cc'}(\epsilon)) d\epsilon \\
&- G(\epsilon) f(\epsilon) \sum_{c,c'} N_{c'} (RC_{c'c}(\epsilon) + R_{c'c}(\epsilon)) d\epsilon.
\end{aligned} \tag{4.14}$$

Le terme  $S^II(\epsilon)$  est donné par

$$\begin{aligned}
S^II(\epsilon) &= + (1 - f(\epsilon)) \sum_{c,c'} G(\epsilon') f(\epsilon') N_c C_{cc'}(\epsilon) d\epsilon' \\
&+ (1 - f(\epsilon)) \sum_{c,c'} G(\epsilon') f(\epsilon') N_c D_{cc'}(\epsilon) d\epsilon' \\
&- G(\epsilon) f(\epsilon) \sum_{c,c'} N_c (1 - f(\epsilon')) C_{cc'}(\epsilon) d\epsilon \\
&- G(\epsilon) f(\epsilon) \sum_{c,c'} N_c (1 - f(\epsilon')) D_{cc'}(\epsilon) d\epsilon
\end{aligned} \tag{4.15}$$

Le terme  $S^{III}$  est donné par

$$\begin{aligned}
S^{III}(\epsilon) &= (1 - f(\epsilon)) \sum_{c,c'} \int_{\epsilon''} N_c (1 - f(\epsilon'')) G(\epsilon'') f(\epsilon'') I_{cc'}(\epsilon'', \epsilon) d\epsilon d\epsilon'' \\
&+ (1 - f(\epsilon)) \sum_{c,c'} \int_{\epsilon'} N_c G(\epsilon') f(\epsilon') G(\epsilon'') f(\epsilon'') T_{cc'}(\epsilon', \epsilon'') d\epsilon' d\epsilon'' \\
&- G(\epsilon) f(\epsilon) \sum_{c,c'} \int_{\epsilon'} N_c (1 - f(\epsilon')) (1 - f(\epsilon'')) I_{cc'}(\epsilon, \epsilon') d\epsilon d\epsilon' \\
&- G(\epsilon) f(\epsilon) \sum_{c,c'} \int_{\epsilon'} N_c G(\epsilon') f(\epsilon') (1 - f(\epsilon'')) T_{cc'}(\epsilon, \epsilon') d\epsilon d\epsilon'. \tag{4.16}
\end{aligned}$$

#### 4.1.4 Expression des taux

On peut maintenant détailler les taux contenus dans Éqs. (4.4) et (4.5). Les sections efficaces utilisées pour le calcul des taux sont soit calculées directement avec l'ensemble des données structurales pour les processus directs, soit calculées par microréversibilité (voir Sec C.2).

Le taux réduit d'excitation collisionnelle est donné par

$$C_{cc'}(\epsilon) = \sigma_{cc'}^{exc}(\epsilon) \nu \tag{4.17}$$

où  $\sigma^{exc}$  est la section efficace d'excitation collisionnelle,  $\epsilon$  est l'énergie de l'électron incident et  $\nu$  est la vitesse correspondante.

Le taux réduit de désexcitation collisionnelle est calculé avec

$$D_{cc'}(\epsilon) = \sigma_{cc'}^{des}(\epsilon) \nu \tag{4.18}$$

où  $\sigma^{des}$  est la section efficace de désexcitation collisionnelle,  $\epsilon$  est l'énergie de l'électron incident et  $\nu$  est la vitesse correspondante.

Le taux réduit d'ionisation collisionnelle est donné par

$$I_{cc'}(\epsilon, \epsilon') = \frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon') \nu \tag{4.19}$$

avec  $\frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon')$  la section efficace différentielle d'ionisation collisionnelle pour un électron incident d'énergie  $\epsilon$  (et de vitesse  $\nu$ ) et un des électrons diffusés d'énergie  $\epsilon'$ .

Le taux réduit de recombinaison à trois corps est donné par

$$T_{c'c}(\epsilon, \epsilon') = \frac{d\Sigma_{c'c}^{3br}}{d\epsilon}(\epsilon, \epsilon') \nu \times \nu' \tag{4.20}$$

avec  $\frac{d\Sigma_{c'c}^{3br}}{d\epsilon}(\epsilon, \epsilon')$  la section efficace différentielle de recombinaison à trois corps pour deux électrons incidents d'énergie  $\epsilon$  et  $\epsilon'$ .

Le taux réduit de recombinaison radiative est calculé avec

$$R_{cc'}(\epsilon) = \sigma_{cc'}^{rad}(\epsilon) \nu \tag{4.21}$$



Le taux de capture résonante est donné par

$$RC_{cc'}(\epsilon) = \sigma_{cc'}^{rc}(\epsilon)v \quad (4.22)$$

Le taux de photoionisation est donné par

$$P_{cc'}(\epsilon) = \sigma_{cc'}^{ph}(h\nu) \frac{I(h\nu)}{h\nu} \phi(h\nu) d(h\nu) \quad (4.23)$$

avec  $\sigma_{cc'}^{ph}(h\nu)$  la section efficace de photoionisation à l'énergie de photon  $h\nu$  et  $\phi(h\nu)$  le profil spectral du rayonnement. L'énergie de photon est reliée à l'énergie  $\epsilon$  du photoélectron éjecté par  $h\nu = \epsilon + \chi$  avec  $\chi$  le potentiel d'ionisation. On a donc  $d(h\nu) = d\epsilon$ .

Les taux Auger sont calculés selon

$$\tilde{\Gamma}_{cc'}(\epsilon) = \frac{\Gamma_{cc'}}{\Delta E_{cc'}} \quad (4.24)$$

avec  $\Delta E_{cc'}$  donné en annexe C Sec. C.3.

Enfin, comme pour le MCRG, les taux radiatifs sont directement issus des calculs de données structurales. Les taux de photoexcitations et d'émission stimulée sont les mêmes que dans le MCRG.

## 4.2 Section efficace différentielle d'ionisation collisionnelle

La section efficace différentielle d'ionisation collisionnelle  $\frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon')$  est nécessaire pour le calcul des taux d'ionisation collisionnelle. Elle est aussi nécessaire pour le calcul des taux de recombinaison à trois corps qui utilisent la section efficace différentielle de recombinaison à trois corps, cette dernière étant calculée en utilisant  $\frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon')$  et la relation de microréversibilité donnée par l'Éq. (C.10).

Dans le cas général, la section efficace différentielle d'ionisation collisionnelle dépend de l'énergie de l'électron incident  $\epsilon$  et de la répartition d'énergie entre les électrons éjectés d'énergie  $\epsilon'$  et  $\epsilon''$  et est donc notée  $\frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon')$ . Les calculs de sections efficaces donnent en général une section efficace simple d'ionisation collisionnelle notée  $\sigma_{cc'}^{ion}(\epsilon)$  qui est directement moyennée sur la répartition d'énergie entre  $\epsilon'$  et  $\epsilon''$ .

Il nous manque donc la dépendance suivant la répartition d'énergie dans les deux électrons secondaires et on va tester plusieurs dépendances. Pour normaliser ces dépendances, on utilise le fait qu'en intégrant la section efficace différentielle, on retrouve la section efficace totale, et donc

$$\sigma_{cc'}^{ion}(\epsilon) = \int_0^{(\epsilon-\chi_{cc'})} \frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon') d\epsilon' = 2 \int_0^{(\epsilon-\chi_{cc'})/2} \frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon') d\epsilon', \quad (4.25)$$

où  $\chi_{cc'}$  est le potentiel d'ionisation entre les niveaux  $c$  et  $c'$ . Le facteur 2 tient compte de la symétrie de l'intégrale. On a donc  $\epsilon'' > \epsilon'$  sur tout l'intervalle de la deuxième intégrale. On note dans la suite  $L = (\epsilon - \chi_{cc'})/2$ . On va tester plusieurs dépendances selon  $\Delta = \epsilon'' - \epsilon'$  ou selon  $(2L - \Delta)$  en faisant l'hypothèse que  $\frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon') \propto \sigma_{cc'}^{ion}(\epsilon)$ .

## Dépendance constante

$$\frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon') = \frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon) = \frac{\sigma_{cc'}^{ion}(\epsilon)}{2L}. \quad (4.26)$$

## Dépendance linéaire

$$\frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon') = A\Delta\sigma_{cc'}^{ion}(\epsilon) = \frac{2}{(2L)^2}\Delta\sigma_{cc'}^{ion}(\epsilon). \quad (4.27)$$

## Dépendance d'ordre 4

$$\frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon') = A\Delta^4\sigma_{cc'}^{ion}(\epsilon) = \frac{5}{(2L)^5}\Delta^4\sigma_{cc'}^{ion}(\epsilon) \quad (4.28)$$

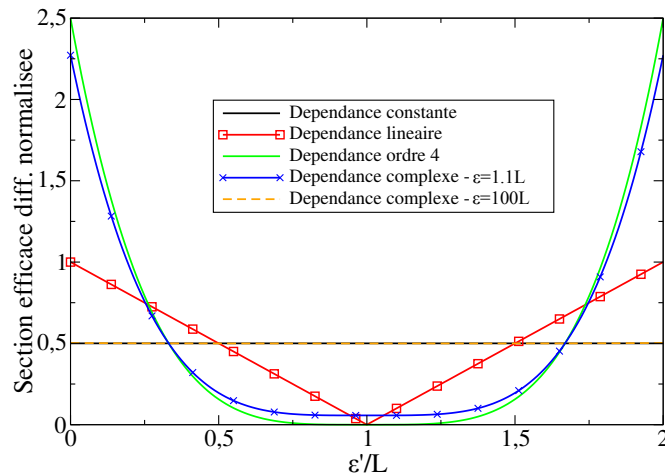
Dans ces expressions le facteur A est fixé avec la condition donnée par l'Éq. (4.25).

On peut trouver dans la Réf. [Rosmej 1998] une expression de la section efficace différentielle qui dépend de la répartition d'énergie entre  $\epsilon'$  et  $\epsilon''$  mais aussi de la différence entre  $\epsilon$  et  $\chi_{cc'}$

$$\frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon') = \sigma_{cc'}^{ion}(\epsilon) \frac{1}{(\epsilon - \chi_{cc'}) (\epsilon^2 + a\chi_{cc'}^2)} \left\{ 2(a+1)\chi_{cc'}^2 + \frac{160(\epsilon + \chi_{cc'}) (\epsilon' - 0.5(\epsilon - \chi_{cc'}))^4}{(\epsilon - \chi_{cc'})^3} \right\}. \quad (4.29)$$

Dans cette expression  $a = 14.4$ .

Sur la Fig. 4.3 sont tracées les fonctions normalisées  $f(\epsilon'/L) = \frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon') / \sigma_{cc'}^{ion}(\epsilon)$  pour les dépendances constantes, linéaires et d'ordre 4 données au dessus. Sur la figure est



**Figure 4.3** – Fonction normalisée  $f$  en fonction de l'énergie normalisée  $\epsilon'/L$  pour différentes dépendances (voir texte).

aussi représentée la section efficace différentielle suivant l'Éq. (4.29) normalisée (et notée Dépendance complexe) pour deux différents cas,  $\epsilon = 1.1L$  et  $\epsilon = 100L$ .

On peut voir que dans le cas  $\epsilon \gg \chi_{cc'}$  (ce qui correspond au cas  $\epsilon = 1.1L$ ), la dépendance selon l'Éq. (4.29) se rapproche de la dépendance d'ordre 4. Dans le cas  $\epsilon \approx \chi_{cc'}$  (ce qui correspond au cas  $\epsilon = 100L$ ), la dépendance est confondue avec une dépendance constante. La dépendance suivant l'Éq. (4.29) se situe donc entre les dépendances linéaires et d'ordre 4.

Nous verrons dans la partie *résultats* l'influence de la section efficace différentielle sur la

cinétique électronique. Quand la forme utilisée n'est pas précisée c'est une section efficace équiprobable qui est utilisée.

### 4.3 Conclusion sur le modèle

Pour conclure nous pouvons dire que le système d'équation selon Éqs. (4.4) et (4.5) est une généralisation du système d'équation du MCRG selon l'Éq. (2.1). Ce nouveau modèle s'applique dans les mêmes conditions que le MCRG mais il lève l'hypothèse de thermalisation instantanée de électrons libres.

### 4.4 Développement d'un code

Nous décrivons dans la suite l'introduction du modèle dans un code numérique. Les différentes méthodes d'intégration numérique des taux ainsi que la méthode utilisée pour paralléliser le code sont détaillées en annexe B.

#### 4.4.1 Discrétisation

On discrétise la DEEL de manière uniforme avec une dernière case d'énergie dite "case balais" à la fin qui s'étend de  $E_{balais}$  à l'infini. L'expression de la densité électronique suivant Éq. (4.7) devient

$$\sum_{k=1}^{N_{libres}} G(\epsilon_k) f_k \Delta\epsilon = n_e \quad (4.30)$$

avec  $f_k$  qui est donc l'occupation de la case  $k$  d'énergie  $\epsilon_k$  et de largeur  $\Delta\epsilon$ .

L'ensemble des Éqs. 4.5- 4.4 (et les termes de couplages contenus dans ces équations) sont également discrétisées. Il faut bien sûr choisir  $E_{balais}$  assez loin suivant le cas d'intérêt. La taille des cases doit être assez petite pour que la DEEL soit bien décrite. D'un point de vue technique on vérifie qu'en diminuant la taille des cases l'évolution de la DEEL reste inchangée. Nous allons montrer dans la suite que la discrétisation peut poser des problèmes au niveau de l'occupation des états et qu'il y a des précautions à prendre.

Pour commencer, considérons le cas d'une source X de faible largeur spectrale que l'on suppose monochromatique et supposons aussi que les photo-électrons sont éjectés sans étalement en énergie. Selon les Éqs. (4.11) et (4.14) nous voyons que le taux de photo-ionisation dépend de l'occupation dans l'état d'arrivée des électrons à travers le facteur de Pauli-blocking. Dans le cas d'un pic de photo-électrons de largeur nulle, ce facteur va dépendre de la taille de la case d'arrivée du pic. En effet considérons une case de largeur  $dx$ , vide au début d'un premier pas de temps, dans laquelle 5 photo-électrons ont été injectés à la fin de ce pas de temps. L'occupation de cette case va valoir une certaine valeur qui va influencer l'absorption au prochain pas de temps à travers le Pauli-blocking. Re commençons maintenant au premier pas de temps mais cette fois en divisant la case d'arrivée en trois cases de tailles  $dx/3$ . Comme le pic a une largeur nulle, il va être injecté dans une seule de ces trois cases. L'absorption ne dépend pas de la taille de la case mais de son occupation. Comme cette case a la même occupation que dans le premier cas, elle va aussi être remplie avec 5 électrons ce qui nous donne une occupation de la case

qui est différent du cas avec la case trois fois plus grande, ce qui implique un facteur de Pauli-blocking différent et une absorption différente. Dans le cas d'une arrivée d'électrons sans largeur dans une zone de la DEEL, on ne peut donc pas diminuer le nombre de cases jusqu'à convergence.

Cela nous indique que, de manière générale, chaque pic d'électrons qui est déplacé vers une zone de la DEEL doit nécessairement avoir une largeur<sup>1</sup> pour que le Pauli-blocking soit physique. De plus, dans le cas d'une faible largeur d'un tel pic, les cases à l'énergie finale de ce pic doivent être assez nombreuses pour que l'occupation de chaque case soit bien physique et que le Pauli-blocking soit bien quantifié.

#### 4.4.2 Effets de densité et lien solide-plasma

Pour le traitement des effets de densité nous adoptons les mêmes solutions que précédemment (Sec. 2.2.4) et nous avons donc deux paramètres qui sont l'API et le nombre  $n_{max}$ . Pour l'API nous utilisons la formule obtenue Sec. 3.2.2, en fonction de l'état de charge  $\xi$ , avec  $a=20$  eV ce qui donne

$$\Delta E(\xi)[eV] = 20(\xi - 3) + 60.6. \quad (4.31)$$

Regardons maintenant le cas des processus généralisés, qui font le lien entre taux solide et taux plasma, et qui sont gérés numériquement selon l'Éq. (2.40). Nous choisissons ici d'exprimer les taux des processus généralisés directement avec le taux plasma  $R^{pl}$ .

#### 4.4.3 Évolution de l'énergie interne et calcul d'une température effective

L'énergie interne du système est comme précédemment donnée par

$$E = E_{th} + E_l. \quad (4.32)$$

Précédemment (voir Sec. 2.2.2), le calcul de l'énergie interne se faisait à partir de l'énergie interne du pas de temps précédent et de l'absorption. L'énergie de liaison était calculée en sommant les énergies des configurations atomiques pondérées par leurs populations. Enfin l'énergie thermique était déterminée via l'Éq. (4.32). Ici nous avons accès directement à  $E_l$  avec comme précédemment

$$E_l = \sum E_c N_c. \quad (4.33)$$

Par contre ici l'énergie thermique est calculée avec

$$E_{th} = \sum_{k=1}^{N_{libres}} \epsilon_k f_k G(\epsilon_k) \Delta \epsilon, \quad (4.34)$$

ce qui nous permet de déterminer une température effective en inversant

$$E_{th} = n_e \int_0^{\infty} \epsilon f_{FD}(\epsilon, T_e) d\epsilon. \quad (4.35)$$

---

1. sa largeur minimum étant donnée par le principe d'incertitude d'Heisenberg

Nous pouvons remarquer que l'ionisation  $Z^*$  peut être calculée de deux manières différentes. L'ionisation se calcule à partir des populations atomiques selon

$$Z^* = \frac{\sum_c N_c Z_c}{n_i} \quad (4.36)$$

avec  $Z_c$  l'état de charge de la configuration  $c$ . L'ionisation se calcule également à partir des états libres selon

$$Z^* = \frac{\sum_k f_k G(\epsilon_k) \Delta \epsilon}{n_i} \quad (4.37)$$

#### 4.4.4 Schéma numérique

Nous linéarisons le système d'équation suivant les Éqs. (4.5) et (4.4) pour traiter simultanément et sur le même plan états liés et états libres. Le vecteur population  $\mathbf{P}$  de dimension  $N_{lies} + N_{libres}$  contient les vecteurs  $\mathbf{N}$  et  $\mathbf{f}$ . On met le système d'équations sous la forme

$$F_c = \Delta N_c - \Delta t(Q_c + Q_c^I + Q_c^{II} + Q_c^{III}) = 0 \quad (4.38)$$

et

$$F_k = \Delta f_k - \Delta t \left( \frac{S_k^I + S_k^{II} + S_k^{III}}{G(\epsilon_k) \Delta \epsilon_k} \right) = 0, \quad (4.39)$$

avec  $\Delta N_c = N_c(t + \Delta t) - N_c(t)$  et  $\Delta f_k = f_k(t + \Delta t) - f_k(t)$ . On a donc défini un vecteur fonction  $\mathbf{F}$  de même dimension que  $\mathbf{P}$ . L'algorithme de Newton-Raphson nous donne

$$\mathbf{J} \cdot \Delta \mathbf{P} = -\mathbf{F} \quad (4.40)$$

avec  $\mathbf{J}$  la matrice Jacobienne liée au vecteur fonction  $\mathbf{F}$  et  $\Delta \mathbf{P}$  le vecteur d'incrément de population. La matrice Jacobienne contient les dérivées partielles de  $\mathbf{F}$  par rapport aux populations.

On a ramené le problème à une résolution matricielle. À partir de  $\mathbf{F}^{(0)}$  et  $\mathbf{J}^{(0)}$  calculés à l'aide des populations du pas temps précédent on calcule un incrément de population  $\Delta \mathbf{P}$ . On peut ensuite calculer des nouvelles populations avec  $\mathbf{P}^{(1)} = \mathbf{P}^{(0)} + \Delta \mathbf{P}$ . On calcul ensuite  $\mathbf{F}^{(1)}$  et  $\mathbf{J}^{(1)}$ . À chaque pas de temps, on procède ainsi par itération jusqu'à ce que l'incrément de population  $\Delta \mathbf{P}$  soit assez faible. Pour le critère de convergence nous choisissons de comparer l'incrément à la somme des populations. On définit une valeur  $\epsilon$  tel que

$$\epsilon = \frac{\sum \Delta P}{\sum P}. \quad (4.41)$$

La convergence est atteinte dès que  $\epsilon < 10^{-5}$ .

#### 4.4.5 Conservation de l'énergie et du nombre de particules

Pour vérifier que l'énergie est bien conservée on calcule l'évolution de l'énergie de deux manières différentes pour comparaison.

D'une part, à la fin de chaque pas de temps on a  $\mathbf{N}(t + \Delta t)$  et  $\mathbf{f}(t + \Delta t)$ . On peut donc calculer  $E(t + \Delta t) = E_l(t + \Delta t) + E_{th}(t + \Delta t)$ .

D'autre part on calcule le dépôt d'énergie cumulé. Par exemple l'énergie déposée durant

un pas de temps  $\Delta t$  par photoionisation est calculée selon

$$\Delta E_{ph} = \sum_{c,k} N_c(t + \Delta t) P_{cc',k} (1 - f_k(t + \Delta t)) \times h\nu \times \Delta t \quad (4.42)$$

avec  $h\nu$  l'énergie du photon absorbée.

On peut également vérifier la conservation du nombre de particules en comparant les ionisations obtenues avec les Éqs. (4.36) et (4.37).



# Simulations du couplage entre cinétique des populations atomiques et cinétique hors-équilibre des électrons libres

---

Il n'existe à priori aucune expérience actuellement qui permette de mesurer ou de quantifier la thermalisation de la DEEL lors de l'interaction XFEL-solide. Pour pouvoir mettre en place une telle expérience, une étude théorique est tout d'abord nécessaire. Dans ce chapitre on commence l'étude de la thermalisation de la fonction de distribution d'électrons libres en se concentrant sur le rôle des processus atomiques élémentaires. Le terme de collision de l'Éq. (4.5) n'est donc pas implémenté ici.

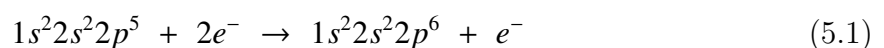
## 5.1 Interaction dans la gamme XUV

Nous considérons dans cette partie un rayonnement XFEL avec une largeur spectrale FWHM de 1% de l'énergie des photons [FLASH]. Pour des photons de 92 eV, cela correspond à 0.92 eV FWHM.

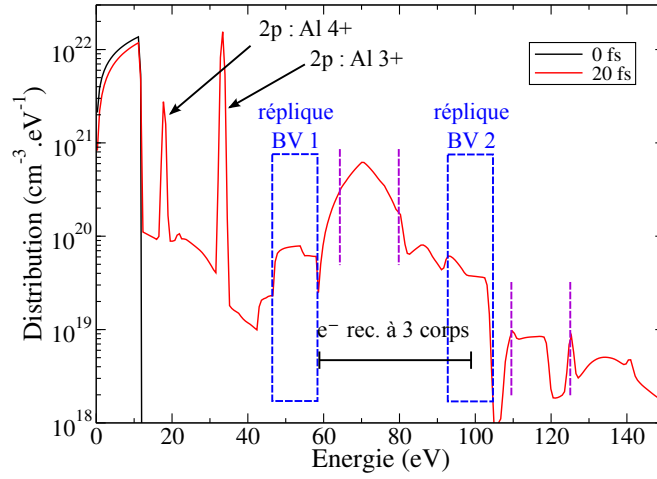
### 5.1.1 Équilibration de la distribution d'électrons libres due à la physique atomique

On commence dans cette partie par étudier le rôle de la physique atomique dans l'équilibration de la DEEL. Sur la Fig. 5.1 est représentée la DEEL dans le solide froid et celle obtenue pour  $t = 20$  fs pour  $h\nu_{XFEL} = 92$  eV,  $I = 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>,  $\tau_{pulse} = 20$  fs et avec  $n_{max} = 2$ . On rappelle que pour une énergie de photon de 92 eV, seuls les deux premiers états de charges sont accessibles par photoionisation.

À l'instant initial on reconnaît bien la bande de valence qui est décrite par une distribution de Fermi-Dirac à température quasi-nulle (remplie jusqu'à  $E_F$ ). Pour le temps  $t=20$  fs on voit apparaître des pics le long de la distribution. Comme montré sur la figure les deux premiers (grands) pics sont des photo-électrons issus de la couche 2p. Le deuxième pic est issu de la première photoionisation de la couche 2p et apparaît donc pour  $E = 92 - (72.7 - E_F) = 30.9$  eV. Le premier pic correspond à la deuxième photoionisation de la couche 2p pour une énergie d'ionisation de 77.5 eV. Entre 60 eV et 105 eV on voit apparaître des électrons de recombinaison à trois corps généralisée. Ces électrons sont issus des recombinaisons selon

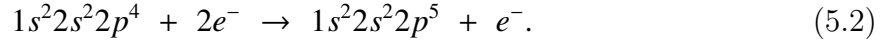






**Figure 5.1** – Fonction de distribution en énergie dans le solide froid ( $t=0$  fs) et pour  $t=20$  fs pendant l’interaction XFEL-aluminium telle que  $h\nu_{XFEL} = 92$  eV,  $I = 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>,  $\tau_{pulse} = 20$  fs FWHM. Le critère utilisé pour la sélection de niveaux est  $n_{max} = 2$ .

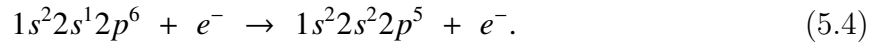
et



Les deux électrons libres en jeu dans la recombinaison ont globalement une énergie comprise entre 0 et 11.6 eV environ (les autres classes d’énergie sont presque vides). La conservation de l’énergie impose

$$\epsilon' + \epsilon'' + \chi = \epsilon \quad (5.3)$$

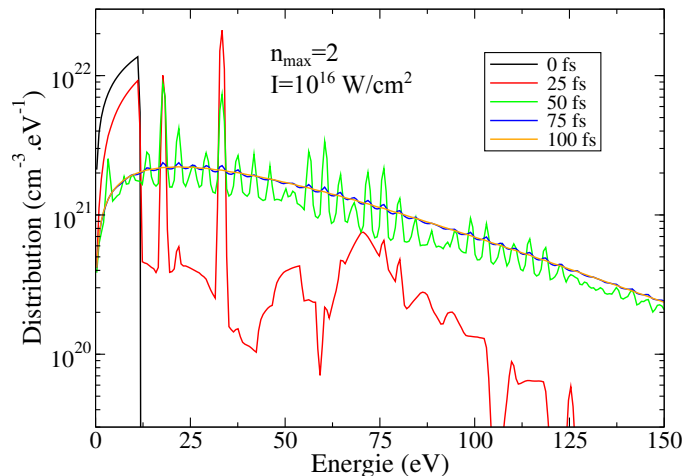
avec  $\epsilon'$  et  $\epsilon''$  l’énergie des électrons avant collision,  $\chi$  le potentiel d’ionisation et  $\epsilon$  l’énergie de l’électron diffusé. Pour la recombinaison selon Éq. (5.1) on obtient des électrons situés entre  $\epsilon \approx 61 + 2 \times 0 = 61$  eV et  $\epsilon \approx 61 + 2 \times 11.6 = 84$  eV. Pour la recombinaison selon Éq. (5.2) on obtient des électrons situés entre  $\epsilon = 78$  eV et  $\epsilon = 101$  eV. Cela explique les deux larges pics indiqués comme des électrons de recombinaison à trois corps sur la figure. Un autre processus pouvant produire des modifications dans la distribution est la désexcitation collisionnelle et notamment la désexcitation selon



La différence d’énergie entre ces deux configurations est  $\Delta E = 46.6$  eV. Un électron libre qui produit cette désexcitation est excité vers un état de plus haute énergie. La zone indiquée *réplique BV 1* sur la figure est ainsi l’image de la BV par cette désexcitation. En effet cette réplique est bien située à environ 45 eV de la zone originale. Également, on peut voir que la zone notée *réplique BV 2* est l’image de la zone *réplique BV 1* par la transition selon Éq. (5.4). Les deux répliques successives des deux principaux pics de photo-électrons sont aussi indiqués sur la figure par des traits verticaux violets.

Pour conclure la distribution est très accidentée à cause de ces répliques successives qui mélangent la distribution. Dans ce cas particulier où les photons ne peuvent produire que deux photoionisations successives, les répliques ne sont pas nombreuses car les transitions accessibles ne sont pas nombreuses. On peut déjà en déduire que dans beaucoup de situations, la distribution est rapidement trop complexe pour que l’on puisse identifier des structures.

Sur la Fig. 5.2 est représentée la DEEL pour différents temps et pour  $h\nu_{XFEL} = 92 \text{ eV}$ ,  $I = 10^{16} \text{ W/cm}^2$  et  $\tau_{pulse} = 20 \text{ fs}$ . On choisit ici un critère  $n_{max} = 2$ . On peut voir que

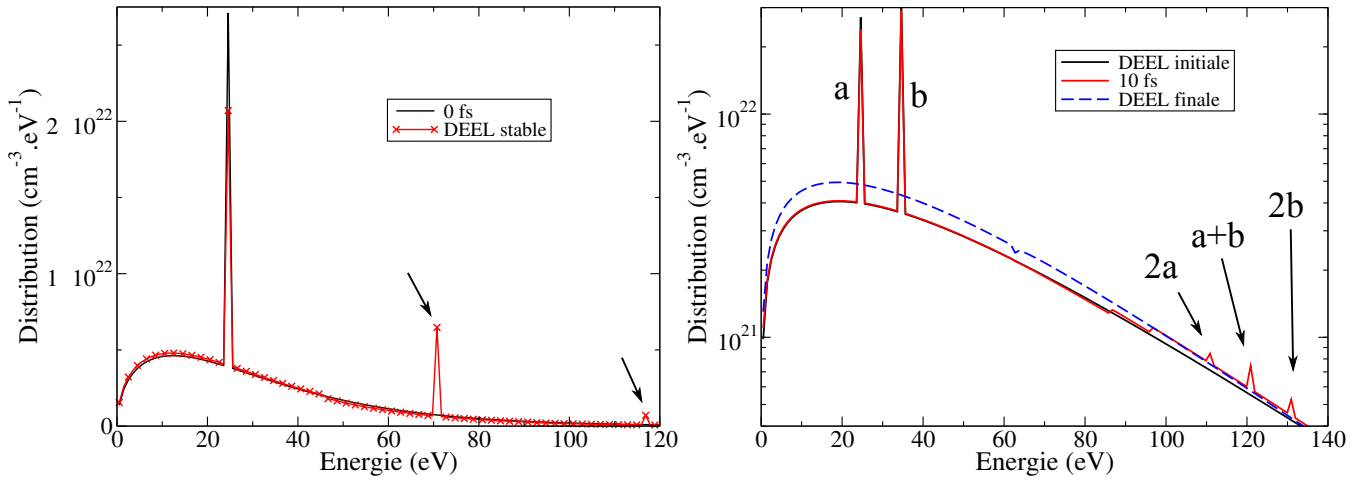


**Figure 5.2** – Évolution de la fonction de distribution en énergie pour différents temps ;  $h\nu_{XFEL} = 92 \text{ eV}$ ,  $I = 10^{16} \text{ W/cm}^2$ ,  $\tau_{pulse} = 20 \text{ fs}$  FWHM. Le critère utilisé pour la sélection de niveaux est  $n_{max} = 2$ .

les structures se multiplient pendant le reste de l'interaction. À la fin de la simulation la DEEL est entièrement équilibrée et est égale à une distribution de Fermi-Dirac (qui est équivalente à une distribution Maxwellienne compte tenu de la température atteinte). Deux mécanismes participent à cette équilibration : l'échange entre excitation et désexcitation collisionnelle et l'échange entre recombinaison à trois corps et ionisation collisionnelle.

Pour comprendre ces mécanismes on part d'une DEEL initiale bien choisie et on ne branche que le processus d'intérêt. On regarde par exemple l'effet de l'excitation/désexcitation collisionnelle selon  $1s^2 2s^2 2p^5 + e^- \rightleftharpoons 1s^2 2s^1 2p^6 + e^-$  et l'effet de l'ionisation collisionnelle/recombinaison à trois corps selon  $1s^2 2s^2 2p^6 + e^- \rightleftharpoons 1s^2 2s^2 2p^5 + 2e^-$ . Pour que ces processus aient un effet sur la DEEL on part d'une DEEL avec une température assez élevée. On ajoute ensuite sur cette DEEL des structures comme repère. Sur la Fig. 5.3 est montrée l'évolution d'une DEEL test quand on branche seulement le couple excitation/désexcitation collisionnelle à gauche (avec dans ce cas un seul pic test sur la DEEL) et quand on branche seulement le couple ionisation collisionnelle/recombinaison à trois corps à droite (avec dans ce cas deux pics tests). L'effet du couple excitation/désexcitation est de faire plusieurs images du pic (désignées sur la figure par des flèches), toutes espacées de  $\Delta E$  la différence d'énergie entre les deux configurations en jeu. On peut voir que l'échange entre ces deux processus inverses n'est pas suffisante pour que la DEEL s'équilibre. Cet effet peut être expliqué en remarquant que chaque classe d'énergie de la DEEL n'est couplée qu'à deux autres classes au maximum. Une située à  $+\Delta E$  et une à  $-\Delta E$  (si c'est possible). Si on ajoute beaucoup d'électrons dans une classe, ils ne pourront donc pas se répandre partout dans la distribution.

Pour le cas de l'équilibre entre ionisation et recombinaison à trois corps on peut voir que les pics ont complètement disparus sur la DEEL finale. Ce mécanisme semble très efficace pour mélanger la distribution. On a mis ici deux pics de référence notés  $a$  et  $b$  et situés à 25 eV et 35 eV respectivement. On peut voir que ces deux pics produisent trois répliques par recombinaison à trois corps dans la zone observée. La conservation de l'énergie nous donne  $\epsilon' + \epsilon'' + \chi_{cc'} = \epsilon$  avec  $\epsilon$  l'énergie de l'électron secondaire. On peut vérifier que le

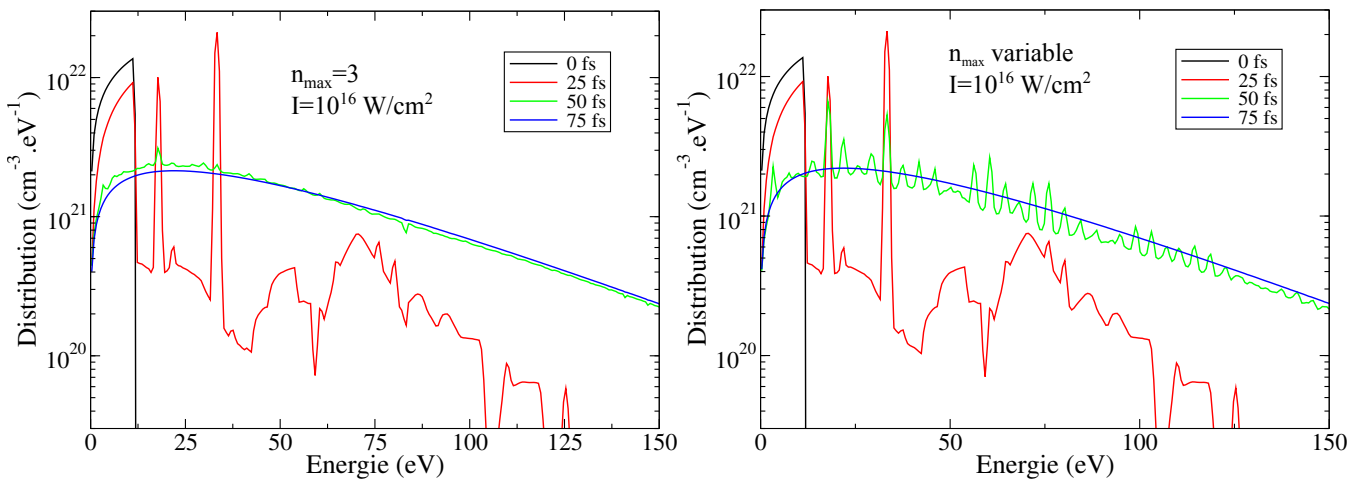


**Figure 5.3** – Évolution de la DEEL à partir d’une distribution arbitraire. (Gauche), seule l’excitation/désexcitation collisionnelle selon  $1s^22s^22p^5 + e^- \rightleftharpoons 1s^22s^12p^6 + e^-$  et la désexcitation selon son processus inverse sont branchées. Les flèches indiquent la position des répliques du pic test (voir texte). (Droite), seule l’ionisation collisionnelle selon  $1s^22s^22p^6 + e^- \rightleftharpoons 1s^22s^12p^5 + 2e^-$  et la recombinaison à trois corps inverse sont branchées.

premier des trois pics de droite est une combinaison de deux fois le pic  $a$ . Le deuxième pic est dû à  $a + b$  et le dernier à  $2 \times b$ . C’est ce couplage de trois classes d’énergie qui permet une thermalisation aussi efficace. Les trois pics secondaires vont également se propager et très vite on peut voir qu’un seul couple ionisation/recombinaison à trois corps va coupler presque toutes les classes entre elles. Ici la thermalisation se fait en 400 fs.

### 5.1.2 Influence de la sélection de niveaux liés

On regarde maintenant l’influence du nombre de niveaux inclus dans les calculs. Suivant l’étude faite Sec. 3.2 on étudie la thermalisation en fonction du critère  $n_{max}$  sur le nombre quantique principal. Sur la Fig. 5.4 est représentée l’évolution de la fonction de



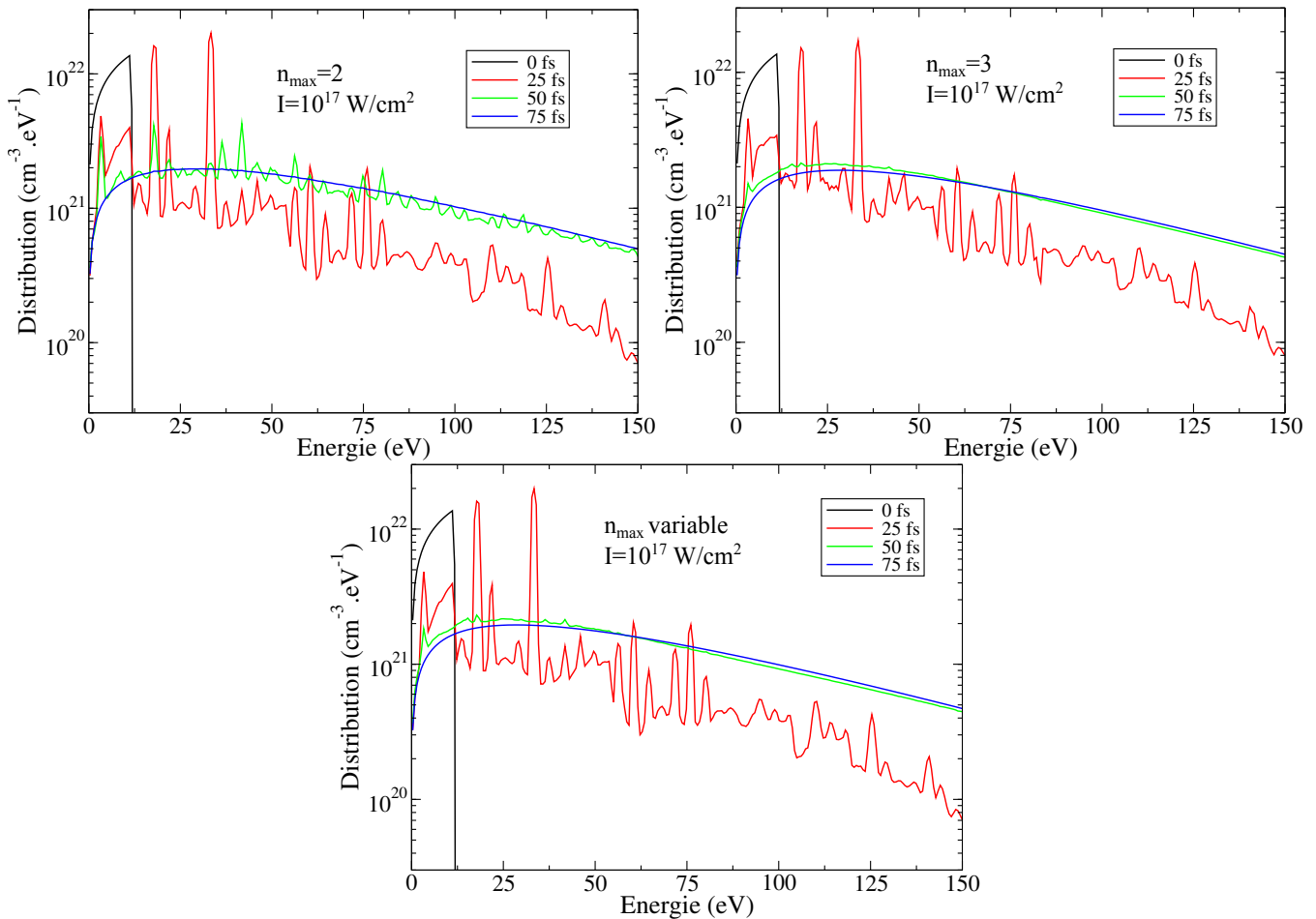
**Figure 5.4** – Évolution de la fonction de distribution en énergie pour différents temps ;  $h\nu_{XFEL} = 92 \text{ eV}$ ,  $I = 10^{16} \text{ W/cm}^2$ ,  $\tau_{pulse} = 20 \text{ fs}$  FWHM. Le critère utilisé pour la sélection de niveaux est  $n_{max} = 3$  (gauche) et  $n_{max}$  variable (droite).

distribution pour différents temps dans les mêmes conditions que sur la Fig. 5.2 mais

pour un critère  $n_{max} = 3$  à gauche et pour un critère  $n_{max}$  variable à droite. Pour un critère  $n_{max} = 3$  la thermalisation est terminée après un temps de l'ordre de 50 fs comparé à plus de 75 fs pour le cas  $n_{max} = 2$  de la Fig. 5.2. En augmentant  $n_{max}$  on ajoute des états excités au système et on augmente donc le nombre possible d'ionisation/recombinaison à trois corps et d'excitation/désexcitation ce qui permet une thermalisation plus efficace. Pour le critère  $n_{max}$  variable la thermalisation est très similaire au cas  $n_{max} = 2$ . Cela est dû au fait que l'énergie de photon de 92 eV n'est pas assez importante ici pour atteindre des états de charges pour lesquels le  $n_{max}$  est différent de 2 (voir tableau 2.3).

### 5.1.3 Influence de l'intensité

Sur la Fig. 5.5 est représentée l'évolution de la fonction de distribution pour différents temps dans les mêmes conditions que sur les Figs. 5.2 et 5.4 mais pour une intensité  $I = 10^{17} \text{ W/cm}^2$  (et pour différents critères  $n_{max}$ ). On peut voir que pour les trois critères



**Figure 5.5** – Évolution de la fonction de distribution en énergie pour différents temps ;  $h\nu_{XFEL} = 92 \text{ eV}$ ,  $I = 10^{17} \text{ W/cm}^2$ ,  $\tau_{pulse} = 20 \text{ fs}$  FWHM. Le critère utilisé pour la sélection de niveaux est  $n_{max} = 2$  (gauche),  $n_{max} = 3$  (droite) et  $n_{max}$  différent pour chaque état de charge (bas).

l'augmentation de l'intensité provoque une thermalisation plus efficace. Cela est dû au fait que le XFEL chauffe plus le solide, ce qui augmente l'état de charge et donc le nombre d'états excités, ce qui favorise la thermalisation. Dans ce cas on voit bien une différence entre  $n_{max} = 2$  et  $n_{max}$  variable.

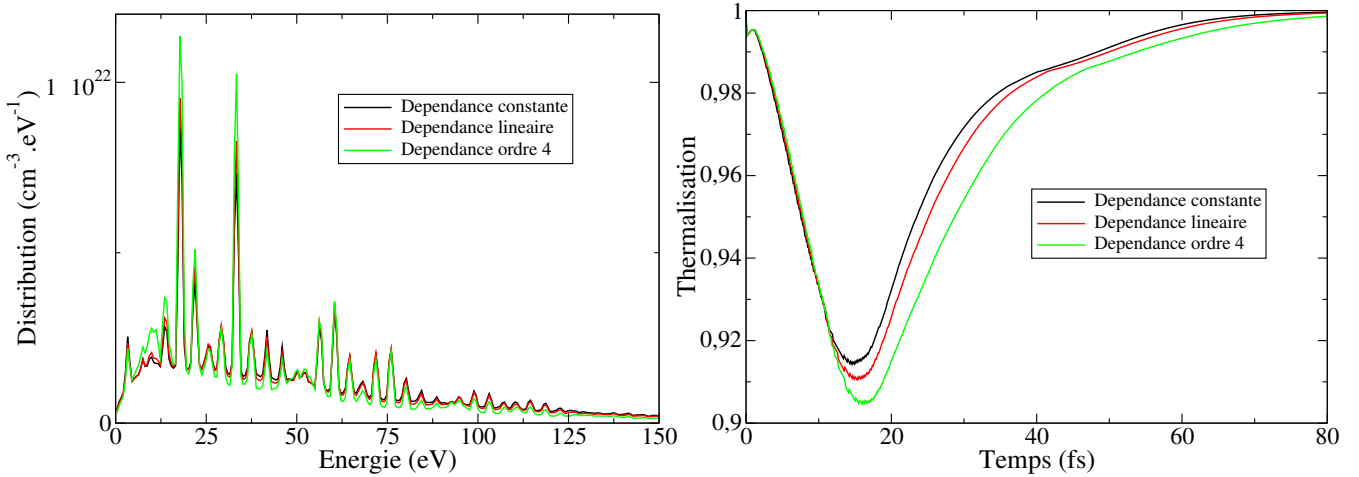
### 5.1.4 Influence de la section efficace différentielle d'ionisation collisionnelle

On regarde maintenant l'influence de la forme de la section efficace différentielle d'ionisation collisionnelle. En effet, jusqu'ici nous utilisons une dépendance constante selon Éq. (4.26). Pour cela on quantifie la thermalisation  $T$  de la DEEL selon

$$T = 1 - \frac{\sum_{k=1}^{N_{libres}} |f_k - f_k^{FD}|}{N_{libres}}, \quad (5.5)$$

où  $f_k^{FD} = 1/(1 + \exp((\epsilon_k - \mu)/kT))$  calculé à partir de la densité électronique et de la température effective de la distribution. Cette quantité est égale à 1 quand la DEEL est confondue avec une distribution de FD.

L'influence de la forme de la section efficace sur la thermalisation de la DEEL est étudiée sur la Fig. 5.6 pour  $h\nu_{XFEL} = 92 \text{ eV}$ ,  $I = 10^{17} \text{ W/cm}^2$ ,  $\tau_{pulse} = 20 \text{ fs}$  FWHM,  $n_{max}$  variable et pour les différentes formes de  $\frac{d\sigma_{ion}^{cc'}}{d\epsilon'}(\epsilon)$  données dans la Sec. 4.2. À gauche est représentée la DEEL obtenue à  $t=50 \text{ fs}$  et à droite est représentée l'évolution temporelle de la thermalisation  $T$ . On peut voir que la vitesse de thermalisation ne change que



**Figure 5.6** – Influence de la dépendance de la section efficace différentielle d'ionisation collisionnelle. Les paramètres de simulations sont  $h\nu_{XFEL} = 92 \text{ eV}$ ,  $I = 10^{17} \text{ W/cm}^2$ ,  $\tau_{pulse} = 20 \text{ fs}$  FWHM et  $n_{max}$  variable. À gauche, fonction de distribution à  $t=50 \text{ fs}$ . À droite, évolution temporelle de la thermalisation (voir texte).

légèrement avec la forme de la section efficace. Également, on remarque que les structures de la DEEL ne sont pas déformées quand on change de dépendance. On peut en conclure à priori que la dépendance constante de la section efficace est adaptée pour notre étude de l'interaction XFEL-solide.

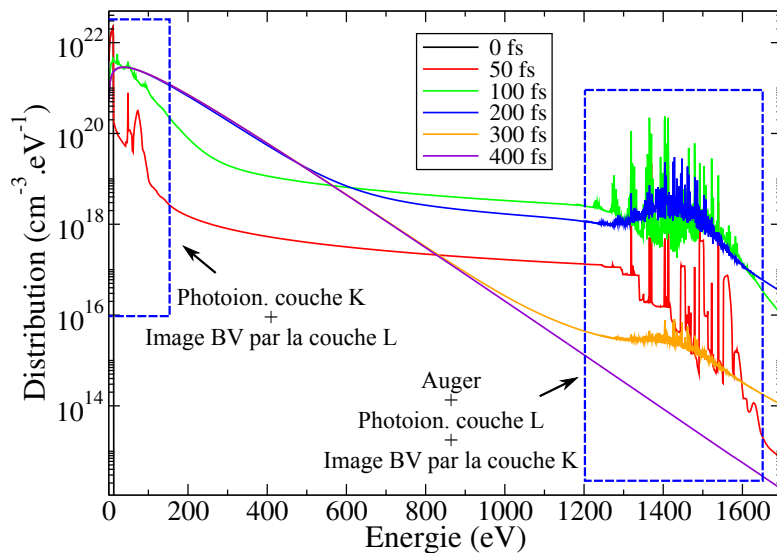
## 5.2 Interaction dans la gamme X

Nous étudions maintenant les mécanismes en jeu pendant la thermalisation de la DEEL sous irradiation XFEL dans la gamme X, pour des énergies de photons de 1.6 keV et 1.8 keV. On s'attend dans ce cas à obtenir une diversité plus importante de pics que dans la gamme XUV due à la possibilité de faire des trous en couche K. Notamment, les trous en couche K peuvent se recombiner via effet Auger "atomique" ce qui signifie que l'on doit

retrouver dans la DEEL des pics d'électrons Auger que l'on n'obtenait pas dans la gamme XUV<sup>1</sup>. De plus, on s'attend à obtenir des pics pour des énergies beaucoup plus importantes que dans la gamme XUV, ce qui signifie que la thermalisation doit être différente.

L'ensemble des simulations de cette section sont faites pour une intensité  $I = 10^{17} \text{ W/cm}^2$ , une durée d'impulsion de 80 fs, une largeur spectrale de 0.2% et un critère  $n_{max} = 2$ .

Sur la Fig. 5.7 est représentée la DEEL pour différents temps obtenues pour  $h\nu_{XFEL} = 1600 \text{ eV}$ . Nous pouvons voir que la DEEL est divisée en deux parties, une partie basse



**Figure 5.7** – Évolution de la fonction de distribution en énergie pour différents temps ;  $h\nu_{XFEL} = 1600 \text{ eV}$ ,  $I = 10^{17} \text{ W/cm}^2$ ,  $\tau_{pulse} = 80 \text{ fs}$  FWHM. Le critère utilisé pour la sélection de niveaux est  $n_{max} = 2$ .

énergie et une partie haute énergie. Pour se repérer il est pratique de regarder le spectre 2D de la Fig. 3.17 qui est obtenu dans les mêmes conditions. Avec une énergie de photons XFEL de 1600 eV une ionisation des ions  $Al^{3+}$  et  $Al^{4+}$  est possible. Les photo-électrons créés se situent donc dans la partie basse énergie car on se situe près des seuils d'ionisation. Les photo-électrons de couche L vont quant à eux se trouver dans la partie haute énergie car nous sommes loin des seuils de couche L.

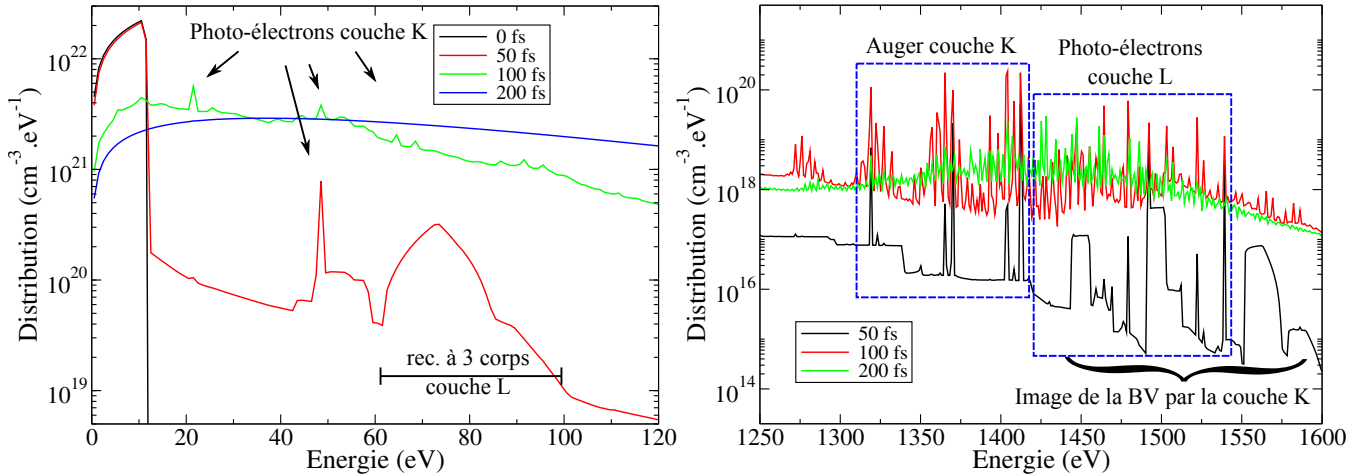
Sur la Fig. 5.8 sont représentées à gauche la partie basse énergie et à droite la partie haute énergie de la Fig. 5.7. Regardons d'abord la partie basse énergie. Nous pouvons reconnaître sur la DEEL les structures observées dans la gamme XUV sur la Fig. 5.1 et notamment les pics d'électrons de recombinaison à trois corps qui sont repérés sur la figure. On reconnaît également l'image de la BV par la désexcitation collisionnelle  $1s^2 2s^1 2p^6 + e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^5 + e^-$ . Ces éléments de la DEEL sont désignés par *image de la BV par la couche L* sur la Fig. 5.7.

Sur la figure 5.8 à gauche sont aussi désignés les pics de photo-électrons de la couche K. Par exemple le seuil de première ionisation de la couche K vaut environ 1550 eV. Les photo-électrons produits lors de cette ionisation sont donc éjectés proche de 50 eV ce qui

1. C'est le cas car les photons de 92 eV ne permettent pas de faire de trous en couche 2s. Avec des photons un peu plus énergétique, mais toujours dans la gamme XUV, des électrons Auger "atomiques" émis lors de la recombinaison de la couche 2s peuvent apparaître dans la DEEL

correspond au pic le plus important.

Regardons maintenant la partie haute énergie sur la droite de la Fig. 5.8. Cette por-



**Figure 5.8** – Partie basse énergie (gauche) et partie haute énergie (droite) de la Fig. 5.7.

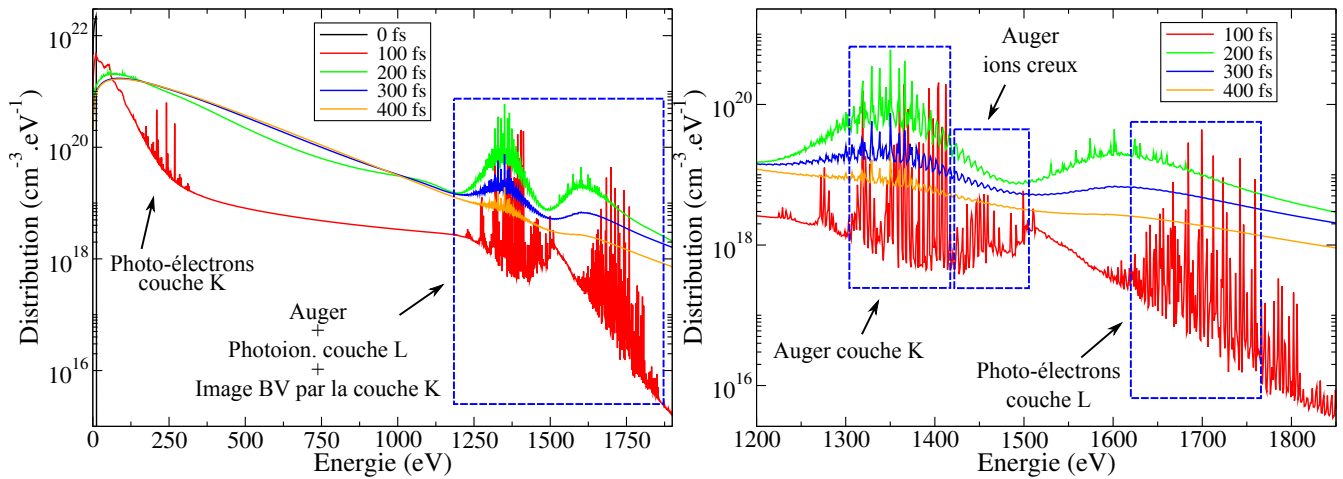
tion contient beaucoup plus de structures que la partie basse énergie. Nous retrouvons ici les électrons Auger issus de la relaxation de trous en couche K dans la zone indiquée sur la figure. Pour  $t=50$  fs le nombre de pics d'électrons Auger est assez faible. On peut vérifier que ces pics sont bien issus des premiers états de charges. On peut distinguer 3 zones dans ces pics. La première zone située à 1320 eV correspond à des processus Auger selon  $1s^2s^x2p^y \rightarrow 1s^22s^x2p^{y-2} + e^-$ . La deuxième située vers 1365 eV correspond à des processus Auger selon  $1s2s^x2p^y \rightarrow 1s^22s^{x-1}2p^{y-1} + e^-$ . La troisième située vers 1400 eV correspond à des processus Auger selon  $1s2s^22p^y \rightarrow 1s^22p^y + e^-$ . Ces trois zones sont encore discernables pour  $t=100$  fs mais des états de charges supérieurs ajoutent des contributions légèrement décalées par l'écrantage différent.

À droite des électrons Auger se situe la zone "d'arrivée" des photo-électrons de couche L. On peut vérifier que l'énergie de première ionisation de la couche 2p, qui vaut 58 eV, produit bien un pic situé à  $1600-58=1542$  eV.

Ensuite, comme précisé sur la figure par *image de la BV par la couche K*, on retrouve le même type de structures produites dans la partie basse énergie par la couche L et noté *image de la BV par la couche L*. Par exemple la recombinaison à trois corps selon  $1s2s^22p^6 + e^- \rightarrow 1s^22s^22p^5 + 2e^-$  a un seuil qui vaut 1548 eV. Nous retrouvons comme attendu une structure entre 1548 eV et  $1570 \text{ eV} \sim 1548 + 2 \times 11.6$ . Ces structures images de la BV disparaissent très vite car la BV disparaît très vite.

Nous regardons maintenant comment varient les structures quand on augmente l'énergie des photons. Sur la Fig. 5.9 est représentée à gauche l'évolution de la DEEL pour une énergie de photons XFEL de 1800 eV. Le spectre 2D de la Fig. 3.17 nous indique qu'à cette énergie beaucoup plus d'états de charge sont accessibles et que les ions creux sont aussi accessibles. La DEEL obtenue contient cette fois trois parties. Les photo-électrons issus de la couche K, qui sont désignés sur la figure, sont maintenant décalés et en plus grand nombre. On peut vérifier que la première d'ionisation de la couche K avec un seuil qui vaut 1548 eV produit bien des photo-électrons vers 250 eV.

À droite de la Fig. 5.9 est représentée la partie haute énergie de la DEEL. On distingue ici trois zones. On retrouve comme au dessus la partie due aux électrons Auger relaxant des



**Figure 5.9** – Évolution de la fonction de distribution en énergie pour différents temps ;  $h\nu_{XFEL} = 1800 \text{ eV}$ ,  $I = 10^{17} \text{ W/cm}^2$ ,  $\tau_{pulse} = 80 \text{ fs}$  FWHM. Le critère utilisé pour la sélection de niveaux est  $n_{max} = 2$ .

états avec un trou en couche K entre environ 1310 eV et 1425 eV. À droite de cette zone se situe la zone des électrons Auger issus d'ions creux. Pour vérification la transition selon  $2s^22p^6 \rightarrow 1s2s^22p^4 + e^-$  éjecte des électrons d'énergie égale à 1514 eV. La transition selon  $2s^22p^3 \rightarrow 1s2p^3 + e^-$  éjecte des électrons d'énergie égale à 1427.4 eV.

À plus haute énergie on trouve la zone où sont éjectés les photo-électrons issus de la couche L. Cette zone est beaucoup plus dense que la zone correspondante obtenue avec des photons de 1600 eV. On a ici beaucoup plus d'états de charge qui contribuent.

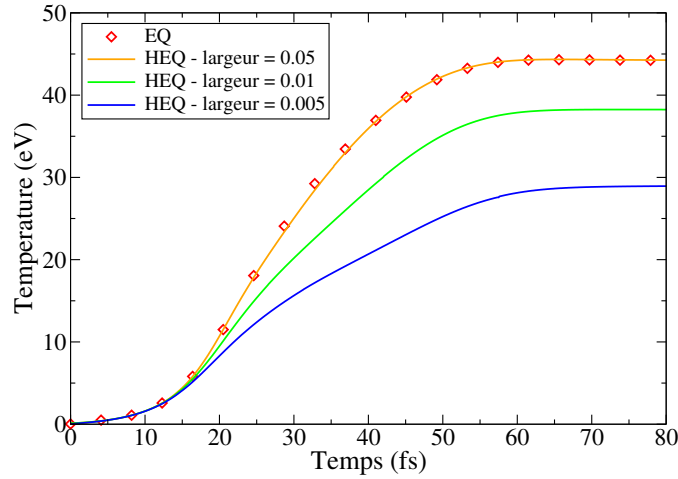
### 5.3 Comparaison avec le modèle supposant une thermalisation instantanée des électrons libres : influence de la largeur spectrale du XFEL

Nous avons vu au dessus que la thermalisation, même sans terme de collision électron-électron, peut être très efficace grâce à la contribution des processus atomiques collisionnels. On peut se demander si cette contribution à la thermalisation est assez efficace pour valider, dans certaines conditions, l'hypothèse de thermalisation instantanée. Dans cette partie nous comparons, dans la gamme XUV, le modèle avec une DEEL hors-équilibre, sans terme de collision électron-électron, au modèle qui suppose une thermalisation instantanée.

Sur la Fig. 5.10 est donnée l'évolution temporelle de la température électronique obtenue pour différentes largeurs spectrales (exprimées en fraction de l'énergie des photons XFEL) ainsi que celle obtenue dans les mêmes conditions avec le code décrit et utilisé dans la partie I (avec une DEEL à l'équilibre). On vérifie bien, comme précisé dans la Sec. 4.4.1, que la discrétisation est suffisamment fine pour bien décrire l'occupation des états. Ce critère est plus difficile à respecter pour le cas à faible largeur spectrale qui nécessite un maillage très fin (de l'ordre de 0.6 eV par case pour une largeur de 1% et de 0.3 eV par case pour une largeur de 0.5%).

Dans le cas d'une largeur spectrale de 1%, qui correspond à la largeur typique de l'installation FLASH, la température atteinte est différente de celle obtenue avec une DEEL à l'équilibre. On peut par contre voir que lorsqu'on augmente la largeur spectrale, l'évo-





**Figure 5.10** – Influence de la largeur spectrale sur l'évolution temporelle de la température et comparaison avec le modèle supposant une thermalisation instantanée pour  $I = 10^{16} \text{ W/cm}^2$ , une durée d'impulsion de 20 fs, une énergie de photons XFEL de 92 eV et pour différentes largeurs spectrales exprimées en fraction de l'énergie des photons XFEL.

lution de la température obtenue est confondue avec l'évolution obtenue avec une DEEL à l'équilibre. Si maintenant on diminue la largeur spectrale, la température atteinte à la fin de l'impulsion diminue.

Cet effet est dû au Pauli-blocking. Suivant la largeur spectrale, et donc la largeur du pic de photo-électrons, la zone qui accueille les électrons est plus ou moins grande. L'occupation de cette zone va donc varier avec la largeur spectrale, ce qui fait varier l'absorption. Cet effet n'est pas très important si l'occupation des états n'est pas très importante. En regardant l'occupation des états, on se rend compte que les pics de photo-électrons du cas hors-équilibre remplissent complètement les états libres. Cet effet peut par exemple se voir sur la Fig. 5.2. Les pics de photo-électrons atteignent une hauteur qui est dans le prolongement de la forme de la BV en racine. Cela indique que tous les états sont pleins. En conséquence, le taux de photoionisation selon Éq. (4.23) est bloqué par le Pauli-blocking dans les Éqs (4.14) et (4.11). En effet, le facteur donné par  $(1 - f_k)$  vaut 0 quand les états vers lesquels sont éjectés les électrons sont pleins.

Pour conclure on a montré que le caractère hors-équilibre de la DEEL a une influence directe sur l'absorption via les facteurs de Pauli-blocking. Les collisions électron-électron, non prises en compte ici, dépeuplent les pics de photo-électrons. On ne peut donc savoir, à ce point, à quelle intensité XFEL le remplissage des états par les photo-électrons commence à limiter l'absorption mais cet effet va forcément apparaître à haute intensité.

On peut par contre conclure que, pour une largeur spectrale assez importante, la saturation de l'absorption due au principe de Pauli est évitée grâce à l'étalement énergétique des photo-électrons. Dans ce cas, pour une intensité assez importante (qui permet d'obtenir une ionisation moyenne assez élevée), l'hypothèse de thermalisation est validée, sans l'aide des collisions électron-électron. Cette thermalisation est entièrement due à la physique atomique.

# Conclusion et perspectives

## 5.4 Conclusion

Ce travail de thèse suit l'apparition récente de ces nouvelles sources intenses et courtes de rayonnement dans la gamme X/XUV que sont les lasers X/XUV à électrons libres (XFEL). Contrairement aux sources optiques qui déposent principalement leur énergie via les électrons libres, les photons X/XUV déposent leur énergie dans la matière par la photoionisation de couches internes qui est suivie par l'éjection de photo-électrons, d'électrons Auger et d'électrons de recombinaison à trois corps dans la distribution d'électrons libres. Le chauffage se fait donc par l'intermédiaire de la structure atomique.

Avec une durée d'impulsion de l'ordre de la dizaine de femtosecondes, le rayonnement XFEL chauffe le solide sur des temps bien inférieurs à son temps de détente (de l'ordre de la picoseconde), produisant ainsi un chauffage isochoire. De plus, les fortes intensités des XFELs permettent de produire jusqu'à un trou par atome dans le solide irradié. Cet état exotique fortement hors équilibre thermodynamique local (HETL) appelé solide *creux* a une durée de vie de quelques femtosecondes. Les trous produits en couches internes se recombinent via effet Auger et recombinaison à trois corps en émettant des électrons à l'intérieur ou au dessus de la bande de valence. On a donc pendant l'interaction des populations atomiques et une distribution d'électrons libres HETL. Au-delà de la création d'échantillons de matière à haute densité d'énergie, l'interaction XFEL-solide produit des états exotiques dont l'étude est en elle même intéressante. Tout le défi ici est de calculer cette cinétique couplée HETL depuis le solide froid jusqu'au plasma.

Pour aborder l'étude de l'interaction XFEL-solide nous avons choisi l'aluminium pour lequel un grand nombre d'expériences a été réalisé.

Dans une première partie nous nous sommes concentrés sur la cinétique des populations atomiques en faisant l'hypothèse d'une thermalisation instantanée des électrons libres. Cette hypothèse nous a permis de décrire les électrons libres par une densité et une température. Dans ce cadre, la cinétique des populations atomiques, dans la matière sous irradiation XFEL, peut être calculée à l'aide d'un modèle collisionnel radiatif. Ce modèle nécessite le calcul des niveaux d'énergie (des états stationnaires du système électrons-noyau) et des taux associés aux processus couplant ces niveaux, depuis le solide jusqu'au plasma. Notamment, l'hybridation des orbitales externes en une structure de bande dans le solide froid doit être prise en compte.

Les métaux simples comme l'aluminium ont une structure de bande qui est une unique bande de valence/conduction dont la densité d'état est très proche de celle d'un gaz d'électrons dégénérés. Pour établir un modèle collisionnel radiatif continu nous avons choisi de décrire l'aluminium comme un plasma froid avec 3 électrons dans la distribution d'électrons libres que nous modélisons par une distribution de Fermi-Dirac dépendant de la température et de la densité.

Chaque processus élémentaire dans l'état solide est ainsi vu comme un processus plasma. Pour une partie de ces processus le lien entre solide et plasma est évident. Par exemple une

transition radiative entre des niveaux liés de couches internes est clairement défini depuis le solide froid jusqu'au plasma dilué. Pour les processus solide mettant en jeu la BV, ce lien avec le plasma est moins évident. Nous avons vu par exemple que l'effet Auger CVV dans le solide froid devient une recombinaison à trois corps avec notre approche plasma. Nous avons donc identifié un lien entre processus du solide et processus plasma. Dans le cadre de cette description unifiée, nous avons défini les processus reliés par le terme de processus "généralisés". Par exemple la recombinaison à trois corps généralisée permet de décrire, avec une approche plasma, l'effet Auger CVV dans le solide froid et sa transition progressive vers la recombinaison à trois corps classique pour les hautes températures.

Le calcul de la cinétique des populations atomiques, avec notre approche plasma unifiée, nécessite le calcul des taux, sections efficaces et niveaux d'énergies en fonction de la densité et de la température. Nous avons vu que, bien que des approches de type champ central avec contribution du plasma existent, leur couplage avec un modèle HETL est très complexe. Nous avons donc choisi d'utiliser une approche d'atome isolé "perturbée" de manière à prendre en compte l'effet de l'environnement d'un plasma dense.

Tout d'abord la prise en compte de la dégénérescence des électrons libres se fait avec l'utilisation d'une distribution de Fermi-Dirac (à la place de l'utilisation standard d'une distribution de Maxwell-Boltzmann) ainsi que l'introduction cohérente du principe de Pauli au niveau des sections efficaces. Nous avons pu vérifier que les taux ainsi calculés respectent bien les relations thermodynamiques (microréversibilité, équilibre détaillé...).

La comparaison entre les taux obtenus à faibles températures et des taux solides issus de la littérature montre d'une part que la statistique de Fermi-Dirac est primordiale à faible température. En effet la divergence des taux Maxwelliens de certains processus collisionnels est complètement supprimée à faible température et permet de se rapprocher fortement des taux solides de référence. D'autre part, nous avons vu que, même si les taux Fermi-Dirac sont en bien meilleur accord avec les taux solides que les taux Maxwelliens, la différence entre approche solide et approche plasma froid est non-négligeable. Pour améliorer l'approche plasma nous avons donc introduit l'utilisation d'un formalisme de probabilité qui relie les processus solide et les processus plasma au niveau de leur taux. Le taux solide doit dans ce cas être issu d'expériences ou de calcul de physique du solide dédiés.

Le système d'équations du modèle collisionnel radiatif généralisé (MCRG) a été couplé à l'évolution de l'énergie interne électronique pour fermer le système et calculer l'évolution de la température et de la densité électronique. Les ions sont considérés immobiles, à température nulle. En effet, avec des durées d'impulsion de l'ordre de la dizaine de femtosecondes, toute la physique HETL de l'interaction a lieu à densité ionique constante. Nous avons ainsi obtenu un modèle qui permet de calculer le chauffage isochoire, du solide au plasma à densité du solide, dans lequel la cinétique des populations atomiques permet de calculer le terme source d'énergie.

Le code ainsi développé a été appliqué dans les conditions expérimentales de l'installation FLASH c'est à dire dans la gamme XUV. Dans la gamme XUV seule la couche L est accessible par les photons et dans le cas d'intérêt principal, avec des photons de 92 eV, seule la couche 2p peut être photoionisée. Dans ce cas les trous produits par photoioni-

sation ne peuvent être recombines que par recombinaison à trois corps généralisée ou par recombinaison radiative. Notre MCRG nous a permis d'expliquer le phénomène de transparence induite à haute intensité, observé expérimentalement sur l'installation FLASH avec des photons de 92 eV. Nous avons vu que la transparence est due à l'équilibre entre recombinaison à trois corps, ionisation collisionnelle et photoionisation. Notamment, la transparence apparaît à haute intensité quand la recombinaison à trois corps sature et ne permet plus de recombinaison assez vite des électrons libres.

Nous avons pu faire trois comparaisons avec des expériences.

La version 1D (sans détente) du code nous a permis de reproduire une courbe de transmission expérimentale en fonction de l'intensité.

Le module d'émission radiative du code nous a aussi permis de reproduire la tendance de la variation de spectres de fluorescence de la bande de valence avec l'intensité XFEL.

Enfin, nous avons montré que la température électronique obtenue avec notre code est cohérente avec une température déduite expérimentalement par spectroscopie.

Nous avons également utilisé notre code dans la gamme X, dans les conditions expérimentales de l'installation LCLS. Dans la gamme X des trous en couches internes apparaissent et donc de l'effet Auger atomique, en plus de la recombinaison à trois corps généralisée et de la recombinaison radiative. Le spectre de fluorescence est aussi beaucoup plus riche. On peut ainsi observer la série des  $K_\alpha$  (issues de la recombinaison de  $K^1$ ) et la série des  $K_\alpha^C$  issues de la désexcitation des ions creux (de type  $K^0$ ). L'intensité de ces raies varie fortement avec les propriétés du rayonnement et particulièrement avec l'énergie des photons XFEL. Nous avons ensuite fait deux comparaisons avec des expériences.

Nous avons vu que le regroupement de ces spectres, obtenus pour des énergies de photons XFEL variables, en spectres de fluorescence 2D permet un nouveau type d'étude spectroscopique globale. À la place d'une comparaison classique entre des spectres simples, avec pour critère les rapports de raies ou les largeurs de raies, on peut comparer les structures générales des spectres 2D. Nous avons ainsi présenté une méthode spectroscopique qui consiste en la comparaison de spectres 2D simulés pour différents paramètres de simulation, à un spectre 2D expérimental. Pour les paramètres de simulations nous avons isolé deux paramètres, la pente de l'abaissement du potentiel d'ionisation (API) et le nombre quantique  $n$  maximum. Nous avons ainsi pu étudier le spectre 2D expérimental et en déduire des informations sur les effets de densités. Nous avons montré que, dans l'aluminium à densité du solide, la couche M est très perturbée par la densité. Cette étude nous a aussi permis d'obtenir une estimation de l'abaissement du potentiel d'ionisation.

Une comparaison avec la transmission expérimentale en fonction de l'énergie de photon, dans la gamme X, a ensuite été faite grâce à la version 1D du code. Nous avons ici pu vérifier la formule d'API obtenue avec l'étude spectroscopique 2D.

Dans une seconde partie, nous nous sommes intéressés à l'hypothèse de thermalisation instantané des électrons libres faites dans le MCRG et dans la plupart des descriptions théoriques dans la littérature. L'interaction XFEL-solide produit une éjection massive de photo-électrons, d'électrons Auger et d'électrons de recombinaison à trois corps, dans et au dessus de la bande de valence, sur une échelle femtoseconde. Les collisions électron-électron, qui sont (principalement) responsables de la thermalisation de ces électrons avec la bande de valence, se font sur une échelle de temps qui est de l'ordre du temps typique

d'éjections des électrons liés. On peut donc prévoir une déformation de la distribution de Fermi-Dirac initiale, présente dans le solide froid, avec la présence de pics, plus ou moins nombreux. Un calcul propre de la cinétique des populations atomiques couplée à la cinétique HETL des électrons libres est nécessaire pour évaluer l'influence du caractère HETL de la distribution d'électrons libres (DEEL) sur la cinétique des populations atomiques et sur l'absorption.

Dans ce but nous avons développé un second modèle qui est une généralisation du MCRG qui permet de suivre la cinétique des populations atomiques couplée à la cinétique des électrons libres. On a ainsi obtenu un système d'équations couplant les électrons liés, regroupés en niveaux atomiques, aux électrons libres décrits par une distribution en énergie (distribution en énergie d'électrons libres (DEEL)) discrétisée. L'ingrédient supplémentaire à fournir est le terme de collision électron-électron.

Le problème complexe de cette cinétique couplée a été abordée en nous concentrant sur le rôle des processus atomiques élémentaires. Nous avons vu avec le MCRG que la recombinaison à trois corps et l'ionisation collisionnelle ont un rôle très important pendant l'interaction XFEL-solide. On veut ici étudier l'effet de ces deux processus, ainsi que celui des autres processus, sur l'évolution de la DEEL. Notamment, alors que la photoionisation déforme la distribution, on s'attend à ce que les autres processus collisionnels mélangent la DEEL. Aucun terme de collision électron-électron n'a donc été inclu.

Nous avons montré que les processus atomiques peuvent être très efficaces pour thermaliser la DEEL. Particulièrement, le couple recombinaison à trois corps/ionisation collisionnelle thermalise très efficacement la DEEL. Cela est dû au fait que ces deux processus couplent trois niveaux libres (et deux niveaux liés) et redistribuent donc très efficacement les pics et structures de la DEEL. Nous avons vu également que, plus l'état de charge est élevé, plus le nombre de couple de recombinaison à trois corps/ionisation collisionnelle (mais également d'excitation/désexcitation collisionnelle) est élevé et donc plus la thermalisation est efficace.

L'influence de l'énergie des photons XFEL s'est révélée également très influence sur l'évolution de la DEEL. Plus l'énergie est importante plus on augmente les possibilités d'ionisation et donc plus on augmente le nombre et la diversité des pics dans la DEEL. Dans la gamme X des structures dues à la photoionisation de la couche K sont produites, distinctes des structures dues à la photoionisation de la couche L. Des structures dues à la recombinaison de trous en couche K apparaissent également, distinctes des structures dues à la recombinaison de trous en couche L. Enfin, à haute énergie des structures dues à la recombinaison d'*ion creux* sont produites.

Nous avons ensuite pu voir que, dans certaines conditions, la haute intensité des XFELs, dans la gamme XUV, permet de produire des pics de photo-électrons assez intenses pour remplir complètement la DEEL dans l'intervalle d'énergie ce pic. Le principe de Pauli (dans notre modèle via le facteur de Pauli-blocking) ne permet alors plus l'arrivée d'électrons supplémentaires dans cette zone, ce qui induit une diminution de l'absorption. Nous avons vu qu'en augmentant la largeur spectrale du XFEL, et donc l'étalement en énergie des pics de photo-électrons, cette saturation peut être évitée. Nous avons ainsi mis en évidence une variation non négligeable de l'absorption avec la largeur spectrale du rayonnement incident.

Nous avons ensuite vu que, pour une largeur spectrale assez importante (pour éviter la sa-

turation due au principe de Pauli) et dans le cas d'une assez haute intensité (ce qui favorise l'efficacité de la thermalisation due aux processus atomiques collisionnels), la contribution des processus atomiques collisionnels est suffisante (sans les collisions électron-électron) pour valider l'hypothèse de thermalisation instantanée.

Pour conclure sur ces résultats de simulations, nous avons montré avec ce modèle cinétique l'importance des processus atomiques sur l'évolution de la DEEL. Notamment, nous avons vu que le caractère hors-équilibre de la DEEL peut avoir une influence directe sur le dépôt d'énergie à travers le remplissage des états libres et le principe de Pauli.

## 5.5 Perspectives

Une perspective ici est bien sûr l'introduction du terme de collision électron-électron donné par l'Éq. (4.9) pour étudier de manière quantitative l'importance des collisions électron-électron par rapport aux processus atomiques collisionnels et ainsi étudier la validité de l'hypothèse de thermalisation instantanée. Les collisions électrons-électrons accélèrent la thermalisation mais en augmentant l'intensité XFEL on peut forcément atteindre un régime où la DEEL est fortement hors-équilibre pendant une grande partie de l'interaction. Ce régime serait atteint pour des taux de photoionisation grands devant le taux de collision électron-électron. Dans ce cas des traces de ce caractère hors-équilibre peuvent apparaître sur un spectre d'émission et pourraient permettre de mettre en évidence expérimentalement l'équilibration de la DEEL.

Pour les conditions expérimentales dans lesquelles l'influence du caractère HETL de la DEEL est mise en évidence, un couplage du modèle du chapitre 4 dans le code hydrodynamique 1D de la Réf. [Peyrusse 2012], pour les premières dizaines de femtosecondes, est une perspective de ce travail. Ce code servirait donc dans ce cas (comme le fait le modèle collisionnel radiatif actuellement couplé) à calculer le dépôt d'énergie XFEL, l'émission radiative du plasma ainsi que l'ionisation moyenne.

Une amélioration du module d'émission radiative est également nécessaire pour les deux modèles.

Enfin, on peut aussi mentionner le fait que l'approche plasma généralisée jusqu'au solide froid développée ici peut être utilisée dans d'autres conditions expérimentales. Notamment, les deux codes développés peuvent être utilisés dans des conditions où le XFEL est utilisé en sonde, couplé par exemple à une source optique utilisée comme pompe. Le XFEL est utilisé dans ce cas pour obtenir des informations sur le plasma. En changeant le délais entre la pompe et la sonde on peut ainsi suivre la détente de la matière. Le principe est détaillé dans les Réfs. [Rosmej 2007a, Rosmej 2007b]. Une telle expérience a d'ailleurs été réalisée [Rosmej 2016]. Le XFEL fait des trous en couches internes dans le plasma, à un certain délai pompe-sonde. Ces trous ont une durée de vie typique de l'ordre de dix femtosecondes et allument pendant cette durée une partie du spectre qui est normalement éteinte. Cette méthode est désigné par le terme *switch* ou *interrupteur*. Une grande partie des spectres est émise durant l'ensemble de la durée de vie du plasma et intègrent (au moins sur 1 ps pour les caméras streak) donc une variation très importante des paramètres plasmas. L'*interrupteur* créé par le XFEL permet de produire de l'émission qui est intégrée sur une très courte durée. Il est d'ailleurs dans ce cas encore plus avantageux

de produire de l'émission  $K_\alpha^C$  d'ion creux dont la durée de vie est plus courte. Les spectres ainsi produits, couplés à des simulations faites avec les méthodes présentées dans cette thèse, permettent d'obtenir des informations sur la matière, sur les effets de densités, etc... Comme cela a été le cas avec l'étude spectroscopique 2D présentée dans cette thèse, ce type de comparaison avec l'expérience permet d'améliorer les modèles théoriques.

Une autre possibilité offerte par les XFELs est la diffusion Compton – qui permet de remonter à la température et à la densité électronique – utilisée en parallèle avec un spectromètre pour obtenir également des spectres d'émission. La combinaison de ces deux diagnostics avec des codes d'interaction XFEL-matière permet des études encore plus poussées.

# Annexe





# Densité d'état d'un gaz d'électrons libres dégénérés

---

L'espace des phases est quantifié tel que l'aire associée à un état est donné par  $\delta x \times \delta p_x = h$ . Le nombre d'état dans un volume de l'espace des phases est donc donné par

$$g(p)dp = \frac{\Delta x \Delta p_x}{h} \frac{\Delta y \Delta p_y}{h} \frac{\Delta z \Delta p_z}{h} \quad (\text{A.1})$$

$$= \frac{\Delta V}{h^3} 4\pi p^2 dp. \quad (\text{A.2})$$

La densité d'états par unité d'impulsion et par unité de volume est donc donnée par

$$g(p) = \frac{4\pi p^2}{h^3} \quad (\text{A.3})$$

Nous définissons à partir de cette expression la densité d'état par unité d'énergie  $\epsilon$  dans un volume égal à l'inverse de la densité électronique

$$g(\epsilon) = \frac{2}{(2\pi)^2 n_e} \left( \frac{2m}{\hbar^2} \right)^{3/2} \sqrt{\epsilon}, \quad (\text{A.4})$$

où le facteur 2 tient compte de tenir compte du spin. Cette densité d'état permet de définir une distribution de Fermi-Dirac selon

$$f_{FD}(\epsilon, T_e) = \frac{g(\epsilon)}{1 + e^{-(\epsilon - \mu)/kT}}, \quad (\text{A.5})$$

telle que

$$\int_0^\infty f_{FD}(\epsilon, T_e) d\epsilon = 1. \quad (\text{A.6})$$

On définit également une densité d'état par unité de volume et d'énergie notée  $G(\epsilon)$  telle que

$$G(\epsilon) = \frac{2}{(2\pi)^2} \left( \frac{2m}{\hbar^2} \right)^{3/2} \sqrt{\epsilon} \quad (\text{A.7})$$



# Détails numériques

---

## B.1 Abaissement du potentiel d'ionisation

On détaille dans cette section les formules d'API utilisée dans les simulations. **Section 3.1**

Le seuil de seconde ionisation de la couche 2p est situé autour de 93 eV [Dufour 1976] ce qui correspond à une énergie d'ionisation  $\chi = 93 \text{ eV} - E_F = 81.4 \text{ eV}$ . L'énergie d'ionisation correspondante dans l'atome isolé vaut  $\chi_{AI} = 154.7 \text{ eV}$ . On obtient donc un API de  $154.72 - 81.4 = 73.3 \text{ eV}$ . Les facteurs  $a$  et  $b$  de l'API sont donc fixés avec la valeur  $\Delta E(3)^{2p} = 57.2 \text{ eV}$  pour l'état de charge  $\xi = 3$  et la valeur  $\Delta E(4)^{2p} = 73.3 \text{ eV}$  pour  $\xi = 4$ . On obtient

$$\Delta E(\xi)[\text{eV}] = 16.1(\xi - 3) + 57.2. \quad (\text{B.1})$$

### Section 3.2.1

Nous fixons ici  $\Delta E(3)^{1s} = 60.6 \text{ eV}$  et  $\Delta E(4) = 73.3 \text{ eV}$  ce qui permet d'obtenir

$$\Delta E(\xi)[\text{eV}] = 12.7(\xi - 3) + 60.6. \quad (\text{B.2})$$

**Chapitre 5** Dans ce chapitre nous utilisons la formule obtenue Sec. 3.2.2 avec  $a=20 \text{ eV}$  ce qui donne

$$\Delta E(\xi)[\text{eV}] = 20(\xi - 3) + 60.6. \quad (\text{B.3})$$

## B.2 Code couplant la cinétique des populations atomiques à la cinétique des électrons liés

### B.2.1 Intégration numérique des taux

Numériquement on n'a pas besoin de calculer les intégrales comme elles sont détaillées dans la Sec. 4.1.3. Pour chaque couple de configuration  $c$  et  $c'$ , et pour chaque processus couplant ces deux niveaux, on intègre suivant les intégrales de type  $Q$ . Chaque élément de l'intégrale permet donc de calculer une partie des termes  $Q_c$  et  $Q_{c'}$ . Lors de cette intégration, si un niveau libre  $k$  est vidé ou rempli par ce processus on calcule simultanément une partie du terme  $S_k$  correspondant. Pour les processus mettant en jeu la DEEL, on a choisi de séparer l'intégration en quatre parties

- A) excitation/déexcitation collisionnelle
- B) photoionisation
- C) ionisation collisionnelle, recombinaison à trois corps et recombinaison radiative
- D) effet Auger et capture résonante

Pour les processus d'émission spontanée/stimulée et de photoabsorption, il n'y a pas d'intégration sur la DEEL.

Le regroupement de processus pour l'intégration permet de réduire le temps de calcul en partageant les boucles autant que possible.

### Partie A)

L'intégration de  $C$  et  $D$  se fait à partir de  $\epsilon \sim \chi_{cc'}$  et  $\epsilon' = 0$ . On fait donc une boucle de  $k' = 0$  jusqu'à  $k' = N_{libres}$  avec  $k$  tel que  $\epsilon_k - \epsilon'_k = \chi_{cc'}$ .

### Partie B)

On intègre entre deux bornes  $k_{min}$  et  $k_{max}$ . On choisi ces deux bornes telles que  $\phi(\epsilon_{k_{min}/max}) \sim 10^{-3}$ .

### Partie C)

Pour cette partie l'intégration met en jeu trois niveaux  $k$ ,  $l$  et  $m$ . On définit  $k$  comme le niveau libre qui est recombinaison par recombinaison radiative. L'ionisation se fait suivant  $m \rightarrow k, l$  et la recombinaison à trois corps suivant  $k, l \rightarrow m$ . L'indice  $k$  est donc en commun pour les trois processus. On va pouvoir intégrer dans un premier temps sur l'indice  $k$ . Dans cette boucle on calcule la partie liée à la recombinaison radiative mais on fait également une seconde boucle à l'intérieur sur l'indice  $l$ . On a donc

#### Boucle sur $k$

rec. rad.

#### boucle sur $l$

ionis. coll. et rec. à 3 c.

#### fin de boucle sur $l$

#### fin de boucle sur $k$

### Partie D)

L'effet Auger éjecte un électron avec une certaine incertitude  $\Delta E$  donnée par [Cowan 1981]

$$\Delta E = \hbar\Gamma \tag{B.4}$$

avec  $\Gamma$  le taux Auger. Pour la capture résonante, la capture se fait à partir de ce même intervalle d'énergie. On intègre donc entre  $k_{min} = \chi_{cc'} - \frac{\Delta E}{2}$  et  $k_{max} = \chi_{cc'} + \frac{\Delta E}{2}$

## B.2.2 Parallélisation

La parallélisation de l'algorithme peut-être très avantageuse. Pour la résolution matricielle on peut utiliser directement des solveurs parallélisés. L'autre partie qui est intéressante à paralléliser est la partie qui calcule les termes de couplage et surtout les termes  $Q^{III}$  et  $S^{III}$  qui contiennent la recombinaison à trois corps et l'ionisation collisionnelle. En effet les doubles boucles dans ces termes sont très coûteuses en temps de calcul.

La parallélisation est à priori difficile car chaque boucle est indépendante mais doit écrire sur les mêmes tableaux contenant  $\mathbf{F}$  et  $\mathbf{J}$ . La solution retenue est de créer une copie de ces deux tableaux par tache parallèle. À la fin de la zone parallèle les tableaux locaux sont tous ajoutés dans  $\mathbf{F}$  et  $\mathbf{J}$ .

# Processus élémentaires de physique atomique

---

## C.1 Processus élémentaires

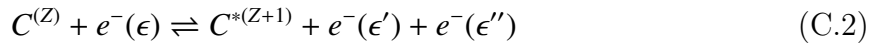
Les processus intégrés dans les éléments de matrice  $W$  de l'Éq. (2.1) (et dans la matrice des taux de l'équation (2.55)) sont les suivants.

**Excitation/désexcitation collisionnelle** : un électron libre fait une collision avec un atome et fait passer un électron vers un niveau de plus haute énergie



avec  $\epsilon$  et  $\epsilon'$  l'énergie initiale et finale de l'électrons libre. Ces deux énergies sont reliées, pour ces deux processus inverses, par  $\epsilon = \epsilon' + \Delta E_{cc'}$  où  $\Delta E_{cc'} = E_{c'} - E_c$  et  $E_c$  et  $E_{c'}$  l'énergie des niveaux  $C^{(Z)}$  et  $C^{*(Z)}$ .

**Ionisation collisionnelle/recombinaison à trois corps** : un électron libre fait une collision avec un atome et ionise un électron lié.



avec  $\epsilon$  l'énergie de l'électron incident et  $\epsilon'$  et  $\epsilon''$  l'énergie des deux électrons diffusés (indiscernabilité de l'électron incident et de l'électron ionisé). Pour ces deux processus inverses, les énergies des électrons sont reliées par  $\epsilon = \epsilon' + \epsilon'' + \chi$  avec  $\chi$  le potentiel d'ionisation de  $C^{(Z)}$  vers  $C^{*(Z+1)}$ .

**photoionisation/recombinaison radiative** : un photon ionise un électron lié



avec  $h\nu$  l'énergie du photon incident et  $\epsilon$  l'énergie du photo-électron  $e_{ph}^{-}$  éjecté. À noter que seule la photoionisation induite par le rayonnement X-XUV qui interagît avec le milieu est incluse. En effet le modèle ne traite pas l'action des photons produits dans la plasma sur la structure atomique.

**Effet Auger/capture résonante** : un état à trou en couche interne dont l'énergie est supérieure à l'énergie du fondamentale de l'ion de charge inférieure se désexcite spontanément. Un électron d'une couche supérieure comble le trou en couche interne et un autre électron est ionisé avec le reste de l'énergie.



**Emission radiative spontanée** :



**Emission radiative stimulée :** Un photon stimule une transition radiative

$$C^{*(Z)} + h\nu \rightarrow C^{(Z)} + h\nu \quad (\text{C.6})$$

**Photoexcitation :** un photon excite un électron lié

$$C^{(Z)} + h\nu \rightarrow C^{*(Z)}. \quad (\text{C.7})$$

**Recombinaison radiative stimulée :** Un photon stimule une recombinaison radiative

$$C^{*(Z+1)} + e_{ph}^-(\epsilon) + h\nu \rightarrow C^{(Z)} + 2h\nu. \quad (\text{C.8})$$

## C.2 Relations de microréversibilité

On donne ici les relations bien connues de microréversibilité (voir par exemple Réf. [Griem 1997, Bauche 2015]) pour les processus inclus dans les deux modèles cinétiques présentés dans cette thèse. Le principe de microréversibilité permet de relier, au niveau microscopique, les sections efficaces de processus inverses. Ces expressions sont donc indépendantes des paramètres thermodynamiques du milieu. Dans la suite l'indice  $cc'$  désigne une transition entre un niveau  $c$  et un niveau  $c'$ .

### Excitation/désexcitation collisionnelle

La relation de microréversibilité est donnée par

$$\sigma_{c'c}^{des}(\epsilon') = \frac{g_c}{g_{c'}} \frac{\epsilon}{\epsilon'} \sigma_{cc'}^{exc}(\epsilon), \quad (\text{C.9})$$

avec  $\sigma^{des}(\epsilon')$  la section efficace de désexcitation collisionnelle,  $\sigma^{exc}(\epsilon)$  la section efficace d'excitation collisionnelle,  $g_c$  le poids statistique du niveaux  $c$  et  $\epsilon$  et  $\epsilon'$  l'énergie de l'électron faisant la collision, avant et après collision respectivement (dans le sens de l'excitation). Ces énergies sont reliées par  $\epsilon = \epsilon' + \Delta E_{cc'}$  avec  $\Delta E_{cc'} = E_{c'} - E_c$  la différence d'énergie entre les deux niveaux  $c$  et  $c'$ .

### Ionisation collisionnelle et recombinaison à trois corps

La relation de microréversibilité est donnée par

$$\frac{g_c}{g_{c'}} \frac{\epsilon}{\epsilon' \epsilon''} \frac{h^3}{16\pi m_e} \frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'} = \frac{d\Sigma_{c'c}^{3b}}{d\epsilon'}, \quad (\text{C.10})$$

avec  $\frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}$  la section efficace différentielle d'ionisation collisionnelle,  $\frac{d\Sigma_{c'c}^{3b}}{d\epsilon'}$  la section efficace différentielle de recombinaison à trois corps,  $\epsilon$  l'énergie de l'électron incident lors de l'ionisation,  $\epsilon'$  et  $\epsilon''$  l'énergie des électrons diffusés après collision (dans le sens de l'ionisation). Ces énergies sont reliées par  $\epsilon = \epsilon' + \epsilon'' + \chi_{cc'}$  avec  $\chi_{cc'} = E_{c'} - E_c$  le potentiel d'ionisation.

### Effet Auger et capture résonante

La relation de microréversibilité est donnée par

$$\Gamma_{cc'} = \sigma_{c'c}^{cr} 16\pi \frac{m_e}{h^3} \frac{g_{c'}}{g_c} \chi_{cc'} \Delta E_{cc'} \quad (\text{C.11})$$

avec  $\sigma^{cr}$  la section efficace de capture résonante,  $\Gamma$  le taux Auger,  $\chi_{cc'} = E_c - E_{c'}$  le potentiel d'ionisation et  $\Delta E_{cc'}$  l'intervalle d'énergie dans lequel est émis l'électron Auger. Cet intervalle, dû au principe d'incertitude, vaut [Cowan 1981]

$$\Delta E_{cc'} = \hbar \Gamma_{cc'} \quad (\text{C.12})$$

On peut voir que  $\sigma^{cr}$  ne dépend pas de l'énergie de l'électron capturé. En effet, on fait ici l'hypothèse d'une section efficace constante sur l'intervalle  $\Delta E_{cc'}$  autour de la valeur  $\epsilon = \chi_{cc'}$  et nulle en dehors de cet intervalle (voir par exemple Réf. [Bauche 2015]).

### Photoionisation et recombinaison radiative

La relation de microréversibilité est donnée par

$$\sigma^{rr}(\epsilon)_{c'c} = \frac{(h\nu)^2}{2m_e \epsilon c^2} \frac{g_{c'}^z}{g_c^{z+1}} \sigma_{cc'}^{ph}(h\nu) \quad (\text{C.13})$$

avec  $\sigma^{rr}(\epsilon)$  la section efficace de recombinaison radiative,  $\sigma_{ph}(h\nu)$  la section efficace de photoionisation,  $h\nu$  l'énergie du photon et  $\epsilon = h\nu - \chi_{c'c}$  (ici  $\chi_{cc'} = E_{c'} - E_c$ ) l'énergie du photo-électron (où de l'électron recombinaison).

## C.3 Expression des taux avec prise en compte de la dégénérescence des électrons libres

On rappelle dans un premier temps l'expression de la fonction de distribution de Fermi-Dirac (normalisée à 1) en terme d'énergie  $\epsilon$  et en fonction de la température électronique  $T_e$  (voir Sec. 2.1.4)

$$f_{FD}(\epsilon, T_e) = \frac{g(\epsilon)}{1 + e^{-(\epsilon-\mu)/kT_e}}, \quad (\text{C.14})$$

avec  $g(\epsilon)$  donné Sec. A et  $\mu$  le potentiel chimique, ainsi que l'expression du facteur de Pauli-blocking

$$(1 - F(\epsilon, T_e)) = \left(1 - \frac{1}{1 + e^{(\epsilon-\mu)/kT}}\right). \quad (\text{C.15})$$

On rappelle également l'expression de la loi de Boltzmann qui relie les populations  $N_c$  et  $N_{c'}$  de deux niveaux  $c$  et  $c'$

$$\frac{N_c}{N_{c'}} = \frac{g_c}{g_{c'}} e^{-\Delta E_{cc'}/kT}, \quad (\text{C.16})$$

ainsi que l'expression de la loi de Saha-Boltzmann (ici avec prise en compte de la dégénérescence des électrons libres [Peyrusse 2014])

$$\frac{N_c}{N_{c'}} = \frac{g_c}{g_{c'}} e^{(\chi_{cc'} + \mu)/kT}, \quad (\text{C.17})$$



toutes les deux valables à l'ETL. Dans ces expressions  $g_c$  est le poids statistique de la configuration atomique  $c$  et  $N_c$  sa population.

### Ionisation collisionnelle :

Le taux d'ionisation collisionnelle est donné par

$$I_{cc'} = n_e \int_{\chi_{cc'}}^{\infty} \sqrt{\frac{2\epsilon}{m_e}} f_{FD}(\epsilon) \xi(\epsilon) d\epsilon \quad (\text{C.18})$$

avec  $\xi(\epsilon)$  donné par

$$\xi(\epsilon) = \int_0^{\epsilon - \chi_{cc'}} \frac{d\sigma_{cc'}^{ion}}{d\epsilon'}(\epsilon, \epsilon')(1 - F(\epsilon', T_e))(1 - F(\epsilon - \chi_{cc'} - \epsilon', T_e)) d\epsilon'. \quad (\text{C.19})$$

$\chi_{cc'}$  est le potentiel d'ionisation  $\chi_{cc'} = E_{c'} - E_c$ . Les deux facteurs de Pauli-blocking tiennent compte de la place disponible à l'énergie des deux électrons secondaires.

### Excitation collisionnelle :

Le taux d'excitation collisionnelle est donné par

$$C_{cc'} = n_e \int_{\chi_{cc'}}^{\infty} \sigma_{cc'}^{exc}(\epsilon) \sqrt{\frac{2\epsilon}{m_e}} f_{FD}(\epsilon) (1 - F(\epsilon - \Delta E_{cc'}, T_e)) d\epsilon \quad (\text{C.20})$$

$\Delta E_{cc'}$  est la différence d'énergie entre  $c$  et  $c'$ .

### Photoionisation :

Le taux de photoionisation est donné par

$$P_{cc'} = \int_0^{\infty} \sigma_{cc'}^{ph}(h\nu) \frac{I_0(t)}{h\nu} \phi^{cr}(h\nu) (1 - F(h\nu - \chi_{cc'}, T_e)) d(h\nu) \quad (\text{C.21})$$

avec  $\sigma_{cc'}^{ph}(h\nu)$  la section efficace de photoionisation pour une énergie de photon  $h\nu$  et  $I_0(t)$  est l'intensité de l'impulsion par unité de surface et de temps et  $\phi^{cr}(h\nu)$  le profil spectral du champ radiatif par unité d'énergie normalisé selon

$$\int_0^{\infty} \phi^{cr}(h\nu) dh\nu = 1. \quad (\text{C.22})$$

### Recombinaison radiative :

Le taux de recombinaison radiative est donné par

$$R_{cc'} = n_e \int_0^{\infty} \sigma_{cc'}^{rad}(\epsilon) \sqrt{\frac{2\epsilon}{m_e}} f_{FD}(\epsilon) d\epsilon \quad (\text{C.23})$$

La section efficace de recombinaison radiative  $\sigma_{cc'}^{rad}$  est calculée en utilisant le principe de microreversibilité selon l'Éq. (C.13).

### Désexcitation collisionnelle :

Pour le taux de désexcitation collisionnelle on utilise l'équilibre détaillé

$$[N_{c'} C_{c'c} = N_c C_{cc'}]_{ETL}. \quad (\text{C.24})$$

En utilisant Éq. (C.16) on obtient

$$C_{c'c} = \frac{g_c}{g_{c'}} e^{\Delta E_{c'c}/kT} C_{cc'}. \quad (\text{C.25})$$

Cette relation est valable HETL (pour des électrons libres thermalisés).

**Recombinaison à trois corps :**

Pour le taux de recombinaison à trois corps on utilise également l'équilibre détaillé

$$\left[ N_{c'}^{Z+1} T_{c'c} = N_c^Z I_{cc'} \right]_{ETL}. \quad (\text{C.26})$$

En utilisant Éq. (C.17) on obtient

$$T_{c'c} = \frac{g_c}{g_{c'}} e^{(\chi_{c'c} + \mu)/kT} I_{cc'}. \quad (\text{C.27})$$

**Effet Auger :**

Pour le taux Auger on doit ajouter un facteur de Pauli-blocking au taux Auger classique

$$\Gamma_{cc'}^{FD} = \Gamma_{cc'} (1 - F(\epsilon, T_e)) \quad (\text{C.28})$$

avec  $\epsilon = E_c - E'_c$  l'énergie de l'électron Auger.

**Capture résonante :** l'équilibre détaillé nous donne

$$RC_{cc'} = \frac{g_{c'}}{g_c} e^{-(\chi_{c'c} + \mu)/kT} \Gamma_{c'c}^{FD} \quad (\text{C.29})$$

**Emission stimulée :**

Le taux d'émission stimulée est donné par

$$B_{cc'} = b_{cc'} \frac{I_0(t)}{c} \int \phi^{cr}(h\nu) \phi_{cc'}(h\nu) dh\nu. \quad (\text{C.30})$$

$\phi_{cc'}(h\nu)$  est le profil de raie et  $b_{cc'}$  est le coefficient d'Einstein pour l'émission stimulée calculée à partir du taux d'émission spontanée selon

$$b_{cc'} = A_{cc'} \frac{c^3 h^2}{2\pi(h\nu)^3}. \quad (\text{C.31})$$

**Photoexcitation :**

Le taux de photoexcitation est donné par

$$P_{e'c} = b_{c'c} \frac{I_0(t)}{c} \int \phi^{cr}(h\nu) \phi_{c'c}(h\nu) dh\nu. \quad (\text{C.32})$$

$\phi_{c'c}(h\nu)$  est le profil de raie et  $b_{c'c}$  est le coefficient d'Einstein pour la photoexcitation calculée avec

$$g_c b_{cc'} = g_{c'} b_{c'c}. \quad (\text{C.33})$$

**Recombinaison radiative stimulée :**

Le taux de recombinaison radiative stimulée est donné par

$$R_{cc'}^{stim} = n_e \frac{\pi^2 c \hbar^3}{\sqrt{2} m_e^{3/2}} \frac{g_{c'}}{g_c} \int_0^\infty d\epsilon \sigma^{rr}(\epsilon + \chi_{c'c}) \frac{f_{FD}(\epsilon)}{\sqrt{\epsilon}} N(\epsilon + \chi_{c'c}), \quad (\text{C.34})$$

avec  $N(\epsilon + \chi_{c'c})$  le nombre de photons par unité de volume.

On peut retrouver l'expression des taux classiques Maxwelliens en remplaçant la distribution de FD par une distribution de MB et en remplaçant les facteurs de Pauli-blocking par 1.

## C.4 Structure atomique de l'atome isolé

Le MCRG, ainsi que le modèle cinétique avec une DEEL hors-équilibre, permettent de calculer l'évolution des populations atomiques à partir des états stationnaires du système électrons-noyau. On doit donc dans un premier temps calculer ces états stationnaires et les fonctions d'ondes associées qui vont nous permettre de calculer les sections efficaces et taux dont on a besoin. Dans cette partie on décrit succinctement la méthode générale dans le cas non-relativiste.

### C.4.1 Méthode du champ central

#### Hamiltonien

La fonction d'onde stationnaire obéit à l'équation de Schrödinger

$$H\psi = E\psi \quad (\text{C.35})$$

Avec  $H$  le Hamiltonien du système qui est donné par

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m} \sum_i \Delta_i - Ze^2 \sum_i \frac{1}{r_i} + e^2 \sum_{i>j} \frac{1}{r_{ij}}. \quad (\text{C.36})$$

Le premier terme correspond à l'énergie cinétique des électrons, le deuxième à l'interaction de chaque électron avec le noyau et le dernier terme est le terme d'interaction entre électrons.

Cette équation n'a pas de solution exacte pour un système à  $N$  électrons et des hypothèses sont nécessaires.

#### Champ central

On divise  $H$  en deux parties tel que  $H = H_0 + H_1$  avec

$$H_0 = -\frac{\hbar^2}{2m} \sum_i \Delta_i + \sum_i V(r_i) \quad (\text{C.37})$$

et

$$H_1 = -\sum_i V(r_i) - Ze^2 \sum_i \frac{1}{r_i} + e^2 \sum_{i>j} \frac{1}{r_{ij}}. \quad (\text{C.38})$$

On a ajouté un potentiel central  $V(r_i)$ , supposé le même pour tous les électrons, dans l'expression de  $H_0$  pour le retirer ensuite dans  $H_1$ . Pour l'instant  $H$  reste donc le même mais ce potentiel central va nous permettre d'utiliser la théorie des perturbations en

supposant  $H_0 \gg H_1$ . On trouve des solutions pour  $H_0\psi = E_0\psi$  et on traite ensuite  $H_1$  en perturbation, ce qui donne la structure en terme de nombre quantique  $L$ . La structure fine (en niveaux  $J$ ) est obtenue si on ajoute l'interaction spin-orbite.

### Méthode Hartree-Fock

On cherche une solution de  $H_0\psi = E_0\psi$  qui minimise l'énergie  $E$  du système. À ce niveau on peut séparer  $H_0$  pour traiter chaque électron séparément. La fonction d'onde totale sera un produit de fonction d'ondes mono-électroniques. On va donc avoir une équation à résoudre par électron. Le potentiel central Hartree-Fock (HF) est le même pour chaque électron et est dû à l'ensemble des électrons. Ce potentiel HF, et donc chaque équation mono-électronique, va dépendre de l'état de tous les électrons. On doit donc obtenir un état à  $N$  électrons tel que le potentiel central est cohérent avec l'état de chaque électron. La méthode HF permet d'arriver à ce résultat par itération avec la condition de minimisation de l'énergie totale. À partir d'une fonction d'onde test à  $N$  électrons, on calcule un potentiel central HF et on résout les  $N$  équations de Schrödinger mono-électronique. On obtient ainsi une nouvelle fonction d'onde à  $N$  électrons qui permet de commencer une nouvelle itération. Après convergence on a donc une fonction d'onde cohérente avec le champ central.

À partir des états stationnaires calculés avec la méthode HF, on peut utiliser la théorie des perturbations indépendantes du temps pour traiter le reste du Hamiltonien total.

### Calcul des sections efficaces et taux

Les fonctions d'ondes calculées avec la méthode du champ central permettent de calculer les sections efficaces et les taux radiatifs et Auger qui couplent les niveaux [Cowan 1981, Bauche 2015].

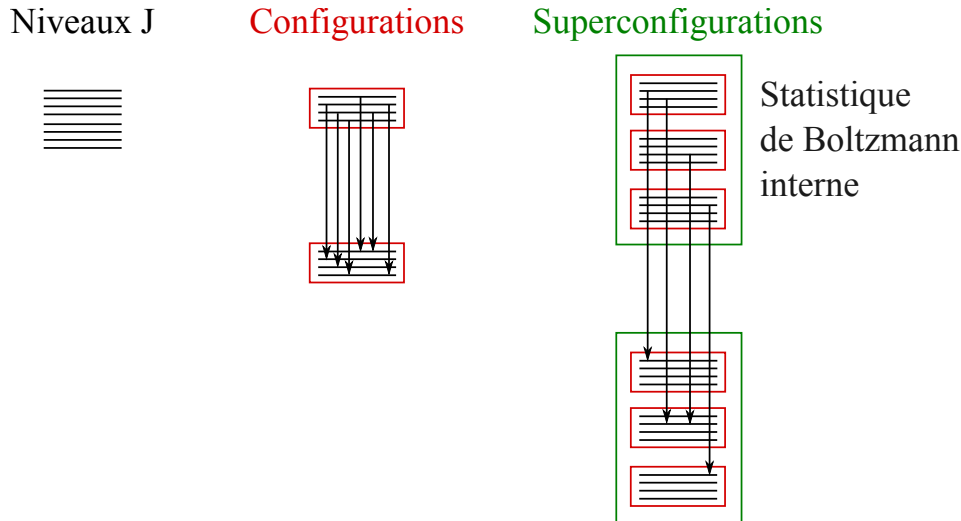
## C.5 Calcul des données structurelles et méthodes statistiques

Comme précisé dans le corps du texte les méthodes de regroupement statistique de niveaux  $J$  permettent de réduire grandement le nombre de niveaux à inclure dans le modèle collisionnel-radiatif. On détaille dans une première partie comment effectuer ce regroupement, pour l'ensemble des données structurelles, à partir des données structurelles détaillées en niveaux  $J$ . Dans une deuxième partie on présente le principe des méthodes qui permettent de calculer directement les données structurelles regroupées, sans passer par un calcul préalable des données détaillées.

### C.5.1 Regroupement en configuration et super-configuration

Il existe deux catégories de regroupement illustrées Fig. C.1. Le premier type de regroupement est appelé *configuration* et regroupe tous les niveaux  $J$  de même nombre quantique principal et orbital. Par exemple le carbone neutre fondamental est dans la configuration  $1s^2 2s^2 2p^2$ .

Le deuxième type de regroupement est la super-configuration. Dans ce cas le regroupement est très flexible et la réduction du nombre de niveau peut alors être très importante.



**Figure C.1** – Schéma d’illustration des méthodes statistiques issu de la Réf. [Peyrusse 2008]. Les configurations contiennent des niveaux  $J$  et les superconfigurations contiennent des configurations.

Des modèles hybrides ont aussi été développées pour pouvoir garder certains niveaux détaillés et utiliser des configurations ou super-configurations pour le reste. Cela permet par exemple de produire un spectre détaillé d’un domaine spectral particulier tout en réduisant les temps de calculs en moyennant des parties du spectre qui sont moins importantes.

Enfin pour finir on peut mentionner les approches statistiques qui consiste en le calcul direct des (super-)configurations – et de l’ensemble des taux et section efficaces – sans passer au préalable par le calcul des états détaillés [Bauche 1988] [Bar-Shalom 1989a]. Ces méthodes réduisent considérablement le temps de calcul des données à utiliser dans un MCR. Dans le cadre de cette thèse l’ensemble des données nécessaires au deux modèles développés – appelées données structurales – sont calculées à l’aide de ces méthodes directes qui sont détaillées dans la Ref. [Peyrusse 1999] pour les configurations et dans la Ref. [Peyrusse 2000] pour les super-configurations et dont le principe est rappelé en annexe Sec. C.5.3.

### C.5.2 Énergie des (super-)configurations moyennée

On rappelle que le regroupement de niveaux détaillés (niveaux  $J$ ) peut se faire en configuration ou en super-configuration. L’énergie de la (super-)configuration se calcule simplement en sommant sur chaque niveau selon

$$E_c = \sum_{i \in c} \frac{n_i}{n_c} E_i \quad (\text{C.39})$$

avec  $n_c = \sum_{i \in c} n_i$ . Pour calculer cette quantité on fait l’hypothèse que les populations des niveaux  $i \in c$  sont à l’ETL entre elles (avec une température qui peut être différente de la température électronique) et le rapport de population est donc donné par Éq. (C.16).

Dans le cas d’une somme en configuration les niveaux sont assez proches en énergie (devant  $k_B T_e$ ) et on peut négliger le facteur de Boltzmann  $\exp(-E/kT)$  et on obtient

$$E_c = \sum_{i \in c} \frac{g_i}{g_c} E_i \quad (\text{C.40})$$

avec  $g_c = \sum_{i \in c} g_i$ .

Quand on souhaite utiliser une somme en super-configuration on ne peut plus négliger le facteur exponentiel et on a donc

$$E_{sc} = \sum_{i \in sc} \frac{g_i e^{-E_i/kT}}{U_{sc}} E_i \quad (\text{C.41})$$

avec  $U_{sc} = \sum_{i \in sc} g_i e^{-E_i/kT}$  et l'énergie de la super-configuration dépend donc de la température. L'algèbre des fonctions de partition permet d'évaluer directement les termes de type Éq. (C.41) [Bar-Shalom 1989a].

### Taux globaux

Pour obtenir le taux  $T_{cc'}^{(p)}$  d'un processus élémentaire  $p$  reliant une (super-)configuration  $c$  à une autre  $c'$  on somme simplement suivant

$$T_{cc'}^{(p)} = \sum_{i \in c} \sum_{j \in c'} \frac{n_i}{n_c} T_{ij}^{(p)}. \quad (\text{C.42})$$

On fait ici une moyenne sur les niveaux de départ et une somme sur les niveaux d'arrivée. Comme précédemment on suppose l'ETL entre les niveaux d'une même (super-)configuration. Également on remplace le rapport des populations par le rapport des poids statistiques dans le cas d'une somme en configuration. En superconfiguration on garde le facteur exponentiel et on a un taux dépendant de la température.

## C.5.3 Méthodes statistiques de sommation directe

### Méthode générale

Des méthodes statistiques ont été développées pour éviter le calcul préalable de l'ensemble des niveaux  $J$ . Le principe général est de sommer directement sur les nombres quantiques au niveau du calcul des éléments de matrices réalisant les couplages entre niveaux. Les méthodes utilisées – notamment dans le cadre de leur utilisation dans des modèles NLTE – sont détaillées dans la Ref. [Peyrusse 1999] pour les moyennes en configurations et dans la Réf. [Peyrusse 2000] pour les moyennes en super-configurations. L'ensemble des méthodes est également décrit dans le livre Réf. [Bauche 2015]

### Raies spectrales

Pour produire une raie d'émission correspondant à la transition entre deux configurations il faut prendre en compte toutes les transitions radiatives possibles entre chaque niveaux détaillés (voir Fig. C.1). La méthode consiste à remplacer la somme de raies individuelles issues de niveaux  $J$  par une seule raie, décrite par une Gaussienne et appelée "faisceau de transition". Ceci n'a de sens que si le nombre de raies individuelles est suffisamment grand pour que la largeur de l'ensemble ne dépende plus des largeurs individuelles mais de l'étalement en énergie de la position des différentes raies.

On utilise les moments définis par

$$\mu_n = \frac{\sum_{a,b} n_a A_{ab} E_{ab}^n}{\sum_{a,b} n_a A_{ab}}, \quad (\text{C.43})$$

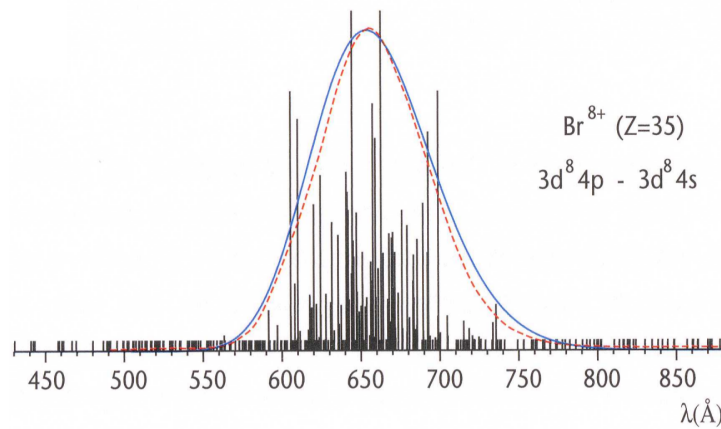
avec  $A_{ab}$  le taux de transition radiative spontanée entre  $a$  et  $b$ ,  $E_{ab}$  la différence d'énergie entre ces deux niveaux détaillés et  $n_a$  la population du niveau  $a$ . Le moment d'ordre 1  $\mu_1$  donne la position en énergie du faisceau et  $\mu_2$  permet d'obtenir la variance du faisceau avec  $\sigma^2 = \mu_2 - \mu_1^2$ . Le moment d'ordre 3 permet de déformer, si nécessaire, la Gaussienne. Dans le cas d'une somme en configuration, la raie obtenue est appelée "faisceau de transition" non résolu ou UTA pour *unresolved transition array*. Dans le cas d'une somme en super-configuration on a affaire à plusieurs raies "globales" associées aux divers "sauts" électroniques possibles ex 2p-3d ou 2s-2p (voir Fig. C.1). Ces raies sont des STA pour *super transition array*.

Le profil de ces UTA/STA est donné par

$$\phi_{c'c}(\nu) = \frac{e^{-[(h\nu - E_{uta/sta} - \delta_{c'c'})/\sigma]^2}}{\sigma \sqrt{2\pi}}. \quad (\text{C.44})$$

avec  $E_{uta/sta} = \mu_1$  et  $\delta_{c'c'}$  le décalage qui est optionnel et calculé à partir du moment d'ordre 3. Le calcul des différents moments est détaillé dans les Refs. [Bauche-Arnoult 1979, Bauche-Arnoult 1982] pour les raies UTA et dans la Réf. [Bar-Shalom 1989b] pour les raies STA.

La Fig. C.2 donne un exemple de faisceau de transition superposé à l'ensemble des raies détaillées (sans largeur) composant le faisceau. La somme des raies détaillées (avec une largeur arbitraire de quelques Angströms) est également superposée pour comparaison. On peut voir que le faisceau de transition est très proche de la somme brute des raies individuelles.



**Figure C.2** – Exemple d'un faisceau de transitions issu de la transition entre deux configurations. En noir sont représentés les niveaux détaillés sans largeur. En rouge pointillé est représenté une addition simple de ces raies supposées Gaussiennes, chacune de largeur à mi-hauteur de quelques Angströms. En bleu est représenté le faisceau de transition ou UTA. Figure issue de la Réf. [Bauche 2008].

## C.6 Critère d'utilisation de la théorie des perturbations

Pour pouvoir utiliser la théorie des perturbations le potentiel lié à la perturbation doit être petit devant le potentiel moyen d'interaction électron-noyau. Pour le potentiel lié au

rayonnement, on peut utiliser l'expression du potentiel pondérateur  $U_p$  – l'énergie cinétique moyenne acquise par un électron libre oscillant dans le champ du rayonnement

$$U_p = \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega^2}. \quad (\text{C.45})$$

Pour le potentiel d'interaction Coulombienne, le potentiel de l'hydrogène dans l'état fondamental qui vaut 1 Rydberg=13.6 eV permet d'avoir un ordre d'idée. Dans le cas d'un rayonnement intense, ce qui correspond à un rapport  $\gamma = I_p/U_p < 1$ , le champ électrique du rayonnement déforme le potentiel local électrons-noyau. Dans la gamme optique ce régime est atteint pour des intensités de l'ordre  $10^{13} - 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . À partir de ces intensités un électron peut être ionisé par effet tunnel, puis, à plus haute intensité, par ionisation directe par abaissement total de la barrière de potentiel. Dans le cas où le rayonnement est moins intense ce qui correspond à un rapport  $\gamma$  grand devant 1, le potentiel peut-être traité en perturbation.

Dans le tableau C.1 sont donnés les paramètres des installations FLASH et LCLS dans les conditions typiques qui vont nous intéresser dans cette thèse. La dernière colonne donne

	$\lambda$ (nm)	I ( $\text{W/cm}^2$ )	E (V/m)	$U_p$ (eV)	$\gamma$
FLASH	13.5	$10^{16}$	$2.7 \times 10^{11}$	0.17	79.4
FLASH	13.5	$5 \cdot 10^{16}$	$6.1 \times 10^{11}$	0.84	16.2
LCLS	0.77	$10^{17}$	$8.7 \times 10^{11}$	0.0056	2429

**Table C.1** – Paramètres des sources FLASH et LCLS dans les conditions typiques des études qui sont faites dans cette thèse. Le paramètre  $\gamma$  est calculé avec  $I_p = 13.6 \text{ eV}$  (voir texte).

le paramètre  $\gamma$  calculé avec  $I_p = 13.6 \text{ eV}$ . On peut voir que dans la gamme X, l'hypothèse de régime perturbatif est très justifiée. Dans la gamme XUV, même si l'on se rapproche du domaine non-perturbatif,  $\gamma$  est toujours grand devant 1. Le rayonnement XFEL peut donc être traité en perturbation.

## C.7 Modèles analytiques d'abaissement du continu

Il existe deux modèles répandus pour calculer la valeur de l'API. Dans ces deux modèles l'API dépend de l'état de charge, de la température et de la densité.

### C.7.1 Modèle d'Ecker et Kroll

Le modèle d'Ecker et Kroll (EK) [Ecker 1963] donne un API suivant

$$\Delta E(\xi) = (\xi + 1)e^2 \times \begin{cases} 1/\lambda_D & \text{si } n_c < n_i(1 + Z^*) \\ C/R_{EK} & \text{si } n_c > n_i(1 + Z^*) \end{cases} \quad (\text{C.46})$$

avec  $\xi$  l'état de charge de l'ion à abaisser,  $\lambda_D$  la longueur de Debye pour les ions et les électrons et  $Z^*$  la charge moyenne du plasma.  $R_{EK}$  se calcule selon

$$\frac{4\pi R_{EK}^3}{3} = \frac{1}{n_i + n_e}. \quad (\text{C.47})$$



La longueur de Debye électron ion est donnée par

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k T_e}{n_e e^2 + n_i (Z^* e)^2}}. \quad (\text{C.48})$$

La densité  $n_c$  est calculée avec

$$n_c = \frac{3}{4\pi} \left( \frac{T}{Z^2 e^2} \right)^3 \quad (\text{C.49})$$

Le facteur  $C$  est calculé de manière à joindre les deux parties de l'Éq. (C.46) en  $n_c$

$$C = \left( \frac{R_{EK}}{\lambda_D} \right)_{n_c}. \quad (\text{C.50})$$

Ici,  $R_{EK}$  et  $\lambda_D$  sont évalués en  $n_e + n_i = n_c$ .

### C.7.2 Modèle de Stewart et Pyatt

Le second modèle d'API est celui de Stewart et Pyatt (SP) [Stewart 1966] avec une adaptation proposée dans la Réf. [More 1981]

$$\Delta E_\xi = \frac{3}{2} \frac{\xi e^2}{R_\xi} (\xi + 1) \left\{ \left[ 1 + \left( \frac{\lambda_D}{R_\xi} \right)^3 \right]^{2/3} - \left( \frac{\lambda_D}{R_\xi} \right)^2 \right\} \quad (\text{C.51})$$

avec  $a_0$  le rayon de Bohr,  $R_y$  l'énergie d'un Rydberg,  $R_\xi$  le rayon de la sphère ionique dépendant de l'état de charge  $\xi$  et  $\lambda_D$  la longueur de Debye électronique. Ce modèle est une interpolation entre le modèle de sphère ionique et le modèle d'écrantage de Debye. Le rayon de la sphère ionique est donné par

$$\frac{4\pi R_\xi^3}{3\xi} = \frac{1}{n_e} \quad (\text{C.52})$$

avec  $n_e$  la densité ionique. La longueur de Debye électronique est donnée par

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k T_e}{n_e e^2}}. \quad (\text{C.53})$$

### C.7.3 Modèle de sphère ionique analytique à température finie

Dans la Réf. [Li 2012] est donnée une formule analytique pour calculer le déplacement d'un niveau dû à la densité. Cette formule analytique est basée sur des calculs de type champ central autoconsistant associé avec une contribution du plasma donnée par un potentiel de sphère ionique. On utilise ici la formule hydrogénoïde adaptée avec un  $Z$  effectif. Ce  $Z$  effectif est celui vu par l'électron externe (de nombre quantique principal  $n$  et orbital  $l$ ) du niveau à  $N_b$  électrons liés d'intérêt. L'énergie  $E$  de ce niveau, en unités atomiques,

dans un plasma dense à la température électronique  $T_e$  et à la densité électronique  $n_e$  est donné par (avec  $n_e$ ,  $R_0$  et  $k_B T_e$  en unités atomiques)

$$E = E^0 + 4\pi N_e(R_0) \left[ \frac{R_0^2}{2} - \frac{\langle r^2 \rangle}{6} + \frac{4}{3\sqrt{\pi}} \left( \frac{Z - N_b}{k_B T_e} \right)^{1/2} R_0^{3/2} \right. \quad (\text{C.54})$$

$$\left. - \frac{8}{15\sqrt{\pi}} \left( \frac{Z - N_b}{k_B T_e} \right)^{1/2} \left( \frac{4}{\sqrt{\pi}} \langle r \rangle + \frac{1}{10} \langle r^2 \rangle \right) \right]. \quad (\text{C.55})$$

avec  $E^0$  l'énergie du niveau dans un atome isolé,  $N_b$  le nombre d'électrons liés du niveau,  $R_0$  le rayon de la sphere ionique donné par

$$R_0 = \frac{1}{a_0} \left[ \frac{3(Z - N_b)}{4\pi n_e} \right]^{1/3}. \quad (\text{C.56})$$

La valeur de  $\langle r \rangle$  est donnée par

$$\langle r \rangle = \frac{1}{2Z_{eff}} [3n^2 - l(l+1)]. \quad (\text{C.57})$$

La valeur de  $\langle r^2 \rangle$  est donnée par

$$\langle r^2 \rangle = \frac{n^2}{2Z_{eff}^2} [5n^2 + 1 - 3l(l+1)]. \quad (\text{C.58})$$

La valeur de  $N_e(R_0)$  est donnée par

$$N_e(R_0) = \frac{(Z - N_b)}{4\pi R_0} \left[ \frac{R_0^2}{2} - \frac{R_0^2}{6} + \frac{4}{3\sqrt{\pi}} \left( \frac{Z - N_b}{k_B T_e} \right)^{1/2} R_0^{3/2} \right. \quad (\text{C.59})$$

$$\left. - \frac{8}{15\sqrt{\pi}} \left( \frac{Z - N_b}{k_B T_e} \right)^{1/2} \left( \frac{4}{\sqrt{\pi}} R_0 + \frac{1}{10} R_0^2 \right) \right]^{-1} \quad (\text{C.60})$$

La valeur de  $Z_{eff}$  est donnée par

$$Z_{eff} = n \sqrt{2|E_0(nl)|}. \quad (\text{C.61})$$

La charge effective est celle vue par l'électron externe de la configuration à  $N_b$  électrons dont on souhaite calculer le décalage dû à la densité.  $E_0(nl)$  est donc l'énergie de cet électron sur la sous couche de nombres quantiques  $n$  et  $l$ . Pour estimer cette valeur on prend l'énergie nécessaire pour ioniser cet électron du niveau à  $N_b$  électrons.

L'API  $\Delta E$  associé à une ionisation de  $c$  vers  $c'$  s'obtient finalement en calculant l'énergie des deux niveaux dans l'état de plasma dense via l'Éq. (C.54), puis en faisant la différence entre les énergies d'ionisation selon  $\Delta E = E_c - E_{c'} - (E_c^0 - E_{c'}^0)$ .



# Modèle d'émission radiative

Nous détaillons dans cette annexe les solutions utilisées dans le code détaillé Sec. 2.2 pour calculer des spectres d'émission à comparer avec des spectres expérimentaux.

## D.1 Transfert radiatif

L'équation de transfert du rayonnement peut être mise sous la forme [Peyrusse 2014]

$$\frac{1}{c} \frac{\partial I_\nu}{\partial t} = -\vec{\Omega} \cdot \vec{\nabla} I_\nu + j_\nu - k_\nu I_\nu - \frac{1}{c} \int \sigma_S I_\nu d\Omega' d\nu' + \frac{1}{c} \int \sigma_S I_{\nu'} \frac{\nu}{\nu'} d\Omega' d\nu' \quad (\text{D.1})$$

avec  $\vec{\Omega}$  la direction de propagation,  $\sigma_S$  la section efficace de diffusion,  $I_\nu$  l'intensité radiative (énergie qui traverse une surface par unité de temps dans la direction  $\vec{\Omega}$ ),  $k_\nu$  l'opacité et  $j_\nu$  l'émissivité.

Le premier terme du membre de droite est le flux sortant, le deuxième est l'émissivité, le troisième la perte par absorption et les deux derniers sont la perte et le gain par diffusion. Pour simplifier l'équation de transfert on néglige la diffusion (principalement diffusion sur les électrons libres) et on se place en régime stationnaire. En géométrie plane on obtient

$$\cos\theta \frac{\partial I_\nu}{\partial x} = j_\nu - k_\nu I_\nu, \quad (\text{D.2})$$

où  $\theta$  est l'angle entre l'axe  $x$  et la direction de propagation. La résolution de cette équation avec comme conditions aux limites  $I_\nu(x=0) = 0$ , et pour le cas d'une opacité et d'une émissivité constante, nous donne

$$I_\nu(x) = \frac{j_\nu}{k_\nu} (1 - e^{-k_\nu x / \cos\theta}). \quad (\text{D.3})$$

Dans le cas d'un axe  $x$  confondu avec l'axe de propagation, on obtient

$$I_\nu(x) = \frac{j_\nu}{k_\nu} (1 - e^{-k_\nu x}). \quad (\text{D.4})$$

L'opacité est homogène à l'inverse d'une longueur et l'émissivité est une énergie par unité d'angle solide, par unité de temps, par unité de volume et par unité de fréquence. On va maintenant détailler l'expression de ces deux quantités.

## D.2 Émissivité

L'émissivité contient plusieurs contributions

$$j_\nu = j_\nu^{bb} + j_\nu^{ff} + j_\nu^{fb} \quad (\text{D.5})$$

avec  $bb$  le terme lié-lié (bound-bound),  $ff$  le terme libre-libre (free-free) et  $fb$  le terme libre-lié (free-bound).

### lié-lié :

Ce terme contient la contribution de l'émission spontanée à l'émissivité

$$j^{bb}(\nu) = \sum_{c,c'} \frac{A_{c'c}}{4\pi} N_c h\nu_{cc'} N_{c'} \phi_{c'c}(\nu). \quad (\text{D.6})$$

avec  $A_{c'c}$  le taux d'émission spontanée,  $g_c$  et  $g_{c'}$  les poids statistiques des niveaux  $c$  et  $c'$  et  $\phi_{c'c}(\nu)$  le profil spectral de la raie correspondante tel que

$$\int \phi_{c'c}(\nu) d\nu = 1. \quad (\text{D.7})$$

Dans notre cas ce profil est un profil UTA donné par l'Éq. (C.44).

### libre-libre :

Ce terme correspond au rayonnement de freinage ou *Bremsstrahlung*. Un électron est ralenti en passant près d'un ion et un photon est émis.

$$j^{ff}(\nu) = \frac{\sqrt{2\pi}}{\sqrt{3m_e k_B T_e}} \frac{8e^6}{3mc^3} n_e \sum_z z^2 N_z e^{-h\nu/k_B T_e}, \quad (\text{D.8})$$

que l'on peut mettre sous la forme

$$j^{ff}(\nu)[eV \cdot \text{sr}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3} \cdot \text{Hz}] = 5.0649 \times 10^{-41} \frac{n_e[\text{cm}^{-3}]}{\sqrt{T_e[eV]}} \sum_z z^2 N^{(z)}[\text{cm}^{-3}] e^{-h\nu/k_B T_e}, \quad (\text{D.9})$$

avec  $z$  la charge de l'ion et  $N^{(z)}$  la densité de l'ion de charge  $z$ .

### libre-lié :

Ce terme contient la contribution de la recombinaison radiative. Un électron libre d'énergie  $\epsilon$  est recombiné et une partie de son énergie est émise sous forme d'un photon d'énergie  $h\nu = \epsilon + \chi_{cc'}$ . On a

$$j^{fb}(\nu) = \sum_{c,c'} h \frac{h\nu}{4\pi} N_c n_e \sigma_{cc'}^{rr}(\epsilon) \sqrt{\frac{2\epsilon}{m_e}} f(\epsilon), \quad (\text{D.10})$$

avec  $\sigma^{rr}(\epsilon)$  la section efficace de recombinaison radiative à l'énergie  $\epsilon$  et  $f(\epsilon)$  la distribution en énergie d'électrons libres. Avec une distribution de Fermi-Dirac, on obtient

$$j_{FD}(\nu)[eV \cdot \text{sr}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3} \cdot \text{Hz}] = 1,329 \times 10^{14} \sum_{c,c'} h\nu[eV] N_c[\text{cm}^{-3}] \sigma_{rr}(\epsilon)[\text{cm}^2] \epsilon[eV] \frac{1}{1 + e^{(\epsilon-\mu)/kT}}. \quad (\text{D.11})$$

## D.3 Opacité

L'opacité contient également les trois même types de contributions

$$k_\nu = k_\nu^{bb} + k_\nu^{ff} + k_\nu^{fb} \quad (\text{D.12})$$

**lié-lié :**

L'opacité lié-lié est donnée par

$$k^{bb}(\nu) = \sum_{c,c'} \frac{c^2 \hbar^2}{8\pi (h\nu)^2} A_{c'c} \frac{g_{c'}}{g_c} N_c \phi_{c'c}(\nu). \quad (\text{D.13})$$

avec  $A_{c'c}$  le taux d'émission spontanée,  $g_c$  et  $g_{c'}$  les poids statistiques des niveaux  $c$  et  $c'$  et  $\phi_{c'c}(\nu)$  le profil spectral de la raie correspondante. On peut la mettre sous la forme

$$k^{bb}(\nu)[\text{cm}^{-1}] = 2.5321 \times 10^{-24} \frac{A_{c'c}[\text{s}^{-1}]}{(h\nu_{c'c}[\text{eV}])^2} \frac{g_{c'}}{g_c} N_c[\text{cm}^{-3}] \phi_{c'c}(\nu)[\text{eV}^{-1}]. \quad (\text{D.14})$$

**libre-libre :**

L'opacité libre-libre est donnée par

$$k^{ff}(\nu) = n_e \frac{16\pi^3}{3\sqrt{3}} \frac{\sqrt{2}}{c} \frac{\pi^{5/2} e^6 \hbar^2}{m^{3/2} \sqrt{k_B T_e}} \sum_z n_z \frac{z^2}{(h\nu)^3}, \quad (\text{D.15})$$

que l'on peut mettre sous la forme

$$k^{ff}(\nu)[\text{cm}^{-1}] = 2,3856 \times 10^{-37} n_e[\text{cm}^{-3}] \frac{1}{\sqrt{T_e[\text{eV}]}} \sum_z n_z[\text{cm}^{-3}] \frac{z^2}{(h\nu[\text{eV}])^3}. \quad (\text{D.16})$$

**libre-lié :**

L'opacité libre-lié est donnée par

$$k^{fb}(\nu)[\text{cm}^{-1}] = \sum_{c,c'} N_c \sigma_{cc'}^{bh}(h\nu) \left( 1 - \frac{1}{1 + e^{(\epsilon - \mu)/k_B T_e}} \right). \quad (\text{D.17})$$

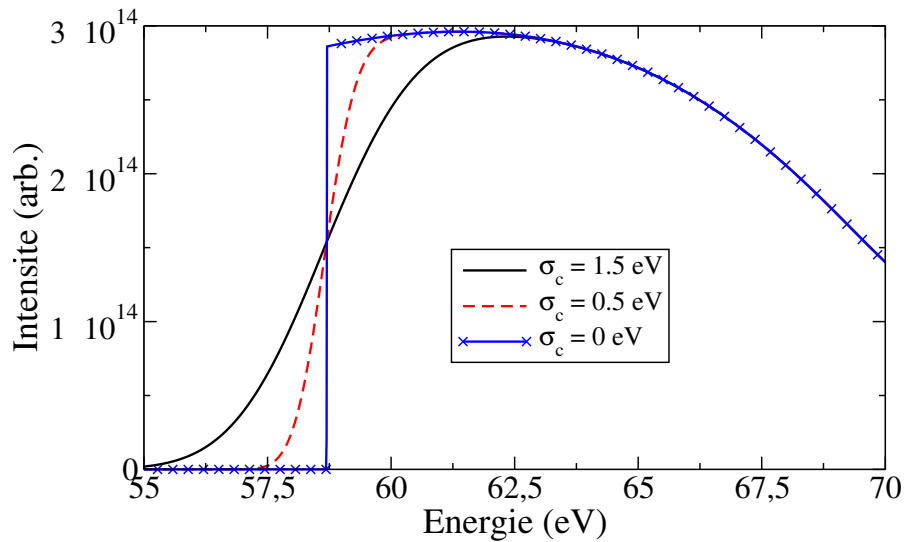
On reconnaît le facteur de Pauli-blocking évalué en  $\epsilon$  l'énergie du photo-électron donnée par  $\epsilon = \chi_{cc'} - h\nu$  avec  $\chi_{cc'}$  la différence d'énergie entre les niveaux  $c$  et  $c'$ . Ce facteur vaut bien sûr 1 dans le cas Maxwellien.

## D.4 Bords de recombinaison

On revient ici à l'émissivité libre-lié due au processus de recombinaison radiative. Dans l'Éq. (D.11) on peut voir que l'émissivité est proportionnelle à l'énergie de l'électron libre. On rappelle que l'énergie du photon est donnée par  $h\nu = \epsilon + \chi_{cc'}$ . Sur le spectre on va donc obtenir une marche d'escalier au niveau du seuil  $\chi_{cc'}$ , qui correspond à  $\epsilon = 0$ . Cela vient du fait que l'on ne considère pas ici la largeur du niveau d'arrivée. Dans le cas d'une description en configurations (ou super-configurations) le niveau d'arrivée de l'électron libre (d'indice  $c$ ) a une certaine largeur statistique notée ici  $\sigma_c$  – qui est responsable de la largeur UTA quand on considère la transition entre deux groupes de niveaux. Pour remédier à ce problème on fait une convolution d'une marche d'escalier avec une Gaussienne de largeur égale à  $\sigma_c$ .

Cette convolution donne un profil selon

$$\phi(\nu) = \frac{1}{2} \left( 1 + \operatorname{erf} \left( \frac{h\nu - \epsilon}{\sqrt{2}\sigma_c} \right) \right) \quad (\text{D.18})$$



**Figure D.1** – Bord de recombinaison de la recombinaison radiative  $1s^2 2s^2 2p^5 + e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 + h\nu$  pour différentes valeurs de  $\sigma_c$  (voir texte).

et on a bien  $\int \phi(\nu) d\nu = 1$ . Au final on multiplie l'émissivité donnée par l'Éq. (D.11) par ce profil.

La valeur de  $\sigma_c$  est théoriquement accessible dans les calculs de structure mais ici on se contente d'utiliser une largeur arbitraire (l'importance de cette largeur est plutôt d'ordre qualitative). Sur la Fig. D.1 est représenté un exemple de bord de recombinaison apparaissant sur le spectre. La recombinaison radiative correspondante est  $1s^2 2s^2 2p^5 + e^- \rightarrow 1s^2 2s^2 2p^6 + h\nu$ . On peut voir l'élargissement du bord quand on augmente la valeur de  $\sigma_c$ .

# Terme de collision électron-électron avec potentiel de Thomas-Fermi

On cherche à mettre le terme de collision sous la forme

$$g(\epsilon_1)d\epsilon_1 \left. \frac{df(\epsilon_1)}{dt} \right|_{e-e} = \sum_{\epsilon_2} \sum_{\epsilon_1'} \left[ -\tilde{P}(\epsilon_1, \epsilon_2; \epsilon_1', \epsilon_2') g(\epsilon_1) f(\epsilon_1) g(\epsilon_2) f(\epsilon_2) (1 - f(\epsilon_1')) (1 - f(\epsilon_2')) d\epsilon_1 d\epsilon_2 \right. \\ \left. + \tilde{P}(\epsilon_1', \epsilon_2'; \epsilon_1, \epsilon_2) g(\epsilon_1) f(\epsilon_1) g(\epsilon_2) f(\epsilon_2) (1 - f(\epsilon_1)) (1 - f(\epsilon_2)) d\epsilon_1 d\epsilon_2 \right]. \quad (\text{E.1})$$

$\tilde{P}(\epsilon_1, \epsilon_2; \epsilon_1', \epsilon_2')$  est la probabilité que deux électrons d'énergie  $\epsilon_1$  et  $\epsilon_2$  se retrouvent après collision avec des énergies  $\epsilon_1'$  et  $\epsilon_2'$ .

## E.1 Règle d'or de Fermi

On calcule la probabilité que deux particules de vecteurs d'onde initiaux  $k_1$  et  $k_2$  se retrouvent, après diffusion, avec des vecteurs d'onde  $k_1'$  et  $k_2'$  avec la condition de conservation de l'énergie  $\epsilon_1 + \epsilon_2 = \epsilon_1' + \epsilon_2'$ . Cette probabilité est donnée par

$$P_{k_1 k_2 \rightarrow k_1' k_2'} = \left( \frac{V}{(2\pi)^3} \right)^2 \int \int |\langle \mathbf{k}_1', \mathbf{k}_2' | \varphi(t) \rangle|^2 \times d^3 k_1' d^3 k_2' \quad (\text{E.2})$$

avec  $\langle \mathbf{k}_1', \mathbf{k}_2' |$  l'état à deux particules de vecteurs d'onde  $k_1'$  et  $k_2'$  et  $|\varphi(t)\rangle$  l'état général du système de deux particules à l'instant  $t$ . Ici  $V/(2\pi)^3 d^3 k$  est le nombre d'état dans le volume  $V$  (voir Annexe 3).

Selon la règle d'or de Fermi, pour un état initial du système tel que  $|\varphi(t=0)\rangle = |\mathbf{k}_1 \mathbf{k}_2\rangle$ ,  $P$  peut s'écrire

$$P_{k_1 k_2 \rightarrow k_1' k_2'} = \frac{V^2}{(2\pi)^6} \frac{2\pi}{\hbar} \int_{V_1'} \int_{V_2'} |\langle \mathbf{k}_1', \mathbf{k}_2' | W | \mathbf{k}_1 \mathbf{k}_2 \rangle|^2 \delta(\epsilon_1 + \epsilon_2 - \epsilon_1' - \epsilon_2') \times d^3 k_1' d^3 k_2'. \quad (\text{E.3})$$

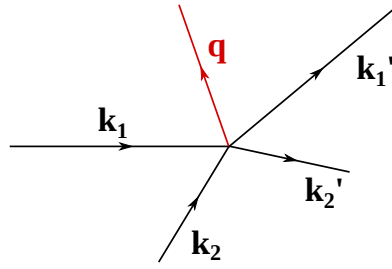
avec  $W$  le potentiel de diffusion qui est supposé petit devant le Hamiltonien non perturbé et  $V_1'$  et  $V_2'$  les volumes d'intégration dans l'espace des vecteurs d'onde  $\mathbf{k}_1'$  et  $\mathbf{k}_2'$ .

## E.2 Potentiel de diffusion électron-électron

Dans le cas d'une collision entre deux électrons isolés, le potentiel d'interaction est un potentiel Coulombien de la forme

$$W(\mathbf{R}) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0|\mathbf{R}|} \quad (\text{E.4})$$





**Figure E.1** – Schéma des vecteurs d'onde lors de la diffusion électron-électron. Le vecteur  $\mathbf{q}$  est défini par  $\mathbf{q} = \mathbf{k}_1' - \mathbf{k}_1$ .

avec  $\mathbf{R} = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2$  où  $\mathbf{r}_1$  et  $\mathbf{r}_2$  sont les positions des deux électrons. Dans ce cas le potentiel diverge pour les petits angles (angles entre  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$ ).

Dans notre cas d'intérêt, les deux électrons se trouvent dans une distribution d'électrons libres, avec un réseau ionique. Dans ce cas on doit prendre en compte l'écrantage de ces deux éléments perturbateurs. Dans le cadre du modèle d'électrons indépendants, on va négliger l'influence des ions. Par contre on peut calculer l'effet des électrons environnants avec le modèle de Thomas-Fermi. Ces électrons ont pour effet de diminuer la portée du potentiel coulombien pour  $|\mathbf{R}|$  grand. On fait l'hypothèse d'un potentiel central  $W(r)$  et d'une densité d'électrons radiale  $n(r)$ . Le principe est le même que pour la méthode de type Hartree-Fock sauf que les électrons sont ici décrits par une simple densité radiale au lieu des fonction d'ondes monoélectroniques de la méthode HF. On construit donc une densité radiale cohérente avec le potentiel central. On suppose que le potentiel central et la densité radiale sont reliés par [Ashcroft 2002]

$$n(r) = \int \frac{d\mathbf{k}}{4\pi^3} \frac{1}{1 + e^{\frac{p^2/2m - \mu - eW(r)}{kT_e}}} \quad (\text{E.5})$$

On a simplement ajouté le potentiel dans la distribution de Fermi-Dirac. Cela revient à faire l'hypothèse que, localement, la distribution est à l'équilibre thermodynamique avec le potentiel central. On fait donc implicitement l'hypothèse que l'expansion spatiale des particules est petite devant la longueur typique de variation du potentiel  $W(r)$  et que le nombre de particule est suffisant pour être dans des condition d'ETL. Finalement on obtient un potentiel écranté de type Yukawa

$$W(\mathbf{R}) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0|\mathbf{R}|} e^{-k_0 r} \quad (\text{E.6})$$

avec  $k_0$  la longueur d'écrantage de Thomas-Fermi donnée par

$$k_0^2 = 4\pi e^2 \frac{\partial n_0}{\partial \mu} \quad (\text{E.7})$$

avec  $\mu$  le potentiel chimique et  $n_0$  la densité du gaz d'électrons.

### E.3 Calcul de l'élément de matrice

L'élément de matrice à calculer est donné par

$$M = \langle \mathbf{k}_1', \mathbf{k}_2' | W | \mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2 \rangle . \quad (\text{E.8})$$

On multiplie à gauche et à droite par les vecteurs  $\mathbf{r}$  adéquates et on utilise la normalisation

$$\langle r|k \rangle = \frac{1}{L^{3/2}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \quad (\text{E.9})$$

avec  $L^3 = V$ . Cette normalisation permet d'obtenir une fonction d'onde telle que

$$\int_V |\phi(r)|^2 d^3r = 1. \quad (\text{E.10})$$

La probabilité donnée par Éq. (E.2) est donc évaluée pour deux particules. En multipliant par les vecteurs position adéquates on peut obtenir

$$M = \frac{1}{V^2} \int \int e^{-i\mathbf{k}_1\cdot\mathbf{r}_1} e^{-i\mathbf{k}_2\cdot\mathbf{r}_2} W(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) e^{i\mathbf{k}_1\cdot\mathbf{r}_1} e^{i\mathbf{k}_2\cdot\mathbf{r}_2} d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2. \quad (\text{E.11})$$

On procède à un changement de variable selon  $\mathbf{K}_{12} = \frac{1}{2}(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)$  et  $\mathbf{r}_{12} = \frac{1}{2}(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)$  [Ridley 1999]. On définit les vecteurs du centre de masse  $\mathbf{K}_{cm} = \frac{1}{2}(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2)$  et  $\mathbf{r}_{cm} = \frac{m_1^* \mathbf{r}_1 + m_2^* \mathbf{r}_2}{m_1^* + m_2^*}$ . L'intégrale se divise en deux intégrales, une sur  $\mathbf{r}_{cm}$  et une sur  $\mathbf{r}_{12}$ . La première est égale à  $V$  et on obtient

$$M = \frac{1}{V} \int e^{-i\mathbf{K}'_{12}\cdot\mathbf{r}_{12}} W(\mathbf{r}_{12}) e^{i\mathbf{K}_{12}\cdot\mathbf{r}_{12}} d\mathbf{r}_{12}. \quad (\text{E.12})$$

On reconnaît la transformée de Fourier du potentiel  $W(\mathbf{r})$

$$\bar{V}(\mathbf{k}) = \int d^3r e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} W(r) = \frac{e^2}{\epsilon_0((\mathbf{K}'_{12} - \mathbf{K}_{12})^2 + k_0^2)} \quad (\text{E.13})$$

et on obtient donc

$$M = \frac{1}{V} \bar{V}(\mathbf{K}'_{12} - \mathbf{K}_{12}) = \frac{1}{V} \frac{e^2}{\epsilon_0((\mathbf{K}'_{12} - \mathbf{K}_{12})^2 + k_0^2)} \quad (\text{E.14})$$

Avec la conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie on a

$$\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_{1'} + \mathbf{k}_{2'} \quad (\text{E.15})$$

et on peut obtenir (voir Fig. E.1)

$$|\mathbf{K}'_{12} - \mathbf{K}_{12}| = \frac{1}{2}(\mathbf{k}_{1'} - \mathbf{k}_{2'} - \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2) = \frac{1}{2}(\mathbf{k}_{1'} - \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_{2'}) = \mathbf{k}_{1'} - \mathbf{k}_1 = \mathbf{q} \quad (\text{E.16})$$

## E.4 Probabilité de diffusion électron-électron

$$P_{k_1 k_2 - k_{1'} k_{2'}} = \frac{V^2}{(2\pi)^5 \hbar} \int_{V_{1'}} \int_{V_{2'}} |M|^2 \times \delta(\epsilon_1 + \epsilon_2 - \epsilon_{1'} - \epsilon_{2'}) \times d^3k_{1'} d^3k_{2'} \quad (\text{E.17})$$

$$= \frac{e^4}{(2\pi)^5 \hbar \epsilon_0^2} \int_{V_{1'}} \int_{V_{2'}} \left( \frac{1}{|\mathbf{q}|^2 + k_0^2} \right)^2 \times \delta(\epsilon_1 + \epsilon_2 - \epsilon_{1'} - \epsilon_{2'}) \times d^3k_{1'} d^3k_{2'} \quad (\text{E.18})$$

Le volume de  $V$  est donc bien un intermédiaire de calcul qui nous permet de normaliser la probabilité pour deux particules.

Les volumes  $V_{1'}$  et  $V_{2'}$  permettent de sommer sur tous les états finals accessibles. On doit donc retirer les états occupés de ces deux volumes c'est-à-dire que l'on multiplie les  $d^3k_i$  par  $(1 - f(\epsilon_i))$ . On obtient donc

$$P_{k_1 k_2 - k_{1'} k_{2'}} = \frac{e^4}{(2\pi)^5 \hbar \epsilon_0^2} \int_{\tilde{V}_{1'}} \int_{\tilde{V}_{2'}} \left( \frac{1}{|\mathbf{q}|^2 + k_0^2} \right)^2 \times \delta(\epsilon_1 + \epsilon_2 - \epsilon_{1'} - \epsilon_{2'}) \times (1 - f(\epsilon_{1'}))(1 - f(\epsilon_{2'})) d^3k_{1'} d^3k_{2'} \quad (\text{E.19})$$

avec  $\tilde{V}_{1'}$  et  $\tilde{V}_{2'}$  les volumes d'intégrations sans conditions d'occupation d'états. On décompose les  $d^3k_i$  tel que  $d^3k_i = k_i^2 \sin(\theta_i) d\theta_i d\varphi_i dk_i = k_i^2 d\Omega_i dk_i$  avec  $\mathbf{q}$  comme référence pour les angles. On note que  $d\Omega_i = \sin\theta_i d\theta_i d\varphi_i = d(\cos\theta_i) d\varphi_i$  et

$$k_{2'}^2 = (\mathbf{k}_2 - \mathbf{q})^2 = k_2^2 + q^2 - 2qk_2 \cos\theta_{2'} \quad (\text{E.20})$$

$$q^2 = (\mathbf{k}_{1'} - \mathbf{k}_1)^2 = k_{1'}^2 + k_1^2 - 2k_{1'} k_1 \cos\theta_{1'}. \quad (\text{E.21})$$

On peut donc en déduire

$$\frac{dk_{2'}^2}{d(\cos\theta_{2'})} = 2qk_{2'} \quad (\text{E.22})$$

et donc

$$d(\cos\theta_{2'}) = \frac{k_{2'}}{qk_{2'}} dk_{2'}. \quad (\text{E.23})$$

De la même manière on a

$$d(\cos\theta_{1'}) = -\frac{q}{k_{1'} k_1} dq. \quad (\text{E.24})$$

On peut finalement remplacer les  $\sin(\theta)$  et intégrer sur les angles  $\varphi$  pour obtenir

$$P_{k_1 k_2 - k_{1'} k_{2'}} = \frac{e^4}{(2\pi)^3 \hbar \epsilon_0^2} \frac{1}{k_1} \int_{\Delta_{k_{1'}}} \int_{\Delta_{k_{2'}}} \int_{\Delta_{k_2}} \delta(\epsilon_1 + \epsilon_2 - \epsilon_{1'} - \epsilon_{2'}) \times k_{1'} k_{2'} k_2 dk_{1'} dk_{2'} dk_2 \quad (\text{E.25})$$

$$\times (1 - f(\epsilon_{1'}))(1 - f(\epsilon_{2'})) \int \frac{1}{(|\mathbf{q}|^2 + k_0^2)^2} dq \quad (\text{E.26})$$

avec  $\Delta_{k_i}$  tel que  $\mathbf{k}_i$  est compris dans le volume  $\tilde{V}_i$  pour  $i = 1'$  et  $i = 2'$  et  $\Delta_{k_2}$  tel que  $\mathbf{k}_{1'}$  et  $\mathbf{k}_{2'}$  sont compris dans leurs volumes respectifs. En utilisant  $kdk = \frac{m}{\hbar^2} dE$  on obtient

$$P_{k_1 k_2 - k_{1'} k_{2'}} = \frac{e^4 m^3}{(2\pi)^3 \hbar^7 \epsilon_0^2} \frac{1}{k_1} \int_{\Delta_{\epsilon_{1'}}} \int_{\Delta_{\epsilon_{2'}}} \int_{\Delta_{\epsilon_2}} \delta(\epsilon_1 + \epsilon_2 - \epsilon_{1'} - \epsilon_{2'}) d\epsilon_{1'} d\epsilon_{2'} d\epsilon_2 \quad (\text{E.27})$$

$$\times (1 - f(\epsilon_{1'}))(1 - f(\epsilon_{2'})) \int \frac{1}{(|\mathbf{q}|^2 + k_0^2)^2} dq \quad (\text{E.28})$$

On intègre le delta de Dirac sur  $\epsilon_2$  et on obtient

$$P_{k_1 k_2 - k_{1'} k_{2'}} = \frac{e^4 m^3}{(2\pi)^3 \hbar^7 \epsilon_0^2} \frac{1}{k_1} \int_{\Delta_{\epsilon_{1'}}} \int_{\Delta_{\epsilon_{2'}}} (1 - f(\epsilon_{1'}))(1 - f(\epsilon_{2'})) d\epsilon_{1'} d\epsilon_{2'} \int \frac{1}{(|\mathbf{q}|^2 + k_0^2)^2} dq \quad (\text{E.29})$$

Comme on peut le voir sur le schéma de la Fig. E.1, l'intégration sur  $q$  se fait entre  $q_{min} = \max(|k_{1'} - k_1|, |k_{2'} - k_2|)$  et  $q_{max} = \min(k_{1'} + k_1, k_{2'} + k_2)$ . L'intégrale sur  $q$  donne

[Snoke 1992]

$$I_q(k_0, q_{min}, q_{max}) = \int \frac{1}{(q^2 + k_0^2)^2} dq = \left[ \frac{q}{2k_0^2(q^2 + k_0^2)} + \frac{1}{2k_0^3} \arctan\left(\frac{q}{k_0}\right) \right]_{q_{min}}^{q_{max}} \quad (\text{E.30})$$

On applique maintenant l'Éq. (E.29) dans le cas d'une discretisation constante de la fonction de distribution avec des cases étroites de largeur  $\Delta\epsilon$  et on obtient

$$P_{k_1 k_2 - k_1' k_2'} = \frac{e^4 m^3}{(2\pi)^3 \hbar^7 \epsilon_0^2 k_1} (\Delta\epsilon)^2 (1 - f(\epsilon_1')) (1 - f(\epsilon_2')) I_q(k_0, q_{min}, q_{max}) \quad (\text{E.31})$$

avec  $\epsilon_{2'} = \epsilon_1 + \epsilon_2 - \epsilon_1'$ .  $P_{k_1 k_2 - k_1' k_2'}$  a bien pour dimension l'inverse d'un temps. On retrouve bien l'expression donnée dans la Réf. [Kaiser 2000].

On peut donc écrire

$$\tilde{P}(\epsilon_1, \epsilon_2; \epsilon_1', \epsilon_2') = \frac{e^4 m^3}{(2\pi)^3 \hbar^7 \epsilon_0^2 k_1} (\Delta\epsilon)^2 I_q(k_0, q_{min}, q_{max}). \quad (\text{E.32})$$



# Bibliographie

- [Abdallah 2012] J. Abdallah et J. Colgan. *Time-dependent calculations of electron energy distribution functions for cold argon gas in the presence of intense black-body radiation*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics, vol. 45, no. 3, 2012. (Cité en page 60.)
- [Abdallah 2013] J. Abdallah, J. Colgan et N. Rohringer. *Time-dependent calculations of electron energy distribution functions for neon gas in the presence of intense XFEL radiation*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics, vol. 46, no. 23, 2013. (Cité en page 60.)
- [Ashcroft 2002] N.W. Ashcroft et N.D. Mermin. Physique des solides. EDP Sciences, 2002. ISBN 9782868835772. (Cité en page 114.)
- [Bar-Shalom 1989a] A. Bar-Shalom, J. Oreg, W.H. Goldstein, D. Shvarts et A. Zigler. *Super-transition-arrays : A model for the spectral analysis of hot, dense plasma*. Physical Review A, vol. 40, no. 6, pages 3183–3193, 1989. (Cité en pages 102 et 103.)
- [Bar-Shalom 1989b] A. Bar-Shalom, J. Oreg, W.H. Goldstein, D. Shvarts et A. Zigler. *Super-transition-arrays : A model for the spectral analysis of hot, dense plasma*. Physical Review A, vol. 40, no. 6, pages 3183–3193, 1989. (Cité en page 104.)
- [Bar-Shalom 2001] A. Bar-Shalom, M. Klapisch et J. Oreg. *Hullac, an integrated computer package for atomic processes in plasmas*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, vol. 71, no. 2-6, pages 169–188, 2001. (Cité en page 17.)
- [Bauche-Arnoult 1979] C. Bauche-Arnoult, J. Bauche et M. Klapisch. *Variance of the distributions of energy levels and of the transition arrays in atomic spectra*. Physical Review A, vol. 20, no. 6, pages 2424–2439, 1979. (Cité en page 104.)
- [Bauche-Arnoult 1982] C. Bauche-Arnoult, J. Bauche et M. Klapisch. *Variance of the distributions of energy levels and of the transition arrays in atomic spectra. II. Configurations with more than two open subshells*. Physical Review A, vol. 25, no. 5, pages 2641–2646, 1982. (Cité en page 104.)
- [Bauche 1988] J. Bauche, C. Bauche-Arnoult et M. Klapisch. *Transition Arrays in the Spectra of Ionized Atoms*. Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics, vol. 23, no. C, pages 131–195, 1988. (Cité en page 102.)
- [Bauche 2008] J. Bauche et Bauche-Arnoult C. *Propriétés spectrales des ions*. Chocs - Revue scientifique et technique de la Direction des applications militaires, no. 36, 2008. (Cité en page 104.)
- [Bauche 2015] J. Bauche, C. Bauche-Arnoult et O. Peyrusse. Atomic properties in hot plasmas : From levels to superconfigurations. Springer International Publishing, 2015. ISBN 3319181467. (Cité en pages 96, 97, 101 et 103.)
- [Blenski 1995] T. Blenski et K. Ishikawa. *Pressure ionization in the spherical ion-cell model of dense plasmas and a pressure formula in the relativistic Pauli approximation*. Physical Review E, vol. 51, no. 5, pages 4869–4881, 1995. (Cité en page 17.)
- [Bonifacio 1984] R. Bonifacio, C. Pellegrini et L.M. Narducci. *Collective instabilities and high-gain regime in a free electron laser*. Optics Communications, vol. 50, no. 6, pages 373–378, 1984. (Cité en page 4.)

- [Bretagne 1982] J. Bretagne, J. Godart et V. Puech. *Low-energy electron distribution in an electron-beam-generated argon plasma*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 15, no. 11, pages 2205–2225, 1982. (Cité en page 60.)
- [Carron 2006] N.J. Carron. An introduction to the passage of energetic particles through matter. CRC Press, 2006. ISBN 9781420012378. (Cité en page 5.)
- [Chimier 2007] B. Chimier, V. T. Tikhonchuk et L. Hallo. *Heating model for metals irradiated by a subpicosecond laser pulse*. Phys. Rev. B, vol. 75, no. 19, page 195124, 2007. (Cité en page 24.)
- [Cho 2012] B.I. Cho, K. Engelhorn, S.M. Vinko, H.-K. Chung, O. Ciricosta, D.S. Rackstraw, R.W. Falcone, C.R.D. Brown, T. Burian, J. Chalupský, C. Graves, V. Hájková, A. Higginbotham, L. Juha, J. Krzywinski, H.J. Lee, M. Messersmidt, C. Murphy, Y. Ping, N. Rohringer, A. Scherz, W. Schlotter, S. Toleikis, J.J. Turner, L. Vysin, T. Wang, B. Wu, U. Zastra, D. Zhu, R.W. Lee, B. Nagler, J.S. Wark et P.A. Heimann. *Resonant  $K\alpha$  spectroscopy of solid-density aluminum plasmas*. Physical Review Letters, vol. 109, no. 24, page 245003, 2012. (Cité en page 13.)
- [Chung 2005] H.-K. Chung, M.H. Chen, W.L. Morgan, Y. Ralchenko et R.W. Lee. *FLYCHK : Generalized population kinetics and spectral model for rapid spectroscopic analysis for all elements*. High Energy Density Physics, vol. 1, no. 1, pages 3–12, 2005. (Cité en page 45.)
- [Chung 2007] H.-K. Chung, M.H. Chen et R.W. Lee. *Extension of atomic configuration sets of the Non-LTE model in the application to the  $K\alpha$  diagnostics of hot dense matter*. High Energy Density Physics, vol. 3, no. 1-2, pages 57–64, 2007. (Cité en pages 9, 10 et 45.)
- [Ciricosta 2012] O. Ciricosta, S.M. Vinko, H.-K. Chung, B.-I. Cho, C.R.D. Brown, T. Burian, J. Chalupský, K. Engelhorn, R.W. Falcone, C. Graves, V. Hájková, A. Higginbotham, L. Juha, J. Krzywinski, H.J. Lee, M. Messerschmidt, C.D. Murphy, Y. Ping, D.S. Rackstraw, A. Scherz, W. Schlotter, S. Toleikis, J.J. Turner, L. Vysin, T. Wang, B. Wu, U. Zastra, D. Zhu, R.W. Lee, P. Heimann, B. Nagler et J.S. Wark. *Direct measurements of the ionization potential depression in a dense plasma*. Physical Review Letters, vol. 109, no. 6, page 065002, 2012. (Cité en pages 41, 45, 51, 52 et 53.)
- [Citrin 1977] P. Citrin, G. Wertheim et Y. Baer. *Many-body processes in x-ray photoemission line shapes from Li, Na, Mg, and Al metals*. Phys. Rev. B, vol. 16, no. 10, pages 4256–4282, 1977. (Cité en page 23.)
- [Colonna 2001] G. Colonna, A. Casavola et M. Capitelli. *Modelling of LIBS plasma expansion*. Spectrochimica Acta - Part B Atomic Spectroscopy, vol. 56, no. 6, pages 567–586, 2001. (Cité en page 60.)
- [Corde 2013] S. Corde, K. Ta Phuoc, G. Lambert, R. Fitour, V. Malka, A. Rousse, A. Beck et E. Lefebvre. *Femtosecond x rays from laser-plasma accelerators*. Reviews of Modern Physics, vol. 85, no. 1, pages 1–48, 2013. (Cité en page 3.)
- [Cowan 1981] R. D. Cowan. The theory of atomic structure and spectra. Los Alamos Series in Basic and Applied Sciences. University of California Press, Ltd., Berkeley, 1981. ISBN 0520906152. (Cité en pages 17, 94, 97 et 101.)
- [CXRO ] <http://www.cxro.lbl.gov> CXRO. (Cité en pages 5, 27, 36, 37 et 55.)

- [Deschaud 2014] B. Deschaud, O. Peyrusse et F. B. Rosmej. *Generalized atomic processes for interaction of intense femtosecond XUV- and X-ray radiation with solids*. EPL (Europhysics Letters), vol. 108, no. 5, page 53001, 2014. (Cité en page 13.)
- [Deschaud 2015] B. Deschaud, O. Peyrusse et F.B. Rosmej. *Atomic kinetics for isochoric heating of solid aluminum under short intense XUV free electron laser irradiation*. High Energy Density Physics, vol. 15, pages 22–29, 2015. (Cité en page 13.)
- [Deschaud 2016] B. Deschaud, O. Peyrusse et F.B. Rosmej. *Simulation of 2D X-ray-induced fluorescence spectra and estimation of ionization potential depression in dense plasmas*. in preparation, 2016. (Cité en page 43.)
- [Drake 2006a] G.W.F. Drake. Springer handbook of atomic, molecular, and optical physics. Springer Handbook of Atomic, Molecular, and Optical Physics. Springer, 2006. ISBN 9780387263083. (Cité en page 13.)
- [Drake 2006b] R.P. Drake. High-energy-density physics : Fundamentals, inertial fusion, and experimental astrophysics. Shock Wave and High Pressure Phenomena. Springer, 2006. ISBN 9783540293149. (Cité en page 7.)
- [Dufour 1976] G Dufour, J-M Mariot, P-E Nilsson-Jatko et R C Karnatak. *K-LL Auger Spectrum of Aluminium*. Physica Scripta, vol. 13, no. 6, page 370, 1976. (Cité en page 93.)
- [Ecker 1963] G. Ecker et W. Kröll. *Lowering of the ionization energy for a plasma in thermodynamic equilibrium*. Physics of Fluids, vol. 6, no. 1, pages 62–69, 1963. (Cité en pages 27 et 105.)
- [Eidmann 2000] K. Eidmann, J. Meyer-ter Vehn, T. Schlegel et S. Hüller. *Hydrodynamic simulation of subpicosecond laser interaction with solid-density matter*. Phys. Rev. E, vol. 62, no. 1, pages 1202–1214, 2000. (Cité en page 25.)
- [FLASH ] <http://flash.desy.de> FLASH. (Cité en pages 4 et 73.)
- [Fujimoto 2004] T. Fujimoto. Plasma spectroscopy. International Series of Monographs on Physics. Clarendon Press, 2004. ISBN 9780198530282. (Cité en page 13.)
- [Galtier 2011] E. Galtier, F.B. Rosmej, T. Dzelzainis, D. Riley, F.Y. Khattak, P. Heilmann, R.W. Lee, A.J. Nelson, S.M. Vinko, T. Whitcher, J.S. Wark, T. Tschentscher, S. Toleikis, R.R. Fäustlin, R. Sobierajski, M. Jurek, L. Juha, J. Chalupsky, V. Hajkova, M. Kozlova, J. Krzywinski et B. Nagler. *Decay of crystalline order and equilibration during the solid-to-plasma transition induced by 20-fs microfocused 92-eV free-electron-laser pulses*. Physical Review Letters, vol. 106, no. 16, page 164801, 2011. (Cité en pages 13, 36 et 40.)
- [Griem 1964] H.R. Griem. Plasma spectroscopy. McGraw-Hill, 1964. (Cité en page 13.)
- [Griem 1997] Hans R. Griem. Principles of plasma spectroscopy. Cambridge University Press, 1997. ISBN 9780511524578. (Cité en pages 13 et 96.)
- [Gu 2008] M F Gu. *The flexible atomic code*. Canadian Journal of Physics, vol. 86, no. 5, pages 675–689, 2008. (Cité en page 17.)
- [Hau-Riege 2007] Stefan P. Hau-Riege, Richard A. London, Henry N. Chapman et Magnus Bergh. *Soft-x-ray free-electron-laser interaction with materials*. Phys. Rev. E, vol. 76, no. 4, page 046403, 2007. (Cité en page 9.)



- [Henke 1993] B.L. Henke, E.M. Gullikson et J.C. Davis. *X-ray interactions : Photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at  $E = 50\text{-}30,000$  eV,  $Z = 1\text{-}92$* . Atomic Data and Nuclear Data Tables, vol. 54, no. 2, pages 181–342, 1993. (Cité en pages 19 et 53.)
- [Hoarty 2013] D.J. Hoarty, P. Allan, S.F. James, C.R.D. Brown, L.M.R. Hobbs, M.P. Hill, J.W.O. Harris, J. Morton, M.G. Brookes, R. Shepherd, J. Dunn, H. Chen, E. Von Marley, P. Beiersdorfer, H.K. Chung, R.W. Lee, G. Brown et J. Emig. *Observations of the effect of ionization-potential depression in hot dense plasma*. Physical Review Letters, vol. 110, no. 26, page 265003, 2013. (Cité en page 52.)
- [Hummer 1988] DG Hummer et Dimitri Mihalas. *The equation of state for stellar envelopes. I-an occupation probability formalism for the truncation of internal partition functions*. The Astrophysical Journal, vol. 331, pages 794–814, 1988. (Cité en pages 17 et 28.)
- [Kaiser 2000] A. Kaiser, E. Rethfeld, M. Vicanek et G. Simon. *Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses*. Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics, vol. 61, no. 17, pages 11437–11450, 2000. (Cité en pages 18, 62 et 117.)
- [Kobayasi 1970] T. Kobayasi et A. Morita. *Theoretical investigation of the X-ray level widths of light metals*. Journal of the Physical Society of Japan, vol. 28, no. 2, pages 457–466, 1970. (Cité en page 23.)
- [Kondratenko 1980] A.M. Kondratenko et E.L. Saldin. *Generation of coherent radiation by a relativistic electron beam in an undulator*. Particle accelerators Print, vol. 10, no. 3-4, pages 207–216, 1980. (Cité en page 4.)
- [LCLS ] <http://www-ssrl.slac.stanford.edu/lcls> LCLS. (Cité en page 4.)
- [Lee 1997] Richard W. Lee, J.K. Nash et Y. Ralchenko. *Review of the {NLTE} kinetics code workshop*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, vol. 58, no. 4–6, pages 737 – 742, 1997. (Cité en page 13.)
- [Li 2012] X. Li et F.B. Rosmej. *Quantum-number-dependent energy level shifts of ions in dense plasmas : A generalized analytical approach*. EPL, vol. 99, no. 3, page 33001, 2012. (Cité en pages 17, 52, 53 et 106.)
- [Lieberman 1979] D.A. Lieberman. *Self-consistent field model for condensed matter*. Physical Review B, vol. 20, no. 12, pages 4981–4989, 1979. (Cité en page 17.)
- [Marchand 1991] R. Marchand et J.P. Matte. *Simulation of ionisation dynamics and electron kinetics*. Journal of Computational Physics, vol. 97, no. 2, pages 352–365, 1991. (Cité en page 60.)
- [Medvedev 2010] N Medvedev et B Rethfeld. *Transient dynamics of the electronic subsystem of semiconductors irradiated with an ultrashort vacuum ultraviolet laser pulse*. New Journal of Physics, vol. 12, no. 7, page 073037, 2010. (Cité en page 9.)
- [Medvedev 2011] N. Medvedev, U. Zastra, E. Förster, D. O. Gericke et B. Rethfeld. *Short-Time Electron Dynamics in Aluminum Excited by Femtosecond Extreme Ultraviolet Radiation*. Phys. Rev. Lett., vol. 107, no. 16, page 165003, 2011. (Cité en pages 9 et 10.)
- [More 1981] R M More. *LLNL technical report, No. UCRL-84991*, 1981. (Cité en page 106.)

- [Nagler 2009] B. Nagler, U. Zastra, R.R. Fäustlin, S.M. Vinko, T. Whitcher, A.J. Nelson, R. Sobierajski, J. Krzywinski, J. Chalupsky, E. Abreu, S. Bajt, T. Bornath, T. Burian, H. Chapman, J. Cihelka, T. Döppner, S. Düsterer, T. Dzelzainis, M. Fajardo, E. Förster, C. Fortmann, E. Galtier, S.H. Glenzer, S. Göde, G. Gregori, V. Hajkova, P. Heimann, L. Juha, M. Jurek, F.Y. Khattak, A.R. Khorsand, D. Klinger, M. Kozlova, T. Laarmann, H.J. Lee, R.W. Lee, K.-H. Meiwes-Broer, P. Mercere, W.J. Murphy, A. Przystawik, R. Redmer, H. Reinholz, D. Riley, G. Röpke, F. Rosmej, K. Saksl, R. Schott, R. Thiele, J. Tiggesbäumker, S. Toleikis, T. Tschentscher, I. Uschmann, H.J. Vollmer et J.S. Wark. *Turning solid aluminium transparent by intense soft X-ray photoionization*. Nature Physics, vol. 5, no. 9, pages 693–696, 2009. (Cité en pages 13, 33, 34 et 36.)
- [Petitdemange 2013] F. Petitdemange et F. B. Rosmej. New trends in atomic and molecular physics : Advanced technological applications, chapitre Dielectronic Satellites and Auger Electron Heating : Irradiation of Solids by Intense XUV-Free Electron Laser Radiation, pages 91–114. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2013. (Cité en page 40.)
- [Petrov 2013] Y.V. Petrov, N.A. Inogamov et K.P. Migdal. *Thermal conductivity and the electron-ion heat transfer coefficient in condensed media with a strongly excited electron subsystem*. JETP Letters, vol. 97, no. 1, pages 20–27, 2013. (Cité en page 60.)
- [Peyrusse 1999] O Peyrusse. *Atomic configuration averages and non-local thermodynamical equilibrium plasma spectroscopy calculations*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics, vol. 32, no. 3, page 683, 1999. (Cité en pages 10, 13, 17, 20, 26, 102 et 103.)
- [Peyrusse 2000] O Peyrusse. *A superconfiguration model for broadband spectroscopy of non-LTE plasmas*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics, vol. 33, no. 20, page 4303, 2000. (Cité en pages 10, 17, 102 et 103.)
- [Peyrusse 2008] O. Peyrusse. *Cinétique des plasmas hors-équilibre et supraconfigurations*. Chocs - Revue scientifique et technique de la Direction des applications militaires, no. 36, 2008. (Cité en page 102.)
- [Peyrusse 2012] O. Peyrusse. *Coupling of detailed configuration kinetics and hydrodynamics in materials submitted to x-ray free-electron-laser irradiation*. Phys. Rev. E, vol. 86, no. 3, page 036403, 2012. (Cité en pages 10, 25 et 87.)
- [Peyrusse 2014] O. Peyrusse. *Rayonnement des plasmas hors équilibre, Cours du Master Sciences de la Fusion*, 2013-2014. (Cité en pages 97 et 109.)
- [Rackstraw 2015] D. S. Rackstraw, O. Ciricosta, S. M. Vinko, B. Barbrel, T. Burian, J. Chalupský, B. I. Cho, H.-K. Chung, G. L. Dakovski, K. Engelhorn, V. Hájková, P. Heimann, M. Holmes, L. Juha, J. Krzywinski, R. W. Lee, S. Toleikis, J. J. Turner, U. Zastra et J. S. Wark. *Saturable Absorption of an X-Ray Free-Electron-Laser Heated Solid-Density Aluminum Plasma*. Phys. Rev. Lett., vol. 114, no. 1, page 015003, 2015. (Cité en pages 13, 53 et 54.)
- [Ridley 1999] B K Ridley. Quantum processes in semiconductors; 4th ed. Clarendon Press, Oxford, 1999. ISBN 0198505795. (Cité en pages 18, 62 et 115.)
- [Rosmej 1998] F. B. Rosmej. *Spektroskopische Methoden zur Analyse von Plasmen im Nicht-Gleichgewicht*. Habilitationsschrift, 1998. (Cité en page 67.)

- [Rosmej 2006] F.B. Rosmej. *An alternative method to determine atomic radiative emission*. Europhysics Letters, vol. 76, no. 6, pages 1081–1087, 2006. (Cité en page 23.)
- [Rosmej 2007a] F.B. Rosmej et R.W. Lee. *Hollow ion emission driven by pulsed intense X-ray fields*. EPL, vol. 77, no. 2, page 24001, 2007. (Cité en pages 50 et 87.)
- [Rosmej 2007b] F.B. Rosmej, R.W. Lee et D.H.G. Schneider. *A 10 fs X-ray emission switch driven by an intense X-ray free electron laser*. High Energy Density Physics, vol. 3, no. 1-2, pages 218–224, 2007. (Cité en page 87.)
- [Rosmej 2012a] F. B. Rosmej. *Exotic States of High Density Matter Driven by Intense XUV/X-Ray Free Electron Lasers, Free Electron Lasers, Dr. Sandor Varro (Ed.)*, 2012. ISBN 978-953-51-0279-3. (Cité en pages 6 et 7.)
- [Rosmej 2012b] F. B. Rosmej. X-ray emission spectroscopy and diagnostics of non-equilibrium fusion and laser produced plasmas in handbook for highly charged ion spectroscopic research. Taylor and Francis, 2012. ISBN 978-1-4200-7904-3. edited by R. Hutton and Y. Zou. (Cité en page 13.)
- [Rosmej 2015] F. B. Rosmej, R. Dachicourt, B. Deschaud, D. Khaghani, M. Dozières, M. Šmíd et O. Renner. *Exotic x-ray emission from dense plasmas*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics, vol. 48, no. 22, page 224005, 2015. (Cité en pages 41 et 42.)
- [Rosmej 2016] F.B. Rosmej, O. Renner, E. Galtier, H.J. Lee, B. Nagler, W. Schlotter, M.P. Minitti, J.J. Turner, R.W. Lee, P. Heimann, S. Glenzer et J. Seely. *X-ray pumping of transient dense matter*. in preparation, 2016. (Cité en page 87.)
- [SACLA ] <http://xfel.riken.jp/eng> SACLA. (Cité en page 4.)
- [Salzmann 1987] D. Salzmann et H. Szichman. *Density dependence of the atomic transition probabilities in hot, dense plasmas*. Physical Review A, vol. 35, no. 2, pages 807–814, 1987. (Cité en page 17.)
- [Snoke 1989] D.W. Snoke et J.P. Wolfe. *Population dynamics of a Bose gas near saturation*. Physical Review B, vol. 39, no. 7, pages 4030–4037, 1989. (Cité en page 18.)
- [Snoke 1992] D.W. Snoke, W.W. Rühle, Y.-C. Lu et E. Bauser. *Evolution of a nonthermal electron energy distribution in GaAs*. Physical Review B, vol. 45, no. 19, pages 10979–10989, 1992. (Cité en pages 18, 62 et 117.)
- [Sperling 2015] P. Sperling, E.J. Gamboa, H.J. Lee, H.K. Chung, E. Galtier, Y. Omarbakiyeva, H. Reinholz, G. Röpke, U. Zastra, J. Hastings, L.B. Fletcher et S.H. Glenzer. *Free-Electron X-Ray Laser Measurements of Collisional-Damped Plasmons in Isochorically Heated Warm Dense Matter*. Physical Review Letters, vol. 115, no. 11, page 115001, 2015. (Cité en page 13.)
- [Stewart 1966] J. C. Stewart et K. D. Pyatt Jr. *Lowering of Ionization Potentials in Plasmas*. Astrophys. J., vol. 144, page 1203, 1966. (Cité en pages 27 et 106.)
- [Sun 1994] C.-K. Sun, F. Vallée, L.H. Acioli, E.P. Ippen et J.G. Fujimoto. *Femtosecond-tunable measurement of electron thermalization in gold*. Physical Review B, vol. 50, no. 20, pages 15337–15348, 1994. (Cité en page 18.)
- [Town 1995] R.P.J. Town, A.R. Bell et S.J. Rose. *Fokker-Planck calculations with ionization dynamics of short-pulse laser-solid interactions*. Physical Review Letters, vol. 74, no. 6, pages 924–927, 1995. (Cité en page 60.)

- [Vallotton 2010] T. Vallotton, O. Peyrusse et D. Benredjem. *Density-induced continuum resonances and quasi-bound states in the collisional-radiative equilibrium of dense plasmas*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics, vol. 43, no. 15, page 155207, 2010. (Cité en pages 14 et 17.)
- [Vinko 2010] S. M. Vinko, U. Zastra, S. Mazevet, J. Andreasson, S. Bajt, T. Burian, J. Chalupsky, H. N. Chapman, J. Cihelka, D. Doria, T. Döppner, S. Düsterer, T. Dzelzainis, R. R. Fäustlin, C. Fortmann, E. Förster, E. Galtier, S. H. Glenzer, S. Göde, G. Gregori, J. Hajdu, V. Hajkova, P. A. Heimann, R. Irsig, L. Juha, M. Jurek, J. Krzywinski, T. Laarmann, H. J. Lee, R. W. Lee, B. Li, K.-H. Meiwes-Broer, J. P. Mithen, B. Nagler, A. J. Nelson, A. Przystawik, R. Redmer, D. Riley, F. Rosmej, R. Sobierajski, F. Tavella, R. Thiele, J. Tiggesbäumker, S. Toleikis, T. Tschentscher, L. Vysin, T. J. Whitcher, S. White et J. S. Wark. *Electronic Structure of an XUV Photogenerated Solid-Density Aluminum Plasma*. Phys. Rev. Lett., vol. 104, page 225001, 2010. (Cité en pages 13 et 37.)
- [Vinko 2012] S.M. Vinko, O. Ciricosta, B.I. Cho, K. Engelhorn, H.-K. Chung, C.R.D. Brown, T. Burian, J. Chalupský, R.W. Falcone, C. Graves, V. Hájková, A. Higginbotham, L. Juha, J. Krzywinski, H.J. Lee, M. Messerschmidt, C.D. Murphy, Y. Ping, A. Scherz, W. Schlotter, S. Toleikis, J.J. Turner, L. Vysin, T. Wang, B. Wu, U. Zastra, D. Zhu, R.W. Lee, P.A. Heimann, B. Nagler et J.S. Wark. *Creation and diagnosis of a solid-density plasma with an X-ray free-electron laser*. Nature, vol. 482, no. 7383, pages 59–62, 2012. (Cité en pages 13, 43 et 44.)
- [Vinko 2015] S.M. Vinko, O. Ciricosta, T.R. Preston, D.S. Rackstraw, C.R.D. Brown, T. Burian, J. Chalupský, B.I. Cho, H.-K. Chung, K. Engelhorn, R.W. Falcone, R. Fiokovinini, V. Hájková, P.A. Heimann, L. Juha, H.J. Lee, R.W. Lee, M. Messerschmidt, B. Nagler, W. Schlotter, J.J. Turner, L. Vysin, U. Zastra et J.S. Wark. *Investigation of femtosecond collisional ionization rates in a solid-density aluminium plasma*. Nature Communications, vol. 6, 2015. (Cité en page 13.)
- [Whittaker 2011] D. S. Whittaker, E. Wagenaars et G. J. Tallents. *Temperatures following x-ray free-electron-laser heating of thin low- and medium-Z solid targets*. Physics of Plasmas, vol. 18, no. 1, page 013105, 2011. (Cité en page 9.)
- [Zastra 2008] U. Zastra, C. Fortmann, R. R. Fäustlin, L. F. Cao, T. Döppner, S. Düsterer, S. H. Glenzer, G. Gregori, T. Laarmann, H. J. Lee, A. Przystawik, P. Radcliffe, H. Reinholz, G. Röpke, R. Thiele, J. Tiggesbäumker, N. X. Truong, S. Toleikis, I. Uschmann, A. Wierling, T. Tschentscher, E. Förster et R. Redmer. *Bremstrahlung and line spectroscopy of warm dense aluminum plasma heated by xuv free-electron-laser radiation*. Phys. Rev. E, vol. 78, page 066406, 2008. (Cité en page 13.)
- [Zastra 2012] U. Zastra, T. Burian, J. Chalupsky, T. Döppner, T.W.J. Dzelzainis, R.R. Fäustlin, C. Fortmann, E. Galtier, S.H. Glenzer, G. Gregori, L. Juha, H.J. Lee, R.W. Lee, C.L.S. Lewis, N. Medvedev, B. Nagler, A.J. Nelson, D. Riley, F.B. Rosmej, S. Toleikis, T. Tschentscher, I. Uschmann, S.M. Vinko, J.S. Wark, T. Whitcher et E. Förster. *XUV spectroscopic characterization of warm dense aluminum plasmas generated by the free-electron-laser FLASH*. Laser and Particle Beams, vol. 30, no. 1, pages 45–56, 2012. (Cité en page 13.)

[Zimmerman 1980] G.B. Zimmerman et R.M. More. *Pressure ionization in laser-fusion target simulation*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, vol. 23, no. 5, pages 517–522, 1980. (Cité en page [28](#).)