

N° d'ordre : 3389

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITÉ BORDEAUX I

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

par **Samuel MICHEAU**

pour obtenir le grade de

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : NOYAUX, ATOMES, AGRÉGATS et PLASMAS

**ÉTUDE THÉORIQUE DE L'INTERACTION
ENTRE UNE IMPULSION LASER INTENSE
ET UN AGRÉGAT DE GAZ RARE**

Soutenue le : 4 juillet 2007

Après avis de :

M. **P.-A. HERVIEUX** *Rapporteur*
M. **E. SURAUD** *Rapporteur*

Devant la commission d'examen formée de :

| | | |
|--------------------------|--|-------------------|
| M. P. QUENTIN | <i>Professeur, Université Bordeaux I</i> | Président |
| M. P.-A. HERVIEUX | <i>Professeur, Université L. Pasteur</i> | Rapporteur |
| M. E. SURAUD | <i>Professeur, Université P. Sabatier</i> | Rapporteur |
| M. J.-P. ROZET | <i>Professeur, Université P. et M. Curie</i> | |
| M. H. JOUIN | <i>Professeur, Université Bordeaux I</i> | |
| M. B. PONS | <i>Professeur, Université Bordeaux I</i> | |

À mon père.

À Maxime et Manon.

Remerciements

Ce manuscrit présente le travail de thèse réalisé au sein du laboratoire CELIA (Centre Lasers Intenses et Applications). Je remercie tout d'abord Jean-Claude Gauthier et Philippe Balcou de m'y avoir accueilli. J'ai ainsi pu bénéficier d'un remarquable encadrement tant scientifique qu'humain qui m'a permis de travailler dans d'excellentes conditions.

Je remercie également les membres du jury de m'avoir gratifié de leur intérêt pour ce travail :

- M. Quentin qui m'a fait l'honneur de présider le jury de thèse,
- M. Hervieux et M. Suraud qui ont accepté d'examiner en détail ce manuscrit,
- M. Rozet pour l'intérêt qu'il a porté à mon travail.

Et puis je ne saurais jamais comment exprimer toute ma gratitude et ma reconnaissance à Hervé Jouin et Bernard Pons, avec lesquels j'ai passé d'excellentissimes années. Je les remercie pour le temps passé à tenter de me transmettre leurs rigueurs, leurs capacités de travail et leurs qualités scientifiques et pédagogiques. De plus, leurs qualités humaines font de ces directeurs de thèse bien plus que des encadrants. J'espère avoir le plaisir de continuer à les côtoyer dans le futur.

L'ensemble de ce travail est également tributaire d'un certain nombre de personnes, parmi lesquelles Tony, Christophe et Fabien qui ont ouvert la voie de l'interaction laser-agrégat au CELIA et ont permis d'obtenir de nombreux résultats expérimentaux sur lesquels j'ai pu m'appuyer pour jauger la validité du modèle. Je salue également tout les autres membres de l'équipe SXPI (João, Claude, Sébastien, Sophie, Olivier, Marion, Thomas) avec lesquels j'ai travaillé et/ou simplement partagé leur bonne humeur et leur agréable compagnie.

Je remercie également Paul-Antoine Hervieux et Ugo Ancarani pour m'avoir épauler dans l'évaluation des sections collisionnelles. Je remercie Fernando Gutierrez pour m'avoir accueilli au Chili. Il m'aura permis de découvrir, entre autre chose, une information essentielle (bien qu'elle ne soit pas exposée dans la suite de cette thèse), à savoir que le Chili est un pays magnifique à visiter absolument. Cher lecteur, après avoir déchiffrer ce manuscrit, prends des vacances et pars explorer cette extraordinaire contrée !

Je profite également de cette page pour saluer les thésards et les permanents (les jeunes et les moins jeunes) qui rendent la vie du labo si agréable qu'on y passerait ses nuits et

ses weekends. Voici quelques noms en pagaille : Mickaël, Baptiste, Marion, Yann, Fabien, Dominique, Capucine, Claude, Yohann, Thomas, João. Une dédicace spéciale à mon frère de thèse, Mickaël, avec qui j'ai partagé les hauts et les bas de la rédaction. Et une autre dédicace à Christophe qui m'a montré la voie. Tu avais raison, pour parvenir au but il faut beaucoup de courage!

Et puis, d'une manière plus personnelle, je salue celles et ceux dont je suis heureux de partager l'amitié : Tony "Grenouille", Matthieu et toute sa petite famille, Christophe et Ilaria, Fabien et Cécile, Dominique, Micka et Tzveti, Baptiste, Cécile et Margot, Marion et João, Yann et Béata, et bien sûr Wilfried et tout les vendéens. Je salue également les badmintonneurs et squasheurs qui m'ont aidé à me défouler chaque semaine.

Enfin, je ne peux terminer sans accorder toute ma reconnaissance et toute mon affection à ma famille, sans qui je ne serais certainement pas ici aujourd'hui.

Table des matières

| | |
|---|-----------|
| Introduction | 1 |
| 1 État de l'art | 5 |
| 1.1 Généralités | 7 |
| 1.2 Résultats expérimentaux relatifs à l'émission de rayonnement X | 11 |
| 1.3 Autres résultats expérimentaux | 19 |
| 1.4 Modélisation de l'interaction : Résultats théoriques | 24 |
| 1.5 Conclusion | 34 |
| 2 Le modèle nanoplasma | 37 |
| 2.1 Présentation générale du modèle nanoplasma | 39 |
| 2.2 Ionisation optique | 42 |
| 2.3 Champ électrique interne | 46 |
| 2.4 Fréquence de collisions électron-ion | 49 |
| 2.5 Ionisation collisionnelle | 55 |
| 2.6 Émission d'électrons | 59 |
| 2.7 Expansion de l'agrégat | 60 |
| 2.8 Température électronique | 61 |
| 2.9 Implémentation numérique | 65 |
| 2.10 Résultats | 66 |
| 2.11 Conclusion | 67 |
| 3 Amélioration de la dynamique d'ionisation collisionnelle : prise en compte d'états excités | 69 |
| 3.1 Description approchée de la structure électronique des atomes et des ions : Potentiel-modèle | 71 |
| 3.2 Excitation ou ionisation d'une sous-couche multiélectronique : le modèle à électrons indépendants | 79 |
| 3.3 Évaluation des sections d'excitation et d'ionisation : approches DWBA et PWBA | 81 |
| 3.4 Pour une évaluation plus immédiate des sections : expressions simplifiées | 107 |
| 3.5 Inclusion des états excités dans le modèle nanoplasma | 110 |
| 3.6 Conclusion | 114 |

| | | |
|----------|---|------------|
| 4 | Interaction électron-ion : influence des phénomènes d'écran induits par une densité d'électrons libres | 115 |
| 4.1 | Modèle d'écran pour l'interaction laser-agrégat : l'approche de Gupta et Rajagopal | 117 |
| 4.2 | Influence de l'écran sur les états liés | 130 |
| 4.3 | Influence de l'écran sur les collisions électron-ion | 134 |
| 4.4 | Conclusion | 149 |
| 5 | Modélisation de l'interaction laser-agrégat : résultats | 151 |
| 5.1 | Amélioration du modèle nanoplasma : influence de chacune des contributions | 153 |
| 5.2 | Dynamique de l'interaction : influence de chacun des paramètres du modèle | 160 |
| 5.3 | Résultats obtenus dans le cadre du modèle nanoplasma amélioré | 163 |
| 5.4 | Conclusion | 187 |
| | Conclusion et perspectives | 189 |
| | Annexes | 195 |
| A | Description de la structure élec. atomique : Expression du potentiel modèle | 195 |
| B | Base d'orbitales de type Slater : fonctions d'onde liées et niveaux d'énergie | 201 |
| C | Fonctions d'onde non liées : décomposition en ondes partielles | 205 |
| C.1 | Décomposition dans le cas d'une diffusion par un potentiel coulombien modifié | 205 |
| C.2 | Décomposition dans le cas d'une diffusion par un potentiel de portée finie | 208 |
| D | Calcul des forces d'oscillateur | 211 |
| | Bibliographie | 215 |

Introduction

L'intérêt scientifique et économique associé au développement des nanosciences a conduit depuis plusieurs années la communauté scientifique à accorder une place importante à l'étude des nano-objets. Ces structures singulières, qui peuvent être composées de quelques dizaines à plusieurs millions d'atomes, présentent en effet des propriétés physico-chimiques qui leurs confèrent de prometteuses applications dans de nombreux domaines (médecine, biologie, chimie, physique ...). De nombreux travaux de recherche se sont donc intéressés à la caractérisation de ces systèmes atomiques. Parmi l'éventail de ces nano-objets, les agrégats, dont la taille varie d'une dizaine à quelques centaines d'angströms, ont pu être observés dès 1956 par Becker et coll. en étudiant des atomes condensés d'argon et de di-azote [Becker *et al.* 56]. Depuis, divers types d'agrégats ont été mis en évidence, agrégats que l'on peut distinguer selon la nature des liaisons assurant leur cohésion :

- Les agrégats covalents : les atomes sont liés entre eux par des liaisons chimiques dans lesquelles chacun des atomes met en commun un ou plusieurs électrons de ses couches externes, ces électrons restant localisés au niveau de la liaison.
- Les agrégats métalliques pour lesquels une partie des électrons se trouve délocalisée sur l'ensemble de la structure.
- Les agrégats de gaz rare : les atomes ne partagent aucun électron, la cohésion est assurée par les forces dipolaires de Van der Waals.

Ces différents types de liaison assurent aux agrégats une diversité de propriétés très intéressante [Cyrot-Lackmann *et al.* 81]. De plus, la variation du nombre d'atomes composant l'agrégat permet d'étudier une large palette de comportements entre des spécificités propres à l'échelle moléculaire et des caractéristiques propres aux solides massifs. Ces nano-objets représentent donc un immense champ d'investigation.

Depuis plusieurs années, les développements technologiques dans le domaine des impulsions laser ultra-courtes et ultra-intenses ont permis d'atteindre de nouveaux régimes d'interaction avec la matière jusqu'alors inaccessibles. De nombreuses recherches portant sur des cibles de différentes échelles (de l'atome au solide) ont alors été menées notamment dans le but de produire des sources secondaires brèves et énergétiques de rayonnement ou de particules. Par exemple, si un atome est irradié par une impulsion laser, l'électron peut alors être ionisé et, oscillant dans le champ laser, se recombiner en émettant un photon dont la fréquence est un multiple de la fréquence laser (rayonnement harmonique) [McPherson *et al.* 87, Corkum 93]. La durée d'émission de ce rayonnement est

alors sub-femtoseconde, et l'énergie maximum des photons émis est de quelques dizaines d'électronvolts (dans la gamme spectrale de l'ultra-violet).

Afin d'obtenir des photons plus énergétiques (de quelques kilo-électronvolts), l'interaction d'une impulsion laser avec une cible solide s'est avérée être plus fructueuse [Murnane *et al.* 91]. Le champ électromagnétique incident ionise les atomes de la cible, créant ainsi une population d'électrons libres. Les électrons les plus énergétiques peuvent alors se propager dans le corps de la cible et induire l'émission de photons X, soit en générant des lacunes en couche interne par collision avec les atomes ou ions environnants (l'émission provient alors de désexcitations radiatives), soit par bremsstrahlung (rayonnement de freinage associé à la décélération d'électrons entrant en collision avec un ion ou un atome). La durée de l'émission X dépend de l'expansion hydrodynamique du plasma, les temps caractéristiques allant du domaine sub-picoseconde à la picoseconde [Kieffer *et al.* 00].

Dans le cadre de l'interaction laser-matière, d'autres cibles ont plus récemment été envisagées parmi lesquelles les poudres [Servol 05], les gouttelettes [Parra *et al.* 00] et les agrégats. Pour ce dernier type de cible, de nombreuses expériences ont été menées, mettant en évidence des propriétés singulières. Par exemple, des effets "magiques" comme les résonances géantes ont été mis en évidence par des mesures d'absorption au sein d'agrégats de lithium, résultats d'oscillations collectives des électrons libres à l'intérieur de l'agrégat [Bréchnignac *et al.* 93]. Une absorption de plus de 90% de l'énergie laser a également été mesurée [Ditmire *et al.* 97c] pour un jet d'agrégats de xénon. Leur faible taille alliée à une forte densité atomique par agrégat leurs procurent en effet de nombreux avantages : l'absorption de l'énergie laser peut être très élevée (par opposition aux gaz), et les pertes par conduction thermique sont négligeables (par opposition aux solides). De plus, l'irradiation d'agrégats ne génère que très peu de débris, et le renouvellement systématique des cibles dans le jet permet un fort taux de répétition. Plusieurs travaux ont alors démontré que l'interaction laser-agrégat permet de générer des photons X [McPherson *et al.* 94] ou des particules chargées très énergétiques [Shao *et al.* 96], ou même de provoquer des réactions de fusion nucléaire (avec des agrégats deutérés) [Ditmire *et al.* 99].

L'interaction laser-agrégat s'avère par conséquent être très prometteuse. Une partie des travaux réalisés s'est alors plus particulièrement intéressée au rayonnement X émis par des agrégats de gaz rares. De nombreuses expériences ont mis en évidence une émission X provenant de lacunes en couches K, L et M d'ions multichargés d'argon ou de krypton, et en couches L et M pour des agrégats de xénon. De plus, la résolution temporelle de l'émission X supérieure à 2 keV provenant d'agrégats d'argon a récemment révélée que la durée d'émission est inférieure à 2 ps (résultat limité par la résolution temporelle du dispositif expérimental) [Bonté 06]. Ces différents résultats démontrent par conséquent que l'interaction laser-agrégat permet de créer des sources X très énergétiques (multi-keV), ultra-brèves et aisément utilisables à haute cadence, et ouvre par conséquent la voie à de nombreuses applications en science X ultra-rapide. Ces propriétés permettent en effet de résoudre spatialement et temporellement la dynamique de systèmes atomiques, moléculaires ou solides. De plus, la variation des paramètres expérimentaux tels que la taille des agrégats ou les conditions laser permet de modifier les caractéristiques de l'émission, et

confère par conséquent à ces sources une flexibilité remarquable. Différentes applications des sources X brèves sont par ailleurs présentées dans une revue récente [Pfeifer *et al.* 06]. Par exemple, les raies monochromatiques émises peuvent être utilisées pour des expériences de diffraction X [Bargheer *et al.* 06]. L'emploi d'éléments atomiques plus lourds permet également de générer un "spectre plat" qui peut entre autres être utilisé pour des expériences d'absorption ultra-rapide [Bressler *et al.* 04].

Étant données les caractéristiques spécifiques des agrégats, leur irradiation par une impulsion laser intense est donc à l'origine de propriétés collectives particulières qui n'apparaissent ni dans les solides ni dans les gaz. La modélisation de ce type d'interaction s'avère donc être primordiale afin de comprendre les phénomènes mis en jeu. Or, au début de ce travail de thèse, aucun des différents modèles développés jusqu'alors n'était en mesure de reproduire les résultats expérimentaux.

Nous avons par conséquent cherché à modéliser l'interaction laser-agrégat de gaz rare afin de mettre en évidence les mécanismes fondamentaux conduisant à un couplage si efficace entre l'impulsion laser et le milieu. La compréhension de la réponse de l'agrégat à l'excitation laser doit, en effet, permettre de simuler la dynamique de l'interaction, et ainsi reproduire les résultats expérimentaux obtenus. Nous nous sommes plus particulièrement focalisés sur les résultats liés à l'émission X obtenus au Centre Lasers Intenses et Applications (CELIA) à Bordeaux, c'est pourquoi la majeure partie des données expérimentales présentées proviennent de ce laboratoire. L'objectif de ce travail est donc dans un premier temps d'obtenir les populations d'ions multichargés liées à ce rayonnement X, ainsi que leurs variations en fonction des divers paramètres de l'interaction. Puis, la compréhension de la physique acquise dans la première phase doit nous permettre de guider de futures expériences quant à la production et à l'optimisation de l'émission X.

De plus, d'un point de vue plus fondamental, l'irradiation d'un agrégat par une impulsion laser intense permet de créer un plasma nanométrique bien isolé. Comprendre les phénomènes mis en jeu et modéliser la dynamique de ce type de cible s'avère donc être très intéressant pour la physique des plasmas et l'interaction laser-matière.

Ce manuscrit comporte cinq chapitres. Le premier présente les principaux résultats expérimentaux obtenus lors de l'irradiation d'agrégats de gaz rare par une impulsion laser brève et intense. Ces données concernent plus particulièrement la production de rayonnement X et sa variation en fonction des divers paramètres expérimentaux. Cependant, nous présentons également sommairement certains résultats liés à la production d'ions ou d'électrons rapides. Dans une seconde partie de ce chapitre, nous présentons les diverses approches théoriques développées jusqu'à présent pour modéliser cette interaction, ainsi que les résultats obtenus dans le cadre de ces simulations.

Le deuxième chapitre est dédié à la description du modèle hydrodynamique que nous avons choisi pour simuler cette interaction. Ce modèle, initialement développé par T. Dit-

mire et coll. [Ditmire *et al.* 96], est bien adapté aux conditions expérimentales utilisées au laboratoire CELIA. Nous présentons tout d'abord les hypothèses inhérentes à ce modèle, puis les différents processus pris en compte pour modéliser la réponse de l'agrégat à l'impulsion laser. Enfin les résultats obtenus dans le cadre du modèle originel sont présentés à la fin de ce chapitre.

Le troisième chapitre contient une première étude visant à améliorer le modèle décrit au chapitre 2. Cette étude concerne l'évaluation des sections efficaces totales d'excitation et d'ionisation collisionnelles, afin de mieux décrire la dynamique d'ionisation au cours de l'interaction. L'approche utilisée pour modéliser la structure électronique des différents états de charge présents au sein de l'agrégat ainsi que les approximations utilisées pour déterminer les sections efficaces sont présentées au cours de ce chapitre.

Le quatrième chapitre présente une seconde voie étudiée pour améliorer le modèle, à savoir la prise en compte d'effets d'écran induits par la densité d'électrons libres au sein de l'agrégat, et leur influence sur la génération d'états de charge élevés. Nous avons étudié l'influence de ces phénomènes d'écran sur les potentiels d'ionisation, ainsi que sur les sections efficaces totales d'excitation et d'ionisation collisionnelles.

Le cinquième chapitre présente l'influence de chacune des améliorations évoquées aux chapitres 3 et 4 sur la dynamique de l'interaction et la production d'ions multichargés. Nous comparons les résultats obtenus dans le cadre de ce modèle amélioré aux données expérimentales disponibles, et étudions l'influence de chacun des paramètres de l'interaction (durée d'impulsion, éclairement crête, longueur d'onde d'irradiation, taille des agrégats irradiés) sur l'émission de rayonnement X.

Enfin, nous présentons les conclusions ainsi que les perspectives offertes par ce travail.

Chapitre 1

État de l'art

Sommaire

| | |
|---|-----------|
| 1.1 Généralités | 7 |
| 1.1.1 Le jet d'agrégats | 7 |
| 1.1.2 Caractéristiques d'une impulsion laser | 9 |
| 1.1.2.1 Durée de l'impulsion | 9 |
| 1.1.2.2 Éclairement crête | 10 |
| 1.1.3 Interaction du jet d'agrégats avec une impulsion laser | 10 |
| 1.2 Résultats expérimentaux relatifs à l'émission de rayonnement X | 11 |
| 1.2.1 Mise en évidence de l'émission X : mesures spectrales | 11 |
| 1.2.2 Rendement de conversion | 13 |
| 1.2.3 Influence de la durée de l'impulsion | 13 |
| 1.2.4 Influence de l'éclairement crête | 14 |
| 1.2.5 Influence de la longueur d'onde du laser | 15 |
| 1.2.6 Influence de la polarisation du laser | 16 |
| 1.2.7 Influence de la taille des agrégats | 17 |
| 1.2.8 Durée de l'émission X | 17 |
| 1.3 Autres résultats expérimentaux | 19 |
| 1.3.1 Émission de rayonnement dans l'extrême ultraviolet (EUV) | 19 |
| 1.3.2 Génération d'harmoniques d'ordre élevé | 20 |
| 1.3.3 Émission de particules | 21 |
| 1.3.3.1 Électrons | 21 |
| 1.3.3.2 Ions | 22 |
| 1.3.4 Bilan des résultats expérimentaux | 23 |

| | | |
|------------|--|-----------|
| 1.4 | Modélisation de l'interaction : Résultats théoriques | 24 |
| 1.4.1 | Modèle CEMM (Coherent Electron Motion Model) | 24 |
| 1.4.2 | Un modèle macroscopique : le modèle nanoplasma | 25 |
| 1.4.3 | Modèles de dynamique moléculaire | 26 |
| 1.4.4 | Simulations PIC (Particle In Cell) | 28 |
| 1.4.4.1 | Modèle MPIC (Microscopic Particle In Cell) | 29 |
| 1.4.4.2 | Simulation PIC pour de plus gros agrégats | 30 |
| 1.4.5 | Mise en évidence d'un mécanisme de chauffage additionnel : prise en compte de processus stochastiques | 31 |
| 1.4.6 | Équation de Boltzmann couplée à un modèle collisionnel-radiatif | 32 |
| 1.4.7 | Bilan des résultats théoriques | 34 |
| 1.5 | Conclusion | 34 |

De nombreuses études ont montré le comportement original des agrégats lorsqu'ils sont irradiés par une impulsion laser. Ce comportement est d'autant plus intéressant qu'il varie en fonction des conditions expérimentales telles que, par exemple, la composition ou la taille de l'agrégat. Étant donnés les différents types d'agrégats existants et les divers paramètres de l'impulsion laser (durée, longueur d'onde, énergie, . . .), un examen exhaustif de tous les résultats expérimentaux et théoriques liés à l'interaction laser-agrégat serait cependant hors de propos. Dans le travail présenté ici, nous nous sommes donc limités à l'étude de l'irradiation d'agrégats de gaz rare par des impulsions laser brèves (de quelques dizaines à quelques centaines de femtosecondes) et intenses (avec un éclairement crête supérieur à 10^{13} W.cm⁻²).

La structure de ce chapitre est la suivante. Une première partie présente de manière très générale les divers paramètres expérimentaux intervenants dans l'interaction considérée. La deuxième partie présente les résultats expérimentaux obtenus, tant pour la production de rayonnement que de particules. Enfin, dans la troisième et dernière partie, les différentes approches théoriques développées pour modéliser ce type d'interaction seront exposées.

1.1 Généralités

Nous décrivons ci-après les divers paramètres expérimentaux caractéristiques des dispositifs mis en place pour étudier l'interaction laser-agrégat.

1.1.1 Le jet d'agrégats

La cohésion des agrégats de gaz rare est assurée par les forces de Van der Waals se comportant en $1/r^5$ (où r désigne la distance interatomique). Cependant, à courte distance (quelques angströms), une force de répulsion très intense apparaît. Cette force est due au principe de Pauli qui intervient lorsque les nuages électroniques de deux systèmes atomiques s'interpénètrent. Il en résulte un potentiel dit de Lennard-Jones, composé d'une partie attractive en $1/r^6$ et d'une partie répulsive en $1/r^{12}$:

$$V(r) = -\frac{A}{r^6} + \frac{B}{r^{12}} \quad (1.1)$$

où A et B sont deux constantes positives caractéristiques de l'espèce atomique utilisée. La figure 1.1 présente l'allure du potentiel pour l'argon : ε représente la profondeur du puits, le "point de rebroussement" correspond à la distance interatomique pour laquelle les composantes attractive et répulsive s'équilibrent, et r_0 correspond à la distance pour laquelle l'énergie de liaison est maximale.

On ne trouve que peu d'agrégats de gaz rare à température ambiante car leur énergie de liaison est faible, de l'ordre de celle de l'agitation thermique. Ils sont donc produits par détente adiabatique d'un gaz dans une enceinte sous vide, ce qui permet de refroidir et de

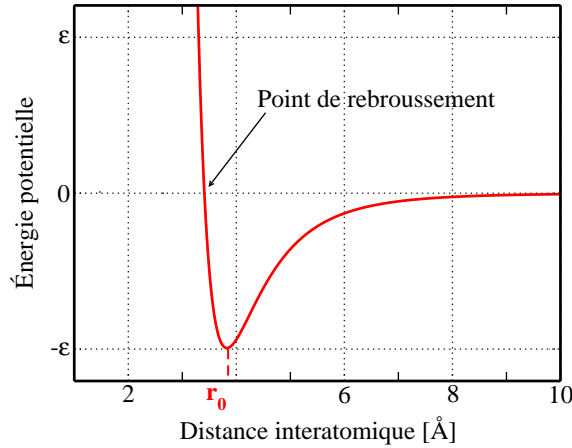


FIG. 1.1 – Allure typique du potentiel de Lennard-Jones pour l'argon.

condenser les atomes. La détente est réalisée au moyen d'une buse : du gaz sous pression est connecté à une tuyère et le débit est contrôlé par une valve.

Une des premières études systématiques a été réalisée par O.F. Hagena et W. Obert en 1972 [Hagena *et al.* 72]. Cette étude a permis d'identifier un paramètre pertinent (dit "paramètre de Hagena" Γ^*) qui s'écrit :

$$\Gamma^* = k \frac{(d/\tan \alpha)^{0,85}}{T_0^{2,29}} P_0 \quad (1.2)$$

où :

- k est une constante relative au gaz considéré (valant 1650 pour l'argon [Arno *et al.* 95]),
- P_0 est la pression en amont de la buse (en mbar),
- T_0 est la température avant la détente (en K),
- d est le diamètre de la buse (en μm),
- et α est le demi-angle d'ouverture de la buse.

Il a été démontré que les atomes s'agrègent lorsque le paramètre Γ^* est supérieur à 10^3 , et que les agrégats massifs ($\geq 10^4$ atomes par agrégat) sont majoritaires lorsque Γ^* est supérieur à 10^4 . Le nombre d'atomes N par agrégat, pour des agrégats de taille modeste ($N \leq 10^4$), peut être obtenu par la relation suivante [Hagena 92] :

$$N = 33 \left(\frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{2,35} \quad (1.3)$$

Pour N plus grand que 10^4 , la loi empirique donnant le nombre d'atomes par agrégat est toujours du même type, mais avec une loi de puissance différente [Dorchies *et al.* 03] :

$$N = 100 \left(\frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{1,8} \quad (1.4)$$

Ces deux lois coïncident pour Γ^* voisin de 10^4 .

Pour $N > 1000$, les agrégats d'argon ont une structure cubique à face centrée dont le paramètre de maille vaut $5,34 \pm 0,01 \text{ \AA}$ [Farges *et al.* 81]. Pour N élevé, l'agrégat peut être assimilé à une sphère dont le rayon R_0 (en \AA) s'exprime en fonction du nombre d'atomes le composant [Caillaud 04] :

$$R_0[\text{\AA}] = \sqrt[3]{9N} \quad (1.5)$$

Ainsi, en modifiant les différents paramètres expérimentaux tels que la pression de gaz en amont ou la géométrie de la buse, il est possible de faire varier la taille des agrégats formés.

1.1.2 Caractéristiques d'une impulsion laser

L'avènement dans les années 80 de la technique d'amplification à dérive de fréquence (technique CPA : "Chirp Pulse Amplification") a permis de générer des impulsions laser de très hautes intensités et de très courtes durées. Ces impulsions peuvent être caractérisées selon différents paramètres telles que la durée ou l'éclairement crête.

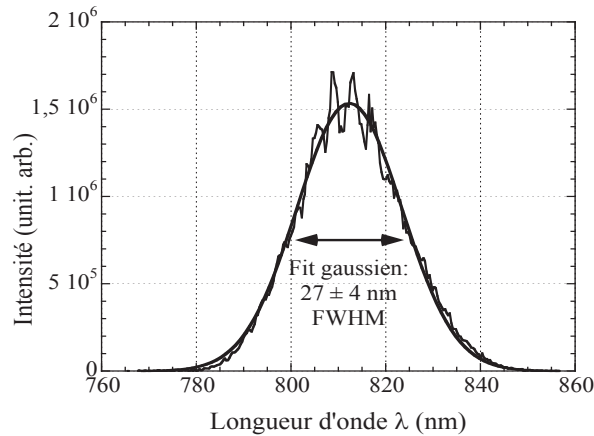


FIG. 1.2 – Spectre typique d'une impulsion laser.

1.1.2.1 Durée de l'impulsion

La figure 1.2 présente un spectre typique obtenu à l'aide de la chaîne laser kHz du CELIA à Bordeaux. Le profil spectral de l'impulsion, qui peut être ajusté par une fonction gaussienne, est centrée autour d'une longueur d'onde donnée λ . La durée Δt est intrinsèquement limitée par la relation suivante, dite limite de Fourier [Joffre 98] :

$$\Delta t \Delta \omega \geq 4 \ln 2 \quad (1.6)$$

où Δt et $\Delta \omega$ désignent respectivement la durée à mi-hauteur et la largeur spectrale à mi-hauteur du spectre, exprimée en unités de la pulsation ω (rad.s^{-1}).

Aussi, dans cet exemple où $\Delta \lambda = 27 \pm 4 \text{ nm}$, et avec $\Delta \omega = 2\pi c \Delta \lambda / \lambda^2$, (c est la vitesse de la lumière dans le vide), nous obtenons $\Delta t \geq 36 \pm 5 \text{ fs}$, qui est la limite physique accessible par le système.

La durée d'une impulsion est donc caractérisée par sa largeur temporelle à mi-hauteur appelée FWHM (pour "Full Width Half Maximum").

1.1.2.2 Éclairement crête

Pour déterminer l'éclairement crête d'une impulsion (également appelé improprement intensité crête), il est nécessaire de déterminer l'énergie contenue dans le faisceau. Cette énergie peut être mesurée à l'aide d'un calorimètre. Pour une distribution temporellement et spatialement gaussienne de l'énergie, l'expression de l'intensité laser au plan focal peut se mettre sous la forme :

$$I(r, t) = I_0 e^{-(t/\tau_{1/e})^2} e^{-(r/\sigma_{0_{1/e}})^2} \quad (1.7)$$

où $\tau_{1/e}$ et $\sigma_{0_{1/e}}$ sont les durée et rayon de l'impulsion en $1/e$ de l'intensité. La durée en $1/e$ de l'intensité est reliée à la durée à mi-hauteur (τ_{FWHM}) par la relation¹ $2\sqrt{\ln 2}\tau_{1/e} = \tau_{FWHM}$.

L'expression de l'intensité crête I_0 (en W.cm^{-2}) peut se mettre sous la forme :

$$I_0 = \frac{E}{\pi^{3/2} \tau_{1/e} \sigma_{0_{1/e}}^2} \kappa \quad (1.8)$$

avec E l'énergie (en J) contenue dans l'impulsion, $\tau_{1/e}$ la demie largeur temporelle en $1/e$ (en s), $\sigma_{0_{1/e}}$ la demie largeur spatiale (en cm) et κ la fraction de l'énergie totale contenue dans la gaussienne définie par les deux paramètres τ et σ . En effet, l'énergie n'est pas focalisée entièrement dans la tache centrale, il y a des "halos" par rapport au cas idéal décrit par une gaussienne.

1.1.3 Interaction du jet d'agrégats avec une impulsion laser

Les premières expériences relatives à l'interaction d'agrégats de gaz rares avec une impulsion laser datent du début des années 90. A. McPherson et ses collaborateurs ont observé l'émission de rayonnement X en irradiant un jet de gaz de krypton par un champ laser intense ($0,5 - 1 \times 10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$) [McPherson *et al.* 93a, McPherson *et al.* 94]. Cette émission "anormale" (dans le sens où un atome seul ne peut produire de photons si énergétiques dans de telles conditions expérimentales), fut alors attribuée à la présence d'atomes agrégés dans le jet de gaz. Dès lors, de nombreuses expériences se sont mises en place, visant à caractériser le comportement particulier des agrégats soumis à un éclairage laser.

L'absorption de l'énergie laser s'est révélée être très efficace : une absorption proche de 100% a été mesurée dans des agrégats de xénon [Ditmire *et al.* 97c]. J. Zweiback et coll. [Zweiback *et al.* 99] ont quant à eux mesuré une absorption de 70 % lorsque des agrégats d'argon d'un rayon moyen de 264 Å sont irradiés par un éclairage crête de $3 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$. Ils ont également pu démontrer que l'absorption de l'énergie laser dans un jet d'agrégats était croissante en fonction du rayon moyen des agrégats ainsi que de

¹Il est important de préciser que $\tau_{1/e}$ correspond à la demi-largeur temporelle de l'impulsion en $1/e$, alors que τ_{FWHM} correspond à la largeur temporelle à mi-hauteur.

l'éclairement crête.

Les agrégats représentent donc un milieu unique : bien que la densité atomique moyenne dans le jet soit faible (de l'ordre de celle d'un gaz), la densité locale dans un agrégat est proche de celle d'un solide. Les processus collisionnels menant à une absorption efficace de l'énergie laser peuvent donc survenir et induisent un fort couplage entre le milieu et l'impulsion laser.

Par conséquent, les agrégats possèdent de nombreuses propriétés potentiellement très intéressantes quant à la production de rayonnement X. Une majeure partie des expériences a été menée afin de caractériser et d'optimiser ce type de sources. Dans la section suivante, nous présentons donc les différents résultats expérimentaux associés à la production de rayonnement énergétique. Ce sont principalement ces résultats qui nous ont servi de base pour modéliser l'interaction entre une impulsion laser et un agrégat. Il a cependant été démontré que cette interaction peut également produire des harmoniques d'ordre élevé et générer des particules énergétiques. Ces autres résultats expérimentaux seront succinctement présentés dans la section suivante.

1.2 Résultats expérimentaux relatifs à l'émission de rayonnement X

1.2.1 Mise en évidence de l'émission X : mesures spectrales

En 1994, A. McPherson et ses collaborateurs ont pour la première fois mesuré le spectre d'émission d'un jet de gaz partiellement composé d'agrégats de krypton irradiés par une impulsion laser ($\lambda=248$ nm, $\tau_{FWHM}=300$ fs, $I_0=10^{17}$ W.cm⁻²) [McPherson *et al.* 94]. Le rayonnement X associé à des états de charge très élevés (Kr^{q+}, $q=24-27$) a été clairement identifié autour de 6 Å (~ 2 keV). L'année suivante, l'équipe de T. Ditmire confirmait que la formation d'agrégats dans le jet de gaz était responsable de l'émission X observée [Ditmire *et al.* 95]. Pour de gros agrégats ($R_0 \sim 100$ Å), T. Ditmire et coll. ont également mis en exergue l'importance des collisions électron-ion dans la dynamique : en effet, dans les conditions d'éclairement considérées, les degrés d'ionisation très élevés mesurés ne peuvent être obtenus par ionisation optique par le champ laser. Les auteurs estiment donc que de nombreuses collisions se produisent au cours de l'interaction créant ainsi des états de charge importants et des lacunes en couches profondes.

Ces résultats ont été suivis de nombreuses autres expériences mettant en évidence une émission X/XUV provenant de lacunes en couches K, L et M d'ions multichargés d'argon et de krypton, et en couches L et M pour des agrégats de xénon.

L'irradiation d'agrégats d'argon (de 10^4 à 10^6 atomes par agrégat) par une impulsion laser de 130 fs et d'intensité crête de 5×10^{17} W.cm⁻² a permis de produire un rayonnement

X à 3,14 keV correspondant à la transition $2p \rightarrow 1s$ de l' Ar^{16+} [Rozet *et al.* 01]. S. Dobosz et coll. ont de plus démontré que le rayonnement est émis de manière isotrope, ce qui signifie que la réabsorption des photons X par le milieu est très faible [Dobosz *et al.* 97]. La figure 1.3 présente un spectre typique d'émission X obtenu lors de l'interaction d'un jet d'agrégats d'argon avec une impulsion laser. L'émission X correspond aux raies K_α (transitions $2p \rightarrow 1s$) provenant d'ions multichargés jusqu'à l' Ar^{16+} . Il est intéressant de remarquer que l'émission associées aux ions Ar^{16+} provient de deux raies distinctes. La raie à 3,14 keV s'identifie à une transition $^1P_1-^1S_0$ (transition d'un état singulet vers le fondamental). S'agissant d'une transition $2p \rightarrow 1s$ pour un ion à 2 électrons, cette raie est appelée raie He_α . Afin d'expliquer la raie d'intercombinaison à 3,125 keV, il faut faire appel aux structures fines des couches électroniques. Cette raie provient en effet de la transition de l'état triplet $^3P_{0,1,2}$ vers le fondamental.

Nous pouvons par ailleurs noter l'absence de raies K_α pour des ions peu chargés. Ceci indique que la majeure partie des atomes de l'agrégat sont fortement ionisés et plaide en faveur d'un chauffage progressif de l'agrégat (sans quoi les électrons chauds produits dès le début de l'interaction créeraient des lacunes en couche K pour les ions peu chargés).

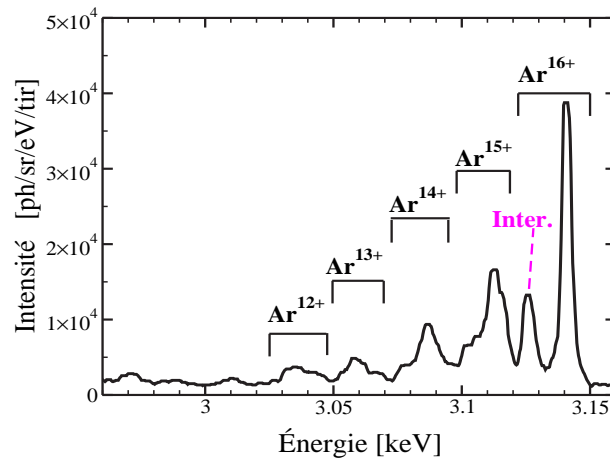


FIG. 1.3 – Spectre d'émission X obtenu par irradiation d'agrégats d'argon ($R=350 \text{ \AA}$) par une impulsion laser ($I_0=1,6 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$; $\tau_{FWHM}=500 \text{ fs}$; $E=3 \text{ mJ}$) [Caillaud 04].

Il est également intéressant de noter que l'émission X provenant d'ions Ar^{17+} n'a jamais été observée expérimentalement. Or, le potentiel d'ionisation de l'ion Ar^{16+} excité dans l'état $2p$ est de 992,8 eV et l'énergie de la raie hydrogénoïde $2p \rightarrow 1s$ est de 3,31 keV. Étant donnée la forte proportion d'émission à 3,14 keV provenant de transitions $\text{Ar}^{16+} 2p \rightarrow 1s$ (cf. fig. 1.3), les conditions atteintes au sein de l'agrégat ne paraissent par conséquent pas être un frein à la production de photons Ly_α . Ceci semble indiquer que les ions Ar^{16+} sont formés en fin d'interaction et que la formation de cet état de charge apparaît comme un seuil au delà duquel l'agrégat ne peut rester stable.

Jusqu'à présent, les photons les plus énergétiques mesurés proviennent d'agrégats de krypton : R. Issac et coll. ont focalisé une impulsion laser de 60 fs et d'intensité crête $1,3 \times 10^{18} \text{ W.cm}^{-2}$ dans un jet de krypton ($R_0 \sim 18 \text{ nm}$). Ils mesurent les raies d'émission

K_α et K_β à 12,66 keV et 14,1 keV (cf. fig. 1.4). Un large spectre continu provenant de rayonnement de freinage (bremsstrahlung) est également observé jusqu'à 45 keV, mettant en évidence la présence d'électrons très chauds au sein de l'agrégat [Issac *et al.* 04].

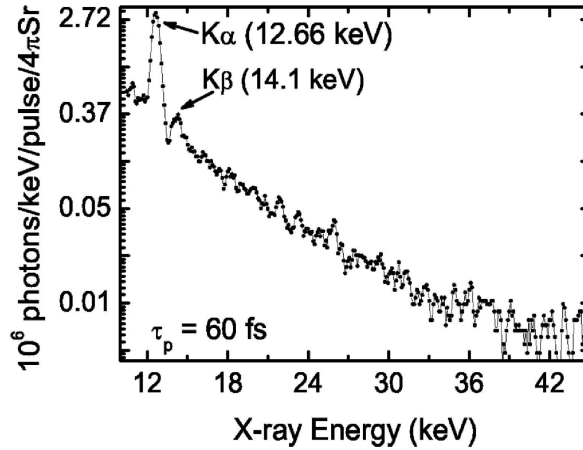


FIG. 1.4 – Spectre X obtenu en irradiant des agrégats de krypton ($R_0 \sim 18\text{nm}$) par une impulsion laser de 60 fs et un éclairement crête de $1,3 \times 10^{18} \text{ W.cm}^{-2}$ [Issac *et al.* 04].

1.2.2 Rendement de conversion

Le rendement de conversion de l'énergie laser en rayonnement X a été évalué grâce à des mesures en absolu du nombre de photons X émis : T. Ditmire a produit plus de 10 μJ de rayons X d'énergie supérieure à 1 keV en irradiant des agrégats de xénon par une impulsion laser de 250 mJ [Ditmire *et al.* 97b]. En optimisant certains paramètres comme la durée d'impulsion et la taille des agrégats, F. Dorchies et ses collaborateurs ont obtenu un taux de conversion de $3 \pm 1 \times 10^{-5}$ de l'énergie laser en émission de couche K pour des agrégats d'argon [Dorchies *et al.* 05]. S. Dobosz et coll. ont quant à eux mesurés une efficacité de conversion en énergie de $1,7 \times 10^{-8}$ pour des agrégats de krypton [Dobosz *et al.* 97] et de $1,7 \times 10^{-11}$ pour des agrégats d'argon [Dobosz 98].

T. Ditmire indique une production de rayonnement X similaire à celles de cibles solides (d'aluminium ou d'or) irradiées dans des conditions laser équivalentes. S. Dobosz obtient cependant un rendement de conversion de plusieurs ordres de grandeur inférieur. Ces résultats démontrent donc l'importance de l'optimisation de ce type de sources.

1.2.3 Influence de la durée de l'impulsion

J. Zweiback et coll. ont étudié la variation de l'absorption de l'impulsion laser dans un jet d'agrégats de xénon en fonction de la durée à mi-hauteur de l'impulsion laser [Zweiback *et al.* 99]. L'énergie sur cible était maintenue constante à 6,5 mJ, l'intensité crête est de $2,3 \times 10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$ pour une durée de 50 fs. Ces travaux ont mis en évidence une durée à mi-hauteur pour laquelle l'absorption est maximale. De plus, J. Zweiback et coll.

ont montré que cette durée optimale varie en fonction de la taille des agrégats formés dans le jet : pour des agrégats de rayon moyen $R_0 \sim 85 \text{ \AA}$, la durée optimum T_{opt} est de 400 fs, pour $R_0 \sim 130 \text{ \AA}$, ils ont obtenu $T_{opt}=700$ fs et pour des agrégats de 205 \AA , l'optimum d'absorption est atteint pour une impulsion de 1000 fs. Ils ont également obtenu une durée d'impulsion optimale de 300 fs pour des agrégats d'argon ($R_0 \sim 130 \text{ \AA}$). Cette durée optimum pour l'absorption correspond également à la durée d'impulsion pour laquelle l'émission de rayonnement est maximale (pour des photons provenant de la raie d' $\text{Ar}^{7+} 4f \rightarrow 3d$).

L'effet de la durée de l'impulsion a également été étudié par F. Dorchies et ses collaborateurs pour des agrégats d'argon [Dorchies *et al.* 05]. Les caractéristiques du laser employé sont les suivantes : l'énergie sur cible est maintenue constante à 3 mJ, l'intensité crête est de $1,6 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ pour une durée d'impulsion de 500 fs. Les auteurs ont analysé la production de rayonnement X émise à 3,14 keV (raie $\text{He}_\alpha 2p \rightarrow 1s$). De même que J. Zweiback et coll., ils ont mesuré une durée d'impulsion optimale croissante avec la taille des agrégats : pour des agrégats de 180 \AA , la durée optimum est de 250 fs, pour des agrégats de 275 \AA , la durée est de 400 fs et pour des agrégats de 350 \AA , l'émission X est maximale pour une impulsion de 500 fs.

E. Parra et coll. ont étudié l'influence de la durée d'impulsion contenant 50 mJ sur l'émission de rayonnement X supérieur à 1,5 keV [Parra *et al.* 00]. Contrairement aux résultats précédents, ils n'observent pas de dépendance de la durée optimale en fonction du rayon de l'agrégat. L'optimum d'émission est atteint pour une durée à mi-hauteur de 300 fs pour des agrégats d'argon de 400 \AA ou 1000 \AA ou bien pour des agrégats de krypton de 660 \AA . L'équipe de l'*Institut des nanosciences de Paris* (INSP, anciennement GPS) obtient également une durée optimum indépendante de la taille des agrégats [Lamour *et al.* 05a]. Pour une énergie sur cible de 20 mJ, l'émission X (entre 1 et 5 keV) provenant d'agrégats d'argon est maximale pour une durée à mi-hauteur de 130 fs. Pour des agrégats de xénon irradiés par une impulsion de 35 mJ, l'optimum se situe entre 200 et 300 fs.

Ces résultats indiquent par conséquent qu'il existe une durée d'impulsion optimale pour l'absorption de l'énergie laser et l'émission de rayonnement X subséquente. Cet optimum dépend des conditions expérimentales. Les différences observées concernant la dépendance des résultats en fonction de la taille des agrégats irradiés peuvent s'expliquer par le fait que l'optimum dépend également de l'énergie contenue dans l'impulsion laser. Ceci a en effet été mis en évidence par F. Dorchies et coll. [Dorchies *et al.* 05] : ces auteurs ont montré que l'optimum augmente légèrement lorsque l'énergie sur la cible décroît de 3,8 mJ à 1,8 mJ.

1.2.4 Influence de l'éclairement crête

Au CELIA, F. Dorchies et coll. ont montré que l'émission X à 3,14 keV ($\text{Ar}^{16+} 2p \rightarrow 1s$) augmente avec l'énergie sur cible (équivalente à l'éclairement crête pour une durée d'impulsion et une tache focale fixées) lorsque des agrégats d'argon ($R_0 \sim 275 \text{ \AA}$) sont irradiés

par une impulsion laser [Dorchies *et al.* 05]. Ces résultats ont été obtenus pour une énergie sur cible comprise entre 1,8 mJ et 3,8 mJ.

À partir d'agrégats de krypton soumis à un éclairage variable (avec une durée d'impulsion fixée), S. Dobosz et coll. ont pu démontrer que le nombre total de photons X émis par impulsion est proportionnel à $I_0^{3/2}$, où I_0 est l'intensité crête variant de $3,7 \times 10^{16}$ W.cm⁻² à $5,2 \times 10^{17}$ W.cm⁻² [Dobosz *et al.* 97]. L'équipe de D. Vernhet (INSP) a ensuite poursuivi ces études [Lamour *et al.* 05b]. Pour une durée d'impulsion laser de 55 fs à 800 nm, quel que soit le gaz composant les agrégats (argon, krypton ou xénon), le comportement est le même :

- à partir d'un éclairage seuil d'environ $1,5 \times 10^{15}$ W.cm⁻², le nombre de photons X augmente rapidement,
- puis, le nombre de photons émis varie en $I_0^{3/2}$ à partir d'une intensité crête de l'ordre de 4×10^{15} W.cm⁻².

Ce comportement est similaire à celui obtenu dans le cas de l'ionisation optique d'atomes en champ fort [Augst *et al.* 89]. Dans le cas de l'interaction laser-atome, il a été démontré que l'évolution en $I_0^{3/2}$ correspond à un régime de saturation pour lequel la variation du signal n'est due qu'à la variation du volume focal effectif, volume pour lequel l'intensité seuil est atteinte. Or, pour une tache focale de dimension constante, ce volume augmente avec l'intensité crête. Par conséquent, au delà du seuil de saturation, l'augmentation de l'intensité s'accompagne d'une extension du volume d'interaction ; le nombre d'agrégats irradiés augmente donc également induisant ainsi une émission de photons X plus importante en absolu. Pour maximiser le nombre de photons X à énergie par impulsion constante, il est donc préférable d'augmenter la taille de la tache focale plutôt que d'augmenter l'intensité (à condition d'avoir atteint l'intensité seuil).

1.2.5 Influence de la longueur d'onde du laser

L'influence de la longueur d'onde du laser sur la production de rayonnement X a tout d'abord été étudiée par K. Kondo et coll. [Kondo *et al.* 97]. L'étude porte sur la comparaison des spectres obtenus dans les gammes 9-15 Å et 2,5-3,2 Å pour des agrégats de xénon irradiés par une impulsion laser à 248 nm et une impulsion à 800 nm. Pour la transition Xe²⁶⁺ $4f \rightarrow 3d$ (14,2 Å), les auteurs obtiennent un signal 330 fois plus élevé pour la plus courte longueur d'onde ; et pour l'émission de couche L (~ 3 Å), le rapport est de 3000 en faveur de l'impulsion laser à 248 nm. W. Schroeder et coll. tirent de cette analyse une loi d'échelle en λ^{6-7} pour la production de rayonnement X autour de 4 keV [Schroeder *et al.* 98].

Cependant, T. Ditmire et coll. contredisent ces résultats : ils obtiennent des spectres de rayonnement X provenant des raies de couche M du xénon quasiment identiques pour des longueurs d'onde laser de 526 et 1053 nm [Ditmire *et al.* 98]. L. Adoui et coll. mesurent également une faible différence pour l'émission de couche L du xénon pour des longueurs d'onde de 400 et 800 nm, avec une légère augmentation de la production de rayonnement X pour la plus petite longueur d'onde [Adoui *et al.* 03]. T. Ditmire et coll. estiment que

la différence obtenue par K. Kondo et coll. provient du fait que toutes les conditions expérimentales n'étaient pas égales par ailleurs. En effet, entre les deux expériences réalisées par K. Kondo aux deux longueurs d'onde, l'énergie contenue dans chaque impulsion est différente (220 mJ pour l'impulsion à 248 nm contre 50 mJ pour celle à 800 nm). Cet écart en énergie peut donc être responsable de la plus grande production de rayonnement X pour la plus faible longueur d'onde.

L'équipe japonaise a donc repris cette étude [Honda *et al.* 00]. De nouveau, l'émission X provenant de raies de couche M du xénon a été mesurée. Pour la longueur d'onde de 800 nm, une impulsion de 350 fs avec une intensité crête de 4×10^{17} W.cm⁻² a été focalisée sur le jet de gaz condensé. Pour l'impulsion à 248 nm, la durée de l'impulsion est identique et l'éclairement maximum est de 8×10^{17} W.cm⁻². Dans les deux cas, l'énergie sur cible est de 20 mJ, permettant ainsi de comparer les résultats : H. Honda et ses collègues obtiennent une variation beaucoup plus faible de la production de rayonnement X que celle précédemment mesurée. Ils mesurent cependant une augmentation de l'émission X d'un facteur 20 pour la longueur d'onde de 248 nm.

Selon ces différents résultats, il semble donc que l'accroissement de la longueur d'onde du laser aboutit à une légère diminution de la production de rayonnement X.

1.2.6 Influence de la polarisation du laser

V. Kumarappan et coll. ont étudié l'influence de la polarisation du laser sur l'émission de rayonnement X [Kumarappan *et al.* 01]. Pour des agrégats d'argon Ar_N (N=200 - 10⁴), et pour un éclairement crête d'environ 10¹⁶ W.cm⁻², l'émission de couche K (entre 2,8 et 3,1 keV) est indépendante de l'ellipticité du laser. Ces résultats ont été confirmés par l'équipe de F. Dorchies pour de plus gros agrégats d'argon (N ~ 10⁶) [Dorchies *et al.* 05]. Une autre étude permet cependant d'affiner ces résultats : C. Prigent analyse l'émission X provenant d'ions multichargés (Ar^{q+}, q=12-16) [Prigent 04]. Les conditions expérimentales sont les suivantes : des agrégats d'argon de 2,8 × 10⁵ atomes sont irradiés par une impulsion de 60 fs et d'intensité crête 8,5 × 10¹⁶ W.cm⁻². Pour les états de charge les plus faibles, le taux absolu de photons X émis est systématiquement légèrement inférieur pour une polarisation circulaire comparée à une polarisation linéaire. À contrario, l'émission X provenant d'ions Ar¹⁶⁺ est identique quelque soit l'état de polarisation du laser.

L'indépendance de l'émission X pour les états de charge les plus élevés corrobore l'hypothèse de T. Ditmire et coll. concernant l'importance des collisions dans la dynamique de l'interaction [Ditmire *et al.* 95]. En effet, dans le cas d'atomes ou de molécules, l'ionisation optique dépend de la polarisation : plus le paramètre d'ellipticité ε augmente (polarisation linéaire : $\varepsilon=0$, polarisation circulaire : $\varepsilon=1$) et plus le taux d'ionisation décroît [Banerjee *et al.* 99]. Pour un agrégat, les multiples collisions électron-ion gommant les effets de la polarisation ; les états de charge élevés, qui sont produits par collisions avec des électrons énergétiques sont alors observés quelle que soit la polarisation.

1.2.7 Influence de la taille des agrégats

S. Dobosz et coll. ont étudié l'influence de la pression en amont de la buse sur le nombre absolu de photons X émis [Dobosz *et al.* 97]. Pour des agrégats de krypton (de quelques 10^4 à 7×10^5 atomes), un éclairement crête de 4×10^{17} W.cm⁻² et une impulsion de 130 fs, ils observent que le nombre de photons N_X d'énergie supérieure à 1 keV augmente avec la pression de gaz P_0 selon :

$$N_X = (P_0 - P_{min})^\kappa \quad (1.9)$$

où $\kappa = 3 \pm 0,3$ et P_{min} est la pression minimale nécessaire à la détection de rayonnement X. Le nombre d'atomes composant les agrégats augmentant avec la pression (cf. éq. (1.3) et (1.4) page 8), l'émission X est donc plus importante pour de plus gros agrégats. De plus, en augmentant la taille des agrégats de krypton jusqu'à 7×10^5 atomes par agrégat, ils n'observent pas de saturation. Ces résultats n'indiquent donc pas de taille optimale quant à la production de rayonnement X.

Pour des agrégats d'argon, F. Dorchies et coll. ont également mis en évidence ce même type de comportement [Dorchies *et al.* 05]. Des agrégats de différentes tailles ($R_0=180$; 275 et 350 Å correspondant à des pressions de 20, 40 et 60 bars) sont irradiés par une impulsion de 3 mJ. L'émission X provenant de la raie He $_{\alpha}$ à 3,14 keV (Ar¹⁶⁺ 2p → 1s) augmente avec le nombre d'atomes dans l'agrégat quelque soit la durée de l'impulsion.

V. Kumarappan et ses collègues ont étudié l'émission K $_{\alpha}$ à 3,07 keV provenant d'atomes ou d'ions d'argon (Ar^{q+}, q=0-8) en fonction de la pression de gaz en amont de la buse pour des impulsions laser de 100 fs et d'éclairement crête 4×10^{16} W.cm⁻² [Kumarappan *et al.* 01]. Tout comme S. Dobosz et coll., ils observent une dépendance du signal X en P_0^κ . Leurs résultats donnent cependant une valeur de κ de l'ordre de 3,7. Cette différence peut provenir du fait qu'ils étudient des agrégats d'argon de petite taille (entre 200 et 10^4 atomes par agrégats) par rapport à ceux considérés par S. Dobosz et coll..

1.2.8 Durée de l'émission X

Dès lors que l'émission X provenant de l'interaction laser-agrégat a été mise en évidence, certaines expériences se sont mises en place afin de caractériser temporellement ce rayonnement. J. Larsson et A. Sjörgen ont utilisé une caméra à balayage de fente (caméra streak) afin de déterminer la durée de l'émission X à 3 keV provenant d'agrégats d'argon irradiés par une impulsion de 100 fs et de 10^{17} W.cm⁻² [Larsson *et al.* 99]. Ils mesurent une durée de 3 ns pour le rayonnement X provenant des raies K $_{\alpha}$ et K $_{\beta}$ de l'argon.

T. Shiraishi et coll. ont utilisé une photodiode rapide pour résoudre temporellement l'émission X provenant de transitions en couche M de xénon (~ 1 keV) [Shiraishi *et al.* 02]. En irradiant des agrégats de xénon (4×10^6 atomes par agrégat) par une impulsion laser de 120 fs et d'éclairement crête $7,4 \times 10^{17}$ W.cm⁻², ils mesurent une durée d'émission X inférieure à 10 ps, ce qui correspond à la limite de résolution de leur dispositif. L'estimation

des temps d'émission correspondants aux différents taux de transitions atomiques indique que ce rayonnement provient de désexcitations radiatives plutôt que de recombinaisons à trois corps. D'après l'évaluation des taux de désexcitations radiatives, T. Shiraishi et coll. estiment que l'émission X doit être encore plus prompte (~ 30 fs).

Récemment, C. Bonté et coll. ont utilisé un cristal tronconique couplé à une caméra à balayage de fente afin de résoudre spectralement et temporellement l'émission X [Bonté 06]. Ce dispositif permet de déterminer la durée d'émission des différentes raies provenant de chaque état de charge. En focalisant une impulsion laser ($\tau_{FWHM}=300$ fs ; $I_0=3,1\times 10^{16}$ W.cm $^{-2}$) sur des agrégats d'argon ($R_0=275$ Å), ils mesurent ainsi une durée inférieure à 2 ps (résolution temporelle de l'appareil) pour le rayonnement X dans la gamme 2,9 - 3,2 keV. La résolution temporelle de la raie He $_{\alpha}$ à 3,14 keV est représentée sur la figure 1.5. De plus, les raies provenant d'états de charge élevés (Ar $^{q+}$, $q=14-16$) sont émises avec un écart temporel relatif inférieur à 1 ps (cf. fig. 1.6). Il faut également noter que contrairement à J. Larsson et coll., ils n'observent pas de rayonnement K $_{\alpha}$ provenant d'ions peu chargés [Dorchies *et al.* 05]. Ces résultats sont donc en accord avec ceux obtenus par T. Shiraishi et coll. et corroborent l'hypothèse d'une émission provenant de désexcitations radiatives.

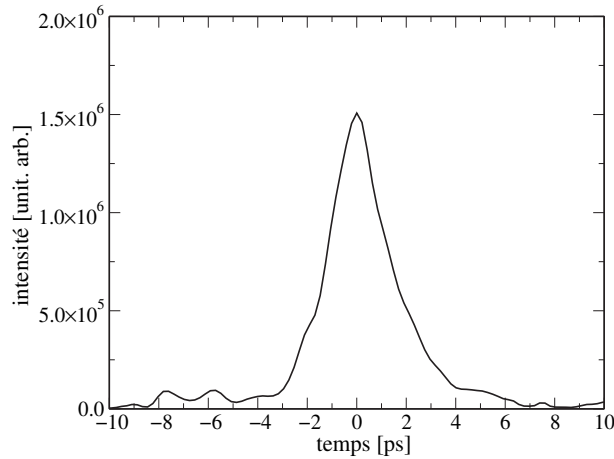


FIG. 1.5 – Évolution de la raie He $_{\alpha}$ en fonction du temps mesurée pour une énergie de 3,5 mJ sur cible, avec une pression en amont de 40 bars ($R_0 \sim 275$ Å), une durée d'impulsion de 300 fs et un éclairement crête de $3,1\times 10^{16}$ W.cm $^{-2}$ [Bonté 06].

Comme nous venons de le voir, de nombreuses expériences ont démontré que l'irradiation d'un jet d'agrégats de gaz rare par une impulsion laser intense conduit à l'émission de photons très énergétiques pendant une très courte durée. Ces résultats sont très encourageants quant au développement de sources X brèves. De plus, grâce aux contributions de multiples équipes, l'influence des divers paramètres intervenant dans l'interaction sur la production de rayonnement X a pu être mise en évidence.

L'émission de photons très énergétiques n'est cependant pas le seul produit de l'inter-

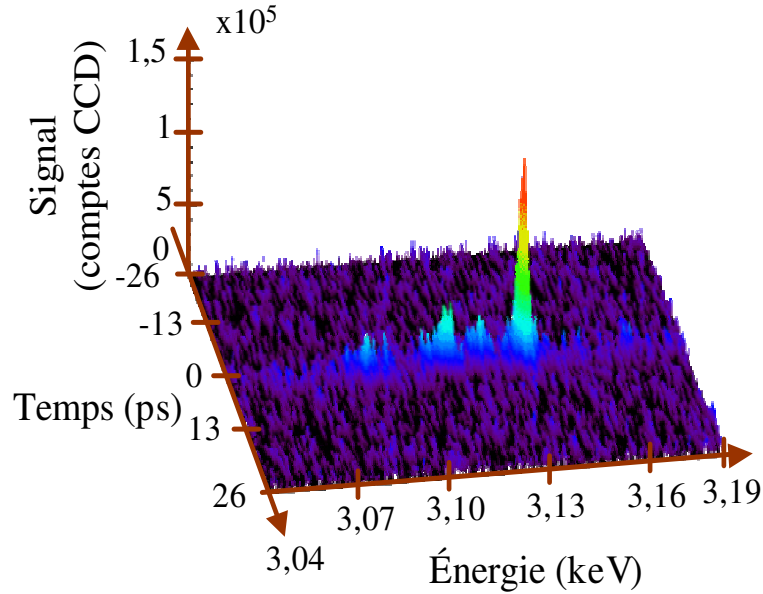


FIG. 1.6 – *Spectre X résolu spectralement et temporellement. Les conditions expérimentales sont identiques à la figure 1.5 [Bonté 06].*

action laser-agrégat. Comme nous allons le voir dans la section suivante, ce type d'interaction permet également de générer des particules très énergétiques et des photons dans la gamme d'énergie de l'extrême ultraviolet, ouvrant la voie à des utilisations industrielles.

1.3 Autres résultats expérimentaux

Bien que les principaux résultats ayant motivé ce travail de thèse concernent l'émission de rayonnement X, d'importants travaux ont également démontré que l'interaction d'un agrégat de gaz rare avec une impulsion laser brève et intense conduit à l'émission de rayonnement UV et XUV, à la génération d'harmoniques d'ordre élevé et de particules (ions ou électrons) très rapides. Cette section a donc pour objet de présenter divers travaux liés à ce type de résultats expérimentaux.

1.3.1 Émission de rayonnement dans l'extrême ultraviolet (EUV)

Le développement de sources de rayonnement dans l'extrême ultraviolet présente un fort intérêt pour des applications comme la lithographie en micro-électronique. La lithographie consiste à "graver" des composants de plus en plus petits afin de créer des puces électroniques de plus en plus performantes. Or la taille minimale accessible varie avec la longueur d'onde utilisée. Actuellement, la photolithographie utilise une longueur d'onde de 248 nm. Prochainement, celle-ci devrait passer à 157 nm. Mais dès à présent, des études sont menées dans le but de développer des sources XUV à 13,4 nm. L'interaction d'un agrégat de gaz rare avec une impulsion laser présente des caractéristiques encourageantes : en effet, ceux-ci ne produisent pas de débris et peuvent donc être utilisés à haute cadence.

Certaines équipes se sont donc intéressées à la caractérisation et à l'optimisation de ces sources. E. Parra et coll. ont étudié l'influence de la durée d'impulsion laser de 50 mJ sur l'émission EUV dans la gamme spectrale allant de 2 à 44 nm pour des agrégats de krypton et d'argon composés d'environ 10^7 atomes [Parra *et al.* 00]. Le rayonnement EUV est plus intense pour des impulsions brèves, comprises entre 100 et 300 fs.

Pour des agrégats de xénon (10^5 - 10^6 atomes) et une énergie de 200 mJ, S. Ter-Avetisyan et coll. ont mesuré le nombre de photons produits entre 10 et 15 nm [Ter-Avetisyan *et al.* 01]. Ils obtiennent une émission plus importante pour une impulsion de 2 ps et une polarisation circulaire du champ laser. L'émission EUV provient d'ions Xe^{q+} avec $q \in [9 - 11]$. L'efficacité de conversion à la longueur d'onde de 13,4 nm (avec une largeur de bande spectrale de 2,2%) est de 0,5% dans 2π stéradians. S. Ter-Avetisyan et coll. mettent également en évidence une taille optimale d'agrégat pour la production de rayonnement EUV. Ce résultat peut être interprété à l'aide des données obtenues dans le cadre de l'émission X (cf. paragraphe 1.2.7). Nous avons vu que plus le nombre d'atomes composant l'agrégat augmente, et plus l'émission X provenant d'états de charge très élevés est importante. Ainsi, pour un gros agrégat, les états de charge intermédiaires responsables de l'émission EUV sont complètement dépeuplés et l'émission X est favorisée au détriment du rayonnement à plus basse énergie.

L'équipe de K. Kondo a étudié l'émission EUV dans la gamme 5-18 nm provenant d'agrégats de xénon ($\sim 10^6$ atomes) en utilisant trois laser différents, afin de faire varier la longueur d'onde, l'énergie sur cible et la durée d'impulsion [Mori *et al.* 01]. L'efficacité de conversion de l'énergie laser maximum obtenue est de 10% dans la gamme considérée avec une impulsion de 500 fs et 24 mJ à 248 nm.

1.3.2 Génération d'harmoniques d'ordre élevé

Les résultats exposés jusqu'à présent relatent l'émission d'un rayonnement énergétique incohérent provenant de l'interaction d'un agrégat de gaz rare avec une impulsion laser intense. Mais d'autres expériences mettent également en évidence la génération d'harmoniques d'ordre élevé, conférant ainsi aux agrégats les caractéristiques d'une source cohérente de rayonnement.

En irradiant des agrégats d'argon de 30 \AA (~ 3000 atomes) avec une impulsion de 140 fs et d'éclairement crête $9 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$, T. Donnelly et coll. ont démontré que cette interaction permet de générer un signal harmonique [Donnelly *et al.* 96]. En confrontant ces résultats avec ceux obtenus avec des atomes isolés, T. Donnelly et coll. obtiennent un signal plus intense pour une harmonique donnée lorsque le jet irradié est composé d'agrégats. De plus, ils observent des harmoniques d'ordre plus élevé (ordre 33 pour les agrégats alors que la coupure intervient à la 29^{ème} harmonique pour un atome).

Parallèlement, J. Tisch et coll. ont entrepris le même type d'expérience : une impulsion

laser de 160 fs dont l'éclairement crête est de 10^{13} à 10^{14} W.cm⁻² est focalisé sur un jet d'agrégats de xénon composés d'environ 10^3 atomes [Tisch *et al.* 97]. Pour une gamme énergétique comprise entre 70 et 90 nm, leurs résultats indiquent que la production de rayonnement harmonique est jusqu'à 5 fois supérieure au cas où les atomes ne sont pas sous forme d'agrégats, pour une même densité atomique moyenne.

1.3.3 Émission de particules

Les résultats expérimentaux ont démontré que la présence d'agrégats dans un jet de gaz irradié par un champ laser conduit à une absorption quasiment totale de l'énergie contenue dans l'impulsion initiale. Une partie de cette énergie est réémise sous forme de rayonnement énergétique par l'intermédiaire de processus non linéaires (désexcitation radiative, bremsstrahlung, recombinaison à trois corps ...). Mais l'énergie absorbée par les particules composant l'agrégat peut également être convertie en énergie cinétique. Certaines expériences se sont donc intéressées à la détection et à la distribution en énergie des particules émises, à la fois pour mieux comprendre la dynamique de l'interaction laser-agrégat, mais également dans le but de concevoir des sources de particules rapides.

1.3.3.1 Électrons

L'émission X mesurée lors de l'irradiation d'agrégats de gaz rare par une impulsion laser brève et intense provient d'ions multichargés. Ceci signifie qu'une importante population d'électrons est libérée au cours de l'interaction. Y. Shao et coll. ont effectué des mesures spectroscopiques des électrons émis par des agrégats de xénon ($R_0 \sim 55$ Å, 1000 - 2000 atomes) soumis à une impulsion de 150 fs et d'intensité crête 10^{16} W.cm⁻² [Shao *et al.* 96]. La distribution en énergie révèle deux contributions :

- un premier pic d'électrons dont l'énergie est comprise entre 0,1 et 1000 eV (électrons qualifiés de "tièdes" par Y. Shao et coll.),
- un second pic d'électrons d'énergie comprise entre 2 et 3 keV (électrons "chauds").

Ces résultats indiquent une différence majeure par rapport aux solides : pour des intensités équivalentes, la température électronique atteinte dans le cas d'irradiation de cibles solides est de quelques centaines d'eV [Shepherd *et al.* 94]. Ceci est dû aux pertes d'énergie par conduction dans le matériau froid entourant la zone d'interaction. À contrario, la faible densité atomique moyenne d'un jet d'agrégats limite ces pertes, permettant ainsi d'obtenir des températures beaucoup plus importantes.

En étudiant la distribution angulaire des électrons provenant des agrégats, les auteurs observent que les électrons "tièdes" sont émis préférentiellement dans l'axe de polarisation du laser de la même manière que des électrons arrachés par ionisation optique dans le cas d'atomes seuls. La distribution possède cependant une largeur à mi-hauteur d'environ 60°, supérieure à celle obtenue dans le cas d'un gaz monoatomique ($\sim 20^\circ$). Cet élargissement indique que ces électrons "tièdes" ne sont pas simplement originaires de l'ionisation par effet de champ mais proviennent également de collisions électron-ion rendant l'émission isotrope. Par contre, les électrons "chauds" ne présentent aucune direction d'émission préférentielle. Ceci indique que ces électrons subissent un nombre important de collisions

avant d'être éjectés de l'agrégat.

Cependant, d'autres expériences contestent ces résultats : V. Kumarappan et coll. observent une distribution électronique à une seule composante, d'énergie comprise entre 0 et 5 keV [Kumarappan *et al.* 03]. Cette unique contribution a également été obtenue par E. Springate et coll. comme le montre la figure 1.7 [Springate *et al.* 03]. Quel que soit le gaz employé (argon, krypton ou xénon) et quelles que soient les conditions expérimentales, E. Springate et coll. n'obtiennent jamais de second pic d'électrons "chauds". Diverses hypothèses ont été émises pour tenter d'expliquer cette différence, parmi lesquelles une mauvaise interprétation par Y. Shao des traces de temps de vol mesurées. Il faut également noter que les tailles d'agrégats utilisées dans ces expériences sont très différentes (2500 atomes/agrégat pour Y. Shao et entre 10^4 et 10^6 pour V. Kumarappan et E. Springate).

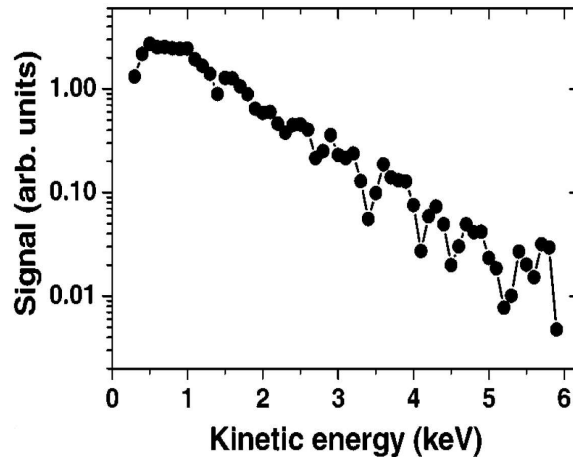


FIG. 1.7 – *Distribution en énergie des électrons émis lors de l'interaction entre une impulsion laser (400 fs ; 10^{16} W.cm⁻²) et des agrégats de xénon ($2,4 \times 10^6$ atomes/agrégat) [Springate et al. 03].*

En ce qui concerne le pic d'électrons à basse énergie (électrons "tièdes"), les résultats concordent quelle que soit l'expérience : l'anisotropie obtenue par Y. Shao et coll. est également observée par E. Springate et coll. et V. Kumarappan et coll. : l'émission d'électrons est privilégiée dans la direction de polarisation du laser, et le pic d'émission est plus large que dans le cas d'atomes isolés.

Compte tenu des températures électroniques obtenues, l'interaction laser-agrégat présente des propriétés intéressantes quant à la production d'électrons énergétiques. E. Springate et V. Kumarappan se sont donc également intéressés à l'optimisation de cette source de particules. Ils observent, pour une énergie laser et une taille d'agrégat données, une durée d'impulsion optimale pour laquelle la population d'électrons émis est la plus énergétique (tout comme dans le cas de l'émission X).

1.3.3.2 Ions

Parallèlement à l'émission d'électrons, certaines expériences ont également étudié la distribution énergétique des ions provenant de l'interaction laser-agrégat. En irradiant des

agrégats de xénon de 2500 atomes ($R_0 \sim 65 \pm 5 \text{ \AA}$) par une impulsion de 150 fs avec une intensité crête de $2 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$, T. Ditmire et coll. a observé une émission isotrope d'ions Xe^{q+} dont l'énergie atteint 1 MeV et dont l'état de charge q maximum est de 40 [Ditmire *et al.* 97a]. Avec des conditions laser légèrement différentes ($\tau_{FWHM}=130 \text{ fs}$; $I_0=5 \times 10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$) et des agrégats de xénon beaucoup plus conséquents (2×10^6 atomes), M. Lezius et coll. obtiennent également une énergie ionique maximale de l'ordre du MeV [Lezius *et al.* 98].

Pour des agrégats d'argon de 12800 atomes irradiés par une impulsion laser ($\tau_{FWHM}=130 \text{ fs}$; $I_0=2 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$), M. Hirokane et coll. obtiennent des ions dont l'énergie atteint 800 keV [Hirokane *et al.* 04]. Contrairement à T. Ditmire, l'émission est anisotrope : les ions les plus énergétiques et les plus chargés sont émis préférentiellement dans la direction de polarisation du laser. De plus, M. Hirokane et coll. observent une dépendance en fonction de la taille des agrégats : l'énergie ionique maximale atteinte augmente avec le rayon de l'agrégat.

1.3.4 Bilan des résultats expérimentaux

Les sections précédentes présentent de nombreux résultats expérimentaux qui mettent clairement en évidence le comportement singulier d'un jet d'agrégats exposé à une impulsion lumineuse. La très forte capacité d'absorption de l'énergie laser permet de générer des photons et des particules très énergétiques avec des taux de conversion très intéressants. Par conséquent, dans le but de créer une source de rayonnement ou de particules, de faible coût et de faible encombrement, l'interaction laser-agrégat présente des qualités remarquables.

Cependant, la diversité de ces résultats démontre que l'optimisation de ce type de sources est loin d'être acquise. La dynamique de l'interaction est complexe et dépend de multiples paramètres. De plus, ces résultats s'accompagnent d'incertitudes liées au simple fait que l'impulsion laser n'interagit pas avec un unique agrégat. D'une part, compte tenu des tailles de tache focale utilisées (de l'ordre de quelques μm) et des densités d'agrégats dans le jet, l'impulsion lumineuse irradie plusieurs dizaines d'agrégats. D'autre part, le jet de gaz n'est que partiellement condensé en agrégats, le champ électromagnétique interagit donc également en partie avec un gaz monoatomique. L'influence de cet environnement a été discuté par ailleurs par T. Caillaud et coll. [Caillaud *et al.* 06]. Ils démontrent que les atomes ionisés par le champ créent un plasma qui agit comme une lentille défocalisante. L'intensité du laser sur la cible peut être jusqu'à 3 fois plus faible que dans le vide.

Bien que les résultats expérimentaux donnent des indices permettant de comprendre la dynamique des agrégats, la réponse d'un agrégat unique à l'impulsion laser n'est donc pas encore clairement comprise :

- Comment sont produits les importants états de charge observés ?
- Comment sont accélérés les particules à plusieurs keV pour les électrons et jusqu'au MeV pour les ions ?

- Quels sont les différents mécanismes qui induisent un couplage si efficace avec l'impulsion laser ?

Divers modèles théoriques ont donc été développés afin de mieux comprendre la réaction d'un agrégat irradié par une impulsion laser et tenter de répondre à ces différentes questions.

1.4 Modélisation de l'interaction : Résultats théoriques

Les agrégats constituent un milieu intermédiaire entre les atomes et les solides. Par conséquent, deux voies ont alors été principalement suivies pour tenter de modéliser l'interaction laser-agrégat et comprendre les résultats expérimentaux obtenus. Une première solution consiste à reprendre les modèles utilisés en physique atomique ou moléculaire et à les étendre aux agrégats. L'autre axe de développement adopte une description macroscopique de l'interaction. Cette section présente donc les différents modèles développés ainsi que les principaux résultats obtenus dans le cadre de ces modèles.

1.4.1 Modèle CEMM (Coherent Electron Motion Model)

Le premier modèle développé pour expliquer l'émission X "anormale" provenant de l'irradiation d'agrégats par une impulsion laser a été proposé par A. McPherson et coll. [McPherson *et al.* 93b]. Ils considèrent que les premiers atomes ionisés génèrent des électrons libres qui sont alors accélérés par le champ électromagnétique à l'intérieur de l'agrégat. Les électrons suffisamment énergétiques qui entrent en collision avec les ions ou atomes environnants sont susceptibles de créer des lacunes en couche interne. Ces lacunes peuvent alors être comblées par la désexcitation radiative d'un électron d'une couche externe, désexcitation associée à l'émission d'un photon énergétique. Ce modèle implique une gamme d'éclairement laser donnée : d'une part, l'intensité doit être suffisamment importante pour que les électrons accélérés aient assez d'énergie pour ioniser les couches internes ; d'autre part, l'intensité ne doit pas être trop élevée pour éviter que les couches externes ne soient complètement ionisées.

Peu après, un complément a été apporté par la même équipe. Les N électrons libres sont considérés comme un ensemble oscillant de manière cohérente dans le champ laser (modèle CEMM, pour "*Coherent Electron Motion Model*"). Cet ensemble se comporte alors comme une "quasi-particule" unique de charge Ne et de masse Nm_e [Boyer *et al.* 94]. Les états de charge plus élevés sont obtenus par ionisation collisionnelle entre les ions (ou atomes) de l'agrégat et cette quasi-particule d'une manière analogue à l'ionisation par impact électronique. Le mouvement collectif induit également un fort couplage avec l'onde électromagnétique. La probabilité d'éjection de plusieurs électrons en couche interne devient aussi importante que la probabilité d'éjection d'un seul électron, le taux d'émission

X est alors largement accru. Ce modèle donne un accord satisfaisant avec les résultats expérimentaux mais uniquement pour de petits agrégats (pour un rayon de quelques angströms).

1.4.2 Un modèle macroscopique : le modèle nanoplasma

A l'opposé des modèles particuliers qui seront présentés dans les sections suivantes, certains auteurs ont tenté de modéliser l'interaction laser-agrégat à l'aide de processus macroscopiques. La réponse de l'agrégat est modélisée à l'aide d'une description inhérente à la physique des solides ou des plasmas. L'agrégat est alors considéré comme un ensemble réagissant globalement à l'impulsion laser. Cette description statistique impose une taille d'agrégat suffisamment élevée pour pouvoir être valide.

T. Ditmire et coll. ont développé un modèle baptisé "*modèle nanoplasma*" [Ditmire *et al.* 96]. Ce modèle décrit la dynamique de l'ionisation, du chauffage et de l'expansion de la cible en considérant l'agrégat comme un plasma sphérique de taille nanométrique. T. Ditmire et coll. considèrent une distribution isotrope et maxwellienne des électrons. Ceci est justifié par la densité élevée à l'intérieur de l'agrégat (proche de celle d'un solide) qui induit des taux collisionnels très importants. Les électrons sont également considérés comme étant uniformément répartis. L'agrégat est donc modélisé par un plasma homogène dont la densité et la température électronique ne dépendent que du temps.

Pour prendre en compte l'absorption de l'énergie laser, l'agrégat est assimilé à une sphère diélectrique. Le champ interne, calculé à l'aide de cette hypothèse, présente alors une résonance lorsque la densité électronique n_e atteint une valeur particulière égale à trois fois la densité critique n_c , définie dans un plasma selon $n_c = (m_e \varepsilon_0 \omega_0^2) / e^2$, où m_e et e sont respectivement la masse et la charge de l'électron, ε_0 est la permittivité du vide, et ω_0 est la pulsation du laser. Cette résonance du champ interne induit une forte absorption de l'énergie laser par bremsstrahlung inverse.

L'éjection d'électrons énergétiques en dehors de l'agrégat est également prise en compte. Ce défaut de charges induit une pression coulombienne qui participe à l'expansion de l'agrégat. À cette pression coulombienne, T. Ditmire et coll. ajoutent une pression hydrodynamique. Cette pression provient de la conversion de l'énergie absorbée par les électrons en énergie cinétique ionique.

Le modèle nanoplasma indique que les collisions électron-ion jouent un rôle prépondérant. L'ionisation optique par le champ laser génère les premiers électrons. Ceux-ci acquièrent ensuite de l'énergie par bremsstrahlung inverse et percutent les ions (ou atomes) environnants, induisant ainsi en quelques centaines de femtosecondes un degré d'ionisation très élevé à l'intérieur de l'agrégat. Les électrons libres deviennent alors suffisamment énergétiques pour quitter l'agrégat. Finalement, celui-ci explose dû aux effets combinés des pressions coulombienne et hydrodynamique.

E. Springate et coll. ont démontré que ce modèle permet de reproduire les variations de l'émission d'ions énergétiques en fonction de la taille des agrégats ainsi que des divers paramètres laser [Springate *et al.* 00]. La figure 1.8 présente l'énergie ionique maximale obtenue expérimentalement et théoriquement en fonction de la taille des agrégats irradiés. De plus, le modèle nanoplasma prévoit une durée d'impulsion optimale pour l'absorption, optimum mis en évidence expérimentalement [Zweiback *et al.* 99]. En effet, lorsque la densité électronique atteint la valeur critique de $3n_c$, la résonance induit une très forte absorption de l'énergie du laser. L'absorption est optimale si cette résonance survient au moment où l'intensité du laser est maximale.

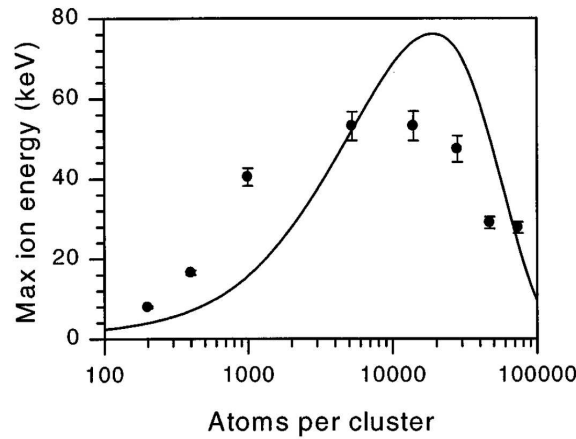


FIG. 1.8 – Énergie ionique maximale obtenue expérimentalement (●) et théoriquement (—) en fonction de la taille des agrégats de xénon irradiés par une impulsion laser de 230 fs et $3 \times 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ [Springate *et al.* 00].

H. Milchberg et coll. ont étendu ce modèle en incluant une dépendance radiale de la densité électronique [Milchberg *et al.* 01]. Les auteurs observent toujours une absorption résonante mais celle-ci se produit à $n_e = n_c$. Compte tenu du gradient de densité, ceci signifie que la résonance ne survient à un temps t donné que pour une couche de l'agrégat donnée. L'évolution du rayon de l'agrégat induit un accroissement de l'absorption pour différentes couches du plasma en fonction du temps. Par conséquent, l'énergie laser est fortement absorbée tout au long de l'impulsion laser, contrairement au cas uniforme où la résonance est très brève. Ce modèle unidimensionnel présente également une durée optimale d'impulsion.

1.4.3 Modèles de dynamique moléculaire

Les simulations de dynamique moléculaire consistent à calculer l'évolution d'un système de particules au cours du temps en déterminant la vitesse et la position de chaque particule à l'aide des lois de la dynamique classique de Newton. Les forces appliquées à une particule sont déterminées par les potentiels d'interaction avec toutes les autres particules du système. Ces simulations ont été initialement développées pour des systèmes moléculaires, mais, en exploitant le fait que les agrégats sont composés d'un nombre fini

d'atomes, certains auteurs ont utilisé ce type de modèle pour déterminer la dynamique d'un agrégat soumis à un champ laser intense.

C. Rose-Petruck et coll. ont développé un modèle pour lequel les probabilités d'ionisation par le champ sont prises en compte par la méthode de Monte Carlo [Rose-Petruck *et al.* 97]. L'évolution de l'agrégat obtenue est la suivante : les premiers atomes sont ionisés par le champ laser dès lors que l'intensité devient suffisante pour vaincre la barrière coulombienne liant l'électron à son atome parent. Les ions ainsi créés, confinés à l'intérieur de l'agrégat, induisent un champ électrostatique supplémentaire très important. L'ionisation par suppression de barrière subséquente, alors calculée dans le champ électrique total résultant du laser et des particules chargées, augmente la densité ionique. Le nombre d'ions augmentant, le champ total devient donc encore plus important ce qui permet finalement d'obtenir des états de charge élevés. Ainsi, l'ionisation initiale agit comme un déclic qui "allume" la dynamique de l'ionisation de l'agrégat, ce modèle a donc été baptisé IIM, pour "*Ionization Ignition Model*".

L'étude des trajectoires électroniques démontre que les électrons subissent plusieurs collisions avec les ions environnants avant de quitter l'agrégat. Le champ électrique combiné à ces collisions permet aux électrons de gagner de l'énergie par bremsstrahlung inverse. Lorsque les électrons deviennent suffisamment énergétiques, les collisions avec les ions peuvent alors générer des trous en couche interne. La désexcitation radiative induite par ces lacunes conduit à l'émission de rayonnement X.

K. Ishikawa et T. Blenski ont également étudié la dynamique de l'ionisation d'agrégats composés de 55 et 147 atomes [Ishikawa *et al.* 00]. Le modèle inclu les processus d'ionisation par effet tunnel et par collisions ainsi que la recombinaison électronique. Ils démontrent que l'ionisation des atomes s'effectue essentiellement par effet tunnel dû à la combinaison des champs électriques du laser, des ions et des électrons. Les auteurs démontrent également que l'explosion de l'agrégat est principalement coulombienne (dûe à la répulsion des ions entre eux).

I. Last et J. Jortner ont développé un modèle de dynamique moléculaire en trois dimensions dans lequel les atomes et les ions peuvent être ionisés par le champ électromagnétique et par collisions [Last *et al.* 00]. L'étude porte sur l'évolution des électrons libres à l'intérieur de l'agrégat et leur probabilité d'être éjectés en dehors de cet agrégat. Si des électrons quittent l'agrégat, il s'ensuit un défaut de charges négatives, les ions ont alors tendance à s'écarter les uns des autres et le rayon de l'agrégat augmente. Pour les plus gros agrégats étudiés (1061 atomes de xénon), les auteurs démontrent que, au temps t où le rayon de l'agrégat a augmenté jusqu'à une valeur donnée, l'éjection d'électrons augmente fortement. Il s'ensuit un important défaut de charge qui conduit à l'explosion de l'agrégat. Ainsi, le passage par cette taille d'agrégat particulière s'apparente à une quasirésonance pour laquelle l'énergie des électrons s'accroît nettement.

Afin de modéliser la dynamique pour de plus gros agrégats ($\sim 10^4$ atomes/agrégat), G. Petrov et coll. ont développé un modèle de dynamique moléculaire pour lequel les

particules composant l'agrégat sont remplacées par des "macroparticules" (jusqu'à 1000 macroparticules pour les plus gros agrégats) [Petrov *et al.* 05]. Chaque macroparticule est composée de n particules identiques (électrons, ions ou atomes) de charge nq et de masse nm , q et m étant les charge et masse d'une particule individuelle. La position et l'impulsion de ces macroparticules sont déterminées par les équations relativistes du mouvement en 3 dimensions, les potentiels d'interaction entre ces macroparticules sont déterminés empiriquement.

Les résultats sont présentés pour des agrégats de xénon, une impulsion laser de 120 fs et un éclairement crête de 10^{16} W.cm⁻². L'étude des états de charge atteints en fonction du rayon initial de l'agrégat révèle que plus le rayon augmente et plus l'ionisation collisionnelle joue un rôle prépondérant dans la dynamique de l'ionisation. L'étude de la variation de la densité électronique à l'intérieur de l'agrégat indique une augmentation quasi instantanée jusqu'à quelques 10^{22} cm⁻³. Puis la densité reste comprise entre 10^{22} et 10^{23} cm⁻³ pendant quelques dizaines de femtosecondes avant de décroître très rapidement. Cette décroissance est due à l'explosion de l'agrégat.

Pour des agrégats de xénon de 100 Å de rayon, la distribution énergétique des électrons présente une partie maxwellienne à faible énergie à laquelle s'ajoute une composante non-maxwellienne à haute énergie. L'énergie moyenne est de 13,1 keV pour les électrons et de 291 keV pour les ions, ce qui est cohérent avec les résultats expérimentaux obtenus.

Ce modèle est cependant limité en terme de taille d'agrégats. En effet, d'après les auteurs, pour de plus gros agrégats, le nombre de particules composant une macroparticule devient trop conséquent et les solutions obtenues n'ont plus de sens physique.

Les modèles de dynamique moléculaire permettent de dégager certaines propriétés du comportement d'un agrégat soumis à un champ laser intense. Ils sont cependant limités : d'une part, la description classique des trajectoires électroniques ne donne qu'une valeur qualitative aux résultats. D'autre part, l'emploi de méthode de dynamique moléculaire est restreinte à des systèmes de petite taille.

1.4.4 Simulations PIC (Particle In Cell)

La méthode PIC permet de décrire l'évolution de particules chargées dans un champ électromagnétique en utilisant l'approximation de type champ moyen. Les champs électriques et magnétiques sont calculés sur un maillage à l'aide des équations de Maxwell. Après interpolation de ces champs sur les positions des particules, on en déduit la force appliquée, ce qui permet, à l'aide des équations du mouvement, de déterminer leurs nouvelles vitesses et positions. Pour des systèmes composés de nombreux corpuscules, les particules chargées sont représentées par des pseudo-particules numériques (ou cellules) qui correspondent à une moyenne sur un grand nombre d'éléments. La densité de courant et la densité de charges, termes sources des équations de Maxwell, sont déterminées à l'aide de ces valeurs moyennes.

1.4.4.1 Modèle MPIC (Microscopic Particle In Cell)

Pour déterminer la dynamique de l'agrégat, C. Jungreuthmayer et coll. ont utilisé un code PIC en 3 dimensions [Jungreuthmayer *et al.* 04]. Cette simulation PIC présente la particularité d'avoir une taille de boîte très faible. Ainsi, chaque cellule ne contient qu'une seule particule chargée. Ceci permet d'avoir accès à différents processus microscopiques qui ne peuvent être traités par les codes PIC traditionnels. En effet, dans une simulation PIC, une boîte représente une particule virtuelle qui est le résultat de la moyenne effectuée sur les ions et électrons la composant. L'interaction entre les différentes cellules ne peut donc pas prendre en compte des processus comme l'ionisation collisionnelle, le chauffage par bremsstrahlung inverse ou tout autre mécanisme microscopique nécessitant l'interaction de particules réelles. La modélisation de C. Jungreuthmayer et coll. permet donc de prendre en compte ces phénomènes. Les positions et vitesses des particules sont calculées classiquement à l'aide des équations du mouvement relativistes. Les processus quantiques tels que l'ionisation par effet tunnel sont également ajoutés. L'effet tunnel est calculé avec le champ électrique total provenant du laser et du champ associé aux particules chargées composant l'agrégat. Ce champ total est calculé à l'aide des équations de Maxwell.

Pour des agrégats d'argon Ar_N ($N=10000$) et de xénon Xe_N ($N=25000$) irradiés par une impulsion laser ($\tau_{FWHM}=100$ fs ; $I_0=8 \times 10^{15}$ W.cm⁻²) le spectre énergétique des ions obtenu est en accord avec les résultats expérimentaux de V. Kumarappan [Kumarappan *et al.* 03]. L'étude de la dynamique de l'agrégat révèle que l'ionisation provient essentiellement du champ électromagnétique induit (par le laser et les particules chargées). Les simulations mettent également en évidence une ionisation due à la polarisation de l'agrégat : le champ laser est suffisamment intense pour déplacer le nuage d'électrons libres par rapport aux ions, plus lourds, qui restent donc en place. Au pôle opposé au déplacement, l'excès de charges positives induit donc un accroissement local du champ électrostatique, ce qui augmente l'ionisation.

D'après C. Jungreuthmayer et coll., l'expansion de l'agrégat est déterminée par des forces électrostatiques et par des processus plasma. Les forces électrostatiques résultent de l'éjection d'électrons en dehors de l'agrégat. Il s'ensuit un défaut de charges négatives qui induit une répulsion coulombienne entre les ions et conduit à l'augmentation du rayon de la cible. Les processus plasma correspondent à la conversion de l'énergie absorbée par les particules en énergie cinétique ionique, ce qui conduit à l'expansion hydrodynamique de l'agrégat. Le modèle indique que plus le rayon initial de l'agrégat augmente, et plus l'expansion est dominée par la composante hydrodynamique. Ceci vient du fait que les électrons sont plus difficilement éjectés pour de plus gros agrégats.

Compte tenu de son caractère microscopique, cette simulation PIC rejoint les modèles de dynamique moléculaire dans le sens où l'évolution de chaque particule est traitée. Les résultats obtenus sont cohérents et confortent donc la description de la dynamique de l'agrégat. Cependant, cette simulation PIC microscopique est, tout comme les modèles de dynamique moléculaire, limitée par le nombre d'atomes composant l'agrégat. Pour

déterminer l'évolution d'agrégats de plus grande taille, il est alors nécessaire d'avoir recours aux codes PIC utilisant des pseudo-particules représentant une moyenne de plusieurs particules chargées.

1.4.4.2 Simulation PIC pour de plus gros agrégats

Récemment, Y. Fukuda et coll. ont développé un code PIC (3D) pour modéliser la dynamique d'un agrégat d'argon de $1,6 \times 10^6$ atomes ($R_0=240$ Å) [Fukuda *et al.* 06]. L'impulsion laser appliquée possède une largeur à mi-hauteur de 20 fs et un éclairement crête de $2,7 \times 10^{17}$ W.cm⁻². Les processus d'ionisation sont pris en compte par la méthode de Monte-Carlo. La dynamique de l'ionisation indique que les ions (jusqu'à Ar¹⁶⁺) sont produits par collisions et par effet tunnel. Le champ responsable de l'ionisation tunnel provient de trois composantes :

- le champ électromagnétique du laser,
- le champ de polarisation induit (les électrons libres sont déplacés par rapport au centre de l'agrégat selon la direction de polarisation du laser, la partie de l'agrégat diamétralement opposée se retrouve donc avec un excès de charges positives),
- le champ ambipolaire radial résultant de la non-neutralité de la couronne de plasma proche de la surface (les électrons éjectés de l'agrégat proviennent essentiellement de la couronne, induisant ainsi un défaut de charges négatives en surface).

L'intensité atteinte par le champ total résultant est alors de 6×10^{18} W.cm⁻² ce qui est suffisant pour produire des ions Ar¹⁶⁺. De plus, lorsque la densité électronique devient élevée, le champ laser est écranté et ne pénètre plus dans la totalité de l'agrégat. Seule la surface de l'agrégat est irradiée. Celui-ci se retrouve alors composé de deux parties : une couche externe où le champ est très important et un coeur opaque où les densités ioniques et électroniques sont très importantes.

L'évolution de la distribution des états de charge indique que l'ionisation perdure après la fin de l'impulsion. En effet, dans le coeur de l'agrégat, les fortes densités induisent une très forte ionisation collisionnelle. Dans la couronne, des électrons s'échappent induisant un excès de charges positives. Le champ associé aux ions conduit alors à des degrés d'ionisation supplémentaires. La répulsion coulombienne des charges positives conduit également à l'augmentation du rayon de l'agrégat.

La distribution énergétique des électrons présente une structure à deux composantes avec une première partie à basse énergie (de 0,1 keV à quelques keV) et une seconde à plus haute énergie (de 10 à 600 keV). L'énergie électronique moyenne obtenue à la fin de la simulation est de 3,3 keV. La distribution énergétique des ions indique que plus l'état de charge est élevé et plus la distribution est décalée vers les hautes énergies. Pour les états de charge élevés ($q \geq 12$), les ions sont répartis en deux groupes : la composante la plus énergétique provient de l'explosion coulombienne de la couche externe alors que la partie moins énergétique provient de l'expansion hydrodynamique du coeur de l'agrégat. L'énergie ionique moyenne obtenue est de 36,6 keV avec une limite supérieure de l'ordre du MeV pour les états de charge les plus élevés.

1.4.5 Mise en évidence d'un mécanisme de chauffage additionnel : prise en compte de processus stochastiques

Le modèle récemment développé par C. Deiss et coll. est basé sur le fait qu'un électron oscillant dans un champ électrique et subissant une rétrodiffusion élastique peut gagner de l'énergie si cette collision coïncide avec l'inversion de sens du champ laser [Deiss *et al.* 06]. En effet, le vecteur vitesse électronique inversé par la collision est alors de nouveau orienté dans le sens du champ, l'électron peut donc être encore accéléré durant la demi-période suivante. Ce processus est illustré sur la figure 1.9. L'électron a par ailleurs une probabilité non négligeable d'être rétrodiffusé élastiquement de façon synchrone avec le laser, et rapidement absorber une quantité importante d'énergie.

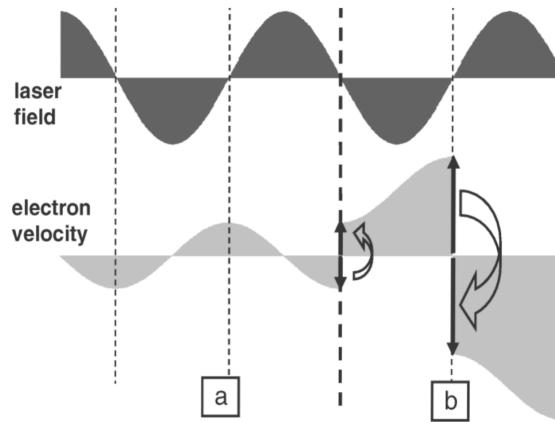


FIG. 1.9 – Représentation schématique de l'évolution temporelle de la vitesse d'un électron dans un champ électrique oscillant. (a) L'énergie maximale acquise par un électron libre est égale à l'énergie pondéromotrice. (b) Si un électron est rétrodiffusé élastiquement à l'instant où le champ s'annule, sa vitesse s'inverse, l'électron peut alors absorber de l'énergie et être efficacement accéléré durant la demi-période suivante. [Deiss et al. 06].

Afin d'évaluer la probabilité de ce processus stochastique, les sections efficaces de diffusion élastique différentielles en angle sont déterminées en prenant en compte l'influence du coeur ionique diffuseur par l'intermédiaire d'un potentiel Hartree-Fock paramétrisé. Les données obtenues par C. Deiss et coll. mettent par ailleurs en évidence l'importance de la prise en compte de ce potentiel non coulombien. Les sections efficaces de diffusion à grand angle sont en effet nettement accrues vis à vis des sections calculées dans un potentiel coulombien selon le modèle de Rutherford.

Pour modéliser la dynamique d'un agrégat irradié par une impulsion laser, C. Deiss et coll. considèrent que la dynamique électronique est représentée par une fonction de distribution classique discrétisée sur un ensemble de particules test $N_{test}(t)$. Pour $N_e(t)$ électrons libres, ces pseudo-particules représentent $\alpha N_e(t)$ électrons, où α est un paramètre ajustable (limité par les performances numériques). Ceci permet par conséquent de simuler la dynamique d'agrégats de taille conséquente (comprenant plus de 10^5 atomes).

Afin de prendre en compte le mécanisme de chauffage décrit ci-dessus, l'équation du mouvement des électrons est déterminée par la méthode de champ moyen selon l'équation de Langevin (équation de Newton dans laquelle des processus stochastiques sont prises en compte). Les différents mécanismes d'ionisation pris en compte sont l'ionisation par effet de champ ainsi que l'ionisation par impact électronique. La modélisation permet enfin de déterminer la production de rayonnement X, en évaluant le nombre de lacunes en couche K générées et les taux de fluorescence associés.

À l'aide de ce modèle, C. Deiss et coll. ont simulé l'interaction d'un agrégat d'argon ($R=136 \text{ \AA}$) avec une impulsion laser dont la durée à mi-hauteur est de 60 fs. Les simulations effectuées permettent de reproduire les résultats expérimentaux concernant la variation de photons X produits en fonction de l'éclairement crête I_0 (pour $I_0 \in [3 \times 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}; 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}]$). Il est par ailleurs intéressant de remarquer que la prise en compte de l'influence du coeur ionique dans l'évaluation des sections est primordiale. Le rayonnement X est en effet accru d'un facteur 4 à 7 par rapport au cas purement coulombien.

1.4.6 Équation de Boltzmann couplée à un modèle collisionnel-radiatif

À l'aide d'un modèle déterminant l'évolution temporelle des populations de chaque état de charge, la fonction de distribution énergétique des électrons, et le rayonnement X émis, M. Sherrill et coll. ont reproduit un spectre d'émission X expérimental [Sherrill M. *et al.* 06]. Ce spectre provient d'agrégats d'argon de $1 \mu\text{m}$ irradiés par une impulsion de durée à mi-hauteur de 30 fs et d'éclairement crête $10^{19} \text{ W.cm}^{-2}$. L'évolution de l'agrégat est divisée en trois parties : avant, au cours, et après le passage de l'impulsion.

Le spectre expérimental présenté par M. Sherrill et coll. a été obtenu sur l'installation laser JAERI au Japon. Comme toute installation générant des impulsions brèves et intenses, ce système émet une pré-impulsion. Dans ce cas, la pré-impulsion irradie la cible 10 ns avant l'arrivée de l'impulsion principale. De plus, l'intensité crête de cette pré-impulsion est de $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$. Compte tenu de cette intensité, l'impulsion principale n'interagit pas avec un agrégat mais avec un plasma préformé. En effet, à $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$, le champ électrique est suffisant pour ioniser les atomes d'argon jusqu'à 8 fois. Par conséquent, les auteurs considèrent que l'impulsion principale de 30 fs irradie un plasma formé d' Ar^{8+} . La température électronique est estimée à 140 eV.

Pour modéliser l'interaction de l'impulsion laser avec le plasma préformé, M. Sherrill et coll. utilise une simulation PIC ultra-relativiste à une dimension. Ce code simule l'évolution du plasma dans le champ électromagnétique produit par le laser et les particules chargées, et permet ainsi de déterminer la fonction de distribution électronique à chaque instant de l'interaction. Aucun processus collisionnel ni d'ionisation par effet de champ ne sont considérés. D'après les auteurs, la faible durée de l'impulsion (30 fs) ne permet pas aux processus collisionnels d'avoir un impact significatif sur l'évolution des différentes populations ioniques. De plus, la simulation indique que la majeure partie du champ est

réfléchi par le plasma. Seule une faible couche de plasma est donc irradiée par l'éclairement crête de $10^{19} \text{ W.cm}^{-2}$, la majeure partie ne subit qu'un champ amoindri insuffisant pour ioniser les couches L de l'argon.

Après le passage de l'impulsion, le plasma est donc composé d'ions Ar^{8+} dans l'état fondamental. La simulation PIC permet de déterminer la fonction de distribution énergétique des électrons à la fin de l'impulsion. Ces données servent à initialiser le code collisionnel-radiatif qui détermine l'évolution des populations de chaque état de charge. La structure atomique des ions est prise en compte à l'aide de 3000 niveaux de structure fine de l' Ar^{8+} à l' Ar^{16+} . La dynamique de la distribution énergétique des électrons est calculée à l'aide de l'équation de Boltzmann qui prend en compte les processus collisionnels élastiques (électron-électron) et inélastique (excitation et désexcitation par impact électronique, ionisation). La distribution électronique utilisée initialement présente une longue queue très énergétique. Les auteurs démontrent que des électrons jusqu'à 50 keV sont nécessaires pour obtenir un spectre convergé.

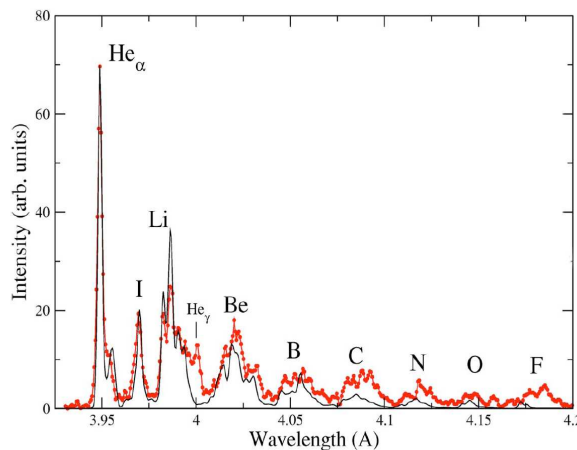


FIG. 1.10 – Spectre expérimental ($\bullet\text{---}\bullet$) et théorique (—) obtenus pour des agrégats d'argon de $1 \mu\text{m}$ irradiés par une impulsion laser ($\tau_{FWHM} = 30 \text{ fs}$; $I_0 = 10^{19} \text{ W.cm}^{-2}$). Le spectre théorique a été obtenu avec $N_a = 3,162 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ et $\delta\tau = 5,7 \text{ ps}$ (voir texte pour explications) [Sherrill M. et al. 06].

Le spectre d'émission mesuré présente des raies provenant d'ions multichargés jusqu'à Ar^{16+} . Les auteurs estiment donc que ces états de charge proviennent de l'évolution d'un plasma dense après le passage de l'impulsion principale. Pour obtenir un spectre identique au résultat expérimental, ce plasma doit posséder une densité atomique N_a suffisamment élevée pendant un temps $\delta\tau$ suffisamment long. Le modèle collisionnel-radiatif couplé à l'équation de Boltzmann est donc résolu pour différents couples $(N_a, \delta\tau)$ jusqu'à ce que les spectres théorique et expérimental concordent (pour les raies He_α et d'intercombinaison I). La figure 1.10 présente le résultat obtenu pour une densité atomique de $3,162 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ maintenue constante pendant un temps $\delta\tau = 5,7 \text{ ps}$.

M. Sherrill et coll. ont développé le premier modèle présentant un spectre X synthé-

tique directement comparable aux expériences. Ils mettent en évidence l'importance de la pré-impulsion quant à la formation d'un plasma et l'importance de la dynamique de ce plasma après le passage de l'impulsion principale. Cependant, ce modèle ne permet pas de comprendre comment les électrons libres acquièrent leur énergie. De plus, l'hypothèse selon laquelle il n'y a pas d'ionisation supplémentaire pendant l'impulsion principale est discutable. Enfin, le spectre a été obtenu pour une densité atomique N_a constante pendant un temps $\delta\tau$ alors que le plasma est en expansion et que par conséquent, la densité décroît au cours du temps.

1.4.7 Bilan des résultats théoriques

Pour modéliser l'interaction laser-agrégat, diverses approches ont été utilisées. De part la nature intermédiaire des agrégats, des modèles particuliers (dynamique moléculaire, Particle In Cell) aussi bien que des modèles macroscopiques ont été développés pour tenter de comprendre le comportement d'un agrégat irradié par une impulsion laser.

Les modèles particuliers présentent l'avantage de décrire la dynamique de l'interaction de manière très complète. Les simulations indiquent que l'impulsion laser ionise les atomes de l'agréat. Les électrons libres peuvent alors quitter l'agréat si leur énergie est suffisante. D'après les modèles, plus le rayon de l'agréat augmente et plus le nombre d'électrons éjectés en dehors de l'agréat diminue. Ainsi, pour de petits agrégats, le défaut de charges négatives induit une explosion coulombienne de l'agréat. À contrario, lorsque le rayon augmente, l'expansion de l'agréat est de plus en plus gouvernée par la pression hydrodynamique. Pour la dynamique de l'ionisation, les modèles particuliers présentent cependant certaines divergences. L'importance de l'ionisation par effet de champ vis à vis de l'ionisation collisionnelle reste indéterminée. Le champ électrostatique lié aux particules chargées induit une ionisation supplémentaire plus ou moins importante selon les modèles.

Les modèles macroscopiques nécessitent la formulation d'un certain nombre d'hypothèses supplémentaires quant à la réaction d'un agrégat soumis à une impulsion laser intense. La comparaison des résultats théoriques obtenus à l'aide du modèle nanoplasma avec les résultats expérimentaux semblent indiquer que la description de T. Ditmire et coll. est correcte. L'hypothèse de l'uniformité de la distribution électronique est cependant remise en cause par la description unidimensionnelle de H. Milchberg.

1.5 Conclusion

Nous avons vu dans ce chapitre les principaux résultats concernant l'interaction entre des agrégats de gaz rare et une impulsion laser brève et intense. Ce résumé non exhaustif pourra être complété par la revue de U. Saalmann [Saalmann *et al.* 06].

Concernant l'émission X, les agrégats constituent clairement une source à haute ca-

dence idéale pour la production de rayonnement X bref. Cette source doit cependant encore être optimisée. Les résultats expérimentaux indiquent que le nombre de photons énergétiques émis augmente avec la taille des agrégats. Cependant, l'influence des paramètres laser n'est pas encore clairement comprise, d'autant plus que ceux-ci ne sont pas nécessairement indépendants. Une meilleure compréhension de la dynamique de l'agrégat passe donc par une modélisation théorique de l'interaction.

Divers modèles théoriques ont par conséquent été développés. Les modèles particuliers nous permettent de mettre en évidence certains processus importants quant à la dynamique de l'interaction. Ils sont cependant limités de par leur nature à des agrégats de petites tailles. Ils nécessitent un temps de calcul très important (23 jours pour le calcul de la dynamique d'un agrégat de 10000 atomes pour un code PIC microscopique [Krishnamurthy *et al.* 06]). Une utilisation systématique de ces modèles semble donc difficile.

Le modèle nanoplasma présente au contraire l'avantage d'être adapté pour des agrégats composés de plusieurs millions d'atomes. Or, d'après les résultats expérimentaux obtenus, la production de rayonnement X est favorisée pour ces gros agrégats. L'objectif de ce travail étant de comprendre, modéliser et optimiser la production de rayonnement X lors de l'interaction d'une impulsion laser et d'un agrégat, le modèle nanoplasma semble donc le plus approprié.

Le chapitre suivant présente donc le principe détaillé du modèle de T. Ditmire et coll. [Ditmire *et al.* 96]. Bien que les principales améliorations apportées à ce modèle seront présentées dans les chapitres 3 et 4, certaines modifications secondaires sont exposées dans le chapitre 2.

Chapitre 2

Le modèle nanoplasma

Sommaire

| | | |
|------------|--|-----------|
| 2.1 | Présentation générale du modèle nanoplasma | 39 |
| 2.1.1 | Principe du modèle | 39 |
| 2.1.2 | Hypothèses | 40 |
| 2.2 | Ionisation optique | 42 |
| 2.2.1 | Les différents mécanismes d'ionisation par effet de champ | 42 |
| 2.2.2 | Calcul du taux d'ionisation optique | 44 |
| 2.2.2.1 | Taux d'ionisation par effet tunnel | 44 |
| 2.2.2.2 | Taux d'ionisation par suppression de barrière | 45 |
| 2.3 | Champ électrique interne | 46 |
| 2.3.1 | Le champ laser | 46 |
| 2.3.2 | Le champ à l'intérieur de l'agrégat | 47 |
| 2.3.3 | Mise en évidence d'une résonance | 48 |
| 2.4 | Fréquence de collisions électron-ion | 49 |
| 2.4.1 | De la nécessité d'un calcul adapté à l'interaction laser-agrégat | 49 |
| 2.4.2 | À partir du taux de chauffage calculé par dynamique moléculaire | 50 |
| 2.4.3 | Fréquence de collisions pour l'interaction laser-agrégat | 53 |
| 2.5 | Ionisation collisionnelle | 55 |
| 2.5.1 | Taux d'ionisation par collisions - méthode originelle | 55 |
| 2.5.2 | Amélioration du calcul du taux d'ionisation collisionnel | 56 |
| 2.5.3 | Taux d'ionisation collisionnel : forme analytique | 57 |
| 2.6 | Émission d'électrons | 59 |
| 2.7 | Expansion de l'agrégat | 60 |

| | | |
|-------------|---------------------------------|-----------|
| 2.8 | Température électronique | 61 |
| 2.8.1 | Termes de gain d'énergie | 61 |
| 2.8.2 | Termes de pertes d'énergie | 63 |
| 2.8.3 | Termes supplémentaires | 63 |
| 2.9 | Implémentation numérique | 65 |
| 2.10 | Résultats | 66 |
| 2.11 | Conclusion | 67 |

En 1996, T. Ditmire et coll. ont proposé le modèle nanoplasma pour décrire l'interaction d'un agrégat de gaz rare de taille élevée (10^4 à 10^6 atomes/agrégat) avec une impulsion laser intense [Ditmire *et al.* 96]. Ce modèle permet de déterminer la dynamique de l'ionisation, de quantifier le nombre et la vitesse des électrons éjectés, ou bien encore d'estimer la vitesse d'expansion de l'agrégat. Nous avons vu dans le chapitre précédent que E. Sprin-gate et coll. ont pu reproduire à l'aide de ce modèle les variations de l'énergie maximale des ions émis en fonction des divers paramètres expérimentaux [Springate *et al.* 00]. Ces résultats semblent donc indiquer que le modèle nanoplasma décrit assez correctement la dynamique de l'interaction.

Par conséquent, nous avons choisi le modèle nanoplasma afin de décrire la dynamique de l'agrégat et la production de rayonnement X. Bien que ce modèle ait déjà été présenté par ailleurs dans diverses thèses de doctorat ([Dobosz 98, Caillaud 04, Prigent 04]), nous y avons apporté quelques modifications (pour le calcul des taux d'ionisation, de la fréquence de collisions électron-ion et de la température électronique) qui justifient une nouvelle présentation.

Dans un premier temps, ce chapitre présente les différentes hypothèses formulées par T. Ditmire et coll. pour modéliser la réponse de l'agrégat à l'impulsion laser. Puis le détail des processus pris en compte dans cette modélisation sera développé dans les sections suivantes. Enfin, nous présenterons les résultats obtenus à l'aide de ce modèle.

2.1 Présentation générale du modèle nanoplasma

2.1.1 Principe du modèle

La figure 2.1 présente le schéma de principe du modèle nanoplasma. Lorsque l'intensité du champ électrique du laser \mathbf{E}_{ext} devient suffisante, les atomes composant l'agrégat peuvent être ionisés (*a*). Sous l'action du champ laser, les charges positives et négatives se déplacent par rapport à leurs positions d'équilibre. Ce déplacement induit une polarisation \mathbf{P} qui crée elle-même un champ électrique à l'intérieur de l'agrégat qui s'oppose au champ initialement appliqué (*b*). Le champ total résultant \mathbf{E}_{int} , dans lequel baignent les atomes de l'agrégat, est alors généralement réduit par rapport au champ externe. Les premiers électrons libres, chauffés par bremsstrahlung inverse (*c*), peuvent ensuite percuter les ions ou atomes environnants. Ces collisions induisent en quelques centaines de femto-secondes un degré d'ionisation très élevé à l'intérieur de l'agrégat (*d*). Celui-ci peut alors être assimilé à un plasma dont la dimension correspond à la taille initiale de l'agrégat, soit une sphère de quelques centaines d'angströms de rayon. L'absorption de l'énergie du laser par l'intermédiaire de ces collisions produit également des électrons libres très énergétiques qui peuvent alors s'échapper de l'agrégat (*e*). L'excès de charges positives résultant entraîne une augmentation de la taille du plasma due à la répulsion électrostatique des ions. À cette pression coulombienne, s'ajoute une pression hydrodynamique qui provient

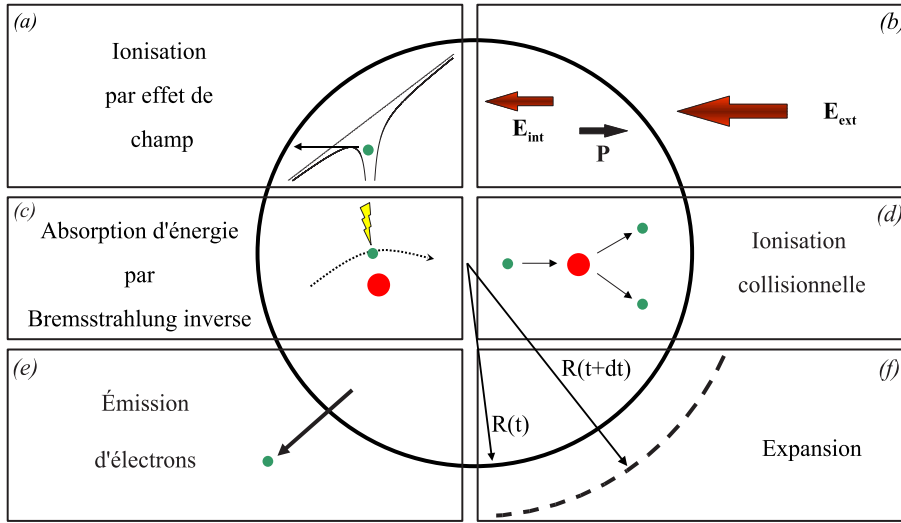


FIG. 2.1 – Schéma représentant les processus pris en compte par le modèle nanoplasma (L'agrégat est représenté par le cercle en trait plein) : l'ionisation par effet de champ (a), la polarisation et le champ à l'intérieur de l'agrégat (b), l'absorption d'énergie (c), l'ionisation collisionnelle (d), l'émission d'électrons (e), et l'expansion de l'agrégat (f).

de la conversion d'énergie thermique électronique en énergie cinétique ionique. Ces deux pressions conduisent à l'explosion finale de l'agrégat (f).

2.1.2 Hypothèses

Les processus pris en compte par le modèle nanoplasma permettent de déterminer l'évolution temporelle de l'agrégat. Pour évaluer ces processus à chaque instant, il est cependant nécessaire de formuler certaines hypothèses. Le taux d'ionisation par effet de champ nécessite la connaissance du champ à l'intérieur de l'agrégat en tout point de l'espace. Calculer les différents paramètres intervenant dans la dynamique (taux d'ionisation, taux d'émission électronique...) impose également de connaître la distribution spatio-temporelle et énergétique des électrons à chaque instant de l'évolution. D'après les simulations de dynamique moléculaire effectuées pour des agrégats composés d'environ 10^4 atomes, la densité électronique interne peut atteindre 10^{22} à 10^{23} cm^{-3} [Petrov *et al.* 05]. Compte tenu de ces valeurs élevées, il est impossible de déterminer les positions et énergies de chaque électron et certaines hypothèses sur la distribution électronique sont inévitables.

① La première hypothèse suppose que le champ électrique est uniforme à l'intérieur de l'agrégat.

② La deuxième hypothèse considère que les électrons sont uniformément répartis à l'intérieur de l'agrégat.

③ La troisième hypothèse suppose que la distribution énergétique des électrons peut être représentée à tout instant par une fonction de distribution maxwellienne.

Pour que l'**hypothèse ①** soit valide, il faut plusieurs conditions. Tout d'abord, le champ interne dépend du champ électromagnétique de l'impulsion laser. Pour que le champ interne soit uniforme, il faut que tous les atomes composant l'agrégat soient irradiés par le même champ laser. Dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique, une particule ne ressent pas les variations spatiales du champ si la longueur d'onde λ de ce champ est beaucoup plus importante que l'extension spatiale de la particule. Pour que tous les atomes d'un agrégat de rayon R subissent le même champ laser, il faut donc :

$$\lambda \gg R \quad (2.1)$$

Le champ interne dépend également de la polarisation de l'agrégat. La seconde hypothèse suppose une répartition électronique uniforme. Par conséquent, si cette hypothèse est vérifiée, alors la polarisation est identique en tout point de l'espace et le champ interne peut être considéré comme uniforme à l'intérieur de l'agrégat.

L'**hypothèse ②** est d'autant plus valable que le rayon de l'agrégat est élevé. En effet, les résultats expérimentaux indiquent que plus la taille de l'agrégat est importante, et plus les électrons restent confinés à l'intérieur de l'agrégat. Ainsi, la densité électronique interne devient très élevée. Cette forte densité induit de nombreuses collisions électron-ion et électron-électron. De plus, le mouvement d'oscillation des électrons dans le champ laser est brisé par ces collisions. La répartition électronique peut alors être considérée comme uniforme à l'intérieur de l'agrégat.

L'**hypothèse ③** dépend également de l'importance des collisions. En effet, la distribution maxwellienne des électrons suppose la thermalisation des électrons à une température T_e . Cette thermalisation est assurée si la fréquence de collisions électron-électron est suffisamment importante. Dans un plasma, cette fréquence de collisions peut être évaluée à l'aide de l'expression [NRL 04] :

$$\nu_{ee}[s^{-1}] = 2,91 \times 10^{-6} n_e T_e^{-3/2} \ln \Lambda_e \quad (2.2)$$

où n_e (en cm^{-3}) et T_e (en eV) sont respectivement la densité et la température électroniques, et $\ln \Lambda_e$ est le logarithme coulombien qui vaut $\ln \Lambda_e = 24 - \ln(n_e^{1/2}/T_e)$ pour $T_e \gtrsim 10$ eV [NRL 04]. Pour un agrégat, nous pouvons prendre comme valeurs caractéristiques $n_e = 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ et $T_e = 500$ eV, ce qui nous donne une fréquence de collisions électron-électron de l'ordre de 10^{14} s^{-1} . Compte tenu de l'évolution très rapide de l'agrégat, il n'est donc pas certain que tous les électrons aient le temps de se thermaliser à la température T_e . La troisième hypothèse du modèle peut ainsi sembler excessive. Cependant, nous avons choisi ici de conserver cette hypothèse afin de préserver la simplicité du modèle originel. La validité de cette hypothèse sera rediscutée par la suite à la lumière des résultats obtenus.

Ainsi, les hypothèses du modèle nanoplasma conduisent à un comportement spatialement homogène. Les divers paramètres gouvernant la dynamique de l'interaction ne dépendent donc que du temps. Dans les sections suivantes, nous allons maintenant détailler la description théorique des différents processus pris en compte dans le modèle.

2.2 Ionisation optique

2.2.1 Les différents mécanismes d'ionisation par effet de champ

Les atomes composant l'agrégat baignent dans un champ électrique. Or, l'interaction d'un atome avec un champ électrique \mathbf{E} peut conduire à l'éjection d'un électron. Différents processus d'ionisation interviennent selon l'intensité de ce champ. Ces processus sont présentés sur la figure 2.2 en fonction d'un éclairement croissant.

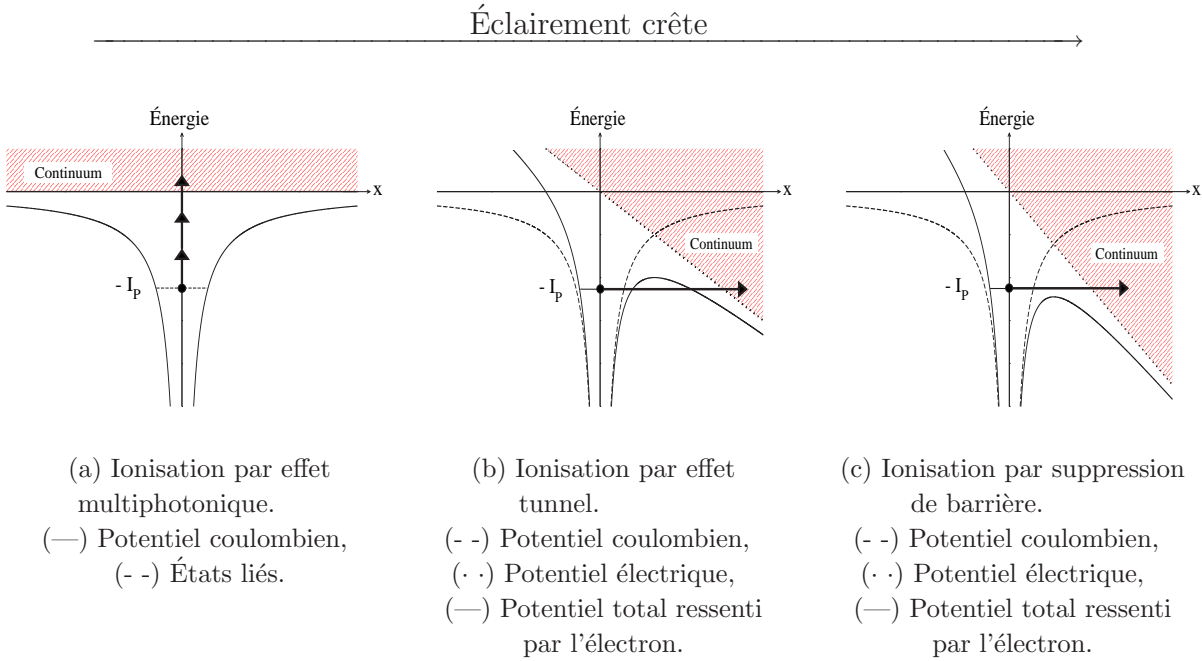


FIG. 2.2 – Schéma des différents processus d'ionisation par effet de champ.

Si l'éclairement est faible, l'ionisation se fera préférentiellement par effet multiphotonique. L'ionisation multiphotonique correspond à l'absorption de plusieurs photons par l'électron lié. Quand l'énergie $N\hbar\omega$ des N photons absorbés est supérieure au potentiel d'ionisation I_P de l'électron, celui-ci est ionisé et emporte l'énergie en excès (fig. 2.2(a)).

Lorsque l'éclairement augmente, le champ électrique devient du même ordre de grandeur que le champ coulombien liant l'électron à son noyau parent. Le potentiel associé au champ ressenti par l'électron est représenté sur la figure 2.2(b). En présence du champ extérieur, la barrière de potentiel s'abaisse et l'électron d'énergie $-I_P$ peut alors franchir cette barrière par effet tunnel. Lorsque le champ électrique est un champ oscillant, la barrière de potentiel s'abaisse et monte périodiquement. Cependant, si le temps de traversée de la barrière est court par rapport à la période de ce champ, l'électron est émis avant que le champ n'ait varié de manière appréciable. Ceci correspond à l'approximation quasi-statique, pour laquelle l'ionisation peut être représentée par un effet tunnel. Si au contraire, le temps de traversée est long par rapport à la période du champ, l'ionisation se fera préférentiellement par effet multiphotonique.

Lorsque l'intensité devient encore plus importante, le champ électrique peut entièrement compenser la barrière coulombienne (fig. 2.2(c)). L'électron est alors libéré dans le continuum. Ce processus est appelé ionisation par suppression de barrière (ionisation BSI pour "*Barrier Suppression Ionization*").

L'importance de ces différents régimes d'ionisation en fonction de l'éclairement laser peut être évaluée. Le paramètre adiabatique de Keldysh [Keldysh 65] définit la limite entre l'ionisation multiphotonique et l'ionisation par effet tunnel. Ce paramètre vaut :

$$\Gamma = \frac{\omega \sqrt{2m_e I_P}}{E e} \quad (2.3)$$

où ω et E sont respectivement la pulsation et l'amplitude du champ électrique. Le régime multiphotonique est favorisé pour $\Gamma \gg 1$, soit pour un champ faible et une fréquence élevée. Lorsque le paramètre de Keldysh satisfait $\Gamma \ll 1$, l'ionisation peut être décrite par effet tunnel, ce qui correspond à un fort éclairement laser et une fréquence optique faible.

La limite où le champ devient suffisamment élevé pour compenser la barrière coulombienne peut être évaluée classiquement. Si l'on considère un potentiel unidimensionnel, le potentiel total ressenti par l'électron, somme du potentiel coulombien et du potentiel électrique, est de la forme :

$$V(x) = \frac{-Z}{4\pi\epsilon_0|x|} - Ex \quad (2.4)$$

où Z est la charge de l'atome (ou ion) parent. À partir de cette expression, on peut donc déterminer la valeur x_{max} où le potentiel sera maximal. Cette valeur vaut $x_{max} = (Z/(4\pi\epsilon_0 E))^{1/2}$ et le potentiel en ce point est $V(x_{max}) = -2(ZE/(4\pi\epsilon_0))^{1/2}$. Ceci nous permet de définir un champ seuil E_{seuil} , champ minimum pour que l'électron puisse être libéré du champ coulombien. Ce champ est tel que le potentiel en x_{max} soit égal à l'énergie d'ionisation $-I_P$ de l'électron, soit :

$$E_{seuil} = \frac{4\pi\epsilon_0 I_P^2}{4Z} \quad (2.5)$$

Ainsi, si le champ est inférieur à cette valeur seuil, l'ionisation se fait par effet tunnel et s'il est supérieur ou égal, l'électron est libéré par suppression de barrière.

Dans le cadre de notre étude, nous nous intéressons à l'interaction d'agrégats avec un champ laser intense. Pour un atome d'argon, dont le potentiel d'ionisation I_P vaut 15,1 eV, irradié par un champ laser d'amplitude $E=5 \times 10^{10}$ V.m⁻¹ (soit un éclairement crête de $3,3 \times 10^{14}$ W.cm⁻²), et de longueur d'onde $\lambda=800$ nm, le paramètre de Keldysh vaut 0,6. Ces conditions d'éclairement sont typiques de celles utilisées dans les expériences. Par conséquent, nous pouvons négliger l'ionisation multiphotonique devant l'ionisation par effet tunnel. Mais le champ électrique peut également atteindre des valeurs suffisantes pour compenser la barrière coulombienne. L'ionisation par suppression de barrière doit donc également être prise en compte.

2.2.2 Calcul du taux d'ionisation optique

2.2.2.1 Taux d'ionisation par effet tunnel

Pour quantifier le nombre d'atomes de l'agrégat ionisés par effet de champ au cours du temps, nous pouvons utiliser l'expression développée par M. Ammosov, N. Delone et V. Krainov [Ammosov *et al.* 86]. Cette formule, communément appelée taux ADK, permet de calculer le taux d'ionisation par effet tunnel d'un atome (ou d'un ion) complexe plongé dans un champ statique polarisé linéairement. Pour un électron dont le potentiel d'ionisation vaut I_P et un champ constant d'amplitude E , le taux tunnel vaut :

$$W_{tun}[s^{-1}] = I_P \left(\frac{3E}{\pi F_0} \right)^{1/2} \left(\frac{2F_0}{E} \right)^{2n^* - |m| - 1} |C_{n^*l^*}|^2 f(l, m) \exp \left[\frac{-2F_0}{3E} \right] \quad (2.6)$$

où $F_0 = (2I_P)^{3/2}$ est le champ intra-atomique en unité atomique. Les coefficients $|C_{n^*l^*}|^2$ et $f(l, m)$ sont donnés par les expressions :

$$|C_{n^*l^*}|^2 = \frac{2^{2n^*}}{n^* \Gamma(n^* + l^* + 1) \Gamma(n^* - l^*)} \quad (2.7)$$

et

$$f(l, m) = \frac{(2l + 1)(l + |m|)!}{2^{|m|} (|m|)! (l - |m|)!} \quad (2.8)$$

Ces expressions dépendent des nombres quantiques n , l , m et des nombres quantiques effectifs n^* , l^* définis par :

$$n^* = \frac{Z}{(2I_P)^{1/2}} \quad (2.9)$$

$$\text{et } l^* = \begin{cases} 0 & \text{si } l \ll n, \\ n^* - 1 & \text{sinon.} \end{cases} \quad (2.10)$$

Les formules (2.6) et (2.7) sont valables pour :

$$\begin{cases} n^* \gg 1 & (2.11a) \\ E \ll E_{seuil} & (2.11b) \\ l \text{ quelconque} \end{cases}$$

L'équation (2.11b) indique que l'expression du taux ADK est valable tant que le champ reste suffisamment faible pour qu'il n'y ait pas d'ionisation par suppression de barrière. L'équation (2.11a) nous permet de simplifier l'expression du coefficient $|C_{n^*l^*}|^2$ en utilisant la formule asymptotique de Stirling pour la fonction $\Gamma(z)$. On obtient alors l'expression :

$$|C_{n^*l^*}|^2 = \frac{1}{2\pi n^*} \left(\frac{4e^2}{n^{*2} - l^{*2}} \right)^{n^*} \left(\frac{n^* - l^*}{n^* + l^*} \right)^{l^* + 1/2} \quad (2.12)$$

M. Ammosov et coll. ont montré que cette expression et l'équation (2.6) peuvent être utilisées même pour $n^* \sim 1$ [Ammosov *et al.* 86].

D'un point de vue pratique, nous avons donc calculé le taux d'ionisation par effet tunnel des atomes de l'agrégat en utilisant l'expression (2.6). Le champ \mathbf{E} pris en compte dans l'équation est le champ interne de l'agrégat \mathbf{E}_{int} . Dans la description de la structure des atomes (ou ions) composant l'agrégat, nous ne prenons pas en compte la dégénérescence des états nl . Par conséquent, l'expression (2.6) est moyennée sur les différentes valeurs du nombre quantique magnétique m possibles :

Pour un état s ($l = 0$), on aura $f(l, m) = 1$ d'où

$$W_{\text{tun}}^{l=0}[s^{-1}] = I_P \left(\frac{3E_{\text{int}}}{\pi F_0} \right)^{1/2} \left(\frac{2F_0}{E_{\text{int}}} \right)^{2n^*-1} |C_{n^*l^*}|^2 \exp \left[\frac{-2F_0}{3E_{\text{int}}} \right] \quad (2.13)$$

Pour un état p ($l = 1$), on aura $f(l, m) = 3$ d'où

$$W_{\text{tun}}^{l=1}[s^{-1}] = W_{\text{tun}}^{l=0} \left(1 + \frac{E_{\text{int}}}{F_0} \right) \quad (2.14)$$

et pour un état d ($l = 2$) on obtient

$$W_{\text{tun}}^{l=2}[s^{-1}] = W_{\text{tun}}^{l=0} \left[1 + 3 \frac{E_{\text{int}}}{F_0} + \frac{3}{2} \left(\frac{E_{\text{int}}}{F_0} \right)^2 \right] \quad (2.15)$$

Le coefficient $|C_{n^*l^*}|^2$ est calculé à l'aide de l'expression (2.12), où n^* est défini par l'équation (2.9). Pour l^* , nous avons choisi de préciser les conditions de l'équation (2.10) telles que :

$$l^* = \begin{cases} 0 & \text{si } l \leq n - 2, \\ n^* - 1 & \text{sinon.} \end{cases} \quad (2.16)$$

Les expressions (2.13), (2.14) et (2.15) permettent de calculer le taux d'ionisation par effet tunnel d'un atome (ou d'un ion) complexe irradié par un champ polarisé linéairement. Ces expressions doivent être divisées par un facteur $\left(\frac{3E_{\text{int}}}{\pi F_0} \right)^{1/2}$ pour obtenir le taux d'ionisation par effet tunnel dans le cas d'une polarisation circulaire.

2.2.2.2 Taux d'ionisation par suppression de barrière

Nous avons vu au paragraphe 2.2.1 que le champ peut être suffisamment intense pour entièrement compenser la barrière coulombienne liant l'électron à son noyau parent. Cependant, contrairement à l'ionisation tunnel, il est impossible de déterminer un taux d'ionisation par suppression de barrière. En effet, ce processus n'est pas un phénomène probabiliste mais correspond à un effet seuil.

Compte tenu du fait que l'ionisation BSI correspond à un cas limite de l'ionisation tunnel, X. Tong et C. Lin ont toutefois proposé une expression qui permet de déterminer le taux d'ionisation lorsque le champ électrique devient du même ordre de grandeur que le champ coulombien [Tong *et al.* 05]. Cette expression est une extension du taux ADK présenté au paragraphe précédent. Le taux d'ionisation ADK est valable pour $E \ll E_{\text{seuil}}$

(cf. éq. (2.11b)). Lorsque l'on a $E \lesssim E_{seuil}$, X. Tong et coll. propose une correction au taux ADK. Pour notre étude, nous avons donc adapté le taux d'ionisation par effet tunnel calculé à l'aide des expressions (2.13), (2.14) et (2.15) en incluant la modification de X. Tong telle que :

$$W_{opt}[s^{-1}] = W_{tun} \exp \left[-\alpha \frac{Z^2}{I_P} \frac{E_{int}}{(2I_P)^{3/2}} \right] \quad (2.17)$$

où α est un paramètre déterminé empiriquement. X. Tong et C. Lin proposent :

$$\alpha = \begin{cases} 6 & \text{pour un électron ionisé à partir d'un état } s \\ 9 & \text{pour un électron ionisé à partir de tout autre état.} \end{cases} \quad (2.18)$$

$$(2.19)$$

Ainsi, dans le cadre de notre modèle nanoplasma, l'ionisation par effet de champ est calculée à l'aide de l'expression (2.17) pour chaque atome (ou ion) de charge Z plongé dans le champ interne de l'agrégat. Ce processus est responsable du tout début de l'ionisation de l'agrégat.

2.3 Champ électrique interne

2.3.1 Le champ laser

Afin de calculer l'ionisation par effet de champ, il est donc nécessaire de connaître le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat. Comme nous l'avons vu au paragraphe 2.1.1, le champ interne dépend du champ laser. Celui-ci, peut se mettre sous la forme $\mathbf{E}_{ext}(t) = E_0 f(t) \sin(\omega t) \mathbf{e}_z$, où E_0 est l'amplitude maximum du champ, $f(t)$ correspond à l'enveloppe du champ lentement variable, et \mathbf{e}_z est la direction de polarisation du champ. En se plaçant dans le cadre de l'approximation quasi-statique et en considérant une enveloppe gaussienne, le champ peut être mis sous la forme :

$$\mathbf{E}_{ext}(t) = E_0 \exp \left(-2 \ln 2 \frac{t^2}{\tau^2} \right) \mathbf{e}_z \quad (2.20)$$

où τ est la durée de l'impulsion à mi-hauteur (FWHM). La relation entre l'intensité laser et le champ est donnée par l'expression :

$$I(t) = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c E^2(t) \quad (2.21)$$

L'amplitude maximale du champ peut donc être reliée à l'éclairement crête défini au chapitre 1 par :

$$E_0 = \sqrt{\frac{2I_0}{\varepsilon_0 c}} \quad (2.22)$$

Il est également important de noter que le champ magnétique de l'impulsion laser est négligé. Ceci est valable si l'intensité laser est inférieure à 10^{20} W.cm⁻².

2.3.2 Le champ à l'intérieur de l'agrégat

Le champ interne ressenti par les particules de l'agrégat correspond à la combinaison du champ dépolarisant et du champ externe. Il est déterminé en considérant l'agrégat comme une sphère diélectrique placée dans un champ statique, monochromatique et uniforme [Landau *et al.* 69] (p. 63) :

$$\mathbf{E}_{\text{int}}(t) = \frac{3}{|2 + \varepsilon|} \mathbf{E}_{\text{ext}}(t) \quad (2.23)$$

où ε est la fonction diélectrique du milieu, calculée suivant le modèle de Drude pour un milieu métallique :

$$\varepsilon = 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega + i\nu_{ei})} \quad (2.24)$$

Le terme d'amortissement ν_{ei} correspond à la fréquence de collisions électron-ion, ω est la pulsation laser, et ω_{pe} est la fréquence plasma électronique déterminée par :

$$\omega_{pe} = \sqrt{\frac{n_e e^2}{\varepsilon_0 m_e}} \quad (2.25)$$

Plusieurs remarques peuvent être effectuées concernant le choix de la réponse du nanoplasma au champ laser :

- Tout d'abord, comme nous l'avons vu au chapitre 1 avec l'équation (1.6), la largeur spectrale et la durée de l'impulsion laser sont intrinsèquement reliées. Par exemple, une impulsion laser de 60 fs à 800 nm possède une largeur spectrale de 16 nm (dûe à la limite de Fourier, éq. (1.6)) Ainsi, le champ externe appliqué à l'agrégat n'est pas strictement monochromatique. En toute rigueur, il faut donc prendre en compte les différentes composantes spectrales de l'impulsion pour calculer le champ interne :

$$\mathbf{E}_{\text{int}}(t) = \Re \left\{ \int_{\omega - \Delta\omega}^{\omega + \Delta\omega} d\omega' e^{i\omega' t} \mathbf{E}_{\text{ext}}(\omega') \varepsilon(\omega') \right\} \quad (2.26)$$

où $\varepsilon(\omega')$ est la fonction diélectrique associée à la composante spectrale ω' et $\Delta\omega$ est la largeur spectrale de l'impulsion. Nous avons cependant vérifié que l'approximation monochromatique peut être utilisée pour des impulsions aussi courtes que 50 fs.

- Bien que le champ électrique soit calculé pour une sphère diélectrique, la fonction diélectrique de Drude utilisée (éq. (2.24)) est valable pour un milieu métallique. En effet, compte tenu de la présence d'électrons libres au sein de l'agrégat, une description métallique de la réponse de l'agrégat semble plus appropriée. Il est à noter que nous avons effectué des tests utilisant une permittivité ε plus complexe que celle de l'expression (2.24) [Bychenkov 98]. Ces résultats n'indiquent pas de modification majeure pour le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat.

2.3.3 Mise en évidence d'une résonance

L'équation (2.23) fait apparaître la possibilité d'une résonance pour la valeur particulière $\varepsilon = -2$. D'après l'équation (2.24), cette résonance intervient lorsque $\omega = \omega_{pe}/\sqrt{3}$. Ceci correspond à la fréquence de Mie : Le champ laser induit un déplacement du nuage d'électrons libres par rapport aux ions. La force de rappel électrostatique entre les électrons libres et les ions de l'agrégat conduit à une oscillation collective du nuage électronique. Dans le cas d'un milieu aux dimensions finies, la pulsation propre associée à ce mouvement s'appelle pulsation de Mie (ou plasmon de Mie), $\omega_{Mie} = \omega_{pe}/\sqrt{3}$. Ainsi, l'excitation de cette pulsation par l'impulsion laser lorsque $\omega = \omega_{Mie}$ conduit à une amplification du champ à l'intérieur de l'agrégat par rapport au champ externe, ce qui permet une forte absorption d'énergie dans le nanoplasma.

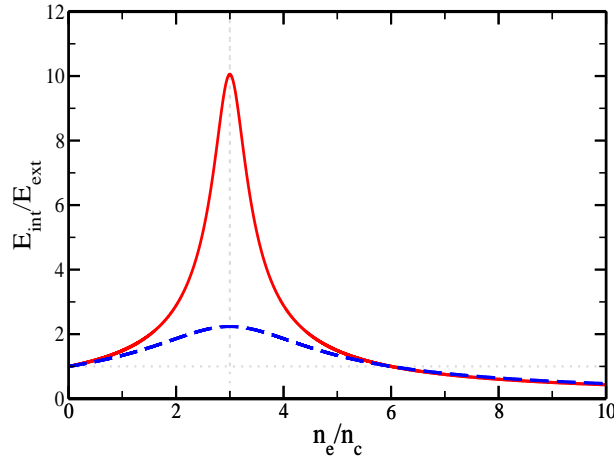


FIG. 2.3 – Amplification ou réduction du champ interne par rapport au champ laser en fonction de la densité électronique normalisée à la densité critique, pour une fréquence de collision électron-ion telle que $\nu_{ei}/\omega = 0,1$ (—), et telle que $\nu_{ei}/\omega = 0,5$ (- -).

La figure 2.3 présente le rapport du champ interne au champ externe en fonction du rapport de la densité électronique à la densité critique n_c . En effet, la condition de résonance $\omega = \omega_{pe}/\sqrt{3}$ peut être ramenée à une condition sur la densité électronique n_e :

$$\omega = \frac{\omega_{pe}}{\sqrt{3}} \iff n_e = 3n_c = 3 \frac{\varepsilon_0 m_e \omega^2}{e^2} \quad (2.27)$$

Ainsi, selon ce modèle, une absorption résonante apparaît lorsque la densité électronique atteint la valeur de $3n_c$, le champ interne est alors fortement amplifié. De plus, il apparaît sur la figure 2.3 que le champ à l'intérieur de l'agrégat est amplifié lorsque la densité électronique est inférieure à six fois la densité critique et réduit pour une densité électronique supérieure. En effet, le champ externe est alors écranté et l'onde électromagnétique ne peut plus se propager dans le milieu.

D'autre part, l'amplitude de la résonance varie avec la fréquence de collision. Le champ

interne à la résonance vaut :

$$\mathbf{E}_{\text{int}}(n_e = 3n_c) = \sqrt{1 + \left(\frac{\omega}{\nu_{ei}}\right)^2} \mathbf{E}_{\text{ext}} \quad (2.28)$$

De ce fait, la fréquence de collision électron-ion agit comme un terme d'amortissement : l'amplification du champ électrique est d'autant plus élevée que la fréquence de collision diminue.

2.4 Fréquence de collisions électron-ion

2.4.1 De la nécessité d'un calcul adapté à l'interaction laser-agrégat

La fréquence de collisions électron-ion ν_{ei} est ici calculée différemment de T. Ditmire et coll.. En effet, l'équipe de T. Ditmire utilise les expressions de S. Braginskii [Braginskii 65] pour des champs de faible intensité et de V. Silin [Silin 65] pour des champs forts. T. Ditmire et coll. déterminent numériquement la fréquence de collision électron-ion dans le cas intermédiaire et introduisent une fréquence maximum pour limiter les valeurs obtenues. Les expressions de S. Braginskii et V. Silin dépendent du logarithme coulombien $\ln \Lambda$ [Johnston *et al.* 73]. Ce logarithme est défini tel que :

$$\ln \Lambda = \ln \frac{b_{max}}{b_{min}} \quad (2.29)$$

où b est le paramètre d'impact classique. b_{max} est donc la distance maximale d'approche pour laquelle l'électron incident interagit avec l'ion cible. b_{max} est choisit tel que $b_{max} = \lambda_D$, où $\lambda_D^2 = \varepsilon_0 k_B T_e / (e^2 n_e)$ est la longueur de Debye. Cette longueur est définie telle que, au delà de λ_D , l'ion est écranté par la densité électronique environnante, l'électron incident ne ressent alors plus l'influence de l'ion cible. b_{min} est la distance minimale d'approche possible pour l'électron incident. Cette valeur est généralement déterminée classiquement telle que $b_{min} = b_{\perp} = Ze^2 / (4\pi \varepsilon_0 k_B T_e)$ où b_{\perp} est le paramètre d'impact correspondant à une déflexion de 90° . Des considérations quantiques peuvent également être ajoutées ad hoc en imposant une distance minimale d'approche égale à la longueur d'onde de De Broglie $\lambda_B = \hbar / \sqrt{m_e k_B T_e}$. Le paramètre d'impact b_{min} est alors défini tel que $b_{min} = \max(b_{\perp}; \lambda_B)$. Le logarithme coulombien prend finalement la forme :

$$\ln \Lambda = \min \left[\ln \left(\alpha \frac{T_e^{3/2}}{n_e^{1/2}} \right); \ln \left(\beta \frac{T_e}{n_e^{1/2}} \right) \right] \quad (2.30)$$

où α et β sont des coefficients.

Cette expression ne peut cependant pas être utilisée pour déterminer l'évolution de la fréquence de collision électron-ion au cours de l'interaction laser-agrégat. En effet, les conditions de densité et de température électroniques à l'intérieur de l'agregat sont très

variables au cours du temps. Au tout début de l'interaction, le nombre d'électrons libres au sein de l'agrégat augmente rapidement, dû à l'ionisation par effet de champ et aux collisions électron-ion. En revanche, le chauffage du gaz d'électrons n'est pas encore efficace, la température électronique reste alors faible. En physique des plasmas, le paramètre Γ_c permet de déterminer si un plasma est faiblement couplé ou non. En d'autres termes, ce paramètre permet d'évaluer la pertinence d'un traitement binaire des collisions :

$$\Gamma_c = \frac{e^3 \sqrt{n_e}}{(\varepsilon_0 k_B T_e)^{3/2}} \quad (2.31)$$

Ainsi, au début de l'interaction, lorsque la densité est élevée et la température faible, Γ_c est supérieur à 1, ce qui indique un plasma couplé. Dans ces conditions, le calcul du logarithme coulombien (qui dérive de la représentation à deux corps d'une collision) n'est pas adapté; celui-ci devient négatif (alors que d'après la définition (2.29), on a nécessairement $b_{max} > b_{min}$ soit $\ln \Lambda > 0$).

2.4.2 À partir du taux de chauffage calculé par dynamique moléculaire

Nous avons par conséquent été amenés à déterminer une expression de la fréquence de collisions électron-ion valable quelques soient les conditions rencontrées au cours de l'interaction. Pour cela, nous avons utilisé les travaux de N. David et coll. [David *et al.* 04] : à l'aide de simulations de dynamique moléculaire, le taux de chauffage par bremsstrahlung inverse dans un plasma est calculé en fonction de la densité et de l'éclairement laser pour une polarisation linéaire du champ laser. Cette méthode permet d'éviter certaines hypothèses inhérentes à l'emploi d'autres approches, comme par exemple celles qui utilisent le logarithme coulombien. De plus, les calculs sont effectués pour différentes conditions de densité, de température et de champ électrique, ce qui assure un large domaine de validité.

L'approche employée par N. David et coll. consiste à séparer la force appliquée à une particule i en deux composantes : un terme à longue portée correspondant à l'influence de la majorité des particules, et un terme de courte portée résultant de l'interaction avec les plus proches voisins de la particule i en question. Il est à noter que l'approche de N. David et coll. s'affranchit de facto du traitement binaire des collisions. Le terme de longue portée est calculé à l'aide de l'équation de Poisson. Cette équation permet d'obtenir le champ électrostatique associé aux particules qui n'influencent que faiblement le mouvement de la particule i . Le terme de courte portée est calculé en intégrant directement la force coulombienne associée aux particules proches. L'influence du champ électrique du laser est également pris en compte. L'équation non-relativiste du mouvement permet enfin d'obtenir la position et la vitesse de chaque particule. Le chauffage est alors déterminé en calculant l'augmentation de l'énergie moyenne du plasma au cours du temps, et donc le taux de variation de la température électronique.

Finalement, N. David et coll. obtiennent une expression analytique qui reproduit les résultats obtenus avec les simulations de dynamique moléculaire. Il est à noter que cette

expression corrige celle de A. Polishchuk et J. Meyer-Ter-Vehn obtenue en considérant des collisions binaires dans un champ électrique [Polishchuk *et al.* 94] :

$$\frac{\partial k_B T_e^{David}}{\partial t} = \frac{8e^4 Z^2 v_{osc}^2}{3m_e (4\pi\epsilon_0)^2 (v_{osc}^2 + v_{th}^2)^{3/2}} \alpha(n_i) \ln \Lambda_1 \quad (2.32)$$

où v_{th} et v_{osc} sont respectivement la vitesse thermique électronique et la vitesse d'oscillation maximale dans le champ laser telles que :

$$v_{th} = \left(\frac{k_B T_e}{m_e} \right)^{1/2} \quad (2.33)$$

et

$$v_{osc} = \frac{e E_{int}}{m_e \omega} \quad (2.34)$$

Le logarithme coulombien modifié prend la forme :

$$\ln \Lambda_1 = \ln \left[C_1 \xi + C_2 \xi^2 + C_3 \xi^3 + \exp \left(\frac{1}{3} \sqrt{\pi/2} \right) \right] \times \ln \left[\exp(1) + \frac{k_B T_e}{\hbar \omega} \right] \quad (2.35)$$

avec $\xi = m_e v_{osc}^2 / (k_B T_e)$. Les coefficients C_i sont donnés dans le tableau 2.1.

La fonction $\alpha(n_i)$ représente la dépendance non-linéaire du taux de chauffage en fonction de la densité ionique n_i . N. David et coll. propose une expression de la forme :

$$\alpha(n_i)[cm^{-3}] = C_4 n_i \left(1 - \frac{n_i}{C_5} \right) \quad (2.36)$$

N. David et coll. limitent leurs calculs à une densité ionique de $8 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$. Or, dans le cadre de l'interaction laser-agrégat, la densité ionique peut atteindre des valeurs plus élevées (quelques 10^{22} cm^{-3}). L'expression (2.36) n'est alors plus valide (lorsque $n_i > C_5$, $\alpha(n_i)$ devient négatif). Nous avons donc extrapolé l'expression de N. David et coll. pour des densités ioniques plus élevées. La figure 2.4 présente les valeurs de $\alpha(n_i)$ obtenues à l'aide des résultats de dynamique moléculaire, l'expression analytique obtenue par interpolation des données par N. David et coll., et l'expression extrapolée pour de plus fortes densités ioniques. L'expression (2.36) est utilisée lorsque la densité ionique n_i est inférieure à $6 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$. Pour des densités plus importantes, l'expression obtenue par extrapolation est :

$$\alpha(n_i)[cm^{-3}] = C_6 \ln(n_i) - C_7 \quad (2.37)$$

| Coefficient | C_1 | C_2 | C_3 | C_4 | C_5 | C_6 | C_7 |
|-------------|-------|--------|-------|-------|----------------------|----------------------|----------------------|
| Valeur | 1,042 | -0,233 | 0,139 | 1,089 | $2,21 \cdot 10^{21}$ | $2,78 \cdot 10^{20}$ | $1,28 \cdot 10^{22}$ |

TAB. 2.1 – Valeur des coefficients C_i pour le calcul du logarithme coulombien modifié (ég. (2.35)), de l'expression $\alpha(n_i)$ obtenue par David (ég. (2.36)) et coll. [David et al. 04] et de l'expression extrapolée (2.37). Ces coefficients sont valides pour une densité ionique exprimée en cm^{-3} .

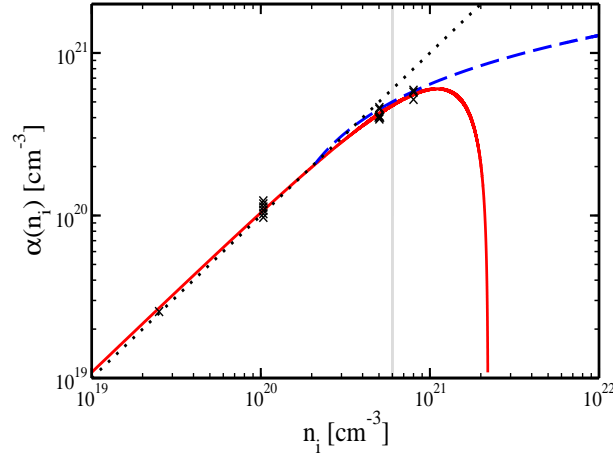


FIG. 2.4 – Évolution de $\alpha(n_i)$ en fonction de la densité ionique. (×) Valeurs déterminées par les calculs de dynamique moléculaire, (—) expression analytique (2.36) obtenue par N. David et coll. [David et al. 04], (- -) expression (2.37) obtenue par extrapolation. Le comportement linéaire (· · ·) est représenté pour indication. Le trait vertical indique la densité seuil à partir de laquelle l'expression (2.37) est utilisée.

L'expression donnée par N. David et coll. est dérivée des résultats obtenus par A. Polishchuk et coll.. Cette expression est valide pour un champ d'intensité quelconque et pour $\hbar\omega \ll k_B T_e$. Cependant, dans le cadre de l'interaction laser-agrégat, cette condition n'est pas satisfaite au tout début de l'interaction. Dans ce cas, pour déterminer la fréquence de collisions électron-ion, nous avons utilisé l'expression obtenue par A. Polishchuk et coll. [Polishchuk et al. 94] :

$$\frac{\partial k_B T_e^{Polish.}}{\partial t} = \frac{8e^4 Z^2}{3m_e (4\pi\epsilon_0)^2 v_{osc}} n_i \ln \Lambda_2 \quad (2.38)$$

où

$$\ln \Lambda_2 = \frac{1}{4} \left[\ln \frac{m_e v_{osc}^2}{\hbar\omega} \right]^2 \quad (2.39)$$

Il est important de remarquer que, suivant A. Polishchuk et coll., cette expression n'est valide que lorsque $m_e v_{osc}^2 \gg \hbar\omega$.

Il faut également noter que ces expressions d'absorption d'énergie par bremsstrahlung inverse ne sont pas utilisées pour déterminer la température électronique du nanoplasma, mais uniquement pour déterminer la fréquence de collision électron-ion. En effet, nous allons voir par la suite que ce traitement est incomplet car il ne permet pas de prendre en compte les dimensions finies du plasma formé par l'interaction laser-agrégat. Pour déterminer le taux de chauffage dans l'agréat, nous avons donc préféré utiliser une expression plus adaptée ; celle-ci sera présentée au paragraphe 2.8.

2.4.3 Fréquence de collisions pour l'interaction laser-agrégat

Le taux de chauffage par bremsstrahlung inverse est intrinsèquement relié à la fréquence de collisions électron-ion. Suivant P. Mulser et coll. [Mulser *et al.* 00], la variation de quantité de mouvement par unité de temps d'un électron lors d'une collision s'écrit :

$$\dot{\mathbf{p}}(t) = \nu_{ei}(t)\mathbf{p}(t) \quad (2.40)$$

En considérant une distribution maxwellienne isotrope, l'énergie absorbée par un électron, moyennée sur un cycle optique, vaut alors :

$$\frac{\partial E}{\partial t} = m_e \overline{\nu_{ei} v_{osc}^2(t)} = m_e \overline{\nu_{ei}} \overline{v_{osc}^2(t)} \quad (2.41)$$

où l'approximation effectuée sur les valeurs moyennes permet de définir la fréquence de collisions électron-ion moyennée sur un cycle optique. (Par la suite, cette fréquence est simplement désignée par l'expression ν_{ei}). La vitesse d'oscillation d'un électron dans le champ laser s'écrit :

$$v_{osc}(t) = \frac{eE_{int}}{m_e\omega} |\cos \omega t| \quad (2.42)$$

En moyennant cette vitesse sur un cycle optique, sachant que l'énergie absorbée par un électron est reliée à la température selon $E = \frac{3}{2}k_B T_e$, on obtient la relation entre le taux de chauffage et la fréquence de collisions électron-ion :

$$\frac{\partial k_B T_e}{\partial t} = \frac{4}{3} \nu_{ei} U_P \quad (2.43)$$

où $U_P = \frac{e^2 E_{int}^2}{4m_e \omega^2}$ est l'énergie moyenne acquise par un électron sur un cycle optique.

Par conséquent, à partir du taux de chauffage obtenu par N. David et coll. (valide pour une intensité quelconque), nous en déduisons cette expression pour la fréquence de collision :

$$\nu_{ei}^{David} = \frac{8e^4 Z^2}{m_e^2 (4\pi\epsilon_0)^2} \frac{\alpha(n_i)}{(v_{osc}^2 + v_{th}^2)^{3/2}} \ln \Lambda_1 \quad (2.44)$$

où $v_{th}^2 = k_B T_e / m_e$. Cette expression est valide pour $\hbar\omega \ll k_B T_e$. Pour $\hbar\omega > k_B T_e$, nous utilisons l'expression (2.38) obtenue par A. Polishchuk et coll. pour le taux de chauffage. En utilisant la même relation (2.43), on obtient finalement l'expression de la fréquence de collisions électron-ion pour $\hbar\omega > k_B T_e$:

$$\nu_{ei}^{Polish.} = \frac{8e^4 Z^2}{m_e^2 (4\pi\epsilon_0)^2} \frac{n_i}{v_{osc}^3} \ln \Lambda_2 \quad (2.45)$$

Il faut cependant corriger les expressions (2.44) et (2.45) afin de prendre en compte la dimension finie de l'agregat. En suivant F. Megi et coll. [Megi *et al.* 03], nous avons donc introduit un terme supplémentaire pour le calcul de la fréquence de collision électron-ion :

$$\nu_s = \frac{v}{R} \quad (2.46)$$

où $v = \sqrt{v_{th}^2 + v_{osc}^2}$ et R est le rayon de l'agrégat. Ce terme, appelé fréquence de collision électron-surface, permet de limiter les effets de la résonance mise en évidence lorsque $n_e = 3n_c$. En effet, comme nous l'avons vu au paragraphe 2.3.3, le champ interne et donc le taux de chauffage peuvent être amplifiés de manière significative lors de cette résonance. Or, en première approximation (en négligeant le logarithme coulombien lentement variable), la fréquence de collisions électron-ion (éq. (2.44)) est inversement proportionnelle au cube de la vitesse électronique. À la résonance, le champ et la température élevés induisent un important accroissement de la vitesse électronique, la fréquence de collision est donc incidemment réduite. Étant donné que cette fréquence agit comme un terme d'amortissement, la résonance est d'autant plus importante. Cette succession d'évènements peut alors conduire à des résultats non physiques.

Le terme introduit par F. Megi et coll. traduit la réflexion des électrons sur la surface de l'agrégat. Ce processus, qui présente une forte analogie avec le phénomène de physique nucléaire de dissipation sur une paroi mobile [Yannouleas 85], a été mis en évidence pour des agrégats métalliques dans le régime de Mie [Yannouleas *et al.* 92]. Il correspond à la perte de cohérence du plasmon de Mie (atténuation de Landau). La figure 2.5 présente l'évolution de la fréquence de collision électron-ion, du champ interne et du champ externe pour un cas typique de l'interaction laser-agrégat [Megi *et al.* 03]. Lorsque les collisions électron-surface ne sont pas prises en compte, la fréquence de collision électron-ion est fortement réduite à la résonance, et le champ interne atteint une valeur très élevée. La prise en compte des collisions de surface permet de compenser la réduction de la fréquence de collision, la résonance est alors amortie et le champ est restreint à une valeur plausible.

En pratique, la fréquence de collisions électron-ion est donc calculée selon :

$$\nu_{ei} = \frac{8e^4 \langle Z \rangle^2}{m_e^2 (4\pi\epsilon_0)^2} \times \begin{cases} \frac{\alpha(n_i)}{(v_{osc}^2 + v_{th}^2)^{3/2}} \ln \Lambda_1 + \frac{(v_{th}^2 + v_{osc}^2)^{1/2}}{R} & \text{pour } \hbar\omega \ll k_B T_e \\ \frac{n_i}{v_{osc}^3} \ln \Lambda_2 + \frac{(v_{th}^2 + v_{osc}^2)^{1/2}}{R} & \text{pour } k_B T_e \ll \hbar\omega \ll m_e v_{osc}^2 \end{cases} \quad (2.47)$$

avec v_{th} la vitesse liée à l'énergie thermique (éq. (2.33)), v_{osc} la vitesse pondéromotrice électronique (éq. (2.34)). La fonction $\alpha(n_i)$ s'exprime selon :

$$\begin{cases} \alpha(n_i) [\text{cm}^{-3}] = C_4 n_i (1 - n_i / C_5) & \text{pour } n_i \leq 6.10^{20} \text{ cm}^{-3} \\ \alpha(n_i) [\text{cm}^{-3}] = C_6 \ln(n_i) - C_7 & \text{pour } n_i > 6.10^{20} \text{ cm}^{-3} \end{cases} \quad (2.48)$$

et les logarithmes coulombiens sont donnés par :

$$\begin{cases} \ln \Lambda_1 = \ln \left[C_1 \xi + C_2 \xi^2 + C_3 \xi^3 + \exp \left(\frac{1}{3} \sqrt{\pi/2} \right) \right] \times \ln \left[\exp(1) + \frac{k_B T_e}{\hbar\omega} \right] \\ \ln \Lambda_2 = \frac{1}{4} \left[\ln \frac{m_e v_{osc}^2}{\hbar\omega} \right]^2 \end{cases} \quad (2.49)$$

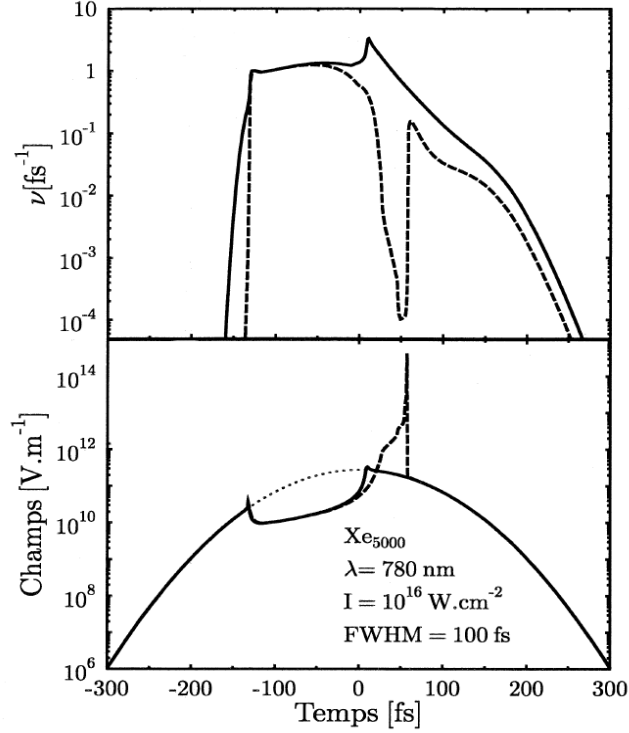


FIG. 2.5 – *Panneau supérieur* : Évolution de la fréquence de collisions électron-ion avec (—) et sans (- -) terme de collision électron-surface.

Panneau inférieur : Évolution du champ externe ($\cdot \cdot$) et du champ interne lorsque les effets de surface ne sont pas inclus (- -), lorsque le terme de collision électron-surface est pris en compte (—) [Megi et al. 03].

où les coefficients C_i sont donnés dans le tableau 2.1 et $\xi = \frac{m_e v_{osc}^2}{k_B T_e}$. L'état de charge moyen au carré $\langle Z \rangle^2$ pris en compte pour calculer la fréquence de collisions électron-ion est déterminé à partir des populations ioniques N_q de chaque état de charge q :

$$\langle Z \rangle^2 = \frac{1}{N} \sum_q q^2 N_q \quad (2.50)$$

où N est le nombre total d'atomes dans l'agrégat.

2.5 Ionisation collisionnelle

2.5.1 Taux d'ionisation par collisions - méthode originelle

Lorsque les premiers électrons ont été ionisés par effet tunnel, ils peuvent entrer en collisions avec les atomes ou ions environnants. S'ils possèdent une énergie suffisante, ils peuvent à leur tour ioniser d'autres électrons. Dans le modèle nanoplasma originel, T. Ditmire et coll. décomposent le taux d'ionisation collisionnel W_{coll} en deux parties telles que $W_{coll} = W_{th} + W_{las}$ [Ditmire et al. 96]. Ces deux taux proviennent de la décomposition de la vitesse électronique en deux termes $\mathbf{v}_e = \mathbf{v}_{osc} + \mathbf{v}_{th}$, où \mathbf{v}_{th} est la vitesse thermique

des électrons due à la température interne du gaz d'électrons (éq. (2.33)), et $\mathbf{v}_{osc}(t)$ est la vitesse acquise par oscillation dans le champ :

$$v_{osc}(t) = \frac{eE_{int}}{m_e\omega} |\cos(\omega t)| \quad (2.51)$$

T. Ditmire et coll. supposent donc que la probabilité d'ionisation d'un atome par collision avec un électron de vitesse \mathbf{v}_e peut être mis sous la forme d'une somme de deux taux, chacun de ces taux étant associé à une des composantes de la vitesse. Par conséquent, le taux d'ionisation "thermique" W_{th} correspond à la probabilité d'ionisation par la composante thermique de la vitesse \mathbf{v}_{th} et le taux d'ionisation "suprathermique" W_{las} dérive de la composante de la vitesse acquise par oscillation $\mathbf{v}_{osc}(t)$. Le terme "suprathermique" provient du fait que la vitesse d'oscillation des électrons dans le champ peut être beaucoup plus importante que la température électronique moyenne. Chaque taux peut être calculé à l'aide d'une section efficace de collision électron-ion σ_j et résulte d'une moyenne sur la distribution de vitesses pour le taux thermique, et sur une période optique pour le taux suprathermique :

$$W_{th}[s^{-1}] = n_e \langle \sigma_j v_{th} \rangle_{\text{distribution de vitesses}} \quad (2.52)$$

$$W_{las}[s^{-1}] = n_e \langle \sigma_j v_{osc} \rangle_{\text{période optique}} \quad (2.53)$$

L'expression de la section efficace d'ionisation par collisions électron-ion est celle obtenue empiriquement par W. Lotz pour un niveau électronique j [Lotz 68].

$$\sigma_j = a_j q_j \frac{\ln(E_{inc}/I_{Pj})}{E_{inc} I_{Pj}} \quad (2.54)$$

a_j est un coefficient valant $1,15 \times 10^{-55} \text{ J}^2 \text{ m}^2$, q_j est le nombre d'électrons sur la couche ionisée, I_{Pj} est le potentiel d'ionisation de l'électron initialement lié et E_{inc} est l'énergie cinétique de l'électron incident.

2.5.2 Amélioration du calcul du taux d'ionisation collisionnel

Nous avons choisi une méthode différente pour calculer le taux d'ionisation par collision électron-ion. En effet, la décomposition $\mathbf{v}_e = \mathbf{v}_{th} + \mathbf{v}_{osc}$ n'implique pas la séparabilité du taux collisionnel $W_{coll} = W_{th} + W_{las}$. Ceci apparaît clairement si l'on considère une distribution électronique monocinétique dans un champ laser statique tel que $v_{osc} = v_{th}$. Le taux calculé selon T. Ditmire et coll. est alors $W_{th} + W_{las} = 2n_e \sigma_j(v_{th}) v_{th}$, alors que l'on obtient un taux unique de $W_{tot} = 2n_e \sigma_j(2v_{th}) v_{th} \neq W_{th} + W_{las}$ en considérant la vitesse électronique totale $\mathbf{v}_e = \mathbf{v}_{osc} + \mathbf{v}_{th}$. Nous avons par conséquent développé une procédure qui évite la décomposition $W_{th} + W_{las}$.

D'après l'hypothèse ③ formulée au paragraphe 2.1.2, la distribution de vitesses électroniques peut être mise sous la forme d'une fonction de distribution maxwellienne $f(\mathbf{v})$:

$$f(\mathbf{v}_e) = \left(\frac{m_e}{2\pi k_B T_e} \right)^{3/2} \exp \left(-\frac{m_e \mathbf{v}_e^2}{2k_B T_e} \right) \quad (2.55)$$

soit pour chacune des composantes x, y, z de la vitesse :

$$f(v_{e_i}) = \left(\frac{m_e}{2\pi k_B T_e} \right)^{1/2} \exp \left(-\frac{m_e v_{e_i}^2}{2k_B T_e} \right) \quad (2.56)$$

où $i = x, y, z$. Pour une température électronique T_e donnée, les composantes v_{e_i} de la vitesse sont obtenues aléatoirement à l'aide d'une distribution normale en utilisant la méthode directe [Abramowitz *et al.* 64] :

$$\begin{aligned} v_{e_{i_n}} &= v_{th} (-2 \ln U_n)^{1/2} \cos(2\pi U_{n+1}) \\ v_{e_{i_{n+1}}} &= v_{th} (-2 \ln U_n)^{1/2} \sin(2\pi U_{n+1}) \end{aligned} \quad (2.57)$$

Ici, v_{th} est la vitesse thermique électronique (éq. (2.33)) et les nombres U_n sont générés aléatoirement à l'aide d'une distribution uniforme dans l'intervalle $[0; 1]$.

À cette distribution maxwellienne s'ajoute également la vitesse d'oscillation électronique $v_{osc}(t)$ dans le champ électrique $E_{int}(t)$ (éq. (2.51)). Les électrons oscillent selon l'axe de polarisation du champ électrique. Nous choisissons pour le champ laser une polarisation linéaire selon l'axe z . Par conséquent, la composante $v_{osc}(t)$ s'ajoute à la composante thermique v_{e_z} . Cependant, nous nous plaçons dans l'approximation quasi-statique (c'est à dire que l'on ne considère que l'enveloppe du champ, voir paragraphe 2.3), l'argument du cosinus est donc déterminé par une distribution uniforme dans $[0; 2\pi]$. Ainsi, pour un ensemble de valeurs aléatoires n , on obtient une série de points dans l'espace des vitesses tels que :

$$v_{e_n} = \left(v_{e_{x_n}}^2 + v_{e_{y_n}}^2 + (v_{e_{z_n}} + v_{osc_n})^2 \right)^{1/2} \quad (2.58)$$

Le taux d'ionisation collisionnel est calculé selon :

$$W_{coll}[s^{-1}] = n_e \langle \sigma_j v_e \rangle \quad (2.59)$$

où la moyenne est calculée sur la distribution de vitesses électroniques. L'énergie cinétique de l'électron incident E_{inc} intervenant dans le calcul de la section efficace d'ionisation σ_j (cf. éq. (2.54)) est déterminée à l'aide des valeurs aléatoires obtenues selon $E_{inc_n} = \frac{1}{2} m_e v_{e_n}^2$. Pour un nombre de valeurs aléatoires N_{max} suffisamment élevé, le taux peut alors être obtenu par :

$$W_{coll}[s^{-1}] = \frac{n_e}{N_{max}} \sum_{n=1}^{N_{max}} \sigma_{j_n} v_{e_n} \quad (2.60)$$

Cette méthode permet de ne calculer qu'un seul et unique taux d'ionisation par collisions en prenant directement en compte l'oscillation des électrons dans la distribution de vitesses électroniques.

2.5.3 Taux d'ionisation collisionnel : forme analytique

Afin de rendre le calcul du taux d'ionisation collisionnel plus rapide, une forme analytique a été obtenue. Celle-ci permet de reproduire les résultats obtenus avec la méthode

numérique précédemment décrite :

$$W_{coll}[s^{-1}] = W_{th} + n_e \frac{a_j q_j}{I_P^{3/2} m_e^{1/2}} \left[f(\mu) \exp\left(-0,7 \frac{k_B T_e}{I_P}\right) - g(\mu) \exp\left(-3,5 \frac{k_B T_e}{I_P}\right) \right] \quad (2.61)$$

où

$$\mu = \frac{U_P}{I_P} \quad (2.62)$$

$$f(\mu) = \frac{1,5\mu}{2 + \mu} \quad (2.63)$$

$$\text{et } g(\mu) = \begin{cases} f(\mu) & \text{si } \mu \leq 0,5 \\ 0,3 & \text{sinon.} \end{cases} \quad (2.64)$$

U_P est l'énergie pondéromotrice, c'est à dire l'énergie cinétique moyenne d'un électron oscillant dans le champ électrique $U_P = \frac{e^2 E_{int}^2}{4m_e \omega^2}$.

Le taux W_{th} est le taux d'ionisation collisionnel calculé selon l'expression (2.59) pour une distribution strictement maxwellienne (c'est à dire telle que $v_{osc} = 0$). Ce taux correspond donc au taux d'ionisation thermique calculé par T. Ditmire et coll.. Il vaut¹ :

$$W_{th}[s^{-1}] = n_e \frac{2\sqrt{2}}{(\pi m_e k_B T_e)^{1/2}} \frac{a_j q_j}{I_P} E_I(I_P/k_B T_e) \quad (2.65)$$

où $E_I(x) = \int_x^\infty \frac{e^{-t}}{t} dt$ est l'intégrale exponentielle d'ordre 1.

La figure 2.6 permet de comparer les taux d'ionisation collisionnels calculés à l'aide de la méthode de T. Ditmire et coll. (éqs (2.52) et (2.53)), avec l'expression analytique (2.61), et à l'aide de la méthode décrite au paragraphe 2.5.2. Ces taux sont calculés en fonction du potentiel d'ionisation I_P pour les ions Ar^{q+} ($q \in [0; 8]$). Le nombre de valeurs aléatoires N_{max} utilisé est de 10000 afin que la convergence soit atteinte (cf. éq. (2.60)). La densité n_e et la température T_e sont fixées respectivement à 10^{21} cm^{-3} et 100 eV, le champ E vaut 10^{11} V.m^{-1} (soit un éclaircissement I de $1,3 \times 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$) pour une longueur d'onde λ de 800 nm.

Lorsque $T_e \gg U_P$, la contribution du champ électrique est négligeable et le taux d'ionisation collisionnel peut être assimilé à l'unique composante W_{th} provenant de la distribution thermique. Dans ce cas, le taux est le même quelle que soit la méthode de calcul. Mais, dans les conditions d'éclaircissement considérées pour la figure 2.6, l'énergie pondéromotrice U_P vaut 79 eV, nous avons alors $T_e \gtrsim U_P$. Nous constatons sur la figure 2.6 que, dans certains cas, le taux calculé selon T. Ditmire et coll. reproduit mal les résultats obtenus à l'aide de la distribution aléatoire (éq. (2.60)). Pour l' Ar^{8+} , l'erreur relative atteint 80 %. L'expression analytique (2.61) reproduit correctement les résultats numériques dans les conditions considérées.

Afin de déterminer dans quelles conditions cette forme analytique peut être utilisée, nous avons procédé à plusieurs séries de calcul selon les différents paramètres. Cependant,

¹Dans l'article de T. Ditmire, il manque le facteur $2\sqrt{2}$.

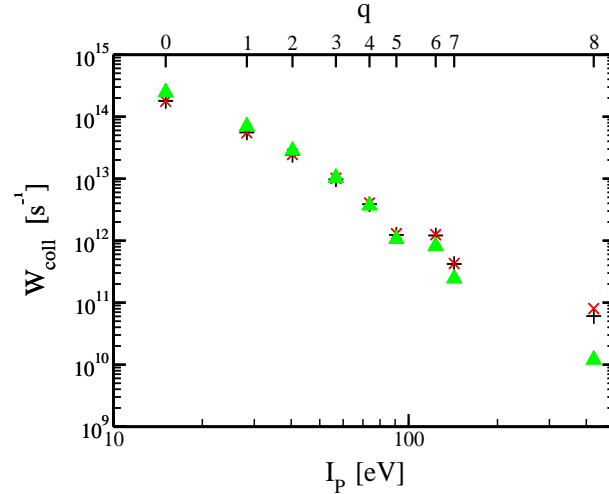


FIG. 2.6 – Taux d'ionisations collisionnels en fonction du potentiel d'ionisation I_P pour les ions Ar^{q+} ($q \in [0-8]$). Taux calculés avec : une distribution aléatoire (+) (éq. (2.60) avec $N_{max} = 10000$), la forme analytique (2.61) (x), selon T. Ditmire (▲) [Ditmire et al. 96]. Les paramètres fixés valent : $n_e = 10^{21} \text{ cm}^{-3}$, $T_e = 100 \text{ eV}$, $E = 10^{11} \text{ V.m}^{-1}$ et $\lambda = 800 \text{ nm}$.

compte tenu du nombre important de variables entrant en jeu dans le calcul du taux collisionnel (température, champ, fréquence, potentiel d'ionisation)², il est difficile de dégager les conditions de validité de l'expression analytique en fonction de tous les paramètres. Nous avons donc calculé l'évolution d'un agrégat irradié par une impulsion laser intense pour différentes conditions, d'une part avec l'expression (2.60), et d'autre part avec l'expression analytique (2.61). Les tests ont été effectués pour des agrégats d'argon et de xénon, pour des champs lasers dont l'éclairement maximal varie entre $4 \times 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ et $10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$, et pour une longueur d'onde de 800 nm. Dans les différentes conditions rencontrées au cours de l'évolution, il apparaît que la forme analytique est valide quelque soit la température et le champ atteints, sauf au tout début de l'interaction. Une étude plus détaillée indique que l'expression analytique ne peut pas être employée lorsque la température est très faible.

D'un point de vue pratique, pour calculer les taux d'ionisation collisionnels, nous avons donc utilisé la méthode décrite au paragraphe 2.5.2 lorsque la température électronique est inférieure à 4 eV, et la forme analytique (2.61) dans toutes les autres conditions.

2.6 Émission d'électrons

Lorsque les électrons libres ont acquis suffisamment d'énergie, ils peuvent quitter l'agrégat. Pour quantifier le nombre d'électrons s'échappant de l'agrégat, T. Ditmire et coll. estiment le taux d'émission en prenant en compte le libre parcours moyen d'un électron

²Le taux d'ionisation collisionnel dépend également de la densité électronique, mais celle-ci n'est qu'un facteur multiplicatif quelque soit la méthode de calcul employée.

au sein du plasma et la géométrie de l'agrégat : pour quitter l'agrégat, un électron doit posséder :

- un libre parcours moyen λ_e supérieur à la distance qui le sépare de la surface de l'agrégat,
- une énergie cinétique suffisante pour compenser la barrière de potentiel coulombienne associée au rappel électrostatique des ions de l'agrégat.

En considérant la distribution énergétique des électrons comme étant maxwellienne, le taux d'électrons émis par seconde W^{FS} (FS pour "free streaming") est alors (cf. [Megi 05] pour un calcul détaillé) :

$$W^{FS}[s^{-1}] = n_e \frac{2\sqrt{2\pi}}{\sqrt{m_e k_B T_e}} (E_{esc} + k_B T_e) \exp\left(-\frac{E_{esc}}{k_B T_e}\right) \times \begin{cases} \frac{\lambda_e}{4R} (12R^2 - \lambda_e^2) & \text{pour } \lambda_e < R \\ 4R^2 & \text{pour } \lambda_e \geq R \end{cases} \quad (2.66)$$

où R est le rayon de l'agrégat. Le libre parcours moyen λ_e est déterminé selon $\lambda_e = \langle v \rangle / \nu_{ei}$, avec ν_{ei} la fréquence de collisions électron-ion déterminée au paragraphe 2.4, et $\langle v \rangle$ la vitesse moyenne de l'électron, soit, pour une distribution maxwellienne :

$$\lambda_e = \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}} \frac{1}{\nu_{ei}} \quad (2.67)$$

Pour déterminer l'énergie cinétique E_{esc} nécessaire pour qu'un électron puisse s'échapper, l'agrégat est considéré comme un conducteur parfait chargé Q fois. L'énergie potentielle coulombienne d'un tel conducteur est $(Qe^2)/(8\pi\epsilon_0 R)$. Ainsi, lorsque qu'un électron quitte l'agrégat, il ressent $Q+1$ charges, l'énergie cinétique minimum pour que cet électron puisse s'échapper est alors :

$$E_{esc} = \frac{(Q+1)e^2}{8\pi\epsilon_0 R} \quad (2.68)$$

2.7 Expansion de l'agrégat

L'émission d'électrons conduit à un défaut de charges négatives dans l'agrégat. Cette perte de neutralité du plasma induit une augmentation du rayon de l'agrégat due à la répulsion électrostatique entre les ions. En considérant l'agrégat comme une sphère conductrice parfaite de charge Qe , l'influence de ce défaut de charge sur l'expansion du nanoplasma peut être mis sous la forme d'une pression coulombienne. Cette pression correspond au rapport de l'énergie électrostatique accumulée dans l'agrégat sur le volume de l'agrégat [Lorrrain *et al.* 88]. On obtient ainsi une expression de la forme :

$$P_C = \frac{3Q^2 e^2}{32\pi^2 \epsilon_0 R^4} \quad (2.69)$$

À cette pression coulombienne s'ajoute également une pression due à l'énergie absorbée par l'agrégat. En effet, lorsque cette énergie devient importante, la forte température

électronique rend le plasma instable. Cette pression cinétique (aussi désignée par "pression hydrodynamique") entraîne donc également un accroissement du rayon de l'agrégat. Elle prend la forme :

$$P_H = n_e k_B T_e \quad (2.70)$$

En toute rigueur, cette pression devrait également prendre en compte l'énergie ionique selon $P_H = n_e k_B T_e + n_i k_B T_i$. En effet, l'énergie absorbée par les électrons libres de l'agrégat est en partie transférée aux ions sous forme d'énergie cinétique lorsque ces électrons entrent en collision avec les ions environnants. Cependant, les ions étant beaucoup plus lourds que les électrons, la température ionique est faible devant la température électronique, le second terme de la pression cinétique peut donc être négligé.

Pour déterminer l'évolution temporelle du rayon de l'agrégat, T. Ditmire et coll. utilisent un modèle d'expansion auto-semblable d'un plasma à symétrie sphérique [Haught *et al.* 70]. Ce modèle implique que les profils spatiaux des différentes grandeurs caractéristiques du plasma telles que la densité ou la pression sont conservées au cours du temps. En appliquant la deuxième loi de Newton à un fluide qui se dilate au cours du temps, on obtient finalement l'expression suivante pour la variation du rayon de l'agrégat :

$$\frac{d^2 R}{dt^2} = 5 \frac{P_H + P_C}{n_i m_i} \frac{1}{R} \quad (2.71)$$

où m_i est la masse ionique (choisie comme étant égale à la masse de l'atome neutre).

2.8 Température électronique

La température du gaz d'électrons est déterminée à partir de l'équation de conservation de l'énergie thermique électronique totale au sein de l'agrégat :

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{3}{2} N_e k_B T_e \right) = \frac{d}{dt} [\text{Termes de gain d'énergie} - \text{Termes de perte d'énergie}] \quad (2.72)$$

où N_e est le nombre d'électrons libres. On obtient ainsi l'équation d'évolution de la température électronique :

$$\frac{\partial k_B T_e}{\partial t} = - \frac{k_B T_e}{N_e} \frac{\partial N_e}{\partial t} + \frac{2}{3 N_e} [\text{Termes de gain d'énergie} - \text{Termes de perte d'énergie}] \quad (2.73)$$

2.8.1 Termes de gain d'énergie

Chauffage par bremsstrahlung inverse

L'énergie absorbée, par unité de temps et de volume, par un milieu soumis à un champ électrique \mathbf{E} est déterminée suivant [Landau *et al.* 69] (p. 396) (le champ magnétique est

négligé) :

$$E_{abs} = \mathbf{P} \frac{d\mathbf{E}(t)}{dt} \quad (2.74)$$

L'agrégat étant considéré comme une sphère initialement diélectrique et uniforme soumis au champ interne $\mathbf{E}_{int}(t)$, la polarisation $\mathbf{P}(t)$ et le champ sont reliés par :

$$\mathbf{P}(t) = \varepsilon_0(\varepsilon - 1)\mathbf{E}_{int}(t) \quad (2.75)$$

où ε est la fonction diélectrique de l'agrégat définie par l'équation (2.24).

Le champ $\mathbf{E}_{int}(t)$ et la polarisation $\mathbf{P}(t)$ peuvent se mettre sous formes complexes, soit $\mathbf{E}_{int}(t) = E_{int}(t)e^{i\omega t}\mathbf{e}_z$ et $\mathbf{P}(t) = P(t)e^{i\omega t}\mathbf{e}_z$, où $E_{int}(t)$ et $P(t)$ correspondent aux enveloppes lentement variables ($t \ll \omega^{-1}$) du champ et de la polarisation. En négligeant la variation temporelle de l'enveloppe du champ devant le terme oscillant ($dE_{int}(t)/dt \simeq 0$), et en moyennant sur un cycle optique, l'énergie absorbée se réduit à :

$$E_{abs} = \frac{1}{2} \Re \left\{ \mathbf{P}(t) \frac{d\mathbf{E}_{int}^*(t)}{dt} \right\} = \frac{1}{2} \Re \{ -i\omega P(t) E_{int}(t) \} \quad (2.76)$$

L'énergie absorbée par unité de temps dans le volume de l'agrégat V est alors :

$$\frac{\partial E^{BI}}{\partial t} = \frac{V\omega\varepsilon_0}{2} \Re \{ -i(\varepsilon - 1) |E_{int}^2(t)| \} = \frac{V\omega\varepsilon_0}{2} \Im(\varepsilon) |E_{int}^2(t)| \quad (2.77)$$

En utilisant l'expression (2.23) du champ interne, le taux de chauffage de l'agrégat par bremsstrahlung inverse s'exprime finalement selon :

$$\frac{\partial E^{BI}}{\partial t} = \frac{9\varepsilon_0 |E_{ext}(t)|^2}{2} \frac{\omega^2 \omega_{pe}^2 \nu_{ei}}{9\omega^2(\omega^2 + \nu_{ei}^2) + \omega_{pe}^2(\omega^2 - 6\omega^2)} \frac{4}{3} \pi R^3 \quad (2.78)$$

où ω_{pe} est la fréquence plasma électronique définie par l'expression $\sqrt{\frac{n_e e^2}{\varepsilon_0 m_e}}$.

Thermalisation des électrons nouvellement émis

Le modèle considère que les électrons nouvellement libérés (soit par effet de champ, soit par collisions) se thermalisent instantanément à la température du gaz d'électrons environnant. L'énergie totale acquise par ces électrons par unité de temps est donc :

$$\frac{\partial E^{th}}{\partial t} = \frac{3}{2} \sum_q (W_{opt}^q + W_{coll}^q) N_q k_B T_e \quad (2.79)$$

où W_{opt}^q et W_{coll}^q sont respectivement le taux d'ionisation par effet de champ et le taux d'ionisation collisionnel d'un ion (ou atome) de charge q calculés selon les expressions (2.17) et (2.61) (ou (2.60)), N_q est la population associée à cet état de charge q .

Accélération des électrons par le champ électrique

Les électrons nouvellement émis, qui se retrouvent soumis au champ électrique interne de l'agrégat, acquièrent de l'énergie en oscillant dans le champ. L'énergie acquise par un électron, moyennée sur un cycle optique, correspond à l'énergie pondéromotrice :

$$U_P = \frac{e^2 E_{int}^2}{4m_e \omega^2} \quad (2.80)$$

Ainsi, le taux de chauffage des électrons nouvellement libérés accélérés dans le champ électrique est :

$$\frac{\partial E^{acc.}}{\partial t} = \sum_q (W_{opt}^q + W_{coll}^q) N_q U_P \quad (2.81)$$

2.8.2 Termes de pertes d'énergie

Perte d'énergie due à l'ionisation collisionnelle

L'ionisation collisionnelle induit une perte d'énergie de l'électron incident. Nous considérons que l'ionisation s'effectue au seuil, c'est à dire que l'électron éjecté a une énergie nulle. L'énergie perdue par unité de temps lors des collisions donnant lieu à ionisation est donc :

$$\frac{\partial E^{coll}}{\partial t} = \sum_q I_{Pq} W_{coll}^q N_q \quad (2.82)$$

où I_{Pq} est le potentiel d'ionisation de l'ion de charge q .

Énergie emportée par les électrons quittant l'agrégat

Les électrons ayant suffisamment d'énergie pour quitter l'agrégat emportent une partie de l'énergie thermique interne. Cette énergie, calculée suivant le même principe que le taux d'émission électronique, vaut [Megi 05] :

$$\begin{aligned} \frac{\partial E^{FS}}{\partial t} = & n_e 2\sqrt{2\pi} \sqrt{\frac{k_B T_e}{m_e}} \left(\frac{E_{esc}^2}{k_B T_e} + 2E_{esc} + 2k_B T_e \right) \exp\left(-\frac{E_{esc}}{k_B T_e}\right) \times \\ & \begin{cases} \frac{\lambda_e}{4R} (12R^2 - \lambda_e^2) & \text{pour } \lambda_e < R \\ 4R^2 & \text{pour } \lambda_e \geq R \end{cases} \end{aligned} \quad (2.83)$$

2.8.3 Termes supplémentaires

Afin de prendre en compte tous les processus influant sur la température électronique, il est nécessaire d'ajouter certains termes dans l'équation d'évolution de la température.

Variation du nombre d'électrons

Le premier terme de l'équation (2.73) provient de la dérivée totale de l'énergie thermique totale $E^{th} = \frac{3}{2}N_e k_B T_e$ qui se conserve au cours du temps. Ainsi, lorsque le nombre d'électrons N_e croît, la température diminue et réciproquement. Le terme

$$\frac{\partial k_B T_e^{var.N_e}}{\partial t} = -\frac{k_B T_e}{N_e} \frac{\partial N_e}{\partial t} \quad (2.84)$$

traduit donc la répercussion de la variation du nombre d'électrons libres sur la température électronique au sein de l'agrégat.

Expansion de l'agrégat

Pour déterminer l'influence de l'expansion de l'agrégat sur la perte d'énergie thermique, T. Ditmire et coll. considèrent le gaz d'électrons comme un gaz parfait. À partir de l'équation

$$\frac{3}{2}N_e \frac{\partial k_B T_e}{\partial t} = P \frac{\partial V}{\partial t} \quad (2.85)$$

où V est le volume de l'agrégat et P est la pression hydrodynamique P_H associée au gaz d'électrons (éq. (2.70)), on obtient finalement :

$$\frac{\partial k_B T_e^{exp}}{\partial t} = \frac{2k_B T_e}{R} \frac{\partial R}{\partial t} \quad (2.86)$$

Thermalisation électron/ion

Lorsque les électrons chauds entrent en collision avec les ions froids, une partie de leur énergie thermique est transférée aux ions. Ce processus peut être décrit par un taux de thermalisation :

$$\frac{\partial k_B T_e^{therm}}{\partial t} = \frac{k_B T_e - k_B T_i}{\tau_{eq}} \quad (2.87)$$

où τ_{eq} est le temps de thermalisation qui vaut $m_i/(m_e \nu_{ei})$ car il faut m_i/m_e collisions pour transférer significativement de l'énergie des électrons vers les ions. ν_{ei} est la fréquence de collisions déterminée au paragraphe 2.4.3. De plus, la température électronique étant beaucoup plus élevée, on considère que $k_B T_e - k_B T_i \simeq k_B T_e$.

2.9 Implémentation numérique

Les différents processus pris en compte dans le modèle nanoplasma aboutissent à un système d'équations couplées :

$$(2.88) \left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial R}{\partial t} = v_{exp} \\ \frac{\partial v_{exp}}{\partial t} = 5 \frac{P_H + P_C}{n_i m_i} \frac{1}{R} \\ \frac{\partial Q}{\partial t} = n_e \frac{2\sqrt{2\pi}}{\sqrt{m_e k_B T_e}} (E_{esc} + k_B T_e) \exp\left(-\frac{E_{esc}}{k_B T_e}\right) \times \begin{cases} \frac{\lambda_e}{4R} (12R^2 - \lambda_e^2) & \text{pour } \lambda_e < R \\ 4R^2 & \text{pour } \lambda_e \geq R \end{cases} \\ \frac{\partial N_q}{\partial t} = (W_{opt}^{q-1} + W_{coll}^{q-1}) N_{q-1} - (W_{opt}^q + W_{coll}^q) N_q \\ \frac{\partial N_e}{\partial t} = \sum_q^q \frac{\partial N_q}{\partial t} - \frac{\partial Q}{\partial t} \\ \frac{\partial k_B T_e}{\partial t} = \frac{2}{3N_e} \left[\frac{\partial E^{BI}}{\partial t} + \frac{\partial E^{th}}{\partial t} + \frac{\partial E^{acc.}}{\partial t} \right] - \\ \left[\frac{\partial k_B T_e^{var.N_e}}{\partial t} + \frac{\partial k_B T_e^{exp}}{\partial t} + \frac{\partial k_B T_e^{therm}}{\partial t} + \frac{2}{3N_e} \frac{\partial E^{coll}}{\partial t} + \frac{2}{3N_e} \frac{\partial E^{FS}}{\partial t} \right] \end{array} \right.$$

où

- v_{exp} est la vitesse d'expansion de l'agrégat,
- R est le rayon de l'agrégat,
- Q est la charge totale de l'agrégat, son évolution est donc égale au taux d'émission électronique (éq. (2.66)),
- N_q représente la population de chaque état de charge q , en pratique, il y a donc q équations $\frac{\partial N_q}{\partial t}$,
- N_e est le nombre d'électrons libres dans l'agrégat,
- $k_B T_e$ est la température électronique (exprimée en Joules ou en eV).

La vitesse d'expansion de l'agrégat v_{exp} a été introduite afin de réduire l'équation d'évolution du rayon de l'agrégat 2.71 à un ensemble d'équations d'ordre 1. En effet, ce système d'équations couplées est résolu à l'aide de la méthode Cash-Karp Runge-Kutta d'ordre 5 pour des équations différentielles d'ordre 1 [Press *et al.* 92]. De plus, la méthode utilise un pas variable, ce qui nous assure de traiter correctement les importantes variations des variables lors des résonances.

La méthode de résolution du système nécessite de définir les conditions initiales. Les simulations présentées par la suite débutent lorsque le champ laser est trop faible pour pouvoir ioniser les atomes de l'agrégat. Par conséquent, initialement, le nombre d'électrons

libres N_e est nul. De même la température T_e , la vitesse d'expansion v_{exp} , la charge totale de l'agrégat Q , et les populations de tous les ions N_q ($q \neq 0$) sont nuls. La population d'atomes neutres N_0 est égale au nombre N d'atomes dans l'agrégat et le rayon R de l'agrégat est égal au rayon initial R_0 .

De plus, d'un point de vue pratique, certains termes de l'équation d'évolution de la température électronique sont divisés par le nombre d'électrons libres N_e . Or celui-ci est nul ou très faible au tout début de l'interaction, ce qui conduit à une dérivée temporelle de la température infinie. Afin d'éviter cette divergence, nous avons imposé une limite sur N_e en deçà de laquelle la dérivée de la température est considérée comme nulle. Nous avons vérifié que cette coupure n'influe pas sur l'évolution de la dynamique d'interaction.

2.10 Résultats

À l'aide du système d'équations couplées (2.88), nous avons étudié l'évolution d'un agrégat d'argon irradié par une impulsion laser. Le rayon initial de l'agrégat est de 350 Å (soit $4,74 \times 10^6$ atomes), la durée de l'impulsion est de 500 fs à mi-hauteur et l'énergie sur cible est de 3 mJ, ce qui correspond à un éclairement crête de $1,6 \times 10^{16}$ W.cm⁻². Les résultats expérimentaux démontrent que dans de telles conditions, l'émission X supérieure à 3 keV provient d'états de charge très élevés (jusqu'à l'Ar¹⁶⁺). Cette section présente les résultats obtenus à l'aide du modèle nanoplasma originel décrit précédemment.

La figure 2.7 présente l'évolution des populations de chaque état de charge en fonction du temps. Le temps initial de l'interaction correspond à un éclairement de 10^{13} W.cm⁻², suffisamment faible pour que l'ionisation par effet de champ soit négligeable. L'origine des temps correspond à l'instant où le champ laser est maximum et les populations sont normalisées au nombre initial d'atomes dans l'agrégat N . L'état de charge maximum obtenu est Ar¹³⁺, le modèle nanoplasma tel que présenté précédemment n'est donc pas en mesure de reproduire les résultats expérimentaux.

Cependant, à partir de ces résultats, nous pouvons en déduire certains effets prédominant l'évolution de l'agrégat. L'étude détaillée de la dynamique de l'ionisation indique que seuls les premiers états de charge sont produits par effet de champ. En effet, compte tenu du nombre d'atomes et du rayon de l'agrégat, la densité électronique augmente rapidement : dès lors que tout les atomes de l'agrégat ont été ionisés une fois, la densité électronique vaut plus de 10^{22} cm⁻³. Le champ interne est alors réduit et l'ionisation par effet de champ n'est efficace que jusqu'à l'Ar⁵⁺. Par conséquent, les degrés d'ionisation plus élevés sont obtenus par collisions électron-ion, ce qui démontre l'effet prépondérant des collisions dans la dynamique d'ionisation de l'agrégat.

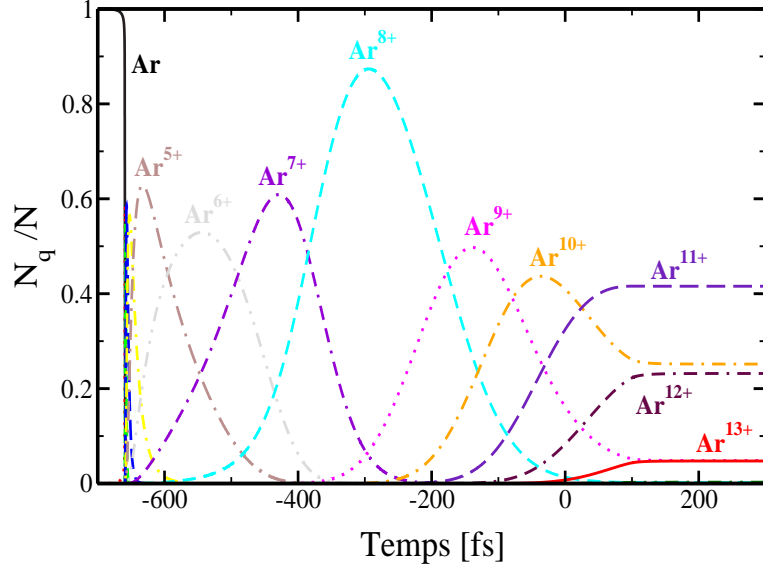


FIG. 2.7 – Évolution des populations N_q (normalisées au nombre initial d'atomes dans l'agrégat) en fonction du temps pour un agrégat d'argon ($R_0 = 350 \text{ \AA}$) irradié par une impulsion laser ($FWHM = 500 \text{ fs}$; $I_0 = 1,6 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$; $E_{cible} = 3 \text{ mJ}$).

2.11 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons présenté le modèle nanoplasma utilisé pour décrire l'interaction entre un agrégat de gaz rare et une impulsion laser. Ce modèle présente l'avantage de prendre en compte de nombreux processus, tels que l'absorption de l'énergie par bremsstrahlung inverse, la dynamique d'ionisation de l'agrégat, l'émission d'électrons et l'expansion finale du plasma. Nous avons quelque peu modifié le modèle original afin de mieux décrire certains mécanismes. Cependant, le modèle en l'état ne permet pas de reproduire les résultats expérimentaux, et notamment les états de charge très élevés mis en évidence par l'émission X. Afin de perfectionner le modèle, nous avons par conséquent cherché à inclure des processus supplémentaires susceptibles d'expliquer les mesures.

Le chapitre suivant présente la première amélioration apportée au modèle nanoplasma : les résultats préliminaires indiquent que les collisions jouent un rôle prépondérant, nous nous sommes donc attachés à mieux décrire la dynamique d'ionisation collisionnelle.

Chapitre 3

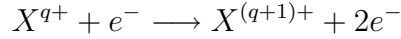
Amélioration de la dynamique d'ionisation collisionnelle : Prise en compte d'états excités

Sommaire

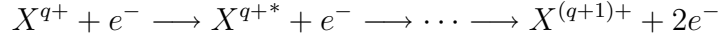
| | | |
|------------|--|-----------|
| 3.1 | Description approchée de la structure électronique des atomes et des ions : Potentiel-modèle | 71 |
| 3.1.1 | Potentiel-modèle : principe de calcul | 72 |
| 3.1.2 | Application à l'interaction laser-agrégat : description des ions (ou atomes) d'argon | 75 |
| 3.2 | Excitation ou ionisation d'une sous-couche multiélectronique : le modèle à électrons indépendants | 79 |
| 3.3 | Évaluation des sections d'excitation et d'ionisation : approches DWBA et PWBA | 81 |
| 3.3.1 | Théorie formelle des collisions. Développement de Born I | 82 |
| 3.3.2 | Formalisme des ondes distordues. Application aux collisions électronique | 85 |
| 3.3.2.1 | Section efficace totale d'excitation collisionnelle | 87 |
| 3.3.2.2 | Section efficace totale d'ionisation collisionnelle | 97 |
| 3.3.3 | À plus haute énergie : l'approximation PWB | 102 |
| 3.3.3.1 | Section efficace totale d'excitation collisionnelle | 102 |
| 3.3.3.2 | Section efficace totale d'ionisation collisionnelle | 105 |

| | | |
|------------|--|------------|
| 3.4 | Pour une évaluation plus immédiate des sections : expressions simplifiées | 107 |
| 3.4.1 | Expression semi-analytique des sections d'excitation | 107 |
| 3.4.2 | Section efficace totale d'ionisation : Expression de Lotz | 109 |
| 3.5 | Inclusion des états excités dans le modèle nanoplasma | 110 |
| 3.5.1 | Regroupement des états excités en configurations | 110 |
| 3.5.2 | Évaluation pratique des taux de transitions moyens | 112 |
| 3.5.3 | Modification des équations d'évolution | 112 |
| 3.6 | Conclusion | 114 |

Dans le modèle originel, les états de charge élevés sont atteints au travers d'une succession de processus ionisants entre états fondamentaux d'espèces ioniques adjacentes :



Les processus ionisants d'ordres supérieurs, impliquant des états excités intermédiaires tel que



n'y sont pas pris en compte. Nous avons donc mis en place une description théorique dans laquelle les états excités intermédiaires sont explicitement introduits afin de rendre compte des chemins d'ionisation indirects et, par conséquent, mieux décrire la dynamique de l'ionisation des atomes de l'agrégat. En supposant que cette dynamique est essentiellement régie par les électrons de valence, nous n'avons (dans un premier temps) pas considéré les processus d'excitation ou d'ionisation des couches internes. Les résultats expérimentaux indiquent en effet un chauffage progressif de l'agrégat, favorisant ainsi une ionisation successive des différents états de charge.

La structure de ce chapitre est la suivante : la première section présente l'approche potentiel-modèle employée pour décrire la structure électronique des atomes (ou ions) de l'agrégat afin de prendre en compte les états excités intermédiaires. Le peuplement de ces états excités nécessite alors l'évaluation des taux d'excitation et d'ionisation collisionnels pour chaque état de charge. Lors de transitions engageant une sous-couche multiélectronique, la détermination des taux requiert une hypothèse supplémentaire selon laquelle les électrons de cette sous-couche sont indépendants. Ce traitement est décrit dans la deuxième partie de ce chapitre. Puis, après un bref rappel de la théorie formelle des collisions, la troisième partie présente l'approximation des ondes distordues, démarche employée pour évaluer les sections efficaces totales d'excitation et d'ionisation collisionnels. Les paragraphes suivants exposent ensuite diverses approximations simplificatrices de cette méthode ainsi que leurs limites. Enfin, la dernière partie présente comment les états excités ont été inclus dans le modèle nanoplasma.

3.1 Description approchée de la structure électronique des atomes et des ions : Potentiel-modèle

L'inclusion d'états excités nécessite une description de la structure électronique de chaque état de charge ionique. Compte tenu de la structure complexe de ces systèmes multiélectroniques, nous avons utilisé une approche basée sur l'emploi d'un potentiel modèle. Par souci de clarté, prenons l'exemple de l'ion Ar^{7+} : sa structure électronique est $1s^2 2s^2 2p^6 3s^1$. L'électron de la couche externe $3s$ est beaucoup moins lié au noyau en comparaison des électrons des couches internes. En effet, le potentiel d'ionisation de l'électron $3s$ est de 142,7 eV alors que celui de Ar^{8+} est de 423,9 eV. Aussi, pour autant que l'ion ne soit pas soumis à une contrainte extérieure d'intensité trop forte, les électrons du

coeur restent spectateurs et ne sont pas directement impliqués dans la dynamique. Seul l'électron de la couche de valence est alors considéré comme actif et le système est décrit comme étant "effectivement monoélectronique". L'approche potentiel-modèle permet alors de rendre compte de l'effet moyen qu'ont les électrons internes pour écranter la charge nucléaire.

3.1.1 Potentiel-modèle : principe de calcul

Le calcul détaillé qui mène à l'expression finale du potentiel-modèle utilisé est présenté en annexe A. Dans ce paragraphe, nous présentons uniquement le principe et les hypothèses employés pour déterminer l'expression de ce potentiel-modèle.

Nous nous basons ici sur la méthode développée par M. Klapisch [Klapisch 69, Klapisch 71]. Considérons un atome constitué d'un noyau de charge Z et de $p+1$ électrons. Les électrons sont répartis comme suit :

- p électrons constituant un coeur ionique en sous-couches fermées,
- un électron de valence.

Le but de la méthode du potentiel-modèle est de représenter paramétriquement le potentiel $V_{mod}(\mathbf{r})$ subi par l'électron de valence situé à une distance r du noyau, afin de connaître le hamiltonien relatif à cet électron $H = -\frac{\hbar^2}{2m_e}\nabla_{\mathbf{r}}^2 + V_{mod}(\mathbf{r})$ et d'en déduire les énergies et fonctions propres. Dans le cas de sous-couches fermées, où le coeur ionique est peu perturbé par l'électron de valence, on cherche un potentiel-modèle à symétrie sphérique satisfaisant aux conditions aux limites :

$$\left\{ \begin{array}{l} \lim_{r \rightarrow 0} V_{mod}(r) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r} \\ \lim_{r \rightarrow \infty} V_{mod}(r) = -\frac{(Z-p)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \end{array} \right. \quad (3.1a)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \lim_{r \rightarrow 0} V_{mod}(r) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r} \\ \lim_{r \rightarrow \infty} V_{mod}(r) = -\frac{(Z-p)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \end{array} \right. \quad (3.1b)$$

De plus, on considère que les fonctions d'onde des électrons de coeur ne possèdent pas de structure nodale (les électrons internes étant très liés au noyau, la structure nodale de leurs fonctions d'onde importent peu, on a alors $l = n - 1$). Pour un atome (ou ion) hydrogénoïde, la densité de charge radiale d'une sous-couche fermée de nombre quantique orbital l possédant q électrons s'écrit alors :

$$D_r(r) = -q |R_{nl}(r)|^2 = -q \frac{\alpha_l^{2l+3}}{(2l+2)!} e^{-\alpha_l r} r^{2l} \quad (3.2)$$

où $R_{nl}(r)$ est la partie radiale de la fonction d'onde d'un électron sur la couche nl . Le coefficient α_l prend la forme :

$$\alpha_l = \frac{2Z_{eff}}{a_0(l+1)} \quad (3.3)$$

où a_0 est le rayon de Bohr et Z_{eff} est la charge effective ressentie par l'électron de valence, soit la charge nucléaire réelle diminuée par l'écran dû aux électrons de coeur.

Étant données les conditions aux limites (3.1), on cherche $V_{mod}(r)$ sous la forme :

$$V_{mod}(r) = -\frac{(Z-q)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \frac{qe^2}{4\pi\epsilon_0 r} e^{-\alpha_l r} f_l(\alpha_l, r) \quad (3.4)$$

où $f_l(\alpha_l, r)$ devra avoir une forme polynômiale afin d'assurer (3.1b). À partir de l'équation de Poisson reliant le potentiel à la densité de charge, on obtient l'équation différentielle pour $f_l(\alpha_l, r)$:

$$\frac{d^2 f_l(\alpha_l, r)}{dr^2} - 2\alpha_l \frac{\partial f_l(\alpha_l, r)}{\partial r} + \alpha_l^2 f_l(\alpha_l, r) = \frac{\alpha_l^{2l+3}}{(2l+2)!} r^{2l+1} \quad (3.5)$$

On cherche une solution à cette équation sous la forme :

$$f_l(\alpha_l, r) = \sum_{k=0}^{2l+1} c_k r^k \quad (3.6)$$

En reportant l'expression (3.6) dans l'équation (3.5), on obtient l'ensemble des coefficients $\{c_k\}$ (cf. annexe A), soit pour $f_l(\alpha_l, r)$:

$$f_l(\alpha_l, r) = \sum_{k=0}^{2l+1} \left(1 - \frac{k}{2l+2}\right) \frac{\alpha_l^k r^k}{k!} \quad (3.7)$$

Le potentiel $V_{mod}(r)$ prend alors la forme, selon l'équation (3.4) :

$$V_{mod}(r) = -\frac{(Z-q)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \frac{qe^2}{4\pi\epsilon_0 r} e^{-\alpha_l r} \sum_{k=0}^{2l+1} \left(1 - \frac{k}{2l+2}\right) \frac{\alpha_l^k r^k}{k!} \quad (3.8)$$

avec $\alpha_l = 2Z_{eff}/a_0(l+1)$, inconnue à déterminer, dépendant explicitement du nombre quantique orbital l de la sous-couche considérée. Par exemple, pour une configuration $1s^2 nl$, le potentiel se met sous la forme :

$$V_K(r) = -\frac{(Z-2)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \frac{2e^2}{4\pi\epsilon_0 r} e^{-\alpha_{1s} r} \left(1 + \frac{\alpha_{1s}}{2} r\right) \quad (3.9)$$

Le paramètre α_{1s} est déterminé empiriquement en employant une méthode variationnelle : le hamiltonien est diagonalisé dans une base (aussi complète que possible) à plusieurs reprises en faisant varier α_{1s} jusqu'à obtenir une bonne représentation des états liés relatifs à l'électron de valence (dont on connaît expérimentalement les énergies de liaison).

Si on considère maintenant un système plus complexe qui se compose d'une couche n fermée elle-même composée de plusieurs sous-couches nl fermées (Ex : couche L $\equiv 2s^2 2p^6$, l'électron de valence étant sur une sous-couche externe). Le potentiel d'interaction entre l'électron actif et cette couche interne est alors simplement déterminé en sommant les contributions à l'écrantage de chaque sous-couche. Il est cependant nécessaire de pondérer la somme par la multiplicité $g = 2l + 1$ de chaque sous-couche. Pour une couche n de nombre quantique orbital maximal L_{max} , on obtient :

$$V_{mod}(r) = -\frac{(Z-q)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \frac{qe^2}{4\pi\epsilon_0 r} \mathcal{G}_n(L_{max}, \{\alpha_l\}, r) \quad (3.10)$$

avec

$$\mathcal{G}_n(L_{max}, \{\alpha_l\}, r) = \frac{1}{n^2} \sum_{l=0}^{L_{max}} (2l+1) e^{-\alpha_l r} f_l(\alpha_l, r) \quad (3.11)$$

où la fonction $f_l(\alpha_l, r)$ est définie par l'expression (3.7).

Finalement, le potentiel décrivant un coeur ionique composé de N_s couches fermées comportant p_s électrons et de N_t sous-couches fermées comportant p_t électrons (ces N_t sous-couches n'appartenant pas aux couches N_s) s'écrit :

$$\begin{aligned} V_{mod}(r) = & - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \left[Z - \left(\sum_{s=1}^{N_s} p_s + \sum_{t=1}^{N_t} p_t \right) \right] - \\ & - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \left[\sum_{s=1}^{N_s} p_s \mathcal{G}_{n_s}(L_{s_{max}}, \{\alpha_{l_s}\}, r) + \sum_{t=1}^{N_t} p_t e^{-\alpha_t r} f_t(\alpha_t, r) \right] \end{aligned} \quad (3.12)$$

où les fonctions $\mathcal{G}_n(L_{max}, \{\alpha_l\}, r)$ et $f_l(\alpha, r)$ sont définies par les expressions (3.11) et (3.7).

Ainsi, par exemple pour l'Ar⁷⁺, composé d'un coeur ionique $1s^2 2s^2 2p^6$, le potentiel ressenti par l'électron actif situé sur une sous-couche nl est :

$$\begin{aligned} V_{mod}(r) = & - \frac{(Z-10)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \\ & - \frac{2e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \left(1 + \frac{\alpha_{1s}}{2} r \right) e^{-\alpha_{1s} r} - \quad (couche 1s^2) \\ & - \frac{2e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \left(1 + \frac{\alpha_{2s}}{2} r \right) e^{-\alpha_{2s} r} - \quad (sous-couche 2s^2) \\ & - \frac{6e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \left(1 + \frac{3\alpha_{2p}}{4} r + \frac{\alpha_{2p}^2}{4} r^2 + \frac{\alpha_{2p}^3}{24} r^3 \right) e^{-\alpha_{2p} r} \quad (sous-couche 2p^6) \end{aligned} \quad (3.13)$$

Les coefficients $\{\alpha_l\}$ doivent alors être déterminés variationnellement en diagonalisant le hamiltonien $H_0 = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + V_{mod}(r)$ dans une base de façon à reproduire les niveaux d'énergie expérimentaux.

L'approche potentiel-modèle présentée ci-dessus s'applique en principe uniquement dans le cas de sous-couches fermées. Cependant, en pratique, celle-ci est également utilisée dans le cas de sous-couches ouvertes [Reinhold C. *et al.* 86]. Aussi, nous avons utilisé l'expression (3.13) aussi bien pour les ions (ou atomes) dont l'électron actif est l'unique électron présent sur la couche externe, que pour les ions dont le coeur ionique est en sous-couches ouvertes (auquel cas il existe un ou plusieurs électrons équivalents à l'électron actif).

3.1.2 Application à l'interaction laser-agrégat : description des ions (ou atomes) d'argon

Pour chaque état de charge de l'argon Ar^{q+} , le potentiel-modèle prend la forme :

$$V_{\text{Ar}^{q+}}(r) = -\frac{(Z - N_c)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \sum_{i=1}^3 \frac{n_{is}e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \left(1 + \frac{\alpha_{is}}{2}r\right) e^{-\alpha_{is}r} - \sum_{i=2}^3 \frac{n_{ip}e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \left(1 + \frac{3\alpha_{ip}}{4}r + \frac{\alpha_{ip}^2}{4}r^2 + \frac{\alpha_{ip}^3}{24}r^3\right) e^{-\alpha_{ip}r} \quad (3.14)$$

où Z est la charge du noyau ($Z=18$), $N_c = Z - q - 1$ est le nombre d'électrons de coeur, et n_{is} et n_{ip} sont respectivement le nombre d'électrons sur chaque couche s et p . Les paramètres α_{il} sont obtenus par diagonalisation du hamiltonien $H_0 = -\frac{\hbar^2}{2m_e}\nabla_{\mathbf{r}}^2 + V_{\text{Ar}^{q+}}(r)$ sur une base composée d'orbitales de type Slater $S_j^{(l)}(\mathbf{r})$ (*STO* pour "Slater-type Orbitals") (cf. annexe B) :

$$S_j^{(l)}(\mathbf{r}) = \mathcal{N}_j r^l e^{-a_j r} Y_l^m(\theta, \varphi) \quad (3.15)$$

où les paramètres a_j (qui peuvent être différents selon le nombre quantique orbital l) varient selon la série géométrique $a_j = a_0 b^j$. Les résultats présentés par la suite ont été obtenus à l'aide d'une base définie selon $\{a_0 = 0,005; b = 1,3; j_{max} = 41\}$ quel que soit l , base suffisamment diffuse et dense de façon à pouvoir être considérée comme "effectivement complète" quant à l'obtention d'états liés par diagonalisation.

Nous avons alors procéder à une variation systématique des paramètres α_{il} jusqu'à obtenir une bonne représentation des états liés relatifs à l'électron de valence. Pour cela, nous avons comparé les énergies propres obtenues par diagonalisation aux données tabulées pour le projet Opacité ("The Opacity Project" [Mendoza *et al.*]). Ces données de référence ont été calculées en utilisant une méthode "close-coupling" [Bransden *et al.* 03] (p652) couplée à une approche R-matrix avec pseudo-états [Seaton 87, Berrington *et al.* 87]. Nous avons également calculé les forces d'oscillateurs associées à chaque transition d'excitation (le calcul détaillé des forces d'oscillateur est présenté en annexe D). Les forces d'oscillateur étant plus directement sensibles à la qualité des fonctions d'onde calculées que les énergies propres, la comparaison des résultats obtenus aux données de référence nous permet ainsi de jauger de manière quantitative fine notre description des structures électroniques des états Ar^{q+} . Les paramètres α_{il} obtenus sont présentés dans le tableau 3.1 pour chaque état de charge.

À titre d'exemple, les niveaux d'énergie et les forces d'oscillateur obtenus pour les ions Ar^{7+} et Ar^{13+} sont présentés dans les tableaux 3.2 et 3.3. Ces ions présentent la particularité d'avoir un coeur ionique en couches fermées, le potentiel-modèle est donc particulièrement adapté à la description de leurs structures électroniques. Les tableaux présentent les niveaux d'énergie de l'état fondamental et de plusieurs états excités ainsi que plusieurs forces d'oscillateur associées à des transitions dipolaires électriques. Les résultats obtenus par diagonalisation du hamiltonien $H_0 = -\frac{\hbar^2}{2m_e}\nabla_{\mathbf{r}}^2 + V_{\text{Ar}^{q+}}(r)$ (avec $V_{\text{Ar}^{q+}}(r)$ défini par l'équation (3.14)) sont comparés à la base de données du projet Opacité ("The Opacity Project" [Mendoza *et al.*]). Les tableaux présentent également l'erreur relative

| | N_c | n_{1s} | α_{1s} | n_{2s} | α_{2s} | n_{2p} | α_{2p} | n_{3s} | α_{3s} | n_{3p} | α_{3p} |
|-------------------|-------|----------|---------------|----------|---------------|----------|---------------|----------|---------------|----------|---------------|
| Ar | 17 | 2 | 23,85 | 2 | 6,67 | 6 | 11,195 | 2 | 1,89 | 5 | 2,7355 |
| Ar ⁺ | 16 | 2 | 23,85 | 2 | 6,67 | 6 | 11,195 | 2 | 1,89 | 4 | 2,842 |
| Ar ²⁺ | 15 | 2 | 23,85 | 2 | 6,67 | 6 | 11,195 | 2 | 1,89 | 3 | 3,2048 |
| Ar ³⁺ | 14 | 2 | 23,85 | 2 | 6,67 | 6 | 11,195 | 2 | 1,89 | 2 | 3,235 |
| Ar ⁴⁺ | 13 | 2 | 23,85 | 2 | 6,67 | 6 | 11,195 | 2 | 1,89 | 1 | 3,216 |
| Ar ⁵⁺ | 12 | 2 | 23,85 | 2 | 6,67 | 6 | 11,195 | 2 | 1,89 | 0 | - |
| Ar ⁶⁺ | 11 | 2 | 23,85 | 2 | 6,67 | 6 | 11,195 | 1 | 2,124 | 0 | - |
| Ar ⁷⁺ | 10 | 2 | 23,85 | 2 | 6,67 | 6 | 11,195 | 0 | - | 0 | - |
| Ar ⁸⁺ | 9 | 2 | 23,85 | 2 | 6,67 | 5 | 12,115 | 0 | - | 0 | - |
| Ar ⁹⁺ | 8 | 2 | 23,85 | 2 | 6,67 | 4 | 12,844 | 0 | - | 0 | - |
| Ar ¹⁰⁺ | 7 | 2 | 23,85 | 2 | 6,67 | 3 | 14,23 | 0 | - | 0 | - |
| Ar ¹¹⁺ | 6 | 2 | 23,85 | 2 | 6,67 | 2 | 13,785 | 0 | - | 0 | - |
| Ar ¹²⁺ | 5 | 2 | 23,85 | 2 | 6,67 | 1 | 13,45 | 0 | - | 0 | - |
| Ar ¹³⁺ | 4 | 2 | 23,85 | 2 | 6,67 | 0 | - | 0 | - | 0 | - |
| Ar ¹⁴⁺ | 3 | 2 | 23,85 | 1 | 7,90 | 0 | - | 0 | - | 0 | - |
| Ar ¹⁵⁺ | 2 | 2 | 23,85 | 0 | - | 0 | - | 0 | - | 0 | - |
| Ar ¹⁶⁺ | 1 | 1 | 35,10 | 0 | - | 0 | - | 0 | - | 0 | - |
| Ar ¹⁷⁺ | 0 | 0 | - | 0 | - | 0 | - | 0 | - | 0 | - |

TAB. 3.1 – Valeur des paramètres N_c , n_{il} et α_{il} pour le calcul du potentiel-modèle (éq. (3.14)) pour chaque état de charge Ar^{q+} .

3.1. Description approchée de la struc. élec. des atomes et des ions : Potentiel-modèle

| Niveau | $I_{P_{cal}}$ [eV] | $I_{P_{ref}}$ [eV] | ϵ_{rel} [%] | Transition $i \rightarrow j$ | $f_{ij_{cal}}$ | $f_{ij_{ref}}$ | ϵ_{rel} [%] |
|--------|--------------------|--------------------|----------------------|---------------------------------|----------------|----------------|----------------------|
| 3s | 142,7 | 142,7 | 0,01 | $3s \rightarrow 4p$ | 0,132 | 0,124 | 6,48 |
| 4s | 71,92 | 71,78 | 0,19 | $3p \rightarrow 4s$ | 0,081 | 0,088 | 7,95 |
| 4p | 65,76 | 65,29 | 0,72 | $3p \rightarrow 4d$ | 0,107 | 0,141 | 24,1 |
| 5p | 40,38 | 40,14 | 0,60 | $4s \rightarrow 5p$ | 0,129 | 0,117 | 10,3 |
| 5f | 34,90 | 34,92 | 0,06 | $4p \rightarrow 5s$ | 0,141 | 0,151 | 6,62 |
| 6s | 28,95 | 28,89 | 0,21 | $5s \rightarrow 6p$ | 0,132 | 0,117 | 12,8 |
| 6p | 27,31 | 27,18 | 0,48 | $5d \rightarrow 6p$ | 0,254 | 0,279 | 8,96 |
| 6d | 24,88 | 24,94 | 0,24 | $5f \rightarrow 6d$ | 0,052 | 0,056 | 7,14 |
| 6f | 24,24 | 24,24 | 0,03 | $6d \rightarrow 7p$ | 0,380 | 0,347 | 9,51 |
| 7s | 20,70 | 20,66 | 0,19 | $6d \rightarrow 7f$ | 0,564 | 0,542 | 4,06 |
| 7d | 18,21 | 18,25 | 0,22 | | | | |

TAB. 3.2 – Comparaison des niveaux d'énergie et des forces d'oscillateur obtenues avec le potentiel-modèle (éq. (3.14)) par rapport aux données de référence [Mendoza et al.] pour Ar^{7+} ($1s^2 2s^2 2p^6 nl$).

(en %) $\epsilon_{rel} = 100 \left| \frac{A_{cal} - A_{ref}}{A_{ref}} \right|$ des résultats obtenus par rapport aux données de référence (A représente soit le potentiel d'ionisation d'un niveau I_P , soit la force d'oscillateur d'une transition f_{ij}). Nous avons également utilisé l'approche du potentiel-modèle pour des ions en couches ouvertes, c'est à dire lorsque l'électron actif est sur une sous-couche comportant plusieurs électrons équivalents. Les tableaux 3.4 et 3.5 présentent les niveaux d'énergie et les forces d'oscillateur obtenues à l'aide du potentiel-modèle (3.14), les données de référence auxquelles ont été comparés nos résultats, et l'erreur relative ϵ_{rel} (en %) entre ces données pour les ions Ar^{8+} et Ar^{14+} .

Les faibles erreurs relatives obtenues, que ce soit pour les niveaux d'énergie ou pour les forces d'oscillateur, et pour des ions en couches ouvertes ou fermées, démontrent la fiabilité de l'approche potentiel-modèle. Nous avons par ailleurs vérifié que la structure électronique de tous les états de charge atteints au cours de l'interaction laser-agrégat est convenablement reproduite par cette approche. Par conséquent, nous avons utilisé le potentiel-modèle $V_{Ar^{q+}}(r)$ (éq. 3.14) pour inclure des états excités intermédiaires dans la dynamique d'ionisation de l'agregat.

| Niveau | I_{Pcal} [eV] | I_{Pref} [eV] | ϵ_{rel} [%] | Transition | f_{ijcal} | f_{ijref} | ϵ_{rel} [%] |
|--------|-----------------|-----------------|----------------------|---------------------|-------------|-------------|----------------------|
| 2p | 753,2 | 751,8 | 0,18 | $i \rightarrow j$ | | | |
| 3s | 328,6 | 330,2 | 0,48 | $2p \rightarrow 3s$ | 0,020 | 0,022 | 9,09 |
| 3p | 316,5 | 316,4 | 0,03 | $2p \rightarrow 3d$ | 0,619 | 0,650 | 4,77 |
| 4s | 179,7 | 179,8 | 0,06 | $3s \rightarrow 4p$ | 0,334 | 0,312 | 7,05 |
| 4d | 170,0 | 169,5 | 0,29 | $3d \rightarrow 4p$ | 0,019 | 0,018 | 5,56 |
| 4f | 167,4 | 166,9 | 0,30 | $3d \rightarrow 4f$ | 0,975 | 0,986 | 1,12 |
| 5s | 113,2 | 112,6 | 0,53 | $4s \rightarrow 5p$ | 0,365 | 0,312 | 16,9 |
| 5p | 110,7 | 110,1 | 0,54 | $5d \rightarrow 6p$ | 0,077 | 0,078 | 1,50 |
| 5g | 106,7 | 106,2 | 0,47 | $5f \rightarrow 6g$ | 1,160 | 1,136 | 2,11 |
| 6d | 75,05 | 74,91 | 0,19 | $6p \rightarrow 7d$ | 0,476 | 0,475 | 0,21 |
| 7s | 56,76 | 57,31 | 0,96 | $6d \rightarrow 7p$ | 0,111 | 0,110 | 0,91 |
| 7g | 54,45 | 54,62 | 0,31 | $7p \rightarrow 8d$ | 0,494 | 0,450 | 9,78 |
| 8p | 42,59 | 42,53 | 0,14 | $7d \rightarrow 8f$ | 0,727 | 0,723 | 0,55 |

TAB. 3.3 – Comparaison des niveaux d'énergie et des forces d'oscillateur obtenues avec le potentiel-modèle (ég. (3.14)) par rapport aux données de référence [Mendoza et al.] pour Ar^{13+} ($1s^2 2s^2 nl$).

| Niveau | I_{Pcal} [eV] | I_{Pref} [eV] | ϵ_{rel} [%] | Transition | f_{ijcal} | f_{ijref} | ϵ_{rel} [%] |
|--------|-----------------|-----------------|----------------------|---------------------|-------------|-------------|----------------------|
| 2p | 423,9 | 424,0 | 0,02 | $i \rightarrow j$ | | | |
| 3s | 168,8 | 168,4 | 0,24 | $2p \rightarrow 3d$ | 2,180 | 2,020 | 7,92 |
| 3d | 127,5 | 123,9 | 2,90 | $3s \rightarrow 4p$ | 0,161 | 0,146 | 10,3 |
| 4s | 86,81 | 86,55 | 0,30 | $3p \rightarrow 4d$ | 0,177 | 0,188 | 5,85 |
| 4d | 71,33 | 69,47 | 2,68 | $3d \rightarrow 4f$ | 0,928 | 0,960 | 3,33 |
| 5p | 49,74 | 49,51 | 0,46 | $4p \rightarrow 5s$ | 0,130 | 0,135 | 3,70 |
| 5f | 44,19 | 44,10 | 0,20 | $4d \rightarrow 5f$ | 0,723 | 0,687 | 5,24 |
| 6s | 35,55 | 35,60 | 0,14 | $5s \rightarrow 6p$ | 0,170 | 0,159 | 6,92 |
| 6p | 33,81 | 33,82 | 0,03 | $5p \rightarrow 6d$ | 0,111 | 0,135 | 17,8 |
| 6f | 30,68 | 30,68 | $5,3 \times 10^{-3}$ | $5d \rightarrow 6p$ | 0,222 | 0,205 | 8,29 |
| 7d | 22,99 | 23,99 | 0,05 | $6s \rightarrow 7p$ | 0,180 | 0,167 | 7,78 |
| 8s | 19,23 | 19,20 | 0,16 | $6p \rightarrow 7s$ | 0,241 | 0,251 | 3,98 |
| 9g | 13,60 | 13,61 | 0,09 | $7d \rightarrow 8p$ | 0,389 | 0,361 | 7,76 |

TAB. 3.4 – Comparaison des niveaux d'énergie et des forces d'oscillateur obtenues avec le potentiel-modèle (ég. (3.14)) par rapport aux données de référence [Mendoza et al.] pour Ar^{8+} ($1s^2 2s^2 2p^5 nl$).

| Niveau | I_{Pcal} [eV] | I_{Pref} [eV] | ϵ_{rel} [%] | Transition | f_{ijcal} | f_{ijref} | ϵ_{rel} [%] |
|--------|-----------------|-----------------|----------------------|---------------------|-------------|-------------|----------------------|
| 2s | 847,5 | 851,9 | 0,52 | $i \rightarrow j$ | | | |
| 2p | 811,0 | 798,0 | 1,63 | $2s \rightarrow 3p$ | 0,678 | 0,632 | 7,28 |
| 3d | 343,7 | 340,9 | 0,82 | $3p \rightarrow 4s$ | 0,047 | 0,042 | 11,9 |
| 4p | 196,0 | 196,4 | 0,20 | $3p \rightarrow 4d$ | 0,544 | 0,467 | 14,2 |
| 4f | 191,6 | 191,6 | 0,03 | $4p \rightarrow 5d$ | 0,522 | 0,518 | 0,77 |
| 5s | 127,1 | 126,5 | 0,47 | $4f \rightarrow 5g$ | 1,342 | 1,355 | 0,96 |
| 6d | 85,49 | 85,22 | 0,32 | $5s \rightarrow 6p$ | 0,442 | 0,412 | 7,28 |
| 6g | 85,05 | 84,98 | 0,08 | $6p \rightarrow 7s$ | 0,137 | 0,139 | 1,44 |
| 7p | 63,32 | 63,37 | 0,08 | $6f \rightarrow 7d$ | 0,047 | 0,049 | 4,08 |
| 8d | 48,02 | 48,08 | 0,12 | $7p \rightarrow 8d$ | 0,566 | 0,566 | 0,06 |
| 9s | 38,49 | 38,50 | 0,02 | $8d \rightarrow 9p$ | 0,150 | 0,155 | 3,23 |

TAB. 3.5 – Comparaison des niveaux d'énergie et des forces d'oscillateur obtenues avec le potentiel-modèle (éq. (3.14)) par rapport aux données de référence [Mendoza et al.] pour Ar^{14+} ($1s^2 2snl$).

3.2 Excitation ou ionisation d'une sous-couche multi-électronique : le modèle à électrons indépendants

L'approche potentiel-modèle décrite au paragraphe précédent ne prend en compte qu'un seul électron actif. Cependant, dans le cas d'ions en couches ouvertes, il existe plusieurs électrons sur la couche de valence. Afin de déterminer la probabilité d'excitation d'un de ces électrons, il est par conséquent nécessaire de prendre en compte la présence des autres électrons sur cette même couche. Pour ceci, nous avons suivi le formalisme du modèle à électrons indépendants.

Considérons un ion de charge Z comportant $p + k$ électrons tels que :

- p électrons constituent un coeur ionique en sous-couches fermées,
- k électrons sont répartis sur la couche de valence.

Le hamiltonien des k électrons de ce système s'écrit :

$$H = \sum_{i=1}^k \left(\frac{-\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\mathbf{r}_i}^2 - \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r_i} \right) + \sum_{\substack{j=1 \\ i < j}}^{p+k} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \quad (3.16)$$

En suivant l'approche potentiel-modèle, nous ne prenons en compte explicitement qu'un seul électron actif. L'interaction d'un électron de la couche de valence avec le coeur ionique (noyau + p électrons internes + $k - 1$ électrons) est alors représentée par un potentiel effectif. Nous supposons par ailleurs que les k électrons de la couche externe sont équivalents, c'est à dire que leurs fonctions d'onde sont gouvernées par le même

hamiltonien. Dans ce cas, le hamiltonien des k électrons se met sous la forme :

$$H' = \sum_{i=1}^k H_{mod}^{(i)} \quad (3.17)$$

où $H_{mod}^{(i)} = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\mathbf{r}_i}^2 + V_{mod}(r_i)$ est le hamiltonien de l'électron i (appartenant à la couche de valence) et $V_{mod}(r_i)$ est le potentiel-modèle représentant l'interaction de cet électron avec le noyau et les $p+k-1$ autres électrons. La fonction d'onde totale de ces k électrons peut alors s'écrire :

$$\Psi(\{\mathbf{r}_i\}, t) = \mathcal{A} \prod_{i=1}^k \varphi(\mathbf{r}_i, \mathbf{s}_i, t) \quad (3.18)$$

où \mathcal{A} est l'opérateur d'antisymétrisation et les spin-orbitales $\varphi(\mathbf{r}_i, \mathbf{s}_i, t)$ obéissent à l'équation de Schrödinger dépendante du temps :

$$\left(H_{mod}^{(i)} - i \frac{\partial}{\partial t} \right) \varphi(\mathbf{r}_i, \mathbf{s}_i, t) = 0 \quad (3.19)$$

Par souci de simplicité, considérons le processus d'excitation simple du système héliumöide Ar^{16+} dans son état fondamental (état para). La fonction d'onde spatiale finale (symétrique) des 2 électrons est :

$$\Phi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}} [\phi^{el}(\mathbf{r}_1) \phi^{exc}(\mathbf{r}_2) + \phi^{exc}(\mathbf{r}_1) \phi^{el}(\mathbf{r}_2)] \quad (3.20)$$

où $\phi^{exc}(\mathbf{r})$ est la fonction d'onde de l'électron ayant subi le processus d'excitation, et $\phi^{el}(\mathbf{r})$ la fonction d'onde de l'électron "spectateur" ayant subi une transition élastique. L'amplitude de transition de la fonction d'onde $\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, t)$ vers l'état asymptotique $\Phi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$ est :

$$\begin{aligned} a_{se}^{Ar^{16+}} &= \langle \Phi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) | \Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, t \rightarrow \infty) \rangle \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\langle \phi^{el}(\mathbf{r}_1) | \varphi(\mathbf{r}_1, t \rightarrow \infty) \rangle \langle \phi^{exc}(\mathbf{r}_2) | \varphi(\mathbf{r}_2, t \rightarrow \infty) \rangle + \right. \\ &\quad \left. + \langle \phi^{exc}(\mathbf{r}_1) | \varphi(\mathbf{r}_1, t \rightarrow \infty) \rangle \langle \phi^{el}(\mathbf{r}_2) | \varphi(\mathbf{r}_2, t \rightarrow \infty) \rangle \right] \end{aligned} \quad (3.21)$$

soit, en considérant l'amplitude d'excitation $a_{exc}^{Ar^{16+}} = \langle \phi^{exc}(\mathbf{r}) | \varphi(\mathbf{r}, t \rightarrow \infty) \rangle$ et l'amplitude de transition élastique $a_{el}^{Ar^{16+}} = \langle \phi^{el}(\mathbf{r}) | \varphi(\mathbf{r}, t \rightarrow \infty) \rangle$,

$$a_{se}^{Ar^{16+}} = \sqrt{2} a_{el}^{Ar^{16+}} a_{exc}^{Ar^{16+}} \quad (3.22)$$

Dans le cadre du modèle à électrons indépendants, la probabilité de simple excitation de l'ion Ar^{16+} est donc égale à :

$$P_{se}^{Ar^{16+}} = 2 P_{el}^{Ar^{16+}} P_{exc}^{Ar^{16+}} \quad (3.23)$$

3.3. Évaluation des sections d'excitation et d'ionisation : approches DWBA et PWBA

où P_{exc} est la probabilité d'exciter un électron et P_{el} la probabilité que le second électron subisse une transition élastique.

En pratique, les expériences n'ont accès qu'à la section efficace d'une réaction (excitation ou ionisation) pour laquelle un ou plusieurs électrons subissent une transition vers un état final particulier, alors que les transitions élastiques des électrons restants ne sont pas observées. Les probabilités inclusives de ces réactions ont été considérées par différents auteurs [McGuire *et al.* 77, Reading *et al.* 80]. La généralisation de l'expression (3.23) à un système à N électrons équivalents a été donnée par H. Lüdde and R. Dreizler [Lüdde *et al.* 83]. La création de t trous par excitation dans une couche comportant N électrons prend la forme :

$$P_t = \binom{N}{t} [P_{exc}]^t [P_{el}]^{N-t} \quad (3.24)$$

où P_{exc} est la probabilité d'excitation d'un électron. Dans le cadre de l'interaction laser-agrégat, où nous ne considérons qu'un seul électron actif, la probabilité d'excitation d'un électron d'une couche ouverte comportant k électrons est donc :

$$P_{se} = kP_{exc}[P_{el}]^{k-1} \quad (3.25)$$

Pour déterminer cette probabilité d'excitation, nous supposons de plus que la probabilité de transition élastique P_{el} des $k - 1$ autres électrons est égale à un. Cette hypothèse, bien que drastique, est cohérente avec la méthode employée pour déterminer les taux d'excitation collisionnels. En effet, ces taux sont déterminés à l'aide d'une description perturbative de l'interaction électron-ion (cf. section suivante). Par conséquent, dans ces conditions, les probabilités de transitions inélastiques sont nécessairement faibles contrairement aux probabilités de transitions élastiques, d'où $P_{el} \sim 1$. Le taux d'excitation collisionnel d'un électron sur une couche comprenant k électrons est donc :

$$W_{se} = kW_{exc} \quad (3.26)$$

où W_{exc} est le taux d'excitation calculé pour un unique électron sur la couche de valence. De la même façon, le taux d'ionisation collisionnel d'un électron sur une couche comprenant k électrons est :

$$W_{si} = kW_{ion} \quad (3.27)$$

où W_{ion} est le taux d'ionisation calculé pour un unique électron sur la couche de valence.

3.3 Évaluation des sections d'excitation et d'ionisation : approches DWBA et PWBA

Afin d'alléger les expressions obtenues, les calculs présentés dans cette section sont exprimés en unités atomiques ($m_e = \hbar = e = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} = 1$).

3.3.1 Théorie formelle des collisions. Développement de Born I

Afin de déterminer les sections efficaces d'excitation et d'ionisation, il est tout d'abord nécessaire d'effectuer quelques rappels de la théorie formelle des collisions. Soit un processus collisionnel tel que :



où l'interaction du projectile A avec la cible B , dans des états initiaux donnés, conduit à des produits de réaction C et D dans des états finaux donnés. L'interaction peut être intuitivement perçue comme la juxtaposition de 3 intervalles de temps distincts (cf. fig. 3.1).

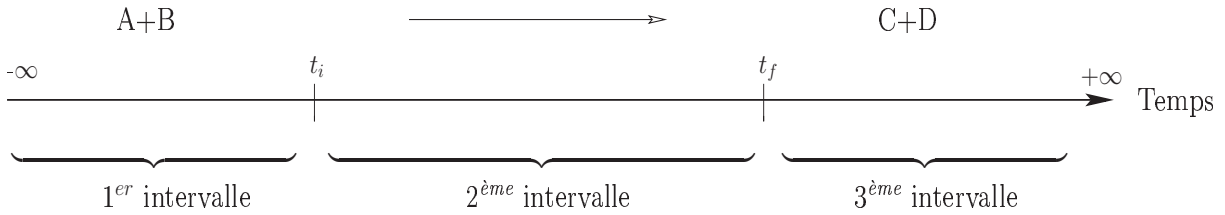


FIG. 3.1 – Schéma de la collision $A + B \longrightarrow C + D$. Mise en évidence des différents intervalles de temps correspondants à différentes phases de la collision.

Dans le premier intervalle, les particules A et B n'interagissent pas entre elles, le système est décrit par un hamiltonien H_i . Le processus collisionnel intervient au cours du deuxième intervalle; au hamiltonien initial s'ajoute alors un potentiel d'interaction V_i entre le projectile A et la cible B . Le temps t_i correspond à l'instant où la perturbation V_i devient effective. Enfin, dans le dernier intervalle de temps, les produits de réaction C et D n'interagissent plus et sont dans des états stationnaires, états propres d'un hamiltonien H_f . Il est également possible d'introduire un potentiel V_f entre les produits C et D lors de leur interaction au cours du deuxième intervalle; le temps t_f correspond alors à l'instant où ce potentiel s'annule. Le hamiltonien total H peut se mettre sous la forme :

$$H = H_i + V_i = H_f + V_f \quad (3.29)$$

Il est important de noter que cette image n'est vraie que dans le cas où les potentiels d'interaction V_i et V_f sont de courte portée. Par conséquent, dans cette section, nous décrivons la théorie formelle des collisions appliquée aux potentiels décroissant plus vite que $1/r$ (où r est la distance séparant les particules). Cette description n'est par conséquent pas appropriée pour les collisions électron-ion où l'interaction coulombienne a une portée infinie, mais nous verrons par la suite comment ce formalisme peut être adapté aux potentiels d'interaction de portée infinie.

Soit $\Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B)$ la fonction d'onde totale du système $A + B$ dans un état initial α donné. La fonction $\Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B)$ est solution de l'équation de Schrödinger $H_i \Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B) = E_\alpha \Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B)$. Cette fonction d'onde correspond à l'état initial asymptotique, c'est à dire lorsque le système n'est pas perturbé par le potentiel d'interaction V_i . L'évolution de cette fonction d'onde dans la zone d'interaction est définie par la fonction d'onde $\Psi_i^{\alpha+}(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B, t)$

où l'on a omis les exposants (\pm) dans T_{fi} car $\delta_{if}\delta_{\alpha\beta}$ et $\delta(E_\alpha - E_\beta)$ font que

$$\langle \Phi_f^\beta(\mathbf{r}_C, \mathbf{r}_D) | T_{fi}^+ | \Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B) \rangle = \langle \Phi_f^\beta(\mathbf{r}_C, \mathbf{r}_D) | T_{fi}^- | \Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B) \rangle \quad (3.35)$$

Nous pouvons remarquer que le premier terme de l'expression (3.34) ne contribue, de par les symboles de Kronecker, qu'à la probabilité par unité de temps de diffusion élastique.

D'un point de vue pratique, le taux $W_{if}^{\alpha\beta}$ n'a pas de réalité physique puisqu'il a trait à un unique état final du continu. Or, toute mesure expérimentale a une résolution finie symbolisée par un domaine de détection du détecteur \mathcal{D}_f . Ce domaine est caractérisée par un angle solide de détection $d\Omega_f$ et une résolution spectrale centrée sur un vecteur d'onde donné \mathbf{k}_f , soit $\mathcal{D}_f = d\Omega_f \cup dk_f$. Il nous faut alors calculer la probabilité par unité de temps de peupler la bande d'états centrée sur \mathbf{k}_f et de nombres quantiques définis par β :

$$\omega_{if}^{\alpha\beta} = \sum_{\beta} \int_{\mathbf{k}_f \in \mathcal{D}_f} d\mathbf{k}_f W_{if}^{\alpha\beta} \quad (3.36)$$

où la somme discrète porte sur les états internes du système.

Il est plus intéressant d'exprimer cette expression en fonction des énergies. Or les vecteurs d'ondes et les énergies sont reliées par la densité d'états $\rho(E_f)$ telle que :

$$d\mathbf{k}_f = k_f^2 dk_f d\Omega_f = \rho(E_f) dE_f d\Omega_f \quad (3.37)$$

si bien que l'on a pour une collision inélastique ($i \neq f, \alpha \neq \beta$) :

$$\omega_{if}^{\alpha\beta} = 2\pi \sum_{\beta} \int d\Omega_f \rho(E = E_\alpha = E_\beta) \left| \langle \Phi_f^\beta(\mathbf{r}_C, \mathbf{r}_D) | T_{fi} | \Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B) \rangle \right|^2 \quad (3.38)$$

Cette expression correspond à la règle d'or de Fermi [Joachain 75](p. 312). Nous pouvons de plus remarquer que l'égalité $E = E_\alpha = E_\beta$ traduit la conservation de l'énergie totale pour un système collisionnel isolé.

La section efficace totale s'obtient alors en divisant $\omega_{if}^{\alpha\beta}$ par le flux de particules incidentes. En exprimant la densité d'états non-relativiste $\rho(E_f) = \mu_f k_f$, on obtient finalement¹ :

$$\sigma = (2\pi)^4 \mu_i \mu_f \frac{k_f}{k_i} \sum_{\beta} \int d\Omega_f \left| \langle \Phi_f^\beta(\mathbf{r}_C, \mathbf{r}_D) | T_{fi} | \Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B) \rangle \right|^2 \quad (3.39)$$

où \mathbf{k}_i et \mathbf{k}_f sont les vecteurs d'onde des particules réduites initiale et finale dont les masses réduites sont respectivement $\mu_i = \frac{m_A m_B}{m_A + m_B}$ et $\mu_f = \frac{m_C m_D}{m_C + m_D}$.

À partir de cette expression, il est aisé de définir la section efficace différentielle en angles d'émission¹ :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega_f} = (2\pi)^4 \mu_i \mu_f \frac{k_f}{k_i} \sum_{\beta} \left| \langle \Phi_f^\beta(\mathbf{r}_C, \mathbf{r}_D) | T_{fi} | \Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B) \rangle \right|^2 \quad (3.40)$$

¹Le facteur $(2\pi)^4$ provient de la normalisation du flux de particules incidentes en $(2\pi)^{-3/2}$. Ce même facteur devra être appliquée à Φ_i^α , soit une normalisation en $\delta(\mathbf{k}_i - \mathbf{k}'_i)$.

En pratique, les calculs basés sur les expressions précédentes doivent faire l'objet de simplifications sachant que les éléments de matrice impliquant les fonctions de Green $G^\pm(E)$ sont en général difficiles à traiter. En introduisant les opérateurs de Green $G_c^\pm(E)$ (où $c \equiv i, f$) tels que :

$$G_c^\pm(E) = \lim_{\epsilon \rightarrow 0^+} \frac{1}{E - H_c \pm i\epsilon} \quad (3.41)$$

il est possible de réécrire les fonctions $\mathcal{G}^\pm(E)$ sous la forme :

$$\mathcal{G}^\pm(E) = G_c^\pm(E)[\mathbb{I} + V_c \mathcal{G}^\pm(E)] \quad (3.42)$$

Or, les éléments de matrice des opérateurs de transition T_{fi} intervenant dans les expressions des sections efficaces s'écrivent :

$$\langle \Phi_f^\beta(\mathbf{r}_C, \mathbf{r}_D) | T_{fi} | \Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B) \rangle = \langle \Phi_f^\beta(\mathbf{r}_C, \mathbf{r}_D) | V_f (\mathbb{I} + \mathcal{G}^+(E) V_i) | \Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B) \rangle \quad (3.43)$$

En procédant par itérations pour la fonction de Green, on obtient le développement en série de Born pour les éléments de matrice des opérateurs de transition :

$$\begin{aligned} \langle \Phi_f^\beta(\mathbf{r}_C, \mathbf{r}_D) | T_{fi} | \Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B) \rangle = & \\ & \left. \begin{aligned} & \langle \Phi_f^\beta(\mathbf{r}_C, \mathbf{r}_D) | V_f | \Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B) \rangle + \quad \left. \begin{array}{l} \text{Born I} \\ \text{Born II} \end{array} \right\} \\ & + \langle \Phi_f^\beta(\mathbf{r}_C, \mathbf{r}_D) | V_f G_i^+(E) V_i | \Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B) \rangle + \quad \left. \begin{array}{l} \\ \text{Born III} \end{array} \right\} \dots \\ & + \langle \Phi_f^\beta(\mathbf{r}_C, \mathbf{r}_D) | V_f G_i^+(E) V_i G_i^+(E) V_i | \Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B) \rangle + \\ & + \dots \end{aligned} \right\} \quad (3.44) \end{aligned}$$

L'approximation de Born au premier ordre consiste à ne retenir que le premier terme dans l'expression (3.44). Cette approximation est valable dans le régime perturbatif correspondant aux hautes énergies d'impact (par rapport à l'énergie de la transition considérée), c'est à dire lorsque les états asymptotiques sont peu distordus par le potentiel ($\Psi_i^{\alpha+}(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B, t) \sim \Phi_i^\alpha(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B)$).

3.3.2 Formalisme des ondes distordues. Application aux collisions électron-ion

La théorie formelle exposée jusqu'à présent n'est valable que dans le cadre de potentiels d'interaction à courte portée, condition nécessaire à la définition des zones asymptotiques initiales et finales. Dans le cas de potentiels coulombiens (à portée infinie), cette condition n'est plus respectée. Il est alors nécessaire de faire appel au formalisme des ondes

distordues. Celui-ci consiste à prendre en compte la portée infinie des potentiels $V_{i,f}$ dans les hamiltoniens asymptotiques $H_{i,f}$. Les potentiels d'interaction résultants sont alors de courte portée et la théorie formelle précédemment décrite peut être employée.

Prenons pour exemple un système où un projectile de charge Z_p (de masse m_p) interagit avec une cible composée d'un noyau de charge Z_t (de masse m_t) et d'un électron tel que présenté sur la figure 3.3.

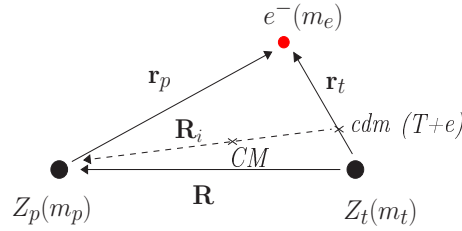


FIG. 3.3 – Représentation de la collision entre un projectile P (charge Z_p) et un ion hydrogénoïde (noyau de charge Z_t + électron). "CM" indique le centre de masse total du système et "cdm(T+e)" indique le centre de masse de la cible (noyau + électron).

Le hamiltonien de ce système s'écrit :

$$H = \frac{-1}{2\mu_p} \nabla_{\mathbf{R}_i}^2 - \frac{1}{2\mu_{te}} \nabla_{\mathbf{r}_t}^2 - \frac{Z_p}{r_p} - \frac{Z_t}{r_t} + \frac{Z_p Z_t}{R_i} \quad (3.45)$$

où $\mu_p = m_p(m_t + m_e)/(m_p + m_t + m_e)$ et $\mu_{te} = m_t m_e/(m_t + m_e)$ sont respectivement les masses réduites de la particule incidente et de la cible. Compte tenu de la différence de masse entre l'électron et le noyau cible, le centre de masse de la cible (noyau Z_t + électron) est assimilé à la position du noyau, par conséquent on a $\mathbf{R}_i \equiv \mathbf{R}$, \mathbf{r}_t correspond à la position de l'électron par rapport au noyau Z_t , et μ_{te} se réduit à la masse de l'électron m_e .

Dans la voie d'entrée (où l'électron est attaché à Z_t), nous pouvons donc décomposer le hamiltonien selon :

$$\begin{aligned} H &= H_i + V_i \\ &= \underbrace{\left[\frac{-1}{2\mu_p} \nabla_{\mathbf{R}}^2 - \frac{1}{2} \nabla_{\mathbf{r}_t}^2 - \frac{Z_t}{r_t} \right]}_{H_i} + \underbrace{\left[-\frac{Z_p}{r_p} + \frac{Z_p Z_t}{R} \right]}_{V_i} \end{aligned} \quad (3.46)$$

Le potentiel d'interaction V_i est de portée infinie puisque :

$$\lim_{\substack{R \rightarrow \infty \\ r_t \text{ fini}}} V_i = \frac{Z_p(Z_t - 1)}{R} \quad (3.47)$$

Dans le formalisme des ondes distordues, on décompose V_i selon :

$$V_i = \omega_i + v_i \quad (3.48)$$

de telle façon que ω_i contienne la composante longue portée de V_i , le potentiel résiduel v_i sera alors à courte portée. Soit :

$$\left\{ \begin{array}{l} \omega_i = \lim_{r_p \rightarrow R} V_i = \frac{Z_p(Z_t - 1)}{R} \end{array} \right. \quad (3.49a)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} v_i = V_i - \omega_i = \frac{-Z_p}{r_p} + \frac{Z_p}{R} \end{array} \right. \quad (3.49b)$$

On vérifie immédiatement que v_i est bien de courte portée : $\lim_{r_p \rightarrow R} v_i = 0$.

La nouvelle décomposition du hamiltonien telle que $H = (H_i + \omega_i) + v_i$ nous permet alors de faire l'analogie avec la théorie formelle des collisions présentée au paragraphe précédent.

Soient $\chi_i^{\alpha+}(\mathbf{R}, \mathbf{r}_t)$, les fonctions propres du hamiltonien $H_i + \omega_i$ (appelées ondes distordues). Nous pouvons alors définir les équations de Lippman-Schwinger pour les ondes distordues :

$$\left| \Psi_i^{\alpha+}(\mathbf{R}, \mathbf{r}_t, t) \right\rangle = \left\{ \mathbb{I} + \mathcal{G}^+(E_i)v_i \right\} \left| \chi_i^{\alpha+}(\mathbf{R}, \mathbf{r}_t) \right\rangle \quad (3.50a)$$

$$\left| \Psi_f^{\beta-}(\mathbf{R}, \mathbf{r}_t, t) \right\rangle = \left\{ \mathbb{I} + \mathcal{G}^-(E_f)v_f \right\} \left| \chi_f^{\beta-}(\mathbf{R}, \mathbf{r}_t) \right\rangle \quad (3.50b)$$

où l'on a introduit les fonctions d'onde $\chi_f^{\beta-}(\mathbf{R}, \mathbf{r}_t)$, fonctions propres du hamiltonien $H_f + \omega_f$.

Nous pouvons alors construire le développement en série de Born pour les ondes distordues. Et finalement, la section efficace totale dans l'approximation de Born I pour les ondes distordues s'écrit :

$$\sigma = (2\pi)^4 \mu_i \mu_f \frac{k_f}{k_i} \sum_{\beta} \int d\Omega_f \left| \left\langle \chi_f^{\beta-}(\mathbf{R}, \mathbf{r}_t) \left| v_i \right| \chi_i^{\alpha+}(\mathbf{R}, \mathbf{r}_t) \right\rangle \right|^2 \quad (3.51)$$

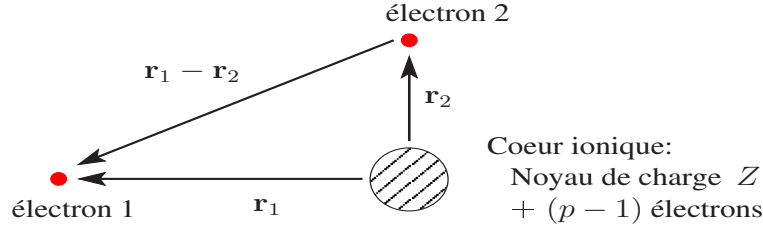
Au chapitre 2, nous avons vu que les collisions électron-ion jouent un rôle prépondérant dans la dynamique de l'interaction laser-agrégat. La détermination des taux d'excitation et d'ionisation requiert donc le calcul des sections efficaces de collision électron-ion pour chaque transition de chaque état de charge.

3.3.2.1 Section efficace totale d'excitation collisionnelle

Soit un système composé d'un électron incident d'énergie E_i interagissant avec un ion (ou un atome) composé d'un noyau de charge Z et de p électrons. En suivant l'approche potentiel-modèle présentée au paragraphe 3.1.1, nous considérons le processus d'excitation d'un unique électron actif sur la couche de valence. Les $p - 1$ autres électrons et le noyau constituent alors un coeur ionique. Le système peut être représenté par le schéma suivant :

Le hamiltonien correspondant à ce système s'écrit :

$$H = -\frac{1}{2} \nabla_{\mathbf{r}_1}^2 + V_{mod}(\mathbf{r}_1) - \frac{1}{2} \nabla_{\mathbf{r}_2}^2 + V_{mod}(\mathbf{r}_2) + V_{clb}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) \quad (3.52)$$



où $V_{clb}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) = \frac{1}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|}$ est le potentiel d'interaction coulombienne entre les deux électrons, et $V_{mod}(\mathbf{r})$ représente le potentiel d'interaction entre le coeur ionique et l'électron incident ou l'électron actif. Ce potentiel est déterminé suivant l'approche potentiel-modèle (éq. (3.13)). L'interaction entre l'électron incident et le coeur ionique étant de portée infinie, il est alors nécessaire d'avoir recours au formalisme des ondes distordues pour déterminer la section efficace d'excitation de l'électron 2. Le potentiel de distorsion choisi est le potentiel ressenti par l'électron libre lorsqu'il est très éloigné de la cible :

$$\begin{aligned} V_{dis}(r_1) &= \lim_{\substack{r_1 \rightarrow \infty \\ r_2 \text{ fini}}} [V_{mod}(r_1) + V_{clb}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|)] \\ &= V_{mod}(r_1) + V_{clb}(r_1) \end{aligned} \quad (3.53)$$

où $V_{clb}(r_1) = 1/r_1$. Le hamiltonien total peut alors être réécrit sous la forme :

$$H = \underbrace{-\frac{1}{2}\nabla_{\mathbf{r}_1}^2 - \frac{1}{2}\nabla_{\mathbf{r}_2}^2 + V_{mod}(r_2) + V_{dis}(r_1)}_{H_i} + \underbrace{V_{clb}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) - V_{dis}(r_1) + V_{mod}(r_1)}_{v_i} \quad (3.54)$$

L'expression du potentiel v_i se simplifie. Celui-ci vaut finalement :

$$v_i = V_{clb}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) - V_{clb}(r_1) \quad (3.55)$$

et l'on vérifie aisément que ce potentiel est à courte portée :

$$\lim_{\substack{r_1 \rightarrow \infty \\ r_2 \text{ fini}}} v_i = 0 \quad (3.56)$$

Nous pouvons de plus noter que, dans le cas de l'excitation, le hamiltonien total se décompose de la même façon dans les voies initiale et finale ; on a alors $v_i = v_f$ et $H_i = H_f = H_0$.

D'après la théorie formelle des collisions, la section efficace d'excitation peut alors être déterminée à condition de connaître les fonctions propres initiale et finale du hamiltonien H_0 . Cet hamiltonien étant la somme d'opérateurs à un corps, ses fonctions propres peuvent se mettre sous la forme d'un produit de fonctions de chacune des coordonnées \mathbf{r}_1 et \mathbf{r}_2 . Considérons une transition d'un état a de nombre quantiques $n_a l_a m_a$ et d'énergie $E_a < 0$ vers un état b ($n_b l_b m_b$, E_b). Les fonctions d'onde liées sont solutions de l'équation de Schrödinger :

$$H_{lié}\phi_{a,b}(\mathbf{r}) = \left[-\frac{1}{2}\nabla_{\mathbf{r}}^2 + V_{mod}(r) \right] \phi_{a,b}(\mathbf{r}) = E_{a,b}\phi_{a,b}(\mathbf{r}) \quad (3.57)$$

Elles sont déterminées numériquement à l'aide d'une base d'orbitales de type Slater $S_j^{(l)}(\mathbf{r}) = \mathcal{N}_j r^l e^{-a_j r} Y_l^m(\theta, \varphi)$ (STO, cf. annexe B). La diagonalisation du hamiltonien $H_{lié}$

3.3. Évaluation des sections d'excitation et d'ionisation : approches DWBA et PWBA

sur cette base permet, pour une énergie propre donnée $E_{a,b}$, d'obtenir la fonction propre correspondante :

$$\phi_{a,b}(\mathbf{r}) = \sum_{j=0}^{j_{max}} C_j^{E_{a,b}} S_j^{(l)}(\mathbf{r}) \quad (3.58)$$

Les paramètres a_j des orbitales de type Slater, qui peuvent être différents selon la symétrie orbitale l considérée, varient selon la série géométrique $a_j = a_0 b^j$ avec $0 \leq j \leq j_{max}$. Nous avons vérifié que la base définie par $\{a_0 = 0,001; b = 1,3; j_{max} = 41\}$ permet de déterminer les fonctions d'onde avec une très bonne précision (cf. paragraphe 3.1.2).

Les fonctions d'onde libres de l'électron incident et diffusé, respectivement notées $\psi_{\mathbf{k}_i}^+(\mathbf{r})$ et $\psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r})$ eu égard aux vecteurs d'onde initial et final \mathbf{k}_i et \mathbf{k}_f , sont fonctions propres du hamiltonien :

$$H_{libre} = -\frac{1}{2}\nabla_{\mathbf{r}}^2 + V_{mod}(r) + V_{clb}(r) \quad (3.59)$$

et décrivent un électron libéré dans le champ du potentiel $U(r) = V_{mod}(r) + V_{clb}(r)$. D'après la forme du potentiel-modèle (éq. (3.13)), le potentiel $U(r)$ peut s'écrire sous la forme d'un potentiel coulombien modifié :

$$U(r) = -\frac{(Z-p)}{r} + V_{corr}(r) \quad (3.60)$$

Le premier terme correspond à une représentation simple selon laquelle l'électron libre ressent le potentiel du noyau de charge Z écranté par les p charges négatives. Le potentiel $V_{corr}(r)$ traduit la correction apportée par le potentiel-modèle à cette description élémentaire. Il est important de noter que le potentiel $V_{corr}(r)$ est à courte portée puisque il fait intervenir des termes en exponentielle décroissante.

Le potentiel $U(r)$ étant un potentiel central, les fonctions d'onde $\psi_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f}^{\pm}(\mathbf{r})$ peuvent être développées en série de polynômes de Legendre. Il faut cependant être attentif aux notions d'onde "sortante" et d'onde "entrante" :

La fonction d'onde de l'électron incident est définie comme une onde "sortante". En effet, l'électron interagit avec le potentiel $U(r)$. Il s'ensuit un mouvement de diffusion (\equiv collisions élastiques) qui entraîne l'apparition d'ondes sortantes. À contrario, suivant la théorie formelle des collisions, la fonction d'onde finale de l'électron libre $\psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r})$ est définie en "remontant" le temps ($t : +\infty \rightarrow -\infty$). On comprend alors que les ondes diffusées deviennent entrantes, la fonction d'onde de l'électron libre après interaction avec le potentiel diffuseur est ainsi définie comme une onde "entrante".

En utilisant le développement en ondes partielles (cf. annexe C), ces fonctions d'onde peuvent alors se mettre sous la forme :

$$\psi_{\mathbf{k}_i}^+(\mathbf{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \frac{1}{k_i r} \sum_{l_i=0}^{\infty} (2l_i + 1) i^{l_i} e^{i\delta_{l_i}} u_{l_i}(k_i, r) P_{l_i}(\cos \theta_i) \quad (3.61a)$$

$$\psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \frac{1}{k_f r} \sum_{l_f=0}^{\infty} (2l_f + 1) i^{l_f} e^{-i\delta_{l_f}} u_{l_f}(k_f, r) P_{l_f}(\cos \theta_f) \quad (3.61b)$$

où $E_{i,f} = k_{i,f}^2/2$ est l'énergie associée à l'électron incident ou diffusé. Les angles $\theta_{i,f}$ sont définis entre le vecteur \mathbf{r} et les vecteurs d'onde $\mathbf{k}_{i,f}$. Le déphasage δ_l peut s'écrire :

$$\delta_l = \sigma_l + \hat{\delta}_l \quad (3.62)$$

où σ_l est le déphasage obtenu dans un cas purement coulombien tel que :

$$\sigma_l = \arg \Gamma(l + 1 + i\eta) \quad (3.63)$$

$$\text{avec } \eta = -\frac{(Z - p)}{k} \quad (3.64)$$

et $\hat{\delta}_l$ est un déphasage additionnel dû au potentiel $V_{corr}(r)$.

En pratique, la base d'orbitales de type Slater n'est pas adaptée au calcul de ces parties radiales. En effet, afin de reproduire le comportement oscillatoire des fonctions du continuum, il serait nécessaire d'utiliser un très grand nombre de fonctions de base. Pour déterminer les fonctions d'onde de l'électron incident et diffusé, nous avons eu recours à la méthode des ondes partielles. Les parties radiales $u_l(k, r)$ sont déterminés numériquement à l'aide d'un algorithme de Numerov² sachant que $u_l(k, r)$ est régulière à l'origine (soit $\lim_{r \rightarrow 0} u_l(k, r) \sim r^{l+1}$). Ces parties radiales peuvent de plus se mettre sous la forme (cf. annexe C) :

$$u_l(k, r) = B_l(k)F_l(k, r) + C_l(k)G_l(k, r) \quad (3.65)$$

où $F_l(k, r)$ et $G_l(k, r)$ sont les fonctions coulombiennes régulière et irrégulière. Le déphasage additionnel $\hat{\delta}_l$ est alors défini selon :

$$\begin{cases} \cos \hat{\delta}_l = \frac{B_l(k)}{[B_l(k)^2 + C_l(k)^2]^{1/2}} \\ \sin \hat{\delta}_l = \frac{-C_l(k)}{[B_l(k)^2 + C_l(k)^2]^{1/2}} \end{cases} \quad (3.66)$$

Enfin, les fonctions d'ondes étant normalisées à $\delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}')$, les parties radiales doivent être normalisées de telle façon que l'on ait :

$$\lim_{r \rightarrow \infty} u_l(k, r) = \sin \left(kr - \frac{l\pi}{2} - \eta \ln 2kr + \delta_l \right) \quad (3.67)$$

où η est défini selon l'expression (3.64).

Connaissant les fonctions propres initiale $\chi_i^{\alpha+}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$ et finale $\chi_f^{\beta-}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$ du hamiltonien H_0 , nous pouvons alors déterminer la section efficace d'excitation de l'électron lié. En supposant que le potentiel v_i est une perturbation par rapport au hamiltonien H_0 , la section totale d'excitation de l'électron lié de l'état a ($n_a l_a m_a$) vers l'état b ($n_b l_b m_b$) dans l'approximation de Born I s'écrit :

$$\sigma_{ab} = (2\pi)^4 \frac{k_f}{k_i} \sum_{\beta} \int d\Omega_f |T_{ab}|^2 \quad (3.68)$$

²Il est également possible d'utiliser une base de fonctions de Bessel sphériques, ce qui permet de déterminer à la fois les fonctions d'onde liées et les fonctions du continuum [Pons 00].

où la somme sur β court sur tout les états finaux tels que l'énergie initiale totale du système soit conservée au cours de la réaction.

Les électrons étant des particules indiscernables, ils doivent respecter le principe d'exclusion de Pauli selon lequel deux fermions ne peuvent occuper le même état quantique. Afin de prendre en compte ce principe, la fonction d'onde totale des deux électrons doit par conséquent être antisymétrique. Cette fonction correspond au produit d'une fonction d'onde spatiale par une fonction de spin. Sachant que dans notre étude, nous ne cherchons pas à différencier les états de spin des deux électrons, deux cas peuvent alors se présenter :

i) La fonction de spin est antisymétrique (état singulet) ; la fonction d'onde spatiale doit alors être symétrique³ :

$$\chi_{i,f}^{sing.}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\phi_{a,b}(\mathbf{r}_2) \psi_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f}^{\pm}(\mathbf{r}_1) + \phi_{a,b}(\mathbf{r}_1) \psi_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f}^{\pm}(\mathbf{r}_2) \right] \quad (3.69)$$

Le potentiel d'interaction v_i étant indépendant du spin, l'élément de matrice de transition dans l'approximation DWBA (pour "*Distorted-Wave Born Approximation*") s'écrit :

$$T_{ab}^{sing.} = \left\langle \chi_f^{sing.}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \left| v_i \right| \chi_i^{sing.}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \right\rangle \quad (3.70)$$

L'élément de matrice de transition peut être séparé en deux composantes :

$$T_{ab}^{sing.} = T_{ab}^d + T_{ab}^e \quad (3.71)$$

où T_{ab}^d et T_{ab}^e sont tels que :

$$T_{ab}^d = \left\langle \psi_{\mathbf{k}_f}^{-}(\mathbf{r}_1) \phi_b(\mathbf{r}_2) \left| V_{clb}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) - V_{clb}(r_1) \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \psi_{\mathbf{k}_i}^{+}(\mathbf{r}_1) \right\rangle \quad (3.72a)$$

$$T_{ab}^e = \left\langle \psi_{\mathbf{k}_f}^{-}(\mathbf{r}_2) \phi_b(\mathbf{r}_1) \left| V_{clb}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) - V_{clb}(r_1) \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \psi_{\mathbf{k}_i}^{+}(\mathbf{r}_1) \right\rangle \quad (3.72b)$$

Le terme T_{ab}^d correspond à une transition "directe" : l'électron 2 subissant la transition est l'électron lié avant et après la collision. La seconde composante T_{ab}^e peut être considérée classiquement comme l'échange des deux électrons au cours de la collision : l'électron 1 incident devient l'électron lié dans l'état b alors que l'électron 2 est libre après la collision.

ii) La fonction de spin est symétrique (état triplet) ; la fonction d'onde spatiale doit alors être antisymétrique³ :

$$\chi_{i,f}^{trip.}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\phi_{a,b}(\mathbf{r}_2) \psi_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f}^{\pm}(\mathbf{r}_1) - \phi_{a,b}(\mathbf{r}_1) \psi_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f}^{\pm}(\mathbf{r}_2) \right] \quad (3.73)$$

L'élément de matrice de transition pour une fonction d'onde spatiale antisymétrique s'écrit alors :

$$T_{ab}^{trip.} = T_{ab}^d - T_{ab}^e \quad (3.74)$$

où les éléments de matrice de transition direct et d'échange sont définis par les équations (3.72).

³Le facteur $2^{-1/2}$ provient de la normalisation de la fonction de spin à 1, de telle façon que la fonction d'onde totale soit normalisée à $\delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}')$.

Évaluation de l'élément de matrice de transition direct

Dans le cas d'une transition directe, où l'électron 1 est l'électron incident et diffusé, l'élément de matrice de transition intervenant dans le calcul de la section efficace s'écrit :

$$T_{ab}^d = \left\langle \psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r}_1) \phi_b(\mathbf{r}_2) \left| V_{clb}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) - V_{clb}(r_1) \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \psi_{\mathbf{k}_i}^+(\mathbf{r}_1) \right\rangle \quad (3.75)$$

Considérons le potentiel de transition $V_T^d(ab; \mathbf{r}_1)$ tel que :

$$V_T^d(ab; \mathbf{r}_1) = \left\langle \phi_b(\mathbf{r}_2) \left| V_{clb}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) - V_{clb}(r_1) \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \right\rangle \quad (3.76)$$

L'interaction entre les deux électrons étant purement coulombienne et les fonctions d'onde initiale et finale de l'électron lié étant orthogonales, ce potentiel de transition s'écrit :

$$V_T^d(ab; \mathbf{r}_1) = \left\langle \phi_b(\mathbf{r}_2) \left| \frac{1}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \right\rangle \quad (3.77)$$

Le potentiel coulombien peut être développé en multipôles selon :

$$\frac{1}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} = \sum_{\lambda=0}^{\infty} \sum_{m_\lambda=-\lambda}^{\lambda} \frac{4\pi}{2\lambda+1} \frac{r_{<}^\lambda}{r_{>^{\lambda+1}}} Y_{\lambda}^{m_\lambda*}(\theta_{\mathbf{r}_1}, \varphi_{\mathbf{r}_1}) Y_{\lambda}^{m_\lambda}(\theta_{\mathbf{r}_2}, \varphi_{\mathbf{r}_2}) \quad (3.78)$$

où $r_{>} = \max(r_1, r_2)$ et $r_{<} = \min(r_1, r_2)$. En écrivant les fonctions d'onde liées sous la forme

$$\phi_{a,b}(\mathbf{r}_2) = R_{a,b}(r_2) Y_{l_{a,b}}^{m_{a,b}}(\theta_{\mathbf{r}_2}, \varphi_{\mathbf{r}_2}) \quad (3.79)$$

le potentiel de transition se réduit à :

$$V_T^d(ab; \mathbf{r}_1) = \sum_{\lambda=|l_a-l_b|}^{l_a+l_b} \left[\frac{4\pi}{2\lambda+1} \right]^{1/2} (-1)^{m_b} \mathcal{A}_{l_a l_b}^\lambda \mathcal{V}_\lambda(ab; r_1) Y_{\lambda}^{m_\lambda*}(\theta_{\mathbf{r}_1}, \varphi_{\mathbf{r}_1}) \quad (3.80)$$

où

$$\mathcal{A}_{l_a l_b}^\lambda = [(2l_a+1)(2l_b+1)]^{1/2} \begin{pmatrix} l_a & l_b & \lambda \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_a & l_b & \lambda \\ m_a & -m_b & m_\lambda \end{pmatrix} \quad (3.81)$$

et

$$\mathcal{V}_\lambda(ab; r_1) = \frac{1}{r_1^{\lambda+1}} \int_0^{r_1} dr_2 r_2^{2+\lambda} R_b(r_2) R_a(r_2) + r_1^\lambda \int_{r_1}^{\infty} dr_2 r_2^{1-\lambda} R_b(r_2) R_a(r_2) \quad (3.82)$$

Les coefficients $\begin{pmatrix} l_1 & l_2 & l_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix}$ représentent les symboles $3j$ de Wigner, reliés au coefficients de Clebsch-Gordan par :

$$\begin{pmatrix} l_1 & l_2 & l_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} = \frac{(-1)^{l_1-l_2-m_3}}{\sqrt{2l_3+1}} \langle l_1 l_2 m_1 m_2 | l_3 - m_3 \rangle \quad (3.83)$$

Pour avoir $\mathcal{A}_{l_a l_b}^\lambda \neq 0$, les règles de sélection imposent :

$$\begin{cases} l_a + l_b + \lambda \text{ pair} \\ |l_a - l_b| \leq \lambda \leq l_a + l_b \\ m_\lambda = m_b - m_a \end{cases} \quad (3.84)$$

L'élément de matrice de transition T_{ab}^d peut alors se mettre sous la forme :

$$T_{ab}^d = \left\langle \psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r}_1) \left| V_T^d(ab; \mathbf{r}_1) \right| \psi_{\mathbf{k}_i}^+(\mathbf{r}_1) \right\rangle \quad (3.85)$$

Les fonctions d'onde incidente et diffusée sont décomposées en ondes partielles (cf. éq. (3.61)). Les angles $\theta_{i,f}$ intervenant dans les polynômes de Legendre correspondent aux angles entre les vecteurs \mathbf{r}_1 et les impulsions \mathbf{k}_i et \mathbf{k}_f respectivement. À l'aide du théorème d'addition des harmoniques sphériques tel que :

$$P_{l_{i,f}}(\cos \theta_{i,f}) = \frac{4\pi}{2l_{i,f} + 1} \sum_{m_{i,f}=-l_{i,f}}^{l_{i,f}} Y_{l_{i,f}}^{m_{i,f}*}(\theta_{\mathbf{k}_{i,f}}, \varphi_{\mathbf{k}_{i,f}}) Y_{l_{i,f}}^{m_{i,f}}(\theta_{\mathbf{r}_1}, \varphi_{\mathbf{r}_1}) \quad (3.86)$$

et en plaçant le repère de telle façon que l'impulsion de l'électron incident soit le long de l'axe z (on a alors $m_i = 0$ et $Y_{l_i}^0(0,0) = \left[\frac{2l_i+1}{4\pi}\right]^{1/2}$), l'élément de matrice de transition direct prend la forme :

$$T_{ab}^d = \frac{1}{\pi^{3/2}} \frac{(-1)^{m_b}}{k_i k_f} \sum_{l_i=0}^{\infty} \sum_{\lambda=|l_a-l_b|}^{l_a+l_b} \mathcal{A}_{l_a l_b}^{\lambda} \sum_{l_f=|l_i-\lambda|}^{l_i+\lambda} i^{l_i-l_f} e^{i(\delta_{l_i}+\delta_{l_f})} \mathcal{B}_{l_i l_f}^{\lambda} \mathcal{R}_{l_i l_f}^{\lambda} Y_{l_f}^{m_f}(\theta_{\mathbf{k}_f}, \varphi_{\mathbf{k}_f}) \quad (3.87)$$

où $\mathcal{A}_{l_a l_b}^{\lambda}$ est défini par l'expression (3.81) et

$$\mathcal{B}_{l_i l_f}^{\lambda} = (2l_i + 1)(2l_f + 1)^{1/2} \begin{pmatrix} l_i & l_f & \lambda \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_i & l_f & \lambda \\ 0 & -m_f & -m_{\lambda} \end{pmatrix} \quad (3.88)$$

$$\mathcal{R}_{l_i l_f}^{\lambda} = \int_0^{\infty} dr_1 u_{l_f}(k_f, r_1) \mathcal{V}_{\lambda}(ab; r_1) u_{l_i}(k_i, r_1) \quad (3.89)$$

Les règles de sélection des coefficients $3j$ imposent :

$$\begin{cases} l_i + l_f + \lambda \text{ pair} \\ |l_i - \lambda| \leq l_f \leq l_i + \lambda \\ m_f = -m_{\lambda} \end{cases} \quad (3.90)$$

Évaluation de l'élément de matrice de transition échange

Lorsque l'on considère l'échange des deux électrons au cours de la collision, l'élément de matrice de transition s'écrit :

$$T_{ab}^e = \left\langle \psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r}_2) \phi_b(\mathbf{r}_1) \left| V_{clb}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) - V_{clb}(r_1) \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \psi_{\mathbf{k}_i}^+(\mathbf{r}_1) \right\rangle \quad (3.91)$$

On définit le potentiel de transition $V_T^e(ab; \mathbf{r}_1)$ dans le cas coulombien tel que :

$$V_T^e(af; \mathbf{r}_1) = \left\langle \psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r}_2) \left| \frac{1}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \right\rangle - \left\langle \psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r}_2) \left| \frac{1}{r_1} \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \right\rangle \quad (3.92)$$

$$\text{soit } V_T^e(af; \mathbf{r}_1) = V_T^{e(1)}(af; \mathbf{r}_1) - V_T^{e(2)}(af; \mathbf{r}_1)$$

En suivant le même raisonnement que dans le cas direct, la décomposition en ondes partielles de la fonction d'onde libre $\psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r}_2)$ (éq. (3.61b)) et le développement multipolaire

du potentiel coulombien (éq. (3.78)) permettent d'exprimer le premier terme du potentiel de transition sous la forme :

$$V_T^{e(1)}(af; \mathbf{r}_1) = \frac{2^{3/2}}{k_f} \sum_{\lambda} \sum_{m_{\lambda}=-\lambda}^{\lambda} \frac{1}{(2\lambda+1)^{1/2}} \sum_{l_f=|l_a-\lambda|}^{l_a+\lambda} Y_{l_f}^{m_f}(\theta_{\mathbf{k}_f}, \varphi_{\mathbf{k}_f}) \times \quad (3.93)$$

$$\times (-1)^{m_f} i^{-l_f} e^{i\delta_{l_f}} \mathcal{A}_{l_a l_f}^{\lambda} \mathcal{V}_{\lambda}(af; r_1) Y_{\lambda}^{m_{\lambda}*}(\theta_{\mathbf{r}_1}, \varphi_{\mathbf{r}_1})$$

où

$$\mathcal{A}_{l_a l_f}^{\lambda} = [(2l_a+1)(2l_f+1)]^{1/2} \begin{pmatrix} l_a & \lambda & l_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_a & \lambda & l_f \\ m_a & m_{\lambda} & -m_f \end{pmatrix} \quad (3.94)$$

et

$$\mathcal{V}_{\lambda}(af; r_1) = \frac{1}{r_1^{\lambda+1}} \int_0^{r_1} dr_2 r_2^{1+\lambda} u_{l_f}(k_f, r_2) R_a(r_2) + r_1^{\lambda} \int_{r_1}^{\infty} dr_2 \frac{1}{r_2^{\lambda}} u_{l_f}(k_f, r_2) R_a(r_2) \quad (3.95)$$

Pour avoir $\mathcal{A}_{l_a l_f}^{\lambda} \neq 0$, les règles de sélection des coefficients $3j$ imposent :

$$\begin{cases} l_a + l_f + \lambda \text{ pair} \\ |l_a - \lambda| \leq l_f \leq l_a + \lambda \\ m_f = m_a + m_{\lambda} \end{cases} \quad (3.96)$$

Les fonctions d'ondes $\psi_{\mathbf{k}_f}^{-}(\mathbf{r}_2)$ et $\phi_a(\mathbf{r}_2)$ n'étant pas fonctions propres du même hamiltonien, elles ne sont pas orthogonales. Le second terme du potentiel de transition est donc non nul et vaut :

$$V_T^{e(2)}(af; \mathbf{r}_1) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{1}{r_1 k_f} i^{-l_a} e^{i\delta_{l_a}} Y_{l_a}^{m_a}(\theta_{\mathbf{k}_f}, \varphi_{\mathbf{k}_f}) \int_0^{\infty} dr_2 r_2 u_{l_a}(k_f, r_2) R_a(r_2) \quad (3.97)$$

où δ_{l_a} est le déphasage calculé pour une impulsion k_f et un moment angulaire l_a .

L'élément de matrice de transition dans le cas de l'échange s'écrit alors :

$$T_{ab}^e = \langle \phi_b(\mathbf{r}_1) | V_T^{e(1)}(af; \mathbf{r}_1) | \psi_{\mathbf{k}_i}^+(\mathbf{r}_1) \rangle - \langle \phi_b(\mathbf{r}_1) | V_T^{e(2)}(af; \mathbf{r}_1) | \psi_{\mathbf{k}_i}^+(\mathbf{r}_1) \rangle \quad (3.98)$$

$$\text{soit } T_{ab}^e = T_{ab}^{e(1)} - T_{ab}^{e(2)}$$

À l'aide du développement en ondes partielles de l'onde libre incidente (éq. (3.61a)), le premier terme de l'expression (3.72b) prend la forme :

$$T_{ab}^{e(1)} = \frac{1}{\pi^{3/2}} \frac{(-1)^{m_a-m_b}}{k_i k_f} \sum_{l_i=0}^{\infty} \sum_{\lambda=|l_i-l_b|}^{l_i+l_b} \mathcal{A}_{l_a l_f}^{\lambda} \sum_{l_f=|l_a-\lambda|}^{l_a+\lambda} i^{l_i-l_f} e^{i(\delta_{l_i}+\delta_{l_f})} \mathcal{B}_{l_i l_b}^{\lambda} \mathcal{R}_{l_i l_b}^{\lambda} Y_{l_f}^{m_f}(\theta_{\mathbf{k}_f}, \varphi_{\mathbf{k}_f}) \quad (3.99)$$

où $\mathcal{A}_{l_a l_f}^{\lambda}$ est défini par l'expression (3.94) et

$$\mathcal{B}_{l_i l_b}^{\lambda} = (2l_i+1)(2l_b+1)^{1/2} \begin{pmatrix} l_i & l_b & \lambda \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_i & l_b & \lambda \\ 0 & -m_b & -m_{\lambda} \end{pmatrix} \quad (3.100)$$

$$\mathcal{R}_{l_i l_b}^{\lambda} = \int_0^{\infty} dr_1 r_1 R_b(r_1) \mathcal{V}_{\lambda}(af; r_1) u_{l_i}(k_i, r_1) \quad (3.101)$$

Les règles de sélection imposent :

$$\begin{cases} l_i + l_b + \lambda \text{ pair} \\ |l_i - l_b| \leq \lambda \leq l_i + l_b \\ m_\lambda = -m_b \end{cases} \quad (3.102)$$

Suivant le même raisonnement, le second terme de l'élément de matrice de transition $T_{ab}^{e(2)}$ s'écrit :

$$\begin{aligned} T_{ab}^{e(2)} = & \frac{1}{\pi^{3/2}} \frac{1}{k_i k_f} (2l_b + 1)^{1/2} i^{l_b - l_a} e^{i(\delta_{l_b} + \delta_{l_a})} Y_{l_a}^{m_a}(\theta_{\mathbf{k}_f}, \varphi_{\mathbf{k}_f}) \delta_{0m_b} \times \\ & \times \int_0^\infty dr_1 u_{l_b}(k_i, r_1) R_b(r_1) \int_0^\infty dr_2 r_2 u_{l_a}(k_f, r_2) R_a(r_2) \end{aligned} \quad (3.103)$$

où δ_{l_b} est le déphasage calculé pour une impulsion k_i et un moment angulaire l_b et δ_{l_a} est le déphasage calculé pour une impulsion k_f et un moment angulaire l_a . Le symbole de Kronecker δ_{0m_b} indique que ce terme est non nul uniquement si le moment magnétique de l'état lié final est nul.

Section efficace totale d'excitation collisionnelle $n_a l_a \rightarrow n_b l_b$ pour une couche multiélectronique

Pour déterminer la section efficace de transition de l'état a de nombres quantiques $n_a l_a m_a$ vers l'état b de nombres quantiques $n_b l_b m_b$, nous considérons les états de spins différents comme étant dégénérés. Compte tenu du fait qu'il existe trois états de spin symétriques et un état de spin antisymétrique, la probabilité d'obtenir un état triplet est trois fois plus importante que celle d'obtenir un état singulet. Par conséquent, la section efficace d'excitation de l'état a vers l'état b s'écrit :

$$\sigma_{ab} = (2\pi)^4 \frac{k_f}{k_i} \int d\Omega_f \left[\frac{1}{4} |T_{ab}^d + T_{ab}^e|^2 + \frac{3}{4} |T_{ab}^d - T_{ab}^e|^2 \right] \quad (3.104)$$

De plus, sachant que nous ne prenons pas en compte la structure fine atomique, la dégénérescence des états finaux m_b conduit à simplement sommer les sections sur ces différents niveaux pour obtenir la section vers un état $n_b l_b$. Pour déterminer la section d'excitation à partir d'un état $n_a l_a$, il est nécessaire de moyenner sur les différents sous-états m_a initiaux. Ces états étant dégénérés, l'équirépartition des populations conduit à une section moyenne telle que :

$$\sigma_{n_a l_a \rightarrow n_b l_b} = \frac{1}{g_{n_a l_a}} \sum_{m_a} \sum_{m_b} \sigma_{ab} \quad (3.105)$$

où $g_{n_a l_a} = 2l_a + 1$ désigne la dégénérescence en m de l'état initial.

L'expression précédente permet de déterminer la section efficace totale d'excitation d'un électron. Cependant, si cet électron se situe sur une sous-couche multiélectronique composée de N_{eq} électrons, il faut alors tenir compte de cet environnement. Suivant le

modèle à électrons indépendants décrit au paragraphe 3.2, la section doit alors être multipliée par le nombre d'électrons équivalents de cette couche (éq. (3.26)). Finalement, la section efficace totale d'excitation d'un électron d'une couche comportant N_{eq} électrons équivalents dans un état initial $n_a l_a$ vers un état final $n_b l_b$ s'écrit :

$$\sigma_{n_a l_a \rightarrow n_b l_b} = (2\pi)^4 N_{eq} \frac{k_f}{k_i} \frac{1}{g_{n_a l_a}} \sum_{m_a=-l_a}^{l_a} \sum_{m_b=-l_b}^{l_b} \int d\Omega_f \left[\frac{1}{4} |T_{ab}^d + T_{ab}^e|^2 + \frac{3}{4} |T_{ab}^d - T_{ab}^e|^2 \right] \quad (3.106)$$

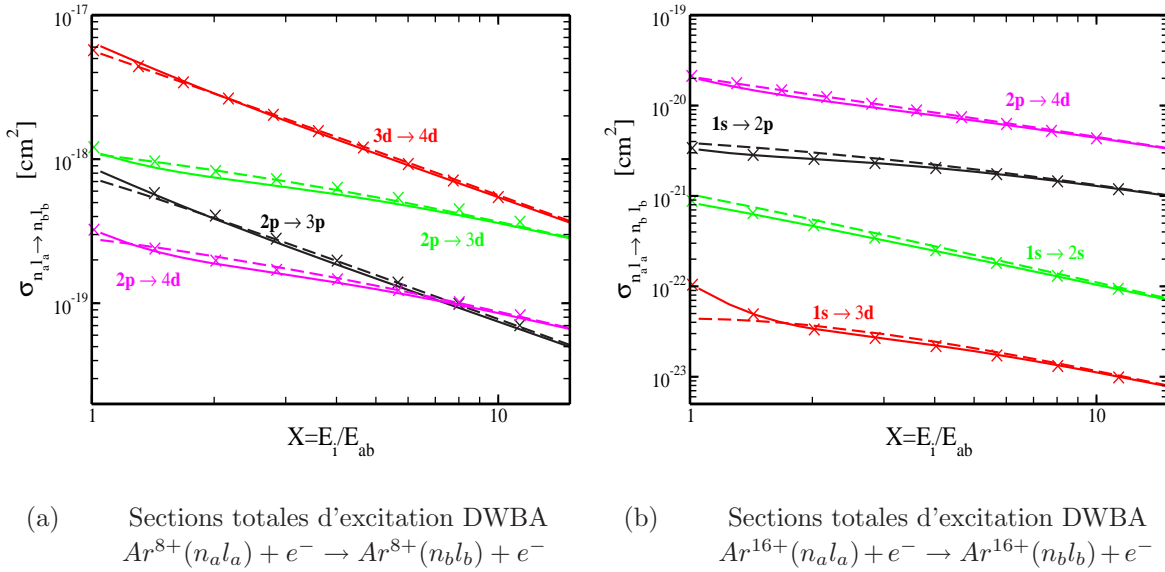


FIG. 3.4 – Sections efficaces totales d'excitation collisionnelles dans l'approximation des ondes distordues (éq. (3.106)) pour deux ions Ar^{q+} . Les sections moyennées sur les sous-niveaux magnétiques sont représentées en fonction du rapport X de l'énergie de l'électron incident E_i à l'énergie de la transition considérée $E_{ab} = E_b - E_a$. Données de référence (\times) [IAEA]; (---) sections calculées sans prendre en compte l'échange des électrons; (—) sections calculées en prenant en compte l'échange des électrons.

La figure 3.4 présente les résultats obtenus à l'aide de l'équation (3.106) pour deux ions Ar^{q+} . Les sections efficaces totales pour des transitions $Ar^{q+}(n_a l_a, E_a) + e^-(E_i) \rightarrow Ar^{q+}(n_b l_b, E_b) + e^-(E_f)$ de l'état fondamental vers un état excité ou pour des transitions entre états excités sont représentées en fonction du rapport X de l'énergie de l'électron incident E_i à l'énergie de la transition $E_{ab} = E_b - E_a$. La figure présente les résultats obtenus avec ou sans le terme d'échange (auquel cas, le terme T_{ab}^e est nul dans l'expression (3.106)) et compare ces résultats aux données recommandées par l'IAEA ("International Atomic Energy Agency") [IAEA]. Pour ces données de référence, la structure atomique est déterminée à l'aide de la méthode Hartree-Fock incluant diverses corrections (relativiste, interaction spin-orbite, terme de Darwin); les sections sont ensuite calculées à l'aide de l'approximation des ondes distordues. À partir de la figure 3.4, plusieurs remarques peuvent être faites :

- La description simple de la structure atomique à l'aide de l'approche potentiel-modèle donne d'excellents résultats pour le calcul des sections totales d'excitation quels que soient les états considérés ;
- L'influence de l'indiscernabilité des électrons (terme d'échange) n'est effective que pour un rapport X de l'ordre de quelques unités ;
- La prise en compte de l'échange des électrons, bien que n'ayant qu'une faible influence, permet de reproduire plus fidèlement l'allure des sections, notamment au seuil ($X \gtrsim 1$).

Ainsi, la description employée pour déterminer les sections efficaces d'excitation collisionnelles nous permet d'obtenir des résultats en très bon accord avec les données de référence. Il est cependant important de noter que les sections sont évaluées selon une approche perturbative. Par conséquent, les données obtenues au seuil sont imparfaites (cette approche ne permet par exemple pas de mettre en évidence les résonances [Griffin D. *et al.* 93]).

3.3.2.2 Section efficace totale d'ionisation collisionnelle

Pour déterminer la section efficace totale d'ionisation, nous suivons le même raisonnement que pour l'excitation. Nous considérons le même système qu'au paragraphe 3.3.2.1, tel qu'un électron incident d'énergie E_i interagit avec un ion composé d'un coeur ionique (noyau de charge $Z + (p - 1)$ électrons) et d'un électron actif dans un état initial lié $n_a l_a m_a$ d'énergie E_a . Le hamiltonien gouvernant ce système peut donc être réécrit comme pour l'excitation :

$$H = \underbrace{-\frac{1}{2}\nabla_{\mathbf{r}_1}^2 - \frac{1}{2}\nabla_{\mathbf{r}_2}^2 + V_{mod}(r_2) + V_{dis}(r_1)}_{H_i} + \underbrace{V_{clb}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) - V_{clb}(r_1)}_{v_i} \quad (3.107)$$

Il est important de noter que, dans le cas de l'ionisation, la décomposition du hamiltonien total n'est pas identique dans la voie initiale et dans la voie finale. En effet, le potentiel v_i , qui est à courte portée dans la voie initiale, ne l'est plus nécessairement dans la voie finale (les coordonnées r_1 et r_2 des deux électrons tendent alors vers l'infini). Cependant, nous évaluons les sections dans le régime perturbatif, c'est à dire lorsque l'énergie de l'électron incident est beaucoup plus importante que l'énergie de la transition considérée (en pratique cette approximation est valide dès lors que le rapport de l'énergie incidente à l'énergie de la transition est de quelques unités). Dans ce cas, l'énergie de l'électron éjecté est faible, cet électron reste alors proche du coeur ionique comparé à l'électron diffusé. Par conséquent, pour $r_2 \ll r_1$, le potentiel perturbateur v_i peut être considéré comme étant également à courte portée dans la voie finale.

Il est important de remarquer que la conservation de quantité de mouvement totale dans le centre de masse implique⁴ :

$$\mathbf{k}_i = \mathbf{k}_f + \mathbf{k}_e + \mathbf{Q} \quad (3.108)$$

⁴Compte tenu de la différence de masse entre un électron et un ion, le centre de masse est confondu avec la position de l'ion cible.

où $\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f, \mathbf{k}_e$ désignent respectivement les vecteurs d'onde des électrons incident, diffusé et éjecté. \mathbf{Q} représente le mouvement de recul de l'ion cible. Suivant la théorie formelle des collisions, l'expression (3.37) doit prendre en compte la détection de deux particules. Les domaines de détection s'écrivent alors :

$$d\mathbf{k}_f d\mathbf{k}_e = \rho(E_f) dE_f d\Omega_f \rho(E_e) dE_e d\Omega_e \quad (3.109)$$

où la densité d'états dans la voie finale vaut $\rho(E_f)\rho(E_e) = \mu_e \mu_f k_e k_f$ (E_f et E_e désignent respectivement l'énergie de l'électron diffusé et l'énergie de l'électron éjecté). En négligeant l'énergie de recul de l'ion, l'énergie de l'électron diffusé peut être déduite de la conservation de l'énergie lors de la collision :

$$E_f = E_i + E_a - E_e \quad (3.110)$$

La section efficace totale d'ionisation d'un état a prend alors la forme :

$$\sigma_{ae} = (2\pi)^4 \frac{k_f}{k_i} \int dE_e k_e \int d\Omega_f \int d\Omega_e \left| \langle \chi_f^{\beta-}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) | v_i | \chi_i^{\alpha+}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \rangle \right|^2 \quad (3.111)$$

Les conditions de la collision étant considérées comme asymétriques ($k_i \gg k_e$), l'échange peut être négligé. L'élément de matrice de transition dans le cas direct s'écrit alors :

$$T_{ae}^d = \left\langle \psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r}_1) \psi_{\mathbf{k}_e}^-(\mathbf{r}_2) \left| V_{clb}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) - V_{clb}(r_1) \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \psi_{\mathbf{k}_i}^+(\mathbf{r}_1) \right\rangle \quad (3.112)$$

Nous pouvons remarquer que la séparation de la fonction d'onde totale selon les variables \mathbf{r}_1 et \mathbf{r}_2 sous-entend que nous ne considérons pas de corrélations entre les deux électrons libres dans la voie finale. La prise en compte de ce problème à trois corps a été développée par C. Garibotti et J. Miraglia [Garibotti *et al.* 80]. Les effets de ces corrélations dans le cas de collisions par impact électronique ainsi que l'influence de l'indiscernabilité des électrons sont discutés dans les références suivantes [Brauner *et al.* 89, Peterkop 61, Rudge *et al.* 65]. Ils sont généralement très faibles au niveau des sections totales (d'intérêt dans le présent travail).

La fonction d'onde liée initiale est déterminée à l'aide d'une base d'orbitales de type Slater (cf. annexe B) et les fonctions d'ondes libres sont décomposées sur une base de polynômes de Legendre (cf. annexe C). Il est cependant important de préciser que la détermination des fonctions d'ondes libres dépend de l'électron considéré. En effet, les fonctions d'ondes de l'électron incident et diffusé sont fonctions propres du hamiltonien :

$$H_1 \psi_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f}^{\pm}(\mathbf{r}_1) = \left[-\frac{1}{2} \nabla_{\mathbf{r}_1}^2 + V_{mod}(r_1) + V_{clb}(r_1) \right] \psi_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f}^{\pm}(\mathbf{r}_1) = E_{i,f} \psi_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f}^{\pm}(\mathbf{r}_1) \quad (3.113)$$

Les parties radiales $u_{i,l_f}(k_{i,f}, r_1)$ intervenant dans les développements en ondes partielles des fonctions d'ondes $\psi_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f}^{\pm}(\mathbf{r}_1)$ sont calculées à l'aide de l'algorithme de Numerov avec le potentiel $V_{mod}(r_1) + V_{clb}(r_1)$, et la charge prise en compte pour le calcul du déphasage (intervenant à travers le paramètre η (éq. 3.64)) est similaire à celle employée pour l'excitation, soit $Z - p$. En revanche, dans la voie finale, étant donné que nous considérons

l'électron libéré comme étant peu énergétique et proche du cœur ionique comparé à l'électron diffusé, nous supposons que la fonction d'onde de l'électron éjecté est fonction propre du même hamiltonien que la fonction d'onde liée initiale :

$$H_2\psi_{\mathbf{k}_e}^-(\mathbf{r}_2) = \left[-\frac{1}{2}\nabla_{\mathbf{r}_2}^2 + V_{mod}(r_2) \right] \psi_{\mathbf{k}_e}^-(\mathbf{r}_2) = E_e\psi_{\mathbf{k}_e}^-(\mathbf{r}_2) \quad (3.114)$$

Ce choix présente l'avantage de conserver l'orthogonalité des fonctions d'ondes totales. Le développement en ondes partielles de la fonction d'onde $\psi_{\mathbf{k}_e}(\mathbf{r}_2)$ est alors déterminé avec le potentiel $V_{mod}(r_2)$ et la charge ressentie par cet électron est $Z - (p - 1)$.

Soit le potentiel de transition $V_T^d(ae; \mathbf{r}_1)$ dans le cas coulombien tel que :

$$V_T^d(ae; \mathbf{r}_1) = \left\langle \psi_{\mathbf{k}_e}^-(\mathbf{r}_2) \left| \frac{1}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \right\rangle - \left\langle \psi_{\mathbf{k}_e}^-(\mathbf{r}_2) \left| \frac{1}{r_1} \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \right\rangle \quad (3.115)$$

$$\text{soit } V_T^d(ae; \mathbf{r}_1) = V_T^{d(1)}(ae; \mathbf{r}_1) - V_T^{d(2)}(ae; \mathbf{r}_1)$$

Les fonctions d'ondes $\psi_{\mathbf{k}_e}^-(\mathbf{r}_2)$ et $\phi_a(\mathbf{r}_2)$ étant orthogonales, le second terme $V_T^{d(2)}(ae; \mathbf{r}_1)$ s'annule. La décomposition en ondes partielles de $\psi_{\mathbf{k}_e}^-(\mathbf{r}_2)$ s'écrit (onde entrante) :

$$\psi_{\mathbf{k}_e}^-(\mathbf{r}_1) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \frac{4\pi}{k_e r_1} \sum_{l_e=0}^{\infty} \sum_{m_e=-l_e}^{l_e} i^{l_e} e^{-i\delta_{l_e}} u_{l_e}(k_e, r_1) Y_{l_e}^{m_e*}(\theta_{\mathbf{k}_e}, \varphi_{\mathbf{k}_e}) Y_{l_e}^{m_e}(\theta_{\mathbf{r}_1}, \varphi_{\mathbf{r}_1}) \quad (3.116)$$

Le premier terme du potentiel de transition conduit à un calcul identique à celui de l'expression (3.93) et l'on obtient :

$$V_T^{d(1)}(ae; \mathbf{r}_1) = \frac{2^{3/2}}{k_e} \sum_{l_e=0}^{\infty} \sum_{m_e=-l_e}^{l_e} (-1)^{m_e} Y_{l_e}^{m_e}(\theta_{\mathbf{k}_e}, \varphi_{\mathbf{k}_e}) i^{-l_e} e^{i\delta_{l_e}} \sum_{\lambda=|l_e-l_a|}^{l_e+l_a} \frac{1}{(2\lambda+1)^{1/2}} \mathcal{A}_{l_a l_e}^{\lambda} \mathcal{V}_{\lambda}(ae; r_1) Y_{\lambda}^{m_{\lambda}*}(\theta_{\mathbf{r}_1}, \varphi_{\mathbf{r}_1}) \quad (3.117)$$

où

$$\mathcal{A}_{l_a l_e}^{\lambda} = [(2l_a + 1)(2l_e + 1)]^{1/2} \begin{pmatrix} l_a & \lambda & l_e \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_a & \lambda & l_e \\ m_a & m_{\lambda} & -m_e \end{pmatrix} \quad (3.118)$$

et

$$\mathcal{V}_{\lambda}(ae; r_1) = \frac{1}{r_1^{\lambda+1}} \int_0^{r_1} dr_2 r_2^{1+\lambda} u_{l_e}(k_e, r_2) R_a(r_2) + r_1^{\lambda} \int_{r_1}^{\infty} dr_2 \frac{1}{r_2^{\lambda}} u_{l_e}(k_e, r_2) R_a(r_2) \quad (3.119)$$

Pour avoir $\mathcal{A}_{l_a l_e}^{\lambda} \neq 0$, les règles de sélection des coefficients $3j$ imposent :

$$\begin{cases} l_a + l_e + \lambda \text{ pair} \\ |l_a - l_e| \leq \lambda \leq l_a + l_e \\ m_{\lambda} = m_e - m_a \end{cases} \quad (3.120)$$

L'élément de matrice de transition s'écrit alors :

$$T_{ae}^d = \left\langle \psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r}_1) \left| V_T^{d(1)}(ae; \mathbf{r}_1) \right| \psi_{\mathbf{k}_i}^+(\mathbf{r}_1) \right\rangle \quad (3.121)$$

À l'aide des développements en ondes partielles des ondes incidente et diffusée (éqs 3.61), on obtient finalement (le vecteur d'onde incident \mathbf{k}_i est placé le long de l'axe z) :

$$T_{ae}^d = \frac{\sqrt{2}}{\pi^2} \frac{1}{k_i k_e k_f} \sum_{l_i=0}^{\infty} \sum_{l_e=0}^{\infty} \sum_{m_e=-l_e}^{l_e} (-1)^{m_e} Y_{l_e}^{m_e}(\theta_{\mathbf{k}_e}, \varphi_{\mathbf{k}_e}) \sum_{\lambda=|l_e-l_a|}^{l_e+l_a} \mathcal{A}_{l_a l_e}^{\lambda} \times \quad (3.122)$$

$$\times \sum_{l_f=|l_i-\lambda|}^{l_i+\lambda} i^{l_i-l_e-l_f} e^{i(\delta_{l_i}+\delta_{l_e}+\delta_{l_f})} \mathcal{B}_{l_i l_f}^{\lambda} \mathcal{R}_{l_i l_f}^{\lambda} Y_{l_f}^{m_f}(\theta_{\mathbf{k}_f}, \varphi_{\mathbf{k}_f})$$

où $\mathcal{A}_{l_a l_e}^{\lambda}$ est défini par l'expression (3.118) et

$$\mathcal{B}_{l_i l_f}^{\lambda} = (2l_i + 1)(2l_f + 1)^{1/2} \begin{pmatrix} l_i & l_f & \lambda \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_i & l_f & \lambda \\ 0 & -m_f & -m_{\lambda} \end{pmatrix} \quad (3.123)$$

$$\mathcal{R}_{l_i l_f}^{\lambda} = \int_0^{\infty} dr_1 u_{l_f}(k_f, r_1) \mathcal{V}_{\lambda}(ae; r_1) u_{l_i}(k_i, r_1) \quad (3.124)$$

Les règles de sélection des symboles $3j$ imposent :

$$\begin{cases} l_i + l_f + \lambda \text{ pair} \\ |l_i - \lambda| \leq l_f \leq l_i + \lambda \\ m_f = -m_{\lambda} \end{cases} \quad (3.125)$$

La section efficace totale d'ionisation d'un électron dans un état quantique a s'écrit alors :

$$\sigma_{ae} = (2\pi)^4 \frac{k_f}{k_i} \int dE_e k_e \int d\Omega_f \int d\Omega_e |T_{ae}^d|^2 \quad (3.126)$$

En intégrant sur les angles d'émission de l'électron éjecté, on obtient la section différentielle en énergie et en angles d'émission de l'électron diffusé :

$$\frac{d^3\sigma_{ae}}{d\Omega_f dE_e} = 32 \frac{1}{k_i^3 k_f k_e} \sum_{l_e=0}^{\infty} \sum_{m_e=-l_e}^{l_e} \times \quad (3.127)$$

$$\times \left| \sum_{l_i=0}^{\infty} \sum_{\lambda=|l_e-l_a|}^{l_e+l_a} \mathcal{A}_{l_a l_e}^{\lambda} \sum_{l_f=|l_i-\lambda|}^{l_i+\lambda} i^{l_i-l_f} e^{i(\delta_{l_i}+\delta_{l_f})} \mathcal{B}_{l_i l_f}^{\lambda} \mathcal{R}_{l_i l_f}^{\lambda} Y_{l_f}^{m_f}(\theta_{\mathbf{k}_f}, \varphi_{\mathbf{k}_f}) \right|^2$$

De même, en intégrant sur les angles d'émission de l'électron diffusé, on obtient la section simplement différentielle en énergie :

$$\frac{d\sigma_{ae}}{dE_e} = 32 \frac{1}{k_i^3 k_f k_e} \sum_{l_e=0}^{\infty} \sum_{m_e=-l_e}^{l_e} \sum_{l_f=0}^{\infty} \left| \sum_{\lambda=|l_e-l_a|}^{l_e+l_a} \mathcal{A}_{l_a l_e}^{\lambda} \sum_{l_i=|l_f-\lambda|}^{l_f+\lambda} i^{l_i} e^{i\delta_{l_i}} \mathcal{B}_{l_i l_f}^{\lambda} \mathcal{R}_{l_i l_f}^{\lambda} \right|^2 \quad (3.128)$$

Finalement, la section efficace totale d'ionisation d'un électron appartenant à une couche de valence comprenant N_{eq} électrons équivalents dans un état $n_a l_a$ s'écrit :

$$\sigma_{n_a l_a \rightarrow \epsilon} = 32 \frac{N_{eq}}{2l_a + 1} \times \quad (3.129)$$

$$\times \sum_{m_a=-l_a}^{l_a} \int_0^{E_{e_{max}}} \frac{dE_e}{k_i^3 k_f k_e} \sum_{l_e=0}^{\infty} \sum_{m_e=-l_e}^{l_e} \sum_{l_f=0}^{\infty} \left| \sum_{\lambda=|l_e-l_a|}^{l_e+l_a} \mathcal{A}_{l_a l_e}^{\lambda} \sum_{l_i=|l_f-\lambda|}^{l_f+\lambda} i^{l_i} e^{i\delta_{l_i}} \mathcal{B}_{l_i l_f}^{\lambda} \mathcal{R}_{l_i l_f}^{\lambda} \right|^2$$

3.3. Évaluation des sections d'excitation et d'ionisation : approches DWBA et PWBA

La borne supérieure de l'intégration sur l'énergie d'émission de l'électron éjecté est déterminée par conservation de l'énergie totale du système $E_i + E_a = E_f + E_e$ (en négligeant l'énergie de recul de l'ion cible). En considérant que l'électron éjecté est l'électron le moins énergétique, on a :

$$E_{e_{max}} = \frac{E_i + E_a}{2} \quad (3.130)$$

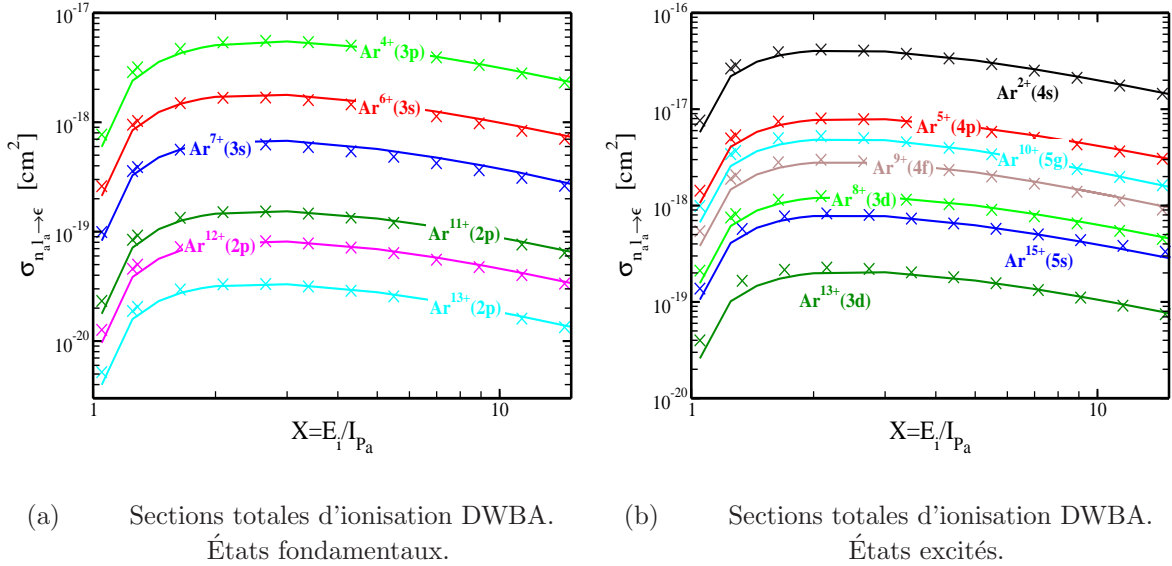


FIG. 3.5 – (—) Sections efficaces totales d'ionisation collisionnelles dans l'approximation des ondes distordues (éq. (3.129)) pour des ions Ar^{q+} (états fondamentaux ou excités). Les sections moyennées sur les sous-niveaux magnétiques sont représentées en fonction du rapport X de l'énergie de l'électron incident E_i au potentiel d'ionisation du niveau considéré $I_{Pa} = |E_a|$ et comparées aux données de référence (\times) [IAEA].

La figure 3.5 présente les résultats obtenus pour les sections efficaces totales d'ionisation collisionnelles (éq. (3.129)) pour différents niveaux (fondamentaux ou excités) pour des ions Ar^{q+} en fonction de $X = E_i / I_{Pa}$ (où E_i est l'énergie de l'électron incident et $I_{Pa} = |E_a|$ est le potentiel d'ionisation du niveau considéré). Il est important de noter que nous ne considérons que des processus d'ionisation vers le niveau fondamental de l'état de charge suivant. Les valeurs calculées sont comparées aux données recommandées par l'IAEA ("International Atomic Energy Agency") [IAEA]. Pour ces données, la structure atomique est déterminée à l'aide de la méthode Hartree-Fock [Cowan 81] et les sections sont calculées dans l'approximation des ondes distordues. Nous avons choisi de comparer nos données à ces calculs théoriques plutôt qu'à des résultats expérimentaux [Zhang *et al.* 02], car les données mesurées ne discriminent pas nécessairement les processus de simple ionisation, de double ionisation, d'ionisation en couche interne ou d'excitation-autoionisation, alors que notre approche ne permet pas à l'heure actuelle de calculer ce type de données.

Les résultats obtenus (fig. 3.5) indiquent que l'approche potentiel-modèle utilisée pour décrire la structure électronique des ions Ar^{q+} permet de reproduire les données de référé-

rence à quelques % près pour $X \geq 2$ quelque soit le niveau d'énergie considéré. Lorsque l'énergie de l'électron incident est proche du seuil d'ionisation ($E_i \sim I_{P_a}$), l'erreur relative par rapport aux valeurs de l'IAEA est plus importante mais reste inférieure à quelques dizaines de %. Ceci peut être dû au fait que l'échange des électrons n'est pas pris en compte dans nos calculs et au fait que la description de la structure atomique joue un rôle plus important à faible énergie.

Par conséquent, comme pour l'excitation, les sections totales d'ionisation collisionnelles évaluées dans l'approximation des ondes distordues sont en très bon accord avec les données de référence.

3.3.3 À plus haute énergie : l'approximation PWB

Lorsque l'électron incident possède une énergie très importante, la perturbation de l'électron incident par l'ion cible est faible ; elle peut alors être représentée par une onde plane. Les mêmes considérations s'appliquent dans la voie finale, les fonctions d'ondes incidentes et diffusées prennent alors la forme :

$$\psi_{\mathbf{k}_i}^+(\mathbf{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}} \quad (3.131a)$$

$$\psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}} \quad (3.131b)$$

Par conséquent, à très haute énergie, l'approximation DWBA présentée au paragraphe précédent peut être simplifiée : les sections efficaces d'excitation et d'ionisation sont alors évaluées dans l'approximation PWBA (pour "Plane Wave Born Approximation"). Nous pouvons de plus remarquer que, l'échange étant négligeable à haute énergie, seuls les éléments de matrice directs sont à évaluer.

3.3.3.1 Section efficace totale d'excitation collisionnelle

En considérant un système identique au cas traité dans l'approximation DWBA, la section efficace différentielle en angles d'émission pour une transition d'un état a ($n_a l_a m_a$) vers un état b ($n_b l_b m_b$) s'écrit :

$$\frac{d^2 \sigma_{ab}}{d\Omega_f} = (2\pi)^4 \frac{k_f}{k_i} |T_{ab}|^2 \quad (3.132)$$

où l'élément de matrice vaut :

$$T_{ab} = \left\langle \psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r}_1) \phi_b(\mathbf{r}_2) \left| \frac{1}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \psi_{\mathbf{k}_i}^+(\mathbf{r}_1) \right\rangle \quad (3.133)$$

En utilisant l'approximation en ondes planes pour les fonctions d'onde incidente et diffusées, cet élément de matrice se réduit à :

$$T_{ab} = \frac{1}{(2\pi)^3} \int d\mathbf{r}_1 \frac{e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)}}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \int d\mathbf{r}_2 \phi_b^*(\mathbf{r}_2) \phi_a(\mathbf{r}_2) e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_2} \quad (3.134)$$

où $\mathbf{q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f$ représente le transfert d'impulsion de l'électron libre lors de la collision. En plaçant le repère tel que \mathbf{q} soit selon l'axe z , l'intégrale sur \mathbf{r}_1 se réduit à :

$$\int d\mathbf{r}_1 \frac{e^{i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2)}}{|\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2|} = \frac{4\pi}{q^2} \quad (3.135)$$

L'onde plane intervenant dans l'intégrale sur \mathbf{r}_2 peut être décomposée en harmoniques sphériques :

$$e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_2} = 4\pi \sum_{\lambda=0}^{\infty} \sum_{m_\lambda=-\lambda}^{\lambda} i^\lambda j_\lambda(qr_2) Y_\lambda^{m_\lambda^*}(\theta_{\mathbf{q}}, \varphi_{\mathbf{q}}) Y_\lambda^{m_\lambda}(\theta_{\mathbf{r}_2}, \varphi_{\mathbf{r}_2}) \quad (3.136)$$

où $j_\lambda(qr_2)$ est une fonction de Bessel sphérique. \mathbf{q} étant l'axe de quantification, l'isotropie de la réaction autour de cet axe implique $m_\lambda = 0$ et $Y_\lambda^0(0,0) = \left[\frac{2\lambda+1}{4\pi}\right]^{1/2}$. Finalement, l'élément de matrice se réduit à :

$$T_{ab} = \frac{1}{2\pi^2} \frac{1}{q^2} \sum_{\lambda=|l_a-l_b|}^{l_a+l_b} i^\lambda (2\lambda+1) (-1)^{m_b} \mathcal{A}_{l_a l_b}^\lambda \mathcal{R}_{l_a l_b}^\lambda(q) \quad (3.137)$$

où

$$\mathcal{A}_{l_a l_b}^\lambda = [(2l_a+1)(2l_b+1)]^{1/2} \begin{pmatrix} l_a & l_b & \lambda \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_a & l_b & \lambda \\ m_a & -m_b & 0 \end{pmatrix} \quad (3.138)$$

$$\mathcal{R}_{l_a l_b}^\lambda(q) = \int_0^\infty dr_2 r_2^2 R_a(r_2) j_\lambda(qr_2) R_b(r_2) \quad (3.139)$$

Pour avoir une section non nulle, les règles de sélection imposent :

$$\begin{cases} l_a + l_b + \lambda \text{ pair} \\ |l_a - l_b| \leq \lambda \leq l_a + l_b \\ m_b = m_a \end{cases} \quad (3.140)$$

La section efficace différentielle s'écrit alors :

$$\frac{d^2\sigma_{ab}}{d\Omega_f} = 4 \frac{k_f}{k_i} \frac{1}{q^4} \left| \sum_{\lambda=|l_a-l_b|}^{l_a+l_b} i^\lambda (2\lambda+1) \mathcal{A}_{l_a l_b}^\lambda \mathcal{R}_{l_a l_b}^\lambda(q) \right|^2 \quad (3.141)$$

La section efficace totale d'excitation de l'état a (de nombres quantiques $n_a l_a m_a$) vers l'état b ($n_b l_b m_b$) vaut :

$$\sigma_{ab} = \int d\Omega_f \frac{d^2\sigma_{ab}}{d\Omega_f} = 2\pi \int_0^\pi d\theta_{\mathbf{k}_f} \sin \theta_{\mathbf{k}_f} \frac{d^2\sigma_{ab}}{d\Omega_f} \quad (3.142)$$

Or $q^2 = k_i^2 + k_f^2 - k_i k_f \cos \theta$ soit $2q dq = 2k_i k_f \sin \theta d\theta$ d'où la section efficace totale d'excitation d'un état $n_a l_a$ vers un état $n_b l_b$ vaut finalement (en considérant une couche composée de N_{eq} électrons équivalents) :

$$\sigma_{n_a l_a \rightarrow n_b l_b} = \frac{4\pi}{k_i^2} \frac{N_{eq}}{2l_a+1} \sum_{m_a=-l_a}^{l_a} \sum_{m_b=-l_b}^{l_b} \int_{q_{min}}^{q_{max}} dq \frac{1}{q^3} \left| \sum_{\lambda=|l_a-l_b|}^{l_a+l_b} i^\lambda (2\lambda+1) \mathcal{A}_{l_a l_b}^\lambda \mathcal{R}_{l_a l_b}^\lambda(q) \right|^2 \quad (3.143)$$

avec

$$\begin{cases} q_{min} = k_i - k_f & (\Leftrightarrow \theta_{\mathbf{k}_f} = 0) \\ q_{max} = k_i + k_f & (\Leftrightarrow \theta_{\mathbf{k}_f} = \pi) \end{cases} \quad (3.144)$$

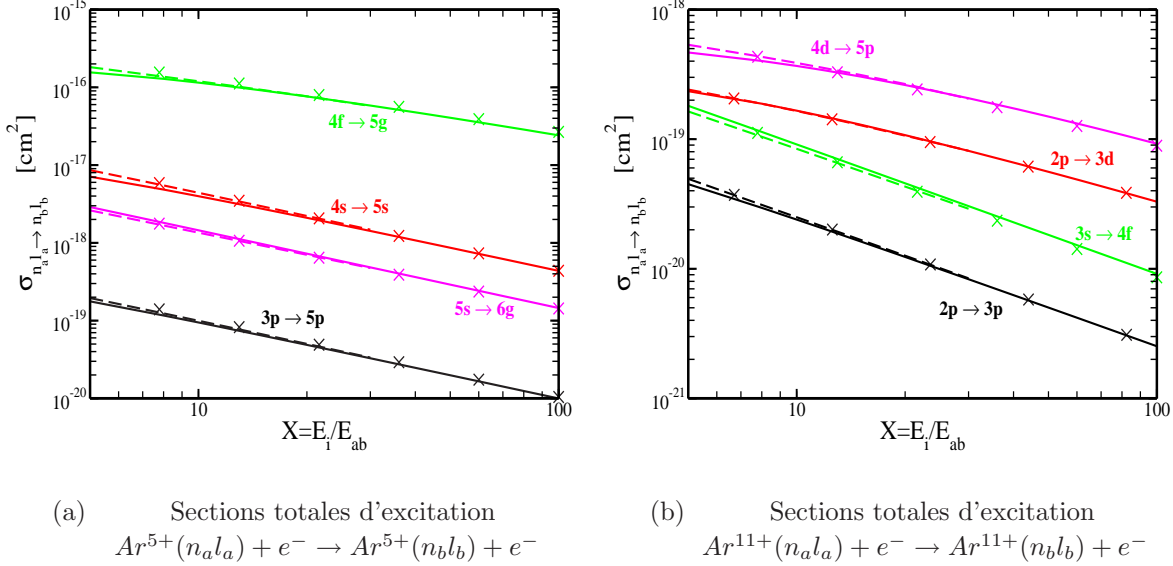


FIG. 3.6 – Sections efficaces totales d'excitation collisionnelles pour deux ions Ar^{q+} . Les sections moyennées sur les sous niveaux magnétiques sont représentées en fonction du rapport X de l'énergie de l'électron incident E_i à l'énergie de la transition considérée $E_{ab} = E_b - E_a$. Données de référence (\times) [IAEA]; (—) sections calculées dans l'approximation des ondes planes (éq. (3.143)); (- -) sections calculées dans l'approximation des ondes distordues (éq. (3.106)).

La figure 3.6 présente plusieurs sections efficaces totales d'excitation obtenues dans le cadre de l'approximation des ondes planes pour les ions Ar^{5+} et Ar^{11+} en fonction du rapport X de l'énergie de l'électron incident à l'énergie de la transition considérée. Les données de références proviennent de la base de données de l'IAEA [IAEA]. Les résultats obtenus sont également comparés aux sections obtenues dans le cadre de l'approximation des ondes distordues (paragraphe 3.3.2.1). Nous constatons que les résultats obtenus dans l'approche des ondes distordues tendent vers les données PWBA à haute énergie, conformément à ce qui était attendu. De plus, ces résultats reproduisent parfaitement les données de références quelles que soient les transitions considérées. Ainsi l'approximation en ondes planes peut être utilisée pour toutes les transitions dès lors que $X \gtrsim 10$.

Nous pouvons par ailleurs remarquer que les sections totales d'excitation suivent un comportement asymptotique à haute énergie (approximation de Bethe [Bransden *et al.* 03] p.719) :

$$\lim_{E_i \rightarrow \infty} \sigma_{n_a l_a \rightarrow n_b l_b} = \begin{cases} A \frac{\ln E_i}{E_i} & \text{pour une transition optiquement permise } \Delta l = \pm 1 \quad (3.145a) \\ B \frac{1}{E_i} & \text{pour une transition optiquement interdite } \Delta l \neq \pm 1 \quad (3.145b) \end{cases}$$

où A et B sont des constantes dépendantes de chaque transition.

3.3.3.2 Section efficace totale d'ionisation collisionnelle

Suivant le même raisonnement, la section efficace totale d'ionisation peut être déterminée dans l'approximation PWBA. L'élément de matrice T_{ae} de l'expression (3.126) s'écrit en exprimant les fonctions d'ondes entrantes et sortantes sous forme d'ondes planes :

$$T_{ae} = \frac{1}{(2\pi)^3} \int d\mathbf{r}_1 \frac{e^{i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2)}}{|\mathbf{r}_1-\mathbf{r}_2|} \int d\mathbf{r}_2 \psi_{\mathbf{k}_e}^{-*}(\mathbf{r}_2) \phi_a(\mathbf{r}_2) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_2} \quad (3.146)$$

où $\mathbf{q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f$ est le transfert d'impulsion. L'intégrale sur \mathbf{r}_1 se résout comme pour l'excitation (éq. (3.135)). En utilisant le développement (3.136) et la décomposition en ondes partielles pour la fonction d'onde de l'électron éjecté (éq. (3.116)), on obtient :

$$T_{ae} = \frac{4\pi}{(2\pi)^{9/2}} \frac{1}{q^2} \frac{1}{k_e} \sum_{l_e=0}^{\infty} \sum_{\lambda=|l_a-l_e|}^{l_a+l_e} i^{\lambda-l_e} e^{i\delta_e} (-1)^{m_e} (2\lambda+1) Y_{l_e}^{m_e}(\theta_{\mathbf{k}_e}, \varphi_{\mathbf{k}_e}) \mathcal{A}_{l_a l_e}^{\lambda} \mathcal{R}_{l_a l_e}^{\lambda}(q) \quad (3.147)$$

où

$$\mathcal{A}_{l_a l_e}^{\lambda} = [(2l_a+1)(2l_e+1)]^{1/2} \begin{pmatrix} l_a & l_e & \lambda \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_a & l_e & \lambda \\ m_a & -m_e & 0 \end{pmatrix} \quad (3.148)$$

$$\mathcal{R}_{l_a l_e}^{\lambda}(q) = \int_0^{\infty} dr_2 r_2 R_a(r_2) j_{\lambda}(qr_2) u_{l_e}(k_e, r_2) \quad (3.149)$$

Pour avoir une section non nulle, les règles de sélection imposent :

$$\begin{cases} l_a + l_e + \lambda \text{ pair} \\ |l_a - l_e| \leq \lambda \leq l_a + l_e \\ m_e = m_a \end{cases} \quad (3.150)$$

Suivant l'expression (3.126) la section différentielle en angles d'émission et en énergie prend alors la forme :

$$\frac{d^5\sigma_{ae}}{d\Omega_f d\Omega_e dE_e} = \frac{1}{2\pi^3} \frac{k_f}{k_i k_e} \frac{1}{q^4} \left| \sum_{l_e=0}^{\infty} \sum_{\lambda=|l_a-l_e|}^{l_a+l_e} i^{\lambda-l_e} e^{i\delta_e} (2\lambda+1) Y_{l_e}^{m_e}(\theta_{\mathbf{k}_e}, \varphi_{\mathbf{k}_e}) \mathcal{A}_{l_a l_e}^{\lambda} \mathcal{R}_{l_a l_e}^{\lambda}(q) \right|^2 \quad (3.151)$$

L'intégration sur les angles d'émission permet d'obtenir la section simplement différentielle en énergie :

$$\frac{d\sigma_{ae}}{dE_e} = \frac{1}{2\pi^3} \frac{k_f}{k_i k_e} \frac{1}{q^4} \int d\Omega_f \left| \sum_{l_e=0}^{\infty} \sum_{\lambda=|l_e-l_a|}^{l_e+l_a} i^{\lambda} (2\lambda+1) \mathcal{A}_{l_a l_e}^{\lambda} \mathcal{R}_{l_a l_e}^{\lambda}(q) \right|^2 \quad (3.152)$$

Suivant le même principe que pour l'excitation, l'intégration sur les angles d'émission de l'électron diffusé s'identifie à une intégrale sur le module du transfert d'impulsion q .

La section efficace totale d'ionisation d'un état a de nombres quantiques $n_a l_a$ s'écrit alors :

$$\sigma_{n_a l_a \rightarrow \epsilon} = \frac{1}{\pi^2} \frac{N_{eq}}{2l_a + 1} \times \sum_{m_a = -l_a}^{l_a} \int_0^{E_{e_{max}}} dE_e \frac{1}{k_i^2 k_e} \int_{k_i - k_f}^{k_i + k_f} dq \frac{1}{q^3} \sum_{l_e=0}^{\infty} \left| \sum_{\lambda=|l_a-l_e|}^{l_a+l_e} i^\lambda (2\lambda+1) \mathcal{A}_{l_a l_e}^\lambda \mathcal{R}_{l_a l_e}^\lambda(q) \right|^2 \quad (3.153)$$

où le facteur N_{eq} provient du modèle à électrons indépendants, et $E_{e_{max}} = (E_i + E_a)/2$ est l'énergie maximum de l'électron éjecté.

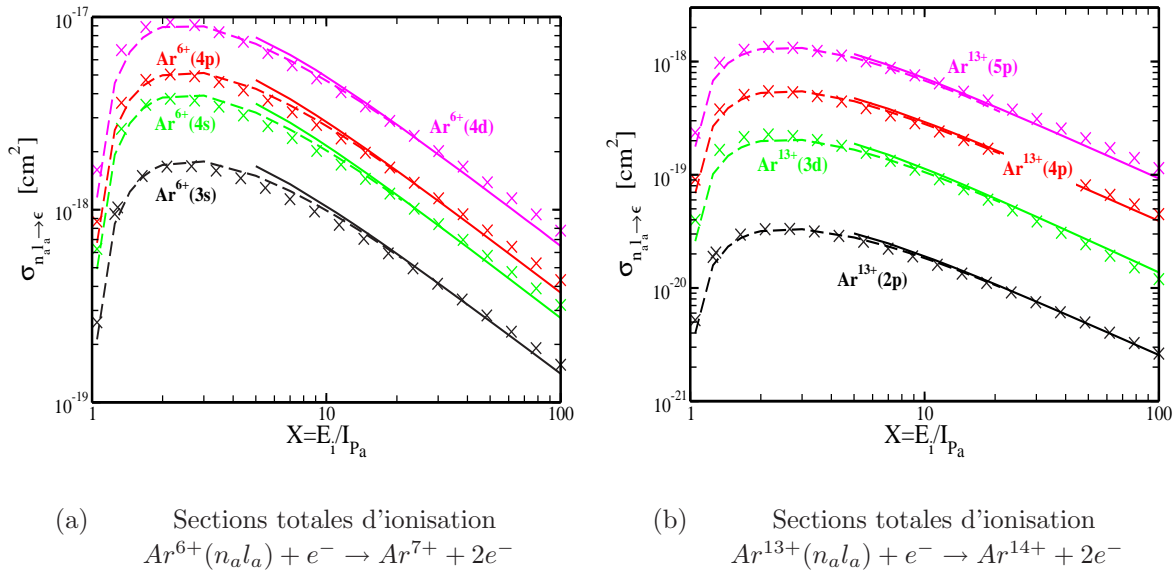


FIG. 3.7 – Sections efficaces d'ionisation collisionnelles pour deux ions Ar^{q+} en fonction du rapport X de l'énergie de l'électron incident E_i au potentiel d'ionisation du niveau considéré $I_{Pa} = |E_a|$. Données de référence (\times) [IAEA]; (—) sections calculées dans l'approximation des ondes planes (éq. (3.153)); (- -) sections calculées dans l'approximation des ondes distordues (éq. (3.129)).

Les sections totales d'ionisation collisionnelles obtenues dans l'approximation des ondes planes (éq. (3.153)) sont présentées sur la figure 3.7 pour plusieurs états des ions Ar^{6+} et Ar^{13+} en fonction de l'énergie de l'électron incident normalisée au potentiel d'ionisation du niveau considéré. Ces données sont comparées aux valeurs obtenues dans l'approximation des ondes distordues (éq. (3.129)) et aux données de référence de l'IAEA [IAEA].

Les résultats obtenus indiquent que l'approximation des ondes planes peut se substituer à l'approche DWBA dès lors que $X \geq 20$. De plus, dans ces conditions, nous pouvons remarquer que les valeurs obtenues par la méthode PWBA concordent avec les données de référence. La description simplifiée de l'électron incident (et diffusé) par une onde plane peut donc être utilisée pour tous les niveaux d'énergie lorsque son énergie est vingt fois supérieure à l'énergie de la transition.

De plus, nous pouvons remarquer que les sections totales d'ionisation collisionnelles suivent un comportement asymptotique à haute énergie. Ce comportement a été mis en évidence par H. Bethe [Bransden *et al.* 03] (p.739) :

$$\lim_{E_i \rightarrow \infty} \sigma_{n_a l_a \rightarrow \epsilon} = A \frac{\ln E_i}{E_i} \quad (3.154)$$

où A est une constante dépendante du niveau d'énergie considéré.

3.4 Pour une évaluation plus immédiate des sections : expressions simplifiées

3.4.1 Expression semi-analytique des sections d'excitation : loi d'échelle de Van Regemorter

Le calcul des sections efficaces totales d'excitation dans l'approximation des ondes distordues ou des ondes planes requiert d'importants moyens numériques. Afin de simplifier ce calcul, H. Van Regemorter a déterminé une loi d'échelle semi-analytique [Van Regemorter 62]. Pour une transition d'un état a ($n_a l_a$) vers un état b ($n_b l_b$), la section d'excitation d'un électron d'une couche multiélectronique composée de N_{eq} électrons équivalents s'exprime selon :

$$\sigma_{n_a l_a \rightarrow n_b l_b} = \frac{8\pi^2 a_0^2}{\sqrt{3}} N_{eq} \frac{E_H^2}{E_{ab}^2} \frac{g(X)}{X} f_{ab} \quad (3.155)$$

où $E_H=13,6$ eV, f_{ab} est la force d'oscillateur associée à la transition $a \rightarrow b$, $X = E_i/E_{ab}$ est le rapport de l'énergie de l'électron incident E_i sur l'énergie de la transition $E_{ab} = E_b - E_a$, et $g(X)$ est le facteur de Gaunt. Celui-ci est déterminé suivant R. Mewe [Mewe 72] :

$$g(X) = 0,15 + 0,28 \ln X \quad (3.156)$$

Les forces d'oscillateur f_{ab} d'un état de nombre quantique orbital l_a vers un état de nombre quantique orbital $l_b = l_a \pm 1$ sont calculées selon (cf. annexe D) :

$$f_{ab} = \frac{2m_e E_{ab}}{3\hbar^2} \frac{1}{2l_a + 1} \max(l_a, l_b) \mathcal{R}_{ab}^2 \quad (3.157)$$

où $\mathcal{R}_{ab} = \int_0^\infty dr r^3 R_{l_a}(r) R_{l_b}(r)$ et $R_{l_a, l_b}(r)$ sont respectivement les parties radiales des fonctions d'onde initiale et finale de l'électron subissant la transition. Dans le cadre de l'interaction laser-agrégat, les termes \mathcal{R}_{ab} sont calculés pour chaque transition de chaque état de charge dans une base d orbitales de type Slater en utilisant le potentiel-modèle défini au paragraphe 3.1.2 (cf. annexe B).

Nous pouvons remarquer que l'expression de Van Regemorter découle des sections d'excitation calculées dans l'approximation des ondes planes. En effet, en considérant un faible transfert d'impulsion \mathbf{q} entre l'électron incident et l'électron diffusé, le terme $e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_2}$ intervenant dans l'élément de matrice de transition (éq. (3.134)) peut être développé en

séries de Taylor $e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_2} \sim 1 + i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_2$. L'intégrale sur la coordonnée \mathbf{r}_2 s'apparente alors à l'élément de matrice intervenant dans le calcul de la force d'oscillateur (cf. annexe D). Ainsi le calcul de la section efficace d'excitation se réduit à l'expression de Van Regemorter. Le facteur de Gaunt permet de corriger cette expression afin d'ajuster les résultats aux données obtenues par des méthodes plus précises.

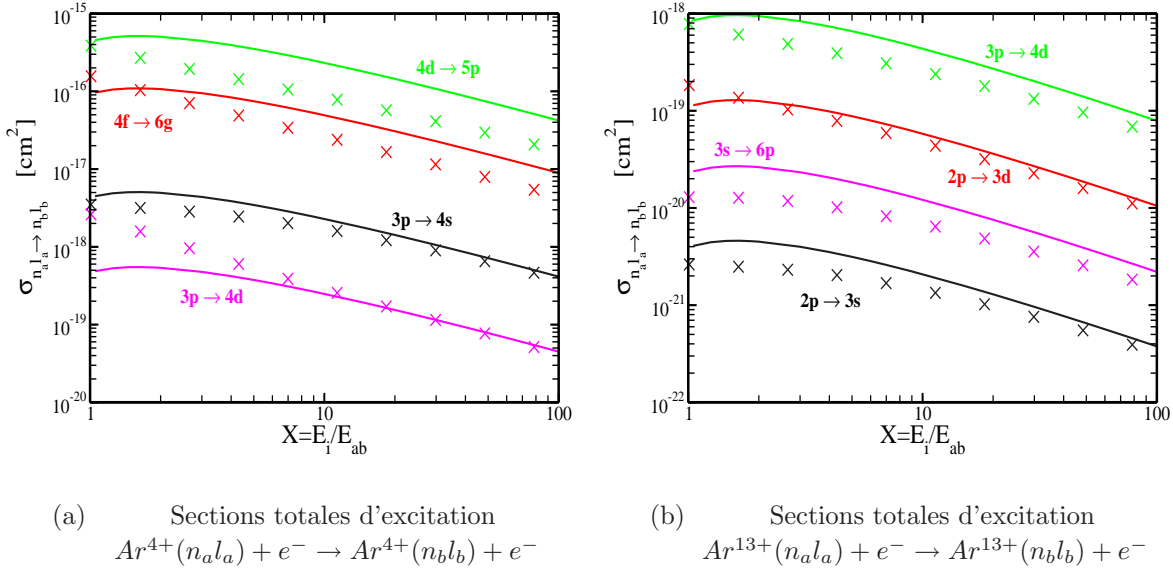


FIG. 3.8 – Sections efficaces totales d'excitation collisionnelles déterminées selon l'expression de Van Regemorter (3.155) pour les ions Ar^{4+} et Ar^{13+} (—). Les résultats, comparés aux données de référence (\times) [IAEA], sont présentés en fonction du rapport X de l'énergie de l'électron incident E_i à l'énergie de la transition considérée $E_{ab} = E_b - E_a$.

La figure 3.8 présente les sections totales d'excitation collisionnelles obtenues avec l'expression semi-analytique de Van Regemorter pour l' Ar^{4+} et l' Ar^{13+} en fonction du rapport X de l'énergie incidente à l'énergie de la transition considérée. En comparant les résultats obtenus par rapport aux données de référence [IAEA], nous constatons que l'expression de Van Regemorter permet de déterminer les sections d'excitation avec une précision limitée (l'erreur relative peut parfois atteindre 100%). Ceci provient notamment du fait que l'expression du facteur de Gaunt employée (éq. 3.156) est une valeur moyennée sur un grand nombre de sections de différents ions.

Il est intéressant de noter que l'expression de Van Regemorter permet de relier l'excitation collisionnelle et la photoexcitation par l'intermédiaire de la force d'oscillateur. Cependant cette expression n'est utilisable que pour des transitions dipolaires électriques ($l_b = l_a \pm 1$). Or, les collisions électron-ion n'imposent aucune restriction concernant les transitions. Par conséquent, cette expression peut être utilisée en première approximation dans le cadre de l'interaction laser-agrégat pour évaluer l'influence des processus d'excitation collisionnels, mais une méthode plus élaborée (DWBA ou PWBA) est nécessaire afin

d'obtenir des résultats plus précis.

3.4.2 Section efficace totale d'ionisation : Expression de Lotz

Afin de déterminer les sections efficaces totales d'ionisation par impact électronique, W. Lotz a obtenu une expression semi-empirique [Lotz 68]. Pour un électron d'énergie E_i incident sur un ion (ou atome) dont la couche de valence comporte N_{eq} électrons, la section d'ionisation d'un électron de cette couche externe dans un état a de nombres quantiques $n_a l_a$ d'énergie $E_a < 0$ est :

$$\sigma_{n_a l_a \rightarrow \epsilon} = a N_{eq} \frac{\ln(E_i/|E_a|)}{|E_a| E_i} \quad (3.158)$$

où $a = 4,5 \times 10^{-18} \text{eV}^2 \text{m}^2$ est une constante déterminée empiriquement.

Cette expression semi-empirique dérive de l'expression obtenue dans l'approximation des ondes planes. Le développement en série de Taylor du terme $e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_2}$ conduit à l'approximation de Bethe (cf. [Bransden *et al.* 03] p739) pour laquelle les sections totales d'ionisation varient selon $\sigma \propto \frac{\ln E_i}{E_i}$. Il est également intéressant de noter que le facteur N_{eq} intervenant dans le formalisme de Lotz provient du modèle à électrons indépendants (cf. paragraphe 3.2).

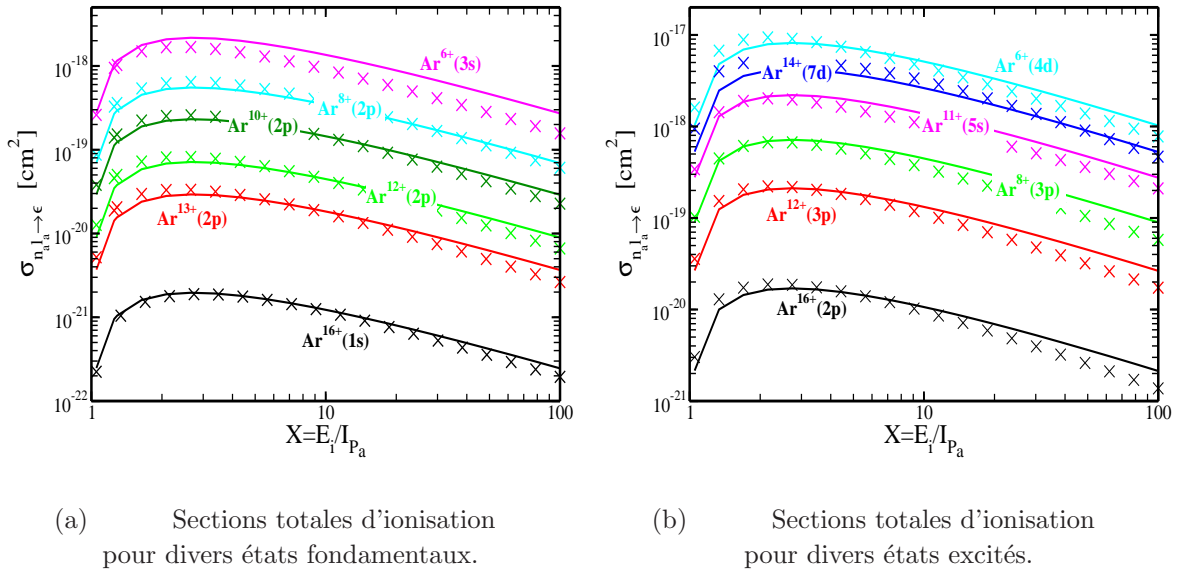


FIG. 3.9 – Sections efficaces totales d'ionisation collisionnelles déterminées selon l'expression de Lotz (éq. 3.158) pour plusieurs niveaux d'énergie (fondamentaux et excités) pour des ions Ar^{q+} (—). Les résultats, comparés aux données de référence (\times) [IAEA], sont présentés en fonction du rapport X de l'énergie de l'électron incident E_i au potentiel d'ionisation du niveau considéré I_{P_a} .

La figure 3.9 présente les sections efficaces d'ionisation collisionnelles obtenues à l'aide de l'expression de Lotz pour divers niveaux d'énergie d'ions Ar^{q+} en fonction de l'énergie de l'électron incident E_i normalisée au potentiel d'ionisation de l'état considéré $I_{P_a} = |E_a|$. Compte tenu de la simplicité de l'équation (3.158), les données de référence [IAEA] sont

convenablement reproduites par l'expression analytique que ce soit pour des états fondamentaux ou pour des états excités. Il est également intéressant de constater que, lorsque l'énergie de l'électron incident est proche de l'énergie d'ionisation du niveau considéré, l'erreur relative obtenue sur les valeurs calculées est du même ordre de grandeur que les données DWBA (fig. 3.5).

L'expression semi-empirique de Lotz permet par conséquent de correctement déterminer les sections efficaces d'ionisation collisionnelles de tout les états pris en compte. Nous avons par ailleurs comparé ces résultats à une expression analytique plus complexe [Burgess *et al.* 83] et nous avons pu vérifier que sur l'ensemble des niveaux d'énergie étudiés, cette expression ne donne pas de meilleurs résultats.

3.5 Inclusion des états excités dans le modèle nanoplasma

La description des ions (ou atomes) d'argon à l'aide de l'approche potentiel-modèle et la détermination des sections efficaces collisionnelles nous permet d'inclure des états excités intermédiaires dans la dynamique de l'ionisation de l'agrégat. Compte tenu du nombre élevé d'états excités nlm par ion et du nombre d'états de charge, nous avons été amenés à regrouper les états selon leurs énergies d'ionisation.

3.5.1 Regroupement des états excités en configurations

La prise en compte d'états excités nl dans le modèle nanoplasma peut conduire à un nombre très élevé d'équations couplées (cf. système (2.88)) dont la résolution numérique devient alors prohibitive. En pratique, il est possible de regrouper ces niveaux d'énergie sous forme de couches d'états, d'une manière identique à celle communément utilisée pour la description de plasmas dans les modèles collisionnels-radiatifs [Summers *et al.* 06]. Seule l'évolution de ces couches d'états (ou configurations) est alors considérée dans le modèle, ce qui permet de notablement réduire le nombre d'équations couplées. Ceci requiert cependant la détermination des énergies moyennes de ces couches d'états ainsi que les sections efficaces moyennes des transitions correspondantes.

En regroupant les états d'un même nombre quantique principal n (ces états ayant une énergie d'ionisation relativement proche), la détermination de l'énergie moyenne associée à cette configuration nécessite de connaître la distribution des populations de chacun des sous-états. En considérant le nanoplasma comme étant à l'équilibre thermodynamique local (le milieu est dominé par des collisions suffisamment nombreuses pour assurer la thermalisation du système), le rapport des deux populations de deux niveaux nl et nl' différents dans un même état d'ionisation q est donné par la loi statistique de Boltzmann :

$$\frac{N_{q,nl'}}{N_{q,nl}} = \frac{g_{q,nl'}}{g_{q,nl}} e^{-(E_{q,nl'} - E_{q,nl})/k_B T_e} \quad (3.159)$$

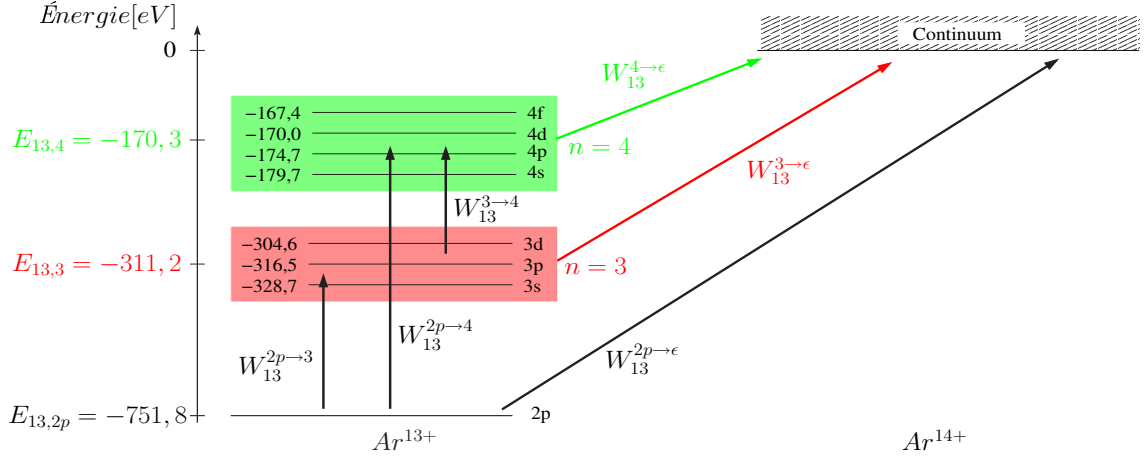


FIG. 3.10 – Regroupement des niveaux excités de l' $Ar^{13+}(1s^2 2s^2 2p)$ en couches d'états. $E_{13,n}$ est l'énergie moyenne d'une configuration n . $W_{13}^{n \rightarrow n'}$ désigne le taux d'excitation moyen entre ces couches et $W_{13}^{n \rightarrow \epsilon}$ représente le taux d'ionisation d'une configuration n .

où $E_{q,nl}$ est l'énergie d'ionisation de l'état nl pour un ion de charge q . Sachant que les états d'un même nombre quantique n sont proches en énergie, cette loi peut être simplifiée en considérant que $(E_{q,nl'} - E_{q,nl})/k_B T_e \ll 1$. L'énergie moyenne d'une configuration n est alors déterminée selon :

$$E_{q,n} = \frac{1}{n^2} \sum_l (2l+1) E_{q,nl} \quad (3.160)$$

L'inclusion de ces couches d'états excités dans le modèle nanoplasma requiert également la détermination des taux de transitions moyens entre ces configurations. Pour cela, suivant le même principe, les sections efficaces de transition sont moyennées à l'aide de la distribution statistique de Boltzmann :

$$\sigma_q^{n_a \rightarrow n_b, \epsilon} = \frac{1}{n_a^2} \sum_{l_a, l_b} (2l_a + 1) \sigma_q^{n_a l_a \rightarrow n_b l_b, \epsilon} \quad (3.161)$$

où $\sigma_q^{n_a l_a \rightarrow n_b l_b, \epsilon}$ désigne les sections efficaces d'excitation ou d'ionisation (DWBA : éqs (3.106) et (3.129), PWBA : éqs (3.143) et (3.153), Van Regemorter éq. (3.155) ou Lotz : éq. (3.158)) pour un état de charge q . La figure 3.10 illustre le regroupement des états excités de l' Ar^{13+} en couches d'états ainsi que les taux de transitions moyens correspondant à ces configurations. Il est important de remarquer que tous les états fondamentaux des différents états de charge ne sont pas regroupés en configurations, ceci afin de clairement distinguer des états excités. Nous avons par ailleurs vérifié que le regroupement en couches d'états de même nombre quantique n conduit à une évolution identique à celle inhérente à la prise en compte d'états excités nl . Ce formalisme nous permet par conséquent de réduire le nombre d'équations couplées sans perte de précision quant à l'évolution de l'agrégat.

3.5.2 Évaluation pratique des taux de transitions moyens

L'expression semi-analytique de Van Regemorter permet seulement de déterminer les sections totales d'excitation dipolaires électriques. Or, les processus collisionnels intervenant dans l'évolution du nanoplasma n'imposent aucune règle de sélection. En pratique, afin d'inclure les états excités dans le modèle nanoplasma, nous avons donc développé un code numérique qui nous permet de calculer les sections efficaces totales d'excitation DWBA et PWBA pour tous les états de charge et toutes les transitions considérées ($n_a l_a \rightarrow n_b l_b; n_a \neq n_b$). Celles-ci sont ensuite tabulées de la façon suivante :

- Afin de correctement décrire le seuil, pour un rapport X de l'énergie de l'électron incident à l'énergie de la transition considérée compris entre 1 et 11, les sections sont calculées à l'aide de l'approximation des ondes distordues (éq. (3.106)); cependant, les effets dûs à l'indiscernabilité des électrons étant négligeables pour $X \gtrsim 2$, l'échange n'est pas pris en compte.
- Puis, pour des énergies incidentes telles que $X \geq 11$, les sections totales d'excitation sont calculées à l'aide de l'approximation des ondes planes jusqu'à une énergie maximale de 50 keV (cette énergie élevée est nécessaire afin d'effectuer le calcul des taux d'excitation (cf. éq. (3.162)).

Les sections efficaces d'ionisation de tout les états nl considérés sont déterminées à l'aide de l'expression semi-empirique de Lotz (3.158). En effet, au paragraphe 3.4.2, nous avons constaté que cette expression permet de correctement évaluer les sections efficaces totales d'ionisation quelque soit le niveau nl considéré.

En pratique, pour inclure les états excités dans le modèle nanoplasma, nous commençons d'abord par regrouper les états nl en configurations. Par conséquent, les sections efficaces d'excitation entre configurations et les sections d'ionisation de ces couches d'états sont déterminées en moyennant statistiquement les sections d'excitation tabulées et les sections de Lotz selon l'expression (3.161). Connaissant les sections moyennes pour les configurations considérées, les taux d'excitation et d'ionisation sont alors déterminés en intégrant les sections sur une distribution maxwellienne :

$$W_q^{n_a \rightarrow n_b, \epsilon} [s^{-1}] = n_e \langle \sigma_q^{n_a \rightarrow n_b, \epsilon} v_e \rangle \quad (3.162)$$

Ce calcul est effectué en utilisant une distribution normale à la température T_e à laquelle s'ajoute une composante due à l'accélération des électrons selon l'axe de polarisation de l'impulsion laser, selon le même principe que celui décrit au paragraphe 2.5.2.

3.5.3 Modification des équations d'évolution

L'inclusion d'états excités intermédiaires dans la description de la dynamique de l'agrégat conduit à la modification des équations d'évolution du modèle originel (système (2.88)). Tout d'abord, les collisions électron-ion induisant des processus d'excitation entraînent une perte d'énergie de l'électron incident. Ceci se traduit par l'apparition d'un

terme supplémentaire dans l'équation d'évolution de la température électronique :

$$\frac{\partial E^{exc}}{\partial t} = \sum_q \sum_{n, n' > n} (E_{q, n'} - E_{q, n}) W_q^{n \rightarrow n'} N_{q, n} \quad (3.163)$$

Le système d'équations couplées, qui doit alors également prendre en compte l'évolution des couches d'états excités, s'écrit finalement :

$$(3.164) \left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial R}{\partial t} = v_{exp} \\ \frac{\partial v_{exp}}{\partial t} = 5 \frac{P_H + P_C}{n_i m_i} \frac{1}{R} \\ \frac{\partial Q}{\partial t} = n_e \frac{2\sqrt{2\pi}}{\sqrt{m_e k_B T_e}} (E_{esc} + k_B T_e) \exp\left(-\frac{E_{esc}}{k_B T_e}\right) \times \begin{cases} \frac{\lambda_e}{4R} (12R^2 - \lambda_e^2) & \text{pour } \lambda_e < R \\ 4R^2 & \text{pour } \lambda_e \geq R \end{cases} \\ \frac{\partial N_{q, nl}}{\partial t} = (W_{opt}^{q-1} + W_{coll}^{q-1}) N_{q-1, n'l'} + \sum_{n''} W_{q-1}^{n'' \rightarrow \epsilon} N_{q-1, n''} \\ \quad - (W_{opt}^q + W_{coll}^q) N_{q, nl} - \sum_{n' > n} W_q^{nl \rightarrow n'} N_{q, nl} \\ \frac{\partial N_{q, n'}}{\partial t} = W_q^{nl \rightarrow n'} N_{q, nl} + \sum_{n < n'} W_q^{n \rightarrow n'} N_{q, n} - \sum_{n > n'} W_q^{n' \rightarrow n} N_{q, n'} - W_q^{n' \rightarrow \epsilon} N_{q, n'} \\ \frac{\partial N_e}{\partial t} = \sum_q q \left(\frac{\partial N_{q, nl}}{\partial t} + \sum_{n'} \frac{\partial N_{q, n'}}{\partial t} \right) - \frac{\partial Q}{\partial t} \\ \frac{\partial k_B T_e}{\partial t} = \frac{2}{3N_e} \left[\frac{\partial E^{BI}}{\partial t} + \frac{\partial E^{th}}{\partial t} + \frac{\partial E^{acc.}}{\partial t} \right] - \\ \quad \left[\frac{\partial k_B T_e^{var. N_e}}{\partial t} + \frac{\partial k_B T_e^{exp}}{\partial t} + \frac{\partial k_B T_e^{therm}}{\partial t} + \frac{2}{3N_e} \frac{\partial E^{coll}}{\partial t} + \frac{2}{3N_e} \frac{\partial E^{exc}}{\partial t} + \frac{2}{3N_e} \frac{\partial E^{fs}}{\partial t} \right] \end{array} \right.$$

où, pour un état de charge q donné, les populations des états fondamentaux $N_{q, nl}$ ont été séparées des couches d'états excités $N_{q, n'}$. Les conditions initiales du système sont telles que :

- la vitesse d'expansion de l'agrégat est nulle $v_{exp} = 0$;
- le rayon de l'agrégat est égal au rayon initial $R = R_0$;
- la charge totale de l'agrégat est nulle $Q = 0$;
- la population d'atomes neutres est égale au nombre d'atomes dans l'agrégat $N_{0, 3p} = N$;
- les populations de tout les autres états de charge (états fondamentaux ou excités) sont nulles, $N_{q, nl} = N_{q, n} = 0$;
- le nombre d'électrons libres dans l'agrégat est nul $N_e = 0$;

- et la température électronique initiale est nulle $k_B T_e = 0$.

3.6 Conclusion

La description de la structure électronique à l'aide de l'approche potentiel-modèle ainsi que l'évaluation des sections efficaces d'excitation collisionnelles dans l'approximation des ondes distordues (et des ondes planes à plus haute énergie) et l'évaluation des sections efficaces totales d'ionisation collisionnelles à l'aide de l'expression semi-empirique de Lotz nous permet d'inclure des processus d'ionisation d'ordre supérieur dans la description de la dynamique de l'interaction laser-agrégat. Ainsi, le nombre de couches d'états excités peut être augmenté jusqu'à obtenir une dynamique d'ionisation convergée. L'influence de l'introduction d'états excités et les résultats obtenus dans le cadre de ce modèle nanoplasma amélioré seront présentés dans le chapitre 5.

Chapitre 4

Interaction électron-ion : Influence des phénomènes d'écran induits par une densité d'électrons libres

Sommaire

| | | |
|------------|---|------------|
| 4.1 | Modèle d'écran pour l'interaction laser-agrégat : l'approche de Gupta et Rajagopal | 117 |
| 4.1.1 | Modification de l'interaction électron-ion en présence d'une densité d'électrons libres | 118 |
| 4.1.1.1 | Expression du potentiel d'interaction électron-ion | 118 |
| 4.1.1.2 | Évaluation du potentiel chimique | 120 |
| 4.1.2 | Expressions simplifiées du potentiel : cas limites | 123 |
| 4.1.2.1 | Allure du potentiel pour $t \rightarrow 0$: oscillations de Friedel | 123 |
| 4.1.2.2 | Comportement du potentiel à courte distance pour $t \rightarrow 0$ | 125 |
| 4.1.2.3 | Expressions asymptotiques du potentiel pour $t \rightarrow \infty$ | 127 |
| 4.1.3 | Description de la structure électronique : potentiel-modèle écranté | 129 |
| 4.2 | Influence de l'écran sur les états liés | 130 |
| 4.2.1 | Déplacement des niveaux d'énergie | 130 |
| 4.2.2 | Modification des fonctions d'onde liées | 132 |

| | | |
|------------|--|------------|
| 4.3 | Influence de l'écran sur les collisions électron-ion | 134 |
| 4.3.1 | Sections efficaces d'excitation collisionnelles écrantées | 134 |
| 4.3.2 | Sections efficaces d'ionisation collisionnelles écrantées | 142 |
| 4.3.3 | Inclusion des phénomènes d'écran dans le modèle nanoplasma . | 146 |
| 4.3.3.1 | Expression semi-analytique de Van Regemorter pour les sections d'excitation écrantées | 146 |
| 4.3.3.2 | Sections efficaces d'ionisation écrantées : Expression de Lotz | 148 |
| 4.4 | Conclusion | 149 |

D'après les résultats préliminaires obtenus à l'aide du modèle nanoplasma, nous avons pu observer que la densité d'électrons libres au sein de l'agrégat peut être très importante. R. Santra et C. Greene ont démontré, pour des agrégats de xénon, que les phénomènes d'écran induits par la densité de charges accroissent significativement l'absorption de photons VUV ($\lambda=109$ nm) [Santra *et al.* 03]. Par conséquent, ceci peut significativement modifier la dynamique de l'interaction. Afin de prendre en compte cet effet dans le modèle nanoplasma, nous avons donc étudié l'influence de cet environnement sur le potentiel d'interaction entre les particules chargées de l'agrégat. En effet, l'énergie de liaison d'un électron peut être perturbée par la densité d'électrons libres environnantes [Gets *et al.* 06]. De même, l'interaction entre un électron libre incident et un ion étant modifiée, les probabilités d'excitation ou d'ionisation par impact électronique vont également être différents d'un système isolé.

Dans un premier temps, ce chapitre présente le potentiel d'écran que nous avons utilisé afin de modéliser l'interaction électron-ion dans le cadre de la description de la dynamique de l'interaction laser-agrégat. Puis, la seconde partie met en évidence l'influence de ce potentiel sur les niveaux d'énergie et les fonctions d'onde de plusieurs ions Ar^{q+} dans diverses conditions de densité et de température électroniques caractéristiques de l'évolution du nanoplasma. La modification des sections efficaces d'excitation et d'ionisation est ensuite exposée dans la troisième partie de ce chapitre. Et enfin, la quatrième et dernière section présente comment ces phénomènes d'écran sont inclus dans le modèle nanoplasma.

4.1 Modèle d'écran pour l'interaction laser-agrégat : l'approche de Gupta et Rajagopal

L'interaction d'une impulsion laser avec un agrégat de gaz rare conduit à la formation d'un plasma dont les caractéristiques évoluent rapidement au cours du temps. Le paramètre de dégénérescence γ , qui est le rapport de la température de Fermi T_F à la température électronique T_e , permet de distinguer les plasmas "classiques" ($\gamma \ll 1$) des plasmas dits dégénérés ($\gamma \geq 1$) dans lesquels les effets quantiques jouent un rôle important :

$$\gamma = \frac{k_B T_F}{k_B T_e} = \frac{\hbar^2 (3\pi^2 n_e)^{2/3}}{2m_e k_B T_e} \quad (4.1)$$

Au tout début de l'interaction, les électrons peu énergétiques libérés par le champ laser induisent une densité électronique très élevée au sein de l'agrégat (de l'ordre de 10^{22} cm⁻³). En quelques dizaines de femtosecondes, celui-ci devient alors un plasma dégénéré quasi-métallique. Puis, sous l'influence du chauffage par bremsstrahlung inverse ainsi que de la dilatation du nanoplasma, le système évolue en quelques centaines de femtosecondes vers un plasma classique. L'agrégat traverse ainsi des conditions de densité et de température électroniques très variées au cours de son évolution.

De par son importance dans de nombreux domaines de la physique, la description

d'un atome (ou d'un ion) plongé dans un gaz d'électrons à température finie est le sujet de nombreuses recherches théoriques. Il existe différents potentiels qui permettent de modéliser l'influence des électrons environnants. Parmi ceux-ci, le potentiel de Debye-Hückel présente l'avantage d'être analytique et simple d'utilisation. Pour un noyau de charge Z , il prend la forme :

$$V_{DH}(r; n_e, T_e) = -\frac{Z}{4\pi\epsilon_0 r} e^{-r/\lambda_D} \quad (4.2)$$

où $\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{e^2 n_e}}$ est la longueur d'écran de Debye. Ce potentiel est valide dans la limite des faibles densités et hautes températures (soit pour un plasma classique). En effet, dans ce cas, l'énergie cinétique moyenne des particules est beaucoup plus importante que leur énergie d'interaction, et les effets de corrélation peuvent donc être considérés comme une perturbation par rapport au comportement du gaz parfait. Dans ces conditions, la densité de particules perturbatrices peut être obtenue en linéarisant la distribution statistique de Maxwell-Boltzmann. L'expression (4.2) est alors obtenue à l'aide de l'équation de Poisson et de la condition de neutralité du milieu.

Dans un premier temps, nous avons par conséquent essayé d'évaluer l'influence des phénomènes d'écran dans la dynamique de l'agrégat à l'aide du potentiel de Debye-Hückel. Cependant, au tout début de l'interaction, l'ionisation par effet de champ produit un grand nombre d'électrons de faible énergie. Le rapport de l'énergie cinétique à l'énergie potentielle électronique est alors très faible, le plasma est dégénéré et le modèle d'écran de Debye-Hückel n'est pas adapté. Celui-ci surestime les effets d'écran et conduit à des résultats non physiques (les atomes d'argon sont entièrement ionisés en quelques femto-secondes). Ces résultats nous ont conduit à utiliser un modèle plus sophistiqué et adapté aux conditions de densité et de température variables rencontrées par le plasma au cours de l'interaction laser-agrégat. Il existe différentes approches présentées dans la littérature [Dharma *et al.* 81, Perrot *et al.* 84]. Nous avons choisi le modèle développé par U. Gupta et A.K. Rajagopal [Gupta *et al.* 79] qui est suffisamment sophistiqué pour correctement décrire les phénomènes d'écran dans le cadre du modèle nanoplasma.

4.1.1 Modification de l'interaction électron-ion en présence d'une densité d'électrons libres

4.1.1.1 Expression du potentiel d'interaction électron-ion

Considérons un noyau de charge Z plongé dans un gaz d'électrons de densité n_e à l'équilibre thermodynamique à la température T_e . Le potentiel d'interaction d'un électron avec ce noyau s'écrit [Gupta *et al.* 79, Gupta *et al.* 81, Gupta *et al.* 82] :

$$V_{GR}(\mathbf{r}; \rho, T_e) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r} + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{d\mathbf{r}' \rho(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \quad (4.3)$$

où le potentiel de Hartree (second terme du membre de droite) décrit l'interaction de l'électron de coordonnée \mathbf{r} avec la densité $\rho(\mathbf{r})$ de charges environnantes (cette expression

4.1. Modèle d'écran pour l'interaction laser-agrégat : l'approche de Gupta et Rajagopal

ne prend pas en compte les termes d'échange et de corrélation bien que ceux-ci aient également été étudiés par U. Gupta et A.K. Rajagopal [Gupta *et al.* 80a, Gupta *et al.* 80b]). En passant dans l'espace des impulsions \mathbf{q} et en utilisant les propriétés du produit de convolution, on obtient :

$$V_{GR}(\mathbf{q}; \rho, T_e) = -\frac{Ze^2}{\varepsilon_0 q^2} + \frac{e^2}{\varepsilon_0 q^2} \rho(\mathbf{q}) \quad (4.4)$$

U. Gupta et A.K. Rajagopal supposent que la densité de charges répond linéairement au potentiel :

$$\rho(\mathbf{q}) = \chi(\mathbf{q}; \rho, T_e) V_{GR}(\mathbf{q}; \rho, T_e) \quad (4.5)$$

ce qui permet de réécrire le potentiel sous la forme :

$$V_{GR}(\mathbf{q}; \rho, T_e) = -\frac{Ze^2}{\varepsilon_0 q^2} \frac{1}{1 - \frac{e^2}{\varepsilon_0 q^2} \chi(\mathbf{q}; \rho, T_e)} \quad (4.6)$$

soit dans l'espace des positions :

$$V_{GR}(\mathbf{r}; \rho, T_e) = -\frac{Ze^2}{2\pi^2 \varepsilon_0} \int_0^\infty dq \frac{\sin(qr)}{qr} \frac{1}{1 - \frac{e^2}{\varepsilon_0 q^2} \chi(\mathbf{q}; \rho, T_e)} \quad (4.7)$$

La fonction de réponse $\chi(\mathbf{q}; \rho, T_e)$ est déterminée suivant la fonction de Lindhard statique [Lindhard 54] généralisée aux températures non-nulles [Ashcroft *et al.* 76] :

$$\chi(\mathbf{q}; \rho, T_e) = -2 \int \frac{d\mathbf{p}}{(2\pi)^3} \frac{f_{FD}(\mathbf{p} + \mathbf{q}) - f_{FD}(\mathbf{p})}{\epsilon_p - \epsilon_{p+q}} \quad (4.8)$$

où $\epsilon_p = \hbar^2 p^2 / 2m_e$ et $f_{FD}(\mathbf{p})$ est la fonction de distribution de Fermi-Dirac pour les électrons :

$$f_{FD}(\mathbf{p}) = \frac{1}{e^{\beta(\epsilon_p - \mu)} + 1} \quad (4.9)$$

avec $\beta = (k_B T_e)^{-1}$ et μ est le potentiel chimique associé au gaz d'électrons. Le changement de variable $\mathbf{k} = \mathbf{p} + \mathbf{q}$ et l'intégration angulaire de l'équation (4.8) conduit à :

$$\chi(\mathbf{q}; \rho, T_e) = -\frac{1}{\pi^2 e^2 a_0} \frac{1}{q} \int_0^\infty dk k f_{FD}(k) \ln \left| \frac{1 + 2k/q}{1 - 2k/q} \right| \quad (4.10)$$

Afin de simplifier les notations, nous introduisons les variables sans dimensions :

$$\begin{cases} t = T_e / T_F \\ Q = q / k_F \\ x = k / k_F \end{cases} \quad (4.11)$$

où $k_F = (3\pi^2 n_e)^{1/3}$ est le vecteur de Fermi associé à l'énergie de Fermi $E_F = \hbar^2 k_F^2 / 2m_e$ et $T_F = E_F / k_B$ est la température de Fermi.

Le potentiel effectif $V_{GR}(r; \rho, T_e)$ s'écrit finalement :

$$V_{GR}(r; n_e, T_e) = -\frac{Ze^2}{2\pi^2 \varepsilon_0} k_F \int_0^\infty dQ \frac{\sin(Q k_F r)}{Q k_F r} \frac{1}{1 + \xi^2(Q; n_e, T_e) / Q^2} \quad (4.12)$$

où la fonction $\xi^2(Q; n_e, T_e)$ vaut :

$$\xi^2(Q; n_e, T_e) = -\frac{e^2}{\varepsilon_0 k_F^2} \chi(Q; n_e, T_e) = \frac{1}{\pi^2 \varepsilon_0 a_0 k_F} \frac{1}{Q} \int_0^\infty dx \frac{x}{e^{t^{-1}(x^2 - \alpha(t))} + 1} \ln \left| \frac{x + Q/2}{x - Q/2} \right| \quad (4.13)$$

et $\alpha(t) = \frac{\mu}{E_F}$ est le potentiel chimique normalisé à l'énergie de Fermi.

En pratique, suivant la méthode de U. Gupta et A.K. Rajagopal [Gupta *et al.* 81], l'évaluation numérique du potentiel peut être simplifiée en réécrivant celui-ci sous la forme :

$$V_{GR}(r; n_e, T_e) = -\frac{Ze^2}{4\pi\varepsilon_0 r} - \frac{Ze^2}{2\pi^2\varepsilon_0} k_F \int_0^{Q_{max}} dQ \frac{\sin(Qk_F r)}{Qk_F r} \left(\frac{1}{1 + \xi^2(Q; n_e, T_e)/Q^2} - 1 \right) \quad (4.14)$$

En effet, l'élément de l'intégrant entre parenthèses décroît alors en Q^{-5} et l'intégration jusqu'à une (faible) valeur Q_{max} est suffisante.

4.1.1.2 Évaluation du potentiel chimique

Le potentiel chimique μ est déterminé en utilisant les propriétés d'un gaz parfait d'électrons à une température T_e donnée. La densité de particules de ce gaz s'écrit :

$$n_e = \int_0^\infty d\epsilon g(\epsilon) f_{FD}(\epsilon) \quad (4.15)$$

où $g(\epsilon) = \sqrt{2m_e^3\epsilon}/\hbar^3\pi^2$ est la densité d'états d'énergie ϵ et $f_{FD}(\epsilon) = (e^{\beta(\epsilon-\mu)} + 1)^{-1}$ est la distribution de Fermi-Dirac. Les électrons étant considérés comme libres et indépendants, leur énergie vaut $\epsilon = \hbar^2 k^2/2m_e$, ce qui permet de réécrire l'équation (4.15) sous la forme :

$$n_e = 2 \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \frac{1}{e^{\beta(\frac{\hbar^2 k^2}{2m_e} - \mu)} + 1} \quad (4.16)$$

Finalement, en utilisant les coordonnées réduites (4.11), on obtient l'équation transcendante suivante :

$$\int_0^\infty dx \frac{x^2}{1 + e^{t^{-1}(x^2 - \alpha(t))}} = \frac{1}{3} \quad (4.17)$$

où $\alpha(t) = \frac{\mu}{E_F}$.

La résolution de cette équation par la méthode de Descartes permet de déterminer $\alpha(t)$ et donc le potentiel chimique du gaz d'électrons. La figure 4.1 présente l'évolution de la fonction $\alpha(t)$ en fonction du paramètre $t = T_e/T_F$ (bien que U. Gupta et coll. appellent ce paramètre "la température réduite", t dépend également de n_e par l'intermédiaire de T_F).

En pratique, en vue d'une utilisation intensive du potentiel, nous avons déterminé des expressions analytiques pour la fonction $\alpha(t)$. Tout d'abord, des expressions asymptotiques peuvent être obtenues pour $t \rightarrow 0$ et $t \rightarrow \infty$ en développant l'intégrale (4.17) selon la

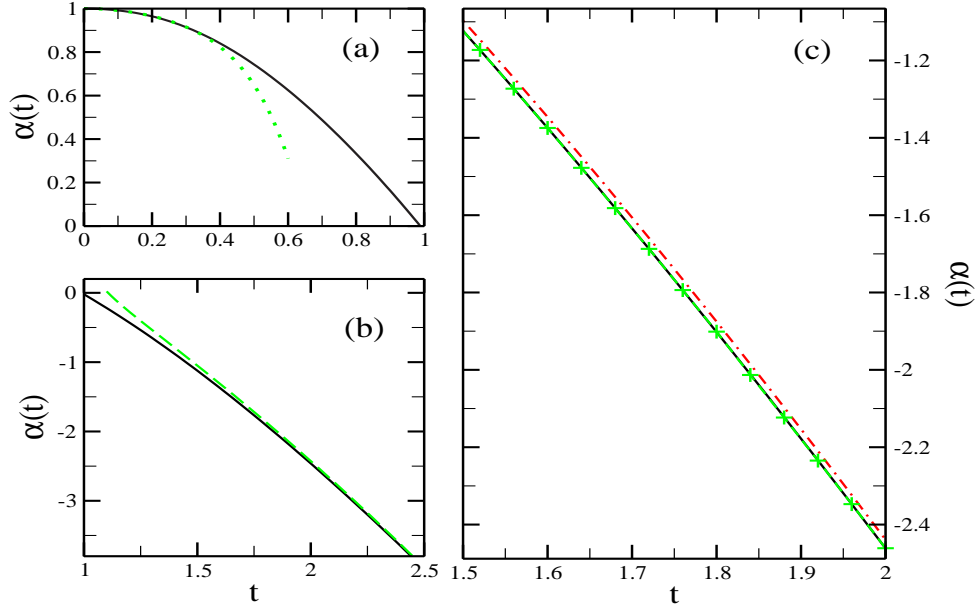


FIG. 4.1 – Potentiel chimique réduit $\alpha(t)$ en fonction de $t = T_e/T_F$ pour $t \in [0; 1]$ (a), pour $t \in [1; 2, 5]$ (b), et pour $t \in [1, 5; 2]$ (c). Valeurs déterminées en résolvant numériquement l'équation (4.17) (—); forme asymptotique (4.18) (\cdots); forme asymptotique (4.19) (---); expressions analytiques (4.20) (-+-); formule d'interpolation de Dharma-Wardana et Taylor [Dharma et al. 81] (-.-).

variable $z = \exp(\alpha(t)/t)$ [Huang 63] (pour $z \gg 1$ et $z \ll 1$ respectivement) :

$$\lim_{t \rightarrow 0} \alpha(t) = 1 - \frac{1}{12}(\pi t)^2 - \frac{7}{960}(\pi t)^4 - \frac{31}{4608}(\pi t)^6 \quad (4.18)$$

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \alpha(t) = t \ln \left[\sqrt{2} \left(1 - \sqrt{1 - \frac{2^{5/2}}{3\sqrt{\pi}} t^{-3/2}} \right) \right] \quad (4.19)$$

Nous avons vérifié que pour $t \leq 0, 2$, l'erreur relative des résultats obtenus à l'aide de l'expression (4.18) par rapport aux résultats numériques est inférieure à 10^{-3} (cf. figure (4.1(a))), alors que l'équation (4.19) reproduit les données numériques avec la même précision pour $t \geq 3, 8$ (cf. figure 4.1(b)). Nous pouvons par ailleurs remarquer que les expressions ci-dessus sont plus précises que celles provenant des références [Gupta *et al.* 79, Dharma *et al.* 81] (par exemple, l'expression de M. Dharma-wardana et R. Taylor pour $t \rightarrow \infty$ n'est valide à 10^{-3} près que pour $t \geq 15, 5$).

Pour des valeurs intermédiaires, nous avons déterminé empiriquement des expressions analytiques pour la fonction $\alpha(t)$. Nous nous sommes assurés que, dans les domaines de validité indiqués, ces équations donnent des résultats dont l'erreur relative par rapport aux valeurs numériques est inférieure à 10^{-3} :

$$\alpha(t) = \begin{cases} \Gamma(\pi t; A_1) & \text{pour } 0,00 \leq t \leq 0,34 \\ \left(1 - \frac{t}{D_2}\right) \left[\Gamma(\pi t; A_2) + E_2 \Upsilon(t) \Omega(\pi t; B_2, C_2) \right] & \text{pour } 0,30 \leq t \leq 0,89 \\ \left[1 - \left(\frac{t}{D_3}\right)^4\right] \left[\Gamma(\pi t; A_3) + E_3 \Upsilon(t) \Omega(\pi t; B_3, C_3) \right] & \text{pour } 0,78 \leq t \leq 1,24 \\ \left[1 - \left(\frac{t}{D_4}\right)^2\right] \left[\Gamma(\pi t; A_4) + E_4 \Upsilon(t) \Omega(\pi t; B_4, C_4) \right] & \text{pour } 1,23 \leq t \leq 1,85 \\ \Upsilon(t) \Omega(\pi t; B_5, C_5) & \text{pour } t \geq 1,83 \end{cases} \quad (4.20)$$

où les fonctions $\Upsilon(t)$, $\Gamma(\pi t; A)$ et $\Omega(\pi t; B, C)$ sont définies selon :

$$\begin{cases} \Upsilon(t) = t \left[-\ln(6\pi^2) + \frac{3}{2} \ln\left(\frac{4\pi}{t}\right) \right] \\ \Gamma(\pi t; A) = \exp \left[-\frac{(\pi t)^2}{12} (1 + A(\pi t)^2) \right] \\ \Omega(\pi t; B, C) = \exp \left[-\left(\frac{B}{(\pi t)^2} + \frac{C}{(\pi t)^4} \right) \right] \end{cases} \quad (4.21)$$

et les constantes A_i, B_i, C_i, D_i et E_i sont données dans le tableau 4.1.

| i | A_i | B_i | C_i | D_i | E_i |
|-----|----------------------|-------|-------|-------|---------|
| 1 | 0,23 | - | - | - | - |
| 2 | 0,175 | 16,4 | -9,7 | 54,0 | 2,15 |
| 3 | $2,04 \cdot 10^{-3}$ | -8,6 | 45,4 | 0,989 | -0,0724 |
| 4 | 0,138 | -1,16 | 88,2 | 1,87 | 0,952 |
| 5 | - | 1,99 | 36,0 | - | - |

TAB. 4.1 – Valeur des paramètres A_i, B_i, C_i, D_i et E_i pour les expressions analytiques du potentiel chimique réduit (éqs (4.20)).

La figure 4.1 présente la variation du potentiel chimique réduit $\alpha(t)$ en fonction de t . La comparaison des valeurs obtenues à l'aide des expressions asymptotiques (éq. (4.18)) et des résultats issus de la résolution numérique de l'équation (4.17) met en évidence les limites de validité de ces expressions (figs 4.1(a) et 4.1(b)). Pour des valeurs intermédiaires, la figure 4.1(c) indique que les expressions analytiques (4.20) sont plus précises que la formule d'interpolation proposée par M. Dharma-wardana et R. Taylor [Dharma *et al.* 81].

Nous avons par conséquent utilisé ces expressions analytiques pour déterminer le potentiel chimique intervenant dans l'expression du potentiel de U. Gupta et A.K. Rajagopal.

4.1.2 Expressions simplifiées du potentiel : cas limites

Les expressions (4.13) et (4.14) permettent de déterminer le potentiel d'interaction électron-ion quelles que soient les conditions de densité et de température électroniques (à condition que la réponse linéaire du gaz d'électrons soit appropriée). Sous certaines conditions, ces expressions peuvent se simplifier et se réduisent alors à des formes analytiques ou semi-analytiques connues.

4.1.2.1 Allure du potentiel pour $t \rightarrow 0$: oscillations de Friedel

Nous nous plaçons tout d'abord dans la limite des températures nulles. Sachant que la distribution de Fermi-Dirac (éq. (4.9)) se réduit alors $f_{FD}(x, t = 0) = \Theta(1 - x)$ (où $\Theta(x)$ est la fonction de Heaviside), la fonction $\xi^2(Q; n_e, T_e = 0)$ prend une forme analytique [Ashcroft *et al.* 76] :

$$\xi^2(Q; n_e, T_e = 0) = \frac{1}{\pi^2 \varepsilon_0 a_0 k_F} \left[\frac{1}{2} + \frac{1 - (Q/2)^2}{2Q} \ln \left| \frac{1 + Q/2}{1 - Q/2} \right| \right] \quad (4.22)$$

En utilisant le contour indiqué par A. Fetter et J. Walecka [Fetter *et al.* 71, Gouedard *et al.* 78], l'intégration dans le plan complexe de l'équation (4.14) permet de déterminer une expression asymptotique du potentiel pour les grandes distances :

$$\lim_{r \rightarrow \infty} V_{GR}(r; n_e, T_e = 0) = V_{LV}(r, n_e) = -\frac{Ze^2}{4\pi\varepsilon_0} \frac{\pi}{(1 + 2\pi k_F)^2} \frac{\cos(2k_F r)}{r^3} \quad (4.23)$$

Ce résultat, initialement obtenu par J. Langer et S. Vosko [Langer *et al.* 60], démontre un comportement oscillatoire du potentiel. Ceci correspond aux oscillations de Friedel [Friedel 52] qui apparaissent de par le fait que la surface de Fermi est nettement délimitée à $t = 0$. Ce phénomène a été mis en évidence dans les solides métalliques : la présence de l'impureté ionique induit un réarrangement de la densité électronique à longue distance selon une "onde de densité de charge" de vecteur d'onde $2k_F$.

Lorsque la température est faible mais non-nulle ($t \ll 1$), la surface de Fermi est alors moins localisée, ce qui entraîne un amortissement exponentiel des oscillations de Friedel. Dans ces conditions, R. Grassme et P. Bussemer ont obtenu une expression analytique du potentiel à grande distance [Grassme *et al.* 93] :

$$\lim_{r \rightarrow \infty} V_{GR}(r; n_e, t \ll 1) = V_{GB}(r; n_e, t) = -\frac{Ze^2}{4\pi\varepsilon_0} \frac{\pi^2 t}{[1 + 2\pi k_F \alpha(t)]^2} \frac{\cos(2k_F \sqrt{\alpha(t)} r)}{r^2 \sinh \left[\frac{\pi k_F}{\sqrt{\alpha(t)}} r \right]} \quad (4.24)$$

Nous pouvons noter que pour $t = 0$, cette expression se réduit à la forme obtenue par J. Langer et S.H. Vosko (éq. (4.23)).

En pratique, l'évaluation numérique du potentiel d'interaction $V_{GR}(r; n_e, T_e)$ ne peut être remplacée par les expressions analytiques (4.23) et (4.24) car celles-ci ne sont valides qu'à longue distance de l'ion. Cependant, la présence de la singularité de Kohn à $Q = 2x$ (éq. (4.13)) et l'évaluation de l'intégrale double (éqs (4.13) et (4.14)) requiert un calcul

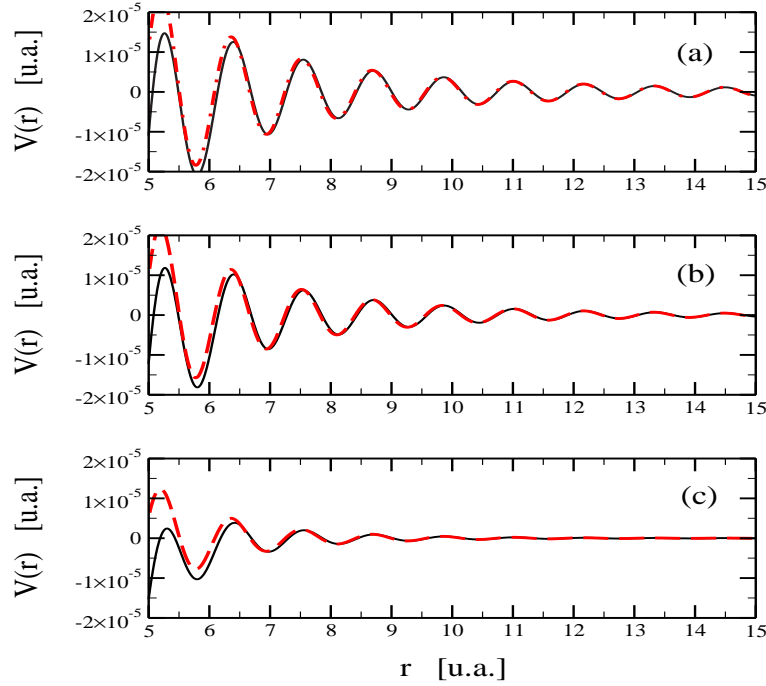


FIG. 4.2 – Comparaison du potentiel $V_{GR}(r; n_e, T_e)$ (—) (éq. (4.7)) avec les expressions analytiques $V_{LV}(r; n_e, t = 0)$ (- - -) (éq. (4.23)) et $V_{GB}(r; n_e, t \ll 1)$ (- · -) (éq. (4.24)) pour $Z = 1$, $n_e = 4,54 \times 10^{24} \text{ cm}^{-3}$, et $T_e = 0,1 \text{ eV}$ (a), $T_e = 2 \text{ eV}$ (b), $T_e = 5 \text{ eV}$ (c) ce qui correspond respectivement à $t = 10^{-3}$; $t = 2 \times 10^{-2}$ et $t = 5 \times 10^{-2}$.

d'une grande précision. Nous avons donc utilisé ces expressions asymptotiques afin de vérifier notre méthode de calcul du potentiel. La figure 4.2 présente l'évolution du potentiel d'interaction en fonction de la distance r entre un électron et un ion H^+ pour une densité électronique donnée ($n_e = 4,54 \times 10^{24} \text{ cm}^{-3}$). Le potentiel $V_{GR}(r; n_e, T_e)$ est comparé aux formes analytiques (4.23) et (4.24) pour trois températures. Sur la figure 4.2(a) ($T_e = 0,1 \text{ eV}$), il est clair que pour $r \geq 7$, le potentiel de U. Gupta et A.K. Rajagopal se réduit à l'expression de J. Langer et S.H. Vosko (éq. (4.23)). Pour cette température (et par conséquent pour les plus faibles températures), l'expression (4.23) est identique à la forme (4.24) quel que soit r si bien que cette dernière n'est pas représentée afin de ne pas alourdir la figure. Les figures 4.2(b) et 4.2(c) comparent le potentiel obtenu numériquement à l'expression asymptotique de R. Grassme et coll. pour une température électronique de 2 eV et de 5 eV respectivement. Nous constatons sur ces figures que les résultats obtenus numériquement coïncident parfaitement avec l'expression analytique pour $r \geq 8$. Ces figures mettent également en évidence l'amortissement des oscillations de Friedel lorsque la température augmente.

La figure 4.3 présente les valeurs du potentiel obtenues dans les mêmes conditions que celles de U. Gupta et A.K. Rajagopal [Gupta *et al.* 81, Gupta *et al.* 82], pour trois densités électroniques ($n_e = 4,54 \times 10^{24} \text{ cm}^{-3}$, $n_e = 2,47 \times 10^{24} \text{ cm}^{-3}$ et $n_e = 10^{24} \text{ cm}^{-3}$) et une température électronique ($T_e = 100 \text{ eV}$). Contrairement aux résultats obtenus par U. Gupta et A.K. Rajagopal, nos potentiels ne présentent aucune structure oscillatoire. Plus généralement, nous ne trouvons pas les mêmes résultats que ceux présentés par U.

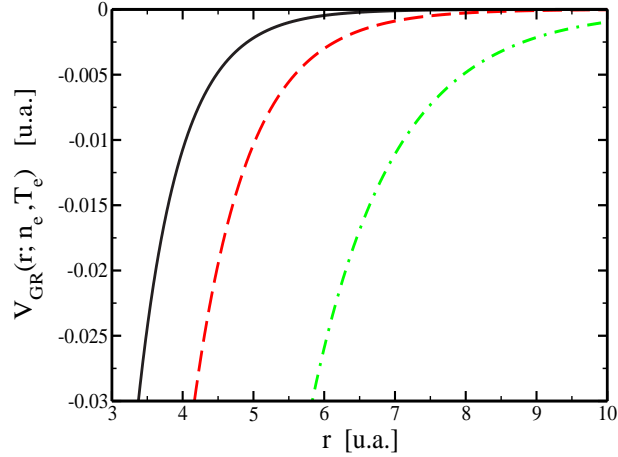


FIG. 4.3 – Valeurs du potentiel $V_{GR}(r; n_e, T_e)$ (éq. (4.7)) pour $Z = 10$, $T_e = 100$ eV et $n_e = 4,54 \times 10^{24} \text{ cm}^{-3}$ (—), $n_e = 2,47 \times 10^{24} \text{ cm}^{-3}$ (- -), $n_e = 10^{24} \text{ cm}^{-3}$ (-.-) ce qui correspond respectivement à $t = 1$; $t = 1,5$ et $t = 2,74$.

Gupta et coll. sur la figure 1(c) de la référence [Gupta *et al.* 81] et sur la figure 3(c) de la référence [Gupta *et al.* 82]. Compte tenu du fait que notre évaluation du potentiel converge vers les formes asymptotiques à faible température, nous supposons que l'erreur de U. Gupta et A.K. Rajagopal provient de problèmes numériques. En effet, comme indiqué précédemment, le traitement de la singularité à $Q = 2x$ et le calcul de l'intégrale double requièrent une grande précision de calcul.

D'un point de vue pratique, il est intéressant de déterminer une limite de la forme $T_e = \mathcal{F}(n_e)$ qui permette de caractériser le changement d'allure du potentiel, d'un comportement oscillatoire à longue distance pour les faibles températures à une décroissance de type exponentielle. Par conséquent, nous avons évalué numériquement cette limite en étudiant le signe de la dérivée du potentiel. En effet, pour un comportement exponentiel, la dérivée est toujours positive, alors que le changement de signe indique une rémanence des oscillations de Friedel. À partir des résultats numériques obtenus, nous avons pu déterminer une expression analytique qui permet, pour une densité donnée, d'obtenir la température électronique correspondant à la limite d'apparition des oscillations de Friedel. Cette expression d'interpolation s'écrit :

$$T_e^{osc} [\text{eV}] = 7 \times 10^{-11} \left(n_e [\text{cm}^{-3}] \right)^{0,46} \quad (4.25)$$

Avec plusieurs autres limites présentées dans les paragraphes suivants, cette expression est représentée sur la figure 4.4. Pour $T_e < T_e^{osc}$, le potentiel $V_{GR}(r; n_e, T_e)$ présente un comportement oscillatoire à longue distance alors que pour $T_e > T_e^{osc}$, le potentiel est décroissant quel que soit r .

4.1.2.2 Comportement du potentiel à courte distance pour $t \rightarrow 0$

Nous venons de montrer que le potentiel de U. Gupta et A.K. Rajagopal présente un comportement oscillatoire à longue distance pour les faibles températures. Il est également

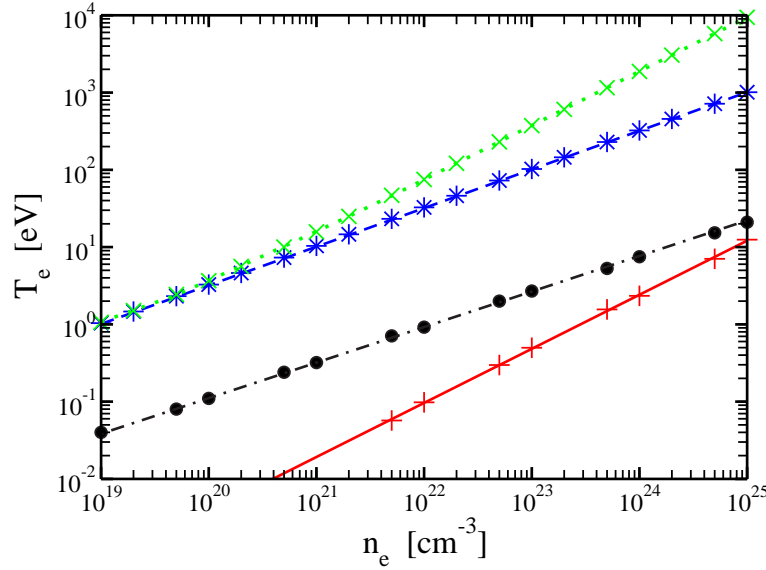


FIG. 4.4 – Limites du potentiel $V_{GR}(r; n_e, T_e)$: Valeurs numériques pour lesquelles les oscillations de Friedel apparaissent (\bullet) et expression d'interpolation (éq. (4.25)) correspondante (---); Valeurs numériques pour la limite des basses températures (voir texte) ($+$) et interpolation correspondante (éq. (4.26)) (—); Valeurs numériques pour la limite SSC (voir texte) ($*$) et interpolation correspondante (éq. (4.35)) (- -); Valeurs numériques pour la limite DH (voir texte) (\times) et interpolation correspondante (éq. (4.36)) (\dots).

intéressant d'étudier la partie à courte distance du potentiel : en effet, en deçà d'une certaine valeur T_e^{indep} , celle-ci devient indépendante de la température (contrairement à la partie oscillante qui varie continûment jusqu'à atteindre son maximum pour $T_e=0$ eV). La figure 4.5 met en évidence ce comportement du potentiel pour une densité de 10^{23} cm $^{-3}$. Afin d'évaluer quantitativement la température T_e^{indep} , nous avons pris (pour une densité électronique donnée) un potentiel de référence $V_{GR}(r; n_e, T_e = 10^{-4}$ eV) calculé à très basse température. Puis nous considérons que la température T_e^{indep} est atteinte si l'erreur relative entre le potentiel de référence et le potentiel calculé à T_e^{indep} est inférieure à 10^{-3} pour toute distance r où la valeur absolue du potentiel de référence est supérieure à 10^{-2} u.a.. Nous avons vérifié la convergence des valeurs numériques obtenues en diminuant la température du potentiel de référence. L'erreur relative sur les données présentées sur la figure 4.4 est inférieure à 1%. Nous avons par ailleurs déterminé une formule d'interpolation qui permet de relier le comportement de T_e^{indep} à la densité électronique. Cette expression, également présentée sur la figure 4.4, s'écrit :

$$T_e^{indep}[\text{eV}] = 3,8 \times 10^{-17} \left(n_e [\text{cm}^{-3}] \right)^{0,7} \quad (4.26)$$

Ainsi, pour des températures inférieures à cette limite, les niveaux d'énergie des états liés dans ce potentiel varient uniquement avec la densité électronique n_e .

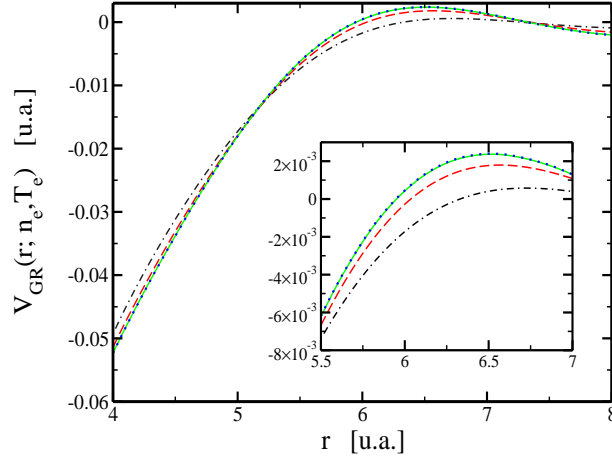


FIG. 4.5 – Comportement du potentiel $V_{GR}(r; n_e, T_e)$ à courte distance pour une densité électronique fixée ($n_e = 10^{23} \text{ cm}^{-3}$) et plusieurs faibles températures électroniques : $T_e = 1 \text{ eV}$ (---); $T_e = 0,5 \text{ eV}$ (- · -); $T_e = 0,1 \text{ eV}$ (—); $T_e = 0,01 \text{ eV}$ (···). L'insert correspond au zoom de la zone du premier noeud du potentiel où les oscillations apparaissent.

4.1.2.3 Expressions asymptotiques du potentiel pour $t \rightarrow \infty$

À partir du potentiel $V_{GR}(r; n_e, T_e)$ (éq. (4.7)), U. Gupta et A.K. Rajagopal ont obtenu une expression simplifiée en considérant la limite $Q \rightarrow \infty$. Dans ce cas, le développement au premier ordre du logarithme intervenant dans la fonction $\xi^2(Q; n_e, t)$ conduit à :

$$\lim_{Q \rightarrow 0} \xi^2(Q; n_e, t) = \xi_{SSC}^2(n_e, t) = \frac{1}{\pi^2 \varepsilon_0 a_0 k_F} \int_0^\infty f_{FD}(x) dx \quad (4.27)$$

La fonction $\xi_{SSC}^2(n_e, t)$ étant indépendante de Q , l'intégrale intervenant dans l'expression du potentiel s'effectue analytiquement [Ashcroft *et al.* 76]. On obtient alors le potentiel de Thomas-Fermi linéarisé (SSC, également appelé "static screened potential") :

$$V_{SSC}(r; n_e, T_e) = \frac{-Ze^2}{4\pi\varepsilon_0 r} \exp[-k_F \xi_{SSC}(n_e, t)r] \quad (4.28)$$

Suivant U. Gupta et A.K. Rajagopal, ce potentiel peut être simplifié en considérant les limites à haute et à basse température. Lorsque $t \rightarrow \infty$, l'expression asymptotique (4.19) du potentiel chimique peut être utilisée pour évaluer la fonction $\xi_{SSC}(n_e, t)$. Celle-ci se réduit alors à l'expression analytique :

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \xi_{SSC}^2(n_e, t) = \xi_{DH}^2(n_e, t) = \frac{n_e e^2}{\varepsilon_0 k_b T_e} \frac{1}{k_F^2} \quad (4.29)$$

Il est donc intéressant de constater que le potentiel de Thomas-Fermi linéarisé se réduit au potentiel de Debye-Hückel (DH) puisque l'on a $k_F \xi_{DH}(n_e, t) = \lambda_D^{-1}$, où λ_D est la longueur de Debye définie page 118.

$$V_{DH}(r; n_e, T_e) = \lim_{t \rightarrow \infty} V_{SSC}(r; n_e, T_e) = -\frac{Ze^2}{4\pi\varepsilon_0 r} \exp[-k_F \xi_{DH}(n_e, t)r] \quad (4.30)$$

De plus, si l'on considère la limite du potentiel de Thomas-Fermi linéarisé aux basses températures, on obtient le potentiel de Thomas-Fermi (indépendant de la température) :

$$V_{TF}(r; n_e) = \lim_{t \rightarrow 0} V_{SSC}(r; n_e, T_e) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r} \exp[-k_F \xi_{TF}(n_e)r] \quad (4.31)$$

où

$$\xi_{TF}^2(n_e) = \frac{1}{\pi^2 \epsilon_0 a_0 k_F} \quad (4.32)$$

Le potentiel de Thomas-Fermi linéarisé est donc équivalent au potentiel de Debye-Hückel pour les hautes températures et au potentiel de Thomas-Fermi pour les basses températures. D'après la discussion présentée au paragraphe 4.1.2.1, il est cependant clair que lorsque t tend vers 0, le potentiel $V_{GR}(r; n_e, T_e)$ ne converge pas vers le potentiel de Thomas-Fermi puisque celui-ci ne peut reproduire le comportement oscillatoire à longue distance. Il est en effet important de rappeler que le potentiel $V_{TF}(r; n_e)$ a été obtenu en considérant les limites $Q \rightarrow 0$ puis $t \rightarrow 0$.

En revanche, le comportement du potentiel de Gupta et Rajagopal à haute température peut se déduire du potentiel de Thomas-Fermi linéarisé. En effet, en utilisant l'expression asymptotique du potentiel chimique (4.19) pour les hautes températures, la fonction $\xi^2(Q; n_e, T_e)$ (éq. (4.13)) s'écrit :

$$\lim_{t \gg 1} \xi^2(Q; n_e, T_e) = \frac{4}{\pi^{5/2} \epsilon_0 a_0 k_F} \frac{1}{t} \frac{\sqrt{t}}{Q} \int_0^\infty dy y e^{-y^2} \ln \left| \frac{2\frac{\sqrt{t}}{Q}y + 1}{2\frac{\sqrt{t}}{Q}y - 1} \right| \quad (4.33)$$

Dans cette expression, la variable Q apparaît seulement avec le facteur \sqrt{t}/Q . Par conséquent, considérer la limite $t \rightarrow \infty$ est équivalent à considérer la limite $Q \rightarrow 0$. Le développement du logarithme pour $t \rightarrow \infty$ (et Q fini) permet donc de retrouver les considérations effectuées pour le potentiel de Thomas-Fermi linéarisé et l'on obtient finalement :

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \xi^2(Q; n_e, T_e) = \frac{n_e e^2}{\epsilon_0 k_b T_e} \frac{1}{k_F^2} = \xi_{DH}^2(n_e, t) \quad (4.34)$$

Ainsi, le potentiel $V_{GR}(r; n_e, T_e)$ se réduit au potentiel de Debye-Hückel (éq. (4.30)) pour les hautes températures.

De même que pour les basses températures, il est intéressant de déterminer une limite pour laquelle le potentiel $V_{GR}(r; n_e, T_e)$ converge vers le potentiel de Thomas-Fermi linéarisé et le potentiel de Debye-Hückel. Les critères de comparaisons suivants ont été utilisés : pour une densité donnée, les potentiels sont considérés comme étant équivalents lorsque leur erreur relative est inférieure à 10^{-3} pour toute distance telle que la valeur absolue du potentiel est supérieure à 10^{-2} u.a.. Nous avons de plus vérifié que les valeurs obtenues numériquement pour les températures limites ont une précision supérieure à 1% (cf. fig. 4.4). À partir de ces résultats numériques, nous avons déterminé une expression d'interpolation qui permet, pour une densité donnée, d'évaluer la température limite pour laquelle le potentiel de Gupta et Rajagopal converge vers le potentiel considéré. Pour le potentiel de Thomas-Fermi linéarisé (éq. (4.28)), nous obtenons :

$$T_e^{SSC}[\text{eV}] = 3,2 \times 10^{-10} \left(n_e [\text{cm}^{-3}] \right)^{0,5} \quad (4.35)$$

Cette expression est représentée sur la figure 4.4 : pour une température électronique $T_e > T_e^{SSC}$, le potentiel $V_{GR}(r; n_e, T_e)$ est équivalent au potentiel $V_{SSC}(r; n_e, T_e)$.

De même, le potentiel de U. Gupta et A.K. Rajagopal converge vers le potentiel de Debye-Hückel à partir d'une température limite telle que :

$$T_e^{DH}[\text{eV}] = \begin{cases} 3,4 \times 10^{-10} (n_e[\text{cm}^{-3}])^{0,5} & \text{pour } n_e \leq 5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \\ 1,4 \times 10^{-10} (n_e[\text{cm}^{-3}])^{0,5} + 2,3 \times 10^{-14} (n_e[\text{cm}^{-3}])^{0,7} & \text{pour } 5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} < n_e \leq 2 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3} \\ 2,98 \times 10^{-14} (n_e[\text{cm}^{-3}])^{0,7} & \text{pour } n_e > 2 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3} \end{cases} \quad (4.36)$$

Les valeurs numériques obtenues ainsi que cette expression d'interpolation sont représentées sur la figure 4.4. Pour une température $T_e > T_e^{DH}$, le potentiel $V_{GR}(r; n_e, T_e)$ est équivalent au potentiel de Debye-Hückel (éq. (4.30)).

L'approche employée par U. Gupta et A.K. Rajagopal présente donc l'avantage de reproduire les oscillations de Friedel à basse température (oscillations mises en évidence dans les solides métalliques) et d'être équivalent à un potentiel de Debye-Hückel pour les plasmas dits classiques. Nous avons par conséquent utilisé ce potentiel afin d'étudier l'influence des phénomènes d'écran sur la dynamique de l'interaction laser-agrégat.

4.1.3 Description de la structure électronique : potentiel-modèle écranté

Nous avons vu au chapitre précédent que la structure électronique des ions et atomes composant l'agrégat peut être décrite à l'aide d'une approche potentiel-modèle (cf. paragraphe 3.1). Dans le cas coulombien, pour un ion Ar^{q+} , l'interaction entre le noyau et l'électron de valence est décrite selon le potentiel-modèle tel que :

$$V_{Ar^{q+}}(r) = \frac{-e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \left[Z - N_c + \sum_{i=1}^3 n_{is} \left(1 + \frac{\alpha_{is}}{2} r \right) e^{-\alpha_{is} r} + \sum_{i=2}^3 n_{ip} \left(1 + \frac{3\alpha_{ip}}{4} r + \frac{\alpha_{ip}^2}{4} r^2 + \frac{\alpha_{ip}^3}{24} r^3 \right) e^{-\alpha_{ip} r} \right] \quad (4.37)$$

Le terme entre crochets peut ainsi être assimilé à une charge effective Z_{eff} correspondant au coeur ionique : le terme $Z - N_c$ se rapporte à une description simple telle que le noyau de charge Z est écranté par les N_c électrons de coeur et les sommes apportent une correction à cette représentation.

Lorsque l'ion est plongé dans une densité d'électrons libres, l'interaction électron actif/coeur ionique est modifiée par rapport au cas coulombien. Cet écrantage est alors

représenté par le potentiel :

$$V_{Ar^{q+}}^{ecr}(r) = V_{ecr}^{(Z=1)}(r; n_e, T_e) \times \left[Z - N_c + \sum_{i=1}^3 n_{is} \left(1 + \frac{\alpha_{is}}{2} r \right) e^{-\alpha_{is} r} + \sum_{i=2}^3 n_{ip} \left(1 + \frac{3\alpha_{ip}}{4} r + \frac{\alpha_{ip}^2}{4} r^2 + \frac{\alpha_{ip}^3}{24} r^3 \right) e^{-\alpha_{ip} r} \right] \quad (4.38)$$

où le potentiel $V_{ecr}^{(Z=1)}(r; n_e, T_e)$ désigne, pour une charge $Z = 1$, soit le potentiel de U. Gupta et A.K. Rajagopal (éq. (4.14)) , soit le potentiel de Thomas-Fermi linéarisé (éq. (4.28)), soit le potentiel de Debye-Hückel (éq. (4.30)) selon les conditions de densité et de température électronique considérées. Pour un état de charge Ar^{q+} donné, les paramètres Z , N_c et α_{il} sont conservés tels que dans le cas coulombien (tab. 3.1).

4.2 Influence de l'écran sur les états liés

L'introduction d'un potentiel écranté à la place du potentiel coulombien classique modifie la position des niveaux d'énergie des ions considérés. Afin d'étudier l'influence de l'écran sur les potentiels d'ionisation, nous avons utilisé le principe variationnel pour résoudre l'équation de Schrödinger stationnaire¹ :

$$H\phi_{E_{nl}lm}(\mathbf{r}) = \left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + V_{Ar^{q+}}^{ecr}(r) \right] \phi_{E_{nl}lm}(\mathbf{r}) = E_{nl} \phi_{E_{nl}lm}(\mathbf{r}) \quad (4.39)$$

La diagonalisation de cet hamiltonien dans une base d'orbitales de type Slater (cf. annexe B) permet de déterminer les fonctions d'onde et les niveaux d'énergie des états liés de chaque ion Ar^{q+} en fonction de la densité et de la température du gaz d'électrons environnant.

4.2.1 Déplacement des niveaux d'énergie

Jusqu'à présent, les potentiels d'ionisation utilisés dans le modèle nanoplasma correspondaient aux données d'un atome (ou d'un ion) isolé. Or, dans les premiers instants de l'interaction laser-agrégat, l'ionisation par effet de champ des premiers états de charge engendre une rapide augmentation de la densité électronique jusqu'à quelques 10^{22} cm^{-3} . Les électrons, libérés par effet tunnel, étant peu énergétiques, la forte densité associée à la faible température électronique induit d'importants phénomènes d'écran qui décalent les niveaux d'énergie.

Le tableau 4.2 présente les potentiels d'ionisation des états fondamentaux des atomes d'argon et des ions Ar^{q+} ($q=1$ et 2) calculés dans ces conditions de plasma selon plusieurs modèles d'écran. Quel que soit le modèle et le niveau d'énergie considéré, le potentiel

¹Contrairement au cas non écranté, le potentiel-modèle écranté est négatif car l'attraction électron-ion est prise en compte dans le potentiel d'écran $V_{ecr}(r; n_e, T_e)$.

| | n_e [cm ⁻³] | T_e [eV] | t | GR | SSC | DH |
|------------------|---------------------------|------------|-------|-------|-------|-------|
| Ar | 10 ¹⁸ | 0,1 | 27,42 | 13,61 | 13,48 | 13,48 |
| Ar | 10 ²⁰ | 0,5 | 6,36 | 9,58 | 8,74 | 8,70 |
| Ar | 10 ²¹ | 1 | 2,74 | 4,69 | 3,26 | 3,04 |
| Ar ⁺ | 10 ²¹ | 1 | 2,74 | 13,77 | 11,47 | 11,09 |
| Ar | 10 ²² | 4 | 2,36 | 0,51 | 0,042 | - - - |
| Ar ⁺ | 10 ²² | 4 | 2,36 | 6,47 | 5,07 | 4,56 |
| Ar ²⁺ | 10 ²² | 4 | 2,36 | 13,13 | 11,16 | 10,45 |

TAB. 4.2 – Potentiels d'ionisation (en eV) de l'état fondamental d'un ion (ou atome) d'argon (Ar^{q+} , $q=0;1;2$) plongé dans un gaz d'électrons dont les conditions ($n_e; T_e$) sont caractéristiques du début de l'interaction laser-agrégat. Les potentiels d'ionisation sont calculés selon plusieurs modèles d'écran : le potentiel de U. Gupta et A.K. Rajagopal (GR), le potentiel de Thomas-Fermi linéarisé (SSC), le potentiel de Debye-Hückel (DH). - - - indique que l'état est passé dans le continuum. Dans le cas coulombien, les potentiels d'ionisation valent : $I_P(Ar)=15,03$ eV ; $I_P(Ar^+)=28,30$ eV ; $I_P(Ar^{2+})=40,40$ eV.

d'ionisation diminue en présence de la densité électronique. En effet, les électrons libres environnants écrantent l'interaction entre l'électron lié et le coeur ionique, la barrière de potentiel est alors abaissée ce qui réduit l'énergie de liaison. Cet abaissement du continuum peut même conduire à la disparition de certains niveaux excités, ce phénomène est appelé "ionisation par pression".

D'après les limites obtenues au paragraphe 4.1.2, les conditions considérées au début de l'interaction requièrent l'utilisation du potentiel de Gupta et Rajagopal. Les valeurs obtenues à l'aide des modèles de Thomas-Fermi linéarisé et de Debye-Hückel indiquent que les effets d'écran sont systématiquement surestimés par rapport à l'approche de Gupta et Rajagopal. Dans ces conditions, l'utilisation de ce potentiel sophistiqué est donc nécessaire afin de correctement reproduire l'influence de l'écran sur l'interaction électron-ion. De plus, les valeurs obtenues démontrent que les phénomènes d'écran modifient fortement les énergies d'ionisation : le niveau fondamental de l'ion Ar^+ est décalé de plus de 70% pour une densité électronique de 10²² cm⁻³ et une température de 4 eV. Les premiers états de charge étant majoritairement peuplés par effet tunnel, l'abaissement des potentiels d'ionisation accroît fortement les taux d'ionisation ADK [Ammosov *et al.* 86] par rapport au cas coulombien. Au début de l'interaction, la dynamique d'ionisation va ainsi être nettement accélérée par les phénomènes d'écran.

Au cours de l'interaction laser-agrégat, la température électronique augmente progressivement par bremsstrahlung inverse alors que la densité électronique atteint une valeur de l'ordre de 10²³ cm⁻³ (cette valeur reste plus ou moins constante pendant plusieurs centaines de femtosecondes dû à un équilibre entre les processus d'ionisation, l'éjection d'électrons énergétiques en dehors de l'agréat et l'accroissement du rayon de l'agréat).

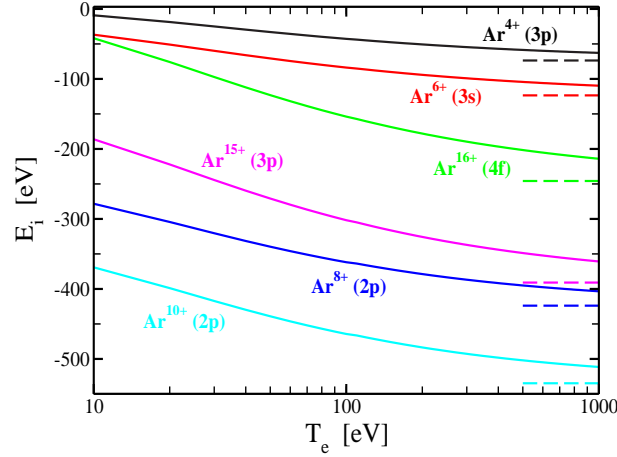


FIG. 4.6 – Niveaux d'énergie (fondamentaux ou excités) d'ions Ar^{q+} plongés dans un plasma en fonction de la température électronique T_e . La densité électronique est fixée à $n_e=10^{23} \text{ cm}^{-3}$. (- -) Énergies de liaison dans le cas non écrané.

La figure 4.6 présente l'évolution des niveaux d'énergie de plusieurs états de charge pour une densité électronique fixée ($n_e=10^{23} \text{ cm}^{-3}$) et une température variable de 10 à 1000 eV. Les traits pointillés correspondent aux énergies de liaison dans le cas coulombien. Pour les faibles températures ($10 < T_e < 101,2 \text{ eV}$), les niveaux d'énergie sont déterminés à l'aide du potentiel de U. Gupta et A.K. Rajagopal. Puis, pour $101,2 \leq T_e < 375,2 \text{ eV}$, ce potentiel se réduit au modèle de Thomas-Fermi linéarisé. Enfin, le modèle de Debye-Hückel est utilisé pour des températures supérieures à 375,2 eV. Nous constatons que lorsque l'influence de l'écran augmente (c'est à dire lorsque la température diminue), les états liés se rapprochent progressivement du continuum. De plus, les niveaux d'énergie les moins liés sont relativement plus décalés que les états plus profonds (par rapport aux valeurs non écranées). En effet, ces états moins profonds sont plus sensibles à la perturbation induite par la densité d'électrons libres environnante. Par exemple, à 10 eV, le niveau fondamental de l' Ar^{4+} est décalé de 87% par rapport à sa valeur non écranée alors que l'état fondamental de l' Ar^{8+} n'est décalé que de 31%. Ceci est également vrai pour les états excités : les états 3p et 4f des ions Ar^{15+} et Ar^{16+} sont respectivement déplacés de 53% et 82%.

4.2.2 Modification des fonctions d'onde liées

Nous avons vu qu'une densité d'électrons libres a pour effet de déplacer les niveaux d'énergie d'un ion. Il est également intéressant d'étudier l'influence du gaz d'électrons sur les fonctions d'onde liées associées à ces niveaux d'énergie. Nous avons tracé sur la figure 4.7(a) les fonctions de distributions radiales $r^2|\phi(r)|^2$ associées aux fonctions d'onde de l'état 3p de l'ion Ar^+ . Celles-ci sont déterminées numériquement en résolvant l'équation de Schrödinger (4.39) selon le modèle d'écran considéré (GR ou SSC) pour une densité électronique de 10^{22} cm^{-3} et une température de 4 eV. Les données non écranées sont également représentées pour évaluer l'influence de l'écran.

Nous pouvons tout d'abord remarquer que les fonctions d'onde sont moins sensibles

aux effets d'écran que les potentiels d'ionisation. En effet, alors que le niveau d'énergie est déplacé de plus 70% (cf. tab. 4.2), la fonction de distribution radiale n'est que modérément modifiée par les phénomènes d'écran : comparé à un ion Ar^+ isolé, la fonction d'onde de l'état $3p$ est légèrement plus diffuse. Par ailleurs, bien que la différence entre les énergies de liaison obtenues selon les différents modèles d'écran soit supérieure à 20%, la fonction d'onde de l'état $3p$ dans le potentiel de Thomas-Fermi linéarisé est très proche de celle déterminée dans le potentiel de U. Gupta et A.K. Rajagopal. Ceci peut être expliqué à l'aide de la figure 4.7(b) où nous avons tracé les potentiels d'écran correspondants en fonction de la distance radiale r . Nous avons également représenté les positions du niveau d'énergie $3p$ ainsi que les valeurs r_{ci} caractéristiques du début de la zone classiquement interdite. Nous constatons que, bien que les niveaux d'énergie soient fortement déplacés vers le continuum par les effets d'écran, la limite r_{ci} de la zone classiquement permise n'est que faiblement décalée vers les plus grandes valeurs. La présence d'une densité d'électrons libres autour de l'ion conduit donc à une légère extension de la portée des fonctions d'onde de chaque état lié. Cet effet sera d'autant plus faible que le niveau considéré sera plus fortement lié.

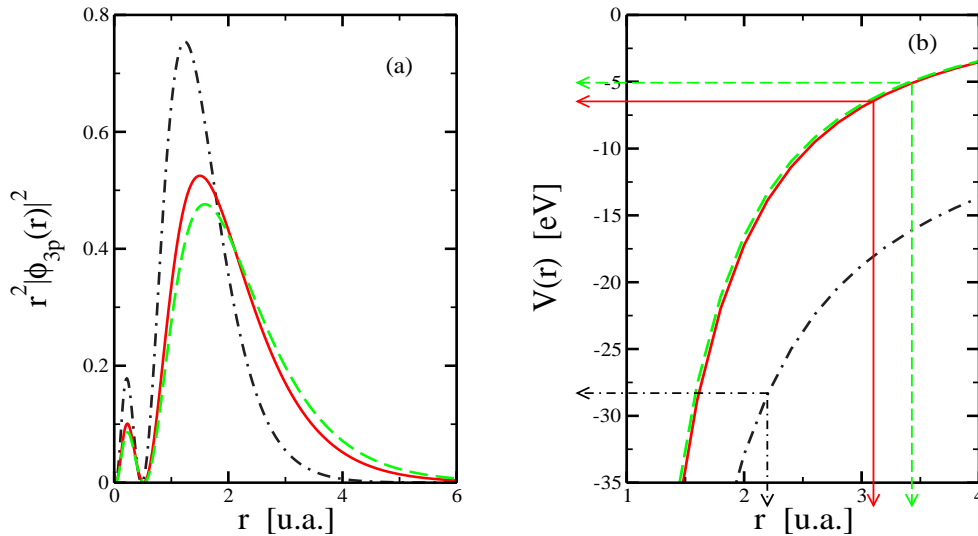


FIG. 4.7 – (a) Fonctions de distribution radiales associées aux fonctions d'onde du niveau d'énergie $3p$ d'un ion Ar^+ plongé dans un gaz d'électrons ($n_e=10^{22} \text{ cm}^{-3}$; $T_e=4 \text{ eV}$). Ces fonctions d'onde sont déterminées selon deux potentiels d'écran : (—) Gupta et A.K. Rajagopal; (---) Thomas-Fermi linéarisé. La fonction d'onde non écrantée (---) est également présentée pour comparaison. (b) Pour chaque potentiel, la flèche horizontale indique le niveau d'énergie correspondant à la fonction d'onde présentée en (a). La flèche verticale indique la valeur r_{ci} caractéristique du début de la zone classiquement interdite.

4.3 Influence de l'écran sur les collisions électron-ion

Afin de prendre en compte les phénomènes d'écran dans l'interaction laser-agrégat, il est également nécessaire d'étudier l'influence des phénomènes d'écran sur les sections efficaces d'excitation et d'ionisation collisionnelles.

4.3.1 Sections efficaces d'excitation collisionnelles écrantées

Dès 1981, G. Hatton et coll. ont étudié la diffusion inélastique d'un électron par un ion immergé dans un plasma [Hatton *et al.* 81]. Ils ont pour cela évalué les sections efficaces d'excitation dans l'approximation des ondes planes en considérant un modèle d'écran de type Debye-Hückel. L'influence de la présence d'un gaz d'électrons libres a également été estimé par B. Whitten et coll. : les sections collisionnelles d'excitation, également évaluées dans un potentiel d'écran de Debye-Hückel, ont été déterminées à l'aide des méthodes close-coupling et DWBA [Whitten *et al.* 84]. Les résultats obtenus dans ces deux références indiquent que les probabilités d'excitation sont systématiquement réduites par les effets d'écran. Cependant, dans ces études, l'interaction électron-électron était supposée à symétrie sphérique et des fonctions d'onde hydrogénoïdes non écrantées étaient utilisées pour décrire l'électron lié. Il a par la suite été montré que ces approximations peuvent entraîner des erreurs significatives sur les sections [Gutierrez *et al.* 94].

Nous avons par conséquent évalué les sections efficaces d'excitation collisionnelles dans l'approximation des ondes distordues en considérant le potentiel d'écran de U. Gupta et A.K. Rajagopal pour toutes les interactions considérées (électron de valence/coeur ionique ; électron libre/coeur ionique et électron libre/électron de valence). Nous prenons ainsi en compte le caractère non-sphérique de l'interaction ainsi que l'indiscernabilité des électrons. Dans l'approximation des ondes distordues (DWBA), la section efficace totale d'excitation d'un état a d'énergie E_a vers un état b d'énergie E_b s'écrit (cf. paragraphe 3.3.2.1 chapitre 3) :

$$\sigma_{n_a l_a \rightarrow n_b l_b}[ua] = (2\pi)^4 \frac{1}{2l_a + 1} \sum_{m_a} \sum_{m_b} \frac{k_f}{k_i} \int d\Omega_f \left[\frac{1}{4} |T_{ab}^d + T_{ab}^e|^2 + \frac{3}{4} |T_{ab}^d - T_{ab}^e|^2 \right] \quad (4.40)$$

où l'électron incident d'énergie $E_i = \hbar k_i / 2m_e$ est diffusé dans une direction Ω_f avec une impulsion k_f . Les éléments de matrice de transition direct T_{ab}^d et d'échange T_{ab}^e valent :

$$T_{ab}^d = \left\langle \psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r}_1) \phi_b(\mathbf{r}_2) \left| V_{ecr}^{(Z=1)}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) - V_{ecr}^{(Z=1)}(r_1) \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \psi_{\mathbf{k}_i}^+(\mathbf{r}_1) \right\rangle \quad (4.41a)$$

$$T_{ab}^e = \left\langle \psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r}_2) \phi_b(\mathbf{r}_1) \left| V_{ecr}^{(Z=1)}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) - V_{ecr}^{(Z=1)}(r_1) \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \psi_{\mathbf{k}_i}^+(\mathbf{r}_1) \right\rangle \quad (4.41b)$$

où $V_{ecr}(r)$ désigne le potentiel d'écran (GR, SSC ou DH) selon les conditions plasma considérées. Les fonctions d'onde liées $\phi_{a,b}(\mathbf{r})$ sont solutions de l'équation de Schrödinger :

$$H_{lié} \phi_{a,b}(\mathbf{r}) = \left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + V_{Ar^{q+}}^{ecr}(r) \right] \phi_{a,b}(\mathbf{r}) = E_{a,b} \phi_{a,b}(\mathbf{r}) \quad (4.42)$$

où le potentiel $V_{Ar^{q+}}^{ecr}(r)$ défini par l'équation (4.38) prend en compte la structure électronique de l'ion (ou atome) considéré ainsi que l'influence de l'écran induit par la présence

d'une densité électronique environnante. Ces fonctions d'onde sont déterminées numériquement à l'aide d'une base d'orbitales de type Slater (cf. annexe B). Les fonctions d'onde de l'électron libre sont solutions de :

$$H_{libre}\psi_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f}^{\pm}(\mathbf{r}) = \left[-\frac{\hbar^2}{2m_e}\nabla_{\mathbf{r}}^2 + V_{Ar^{q+}}^{ecr}(r) - V_{ecr}^{(Z=1)}(r) \right] \psi_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f}^{\pm}(\mathbf{r}) = E_{i,f}\psi_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f}^{\pm}(\mathbf{r}) \quad (4.43)$$

Elles sont déterminées à l'aide d'un développement en ondes partielles :

$$\psi_{\mathbf{k}_i}^+(\mathbf{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \frac{1}{k_i r} \sum_{l_i=0}^{\infty} (2l_i + 1) i^{l_i} e^{i\delta_{l_i}} u_{l_i}(k_i, r) P_{l_i}(\cos \theta_i) \quad (4.44a)$$

$$\psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \frac{1}{k_f r} \sum_{l_f=0}^{\infty} (2l_f + 1) i^{l_f} e^{-i\delta_{l_f}} u_{l_f}(k_f, r) P_{l_f}(\cos \theta_f) \quad (4.44b)$$

En pratique, sachant que les parties radiales sont régulières à l'origine, ($\lim_{r \rightarrow 0} u_l(k, r) = r^{l+1}$), celles-ci sont déterminées numériquement à l'aide de l'algorithme de Numerov. De plus, le potentiel d'écran étant à portée finie, les parties radiales à longue distance peuvent se mettre sous la forme d'une combinaison linéaire de fonctions de Bessel sphériques régulières et irrégulières à l'origine (cf. annexe D) :

$$u_l(k, r) = B_l(k)j_l(k, r) + C_l(k)n_l(k, r) \quad \text{pour } r > d \quad (4.45)$$

où d est la portée du potentiel d'écran. Les déphasages sont alors obtenus selon :

$$\begin{cases} \cos \delta_l = \frac{B_l(k)}{[B_l(k)^2 + C_l(k)^2]^{1/2}} \\ \sin \delta_l = \frac{-C_l(k)}{[B_l(k)^2 + C_l(k)^2]^{1/2}} \end{cases} \quad (4.46)$$

Enfin, les fonctions d'onde étant normalisées à $\delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}')$, les parties radiales sont normalisées de telle façon que l'on ait :

$$\lim_{r \rightarrow \infty} u_l(k, r) = \sin \left(kr - \frac{l\pi}{2} + \delta_l \right) \quad (4.47)$$

Afin de déterminer les éléments de matrice, le potentiel d'écran est développé en multipôles selon :

$$V_{ecr}^{(Z=1)}(|r_1 - r_2|) = \sum_{\lambda=0}^{\infty} \sum_{m_{\lambda}=-\lambda}^{\lambda} J_{\lambda}(r_1, r_2) Y_{\lambda}^{m_{\lambda}*}(\theta_{\mathbf{r}_1}, \phi_{\mathbf{r}_1}) Y_{\lambda}^{m_{\lambda}}(\theta_{\mathbf{r}_2}, \phi_{\mathbf{r}_2}) \quad (4.48)$$

avec

$$J_{\lambda}(r_1, r_2) = 2\pi \int_{-1}^1 du V_{ecr}^{(Z=1)}(R) P_{\lambda}(u) \quad (4.49)$$

où R est tel que $R = \sqrt{r_1^2 + r_2^2 - 2r_1 r_2 u}$ et $P_{\lambda}(u)$ est un polynôme de Legendre.

Mis à part le développement multipolaire du potentiel, les calculs conduisant à l'évaluation des éléments de matrice et de la section efficace d'excitation sont ensuite identiques au

cas non écranté (paragraphe 3.3.2.1 chapitre 3). Par souci de concision, seuls les résultats sont donc présentés ci-dessous. L'élément de matrice direct s'écrit :

$$T_{ab}^d = \frac{1}{4\pi^{5/2}} \frac{(-1)^{m_b}}{k_i k_f} \sum_{l_i=0}^{\infty} \sum_{\lambda=|l_a-l_b|}^{l_a+l_b} \mathcal{A}_{l_a l_b}^{\lambda} \sum_{l_f=|l_i-\lambda|}^{l_i+\lambda} i^{l_i-l_f} e^{i(\delta_{l_i}+\delta_{l_f})} \mathcal{B}_{l_i l_f}^{\lambda} \mathcal{R}_{l_i l_f}^{\lambda} Y_{l_f}^{m_f}(\theta_{\mathbf{k}_f}, \varphi_{\mathbf{k}_f}) \quad (4.50)$$

où

$$\mathcal{A}_{l_a l_b}^{\lambda} = (2\lambda + 1)[(2l_a + 1)(2l_b + 1)]^{1/2} \begin{pmatrix} l_a & l_b & \lambda \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_a & l_b & \lambda \\ m_a & -m_b & m_{\lambda} \end{pmatrix} \quad (4.51)$$

$$\mathcal{B}_{l_i l_f}^{\lambda} = (2l_i + 1)(2l_f + 1)^{1/2} \begin{pmatrix} l_i & l_f & \lambda \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_i & l_f & \lambda \\ 0 & -m_f & -m_{\lambda} \end{pmatrix} \quad (4.52)$$

$$\mathcal{R}_{l_i l_f}^{\lambda} = \int_0^{\infty} dr_1 u_{l_f}(k_f, r_1) \mathcal{V}_{\lambda}(ab; r_1) u_{l_i}(k_i, r_1) \quad (4.53)$$

$$\mathcal{V}_{\lambda}(ab; r_1) = \int_0^{\infty} dr_2 r_2^2 R_b(r_2) J_{\lambda}(r_1, r_2) R_a(r_2) \quad (4.54)$$

Les règles de sélection des coefficients $3j$ imposent :

$$\begin{cases} l_a + l_b + \lambda \text{ pair} \\ |l_a - l_b| \leq \lambda \leq l_a + l_b \\ m_{\lambda} = m_b - m_a \end{cases} \quad \begin{cases} l_i + l_f + \lambda \text{ pair} \\ |l_i - \lambda| \leq l_f \leq l_i + \lambda \\ m_f = -m_{\lambda} \end{cases} \quad (4.55)$$

De même que dans le cas non écranté, l'élément de matrice de transition pour le processus d'échange peut être décomposé en deux termes :

$$T_{ab}^e = \left\langle \psi_{\mathbf{k}_f}^{-}(\mathbf{r}_2) \phi_b(\mathbf{r}_1) \left| V_{ecr}^{(Z=1)}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) - V_{ecr}^{(Z=1)}(r_1) \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \psi_{\mathbf{k}_i}^{+}(\mathbf{r}_1) \right\rangle \quad (4.56)$$

soit $T_{ab}^e = T_{ab}^{e(1)} - T_{ab}^{e(2)}$

À l'aide du développement multipolaire (4.49) du potentiel et du développement en ondes partielles des fonctions d'onde de l'électron libre, le premier terme prend la forme :

$$T_{ab}^{e(1)} = \frac{1}{4\pi^{5/2}} \frac{(-1)^{m_a-m_b}}{k_i k_f} \sum_{l_i=0}^{\infty} \sum_{\lambda=|l_i-l_b|}^{l_i+l_b} \mathcal{A}_{l_a l_f}^{\lambda} \sum_{l_f=|l_a-\lambda|}^{l_a+\lambda} i^{l_i-l_f} e^{i(\delta_{l_i}+\delta_{l_f})} \mathcal{B}_{l_i l_b}^{\lambda} \mathcal{R}_{l_i l_b}^{\lambda} Y_{l_f}^{m_f}(\theta_{\mathbf{k}_f}, \varphi_{\mathbf{k}_f}) \quad (4.57)$$

où

$$\mathcal{A}_{l_a l_f}^\lambda = (2\lambda + 1)[(2l_a + 1)(2l_f + 1)]^{1/2} \begin{pmatrix} l_a & \lambda & l_f \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_a & \lambda & l_f \\ m_a & m_\lambda & -m_f \end{pmatrix} \quad (4.58)$$

$$\mathcal{B}_{l_i l_b}^\lambda = (2l_i + 1)(2l_b + 1)^{1/2} \begin{pmatrix} l_i & l_b & \lambda \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_i & l_b & \lambda \\ 0 & -m_b & m_b \end{pmatrix} \quad (4.59)$$

$$\mathcal{R}_{l_i l_b}^\lambda = \int_0^\infty dr_1 r_1 u_{l_i}(k_i, r_1) \mathcal{V}_\lambda(af; r_1) R_b(r_1) \quad (4.60)$$

$$\mathcal{V}_\lambda(af; r_1) = \int_0^\infty dr_2 r_2 u_{l_f}(k_f, r_2) J_\lambda(r_1, r_2) R_a(r_2) \quad (4.61)$$

Les règles de sélection imposent :

$$\begin{cases} l_a + l_f + \lambda \text{ pair} \\ |l_a - \lambda| \leq l_f \leq l_a + \lambda \\ m_f = m_a + m_\lambda \end{cases} \quad \begin{cases} l_i + l_b + \lambda \text{ pair} \\ |l_i - l_b| \leq \lambda \leq l_i + l_b \\ m_\lambda = -m_b \end{cases} \quad (4.62)$$

Suivant le même raisonnement, le second terme de l'élément de matrice de transition $T_{ab}^{e(2)}$ s'écrit :

$$\begin{aligned} T_{ab}^{e(2)} &= \frac{1}{\pi^{3/2}} \frac{1}{k_i k_f} (2l_b + 1)^{1/2} i^{l_b - l_a} e^{i(\delta_{l_b} + \delta_{l_a})} Y_{l_a}^{m_a}(\theta_{\mathbf{k}_f}, \varphi_{\mathbf{k}_f}) \delta_{0m_b} \times \\ &\times \int_0^\infty dr_1 r_1 u_{l_b}(k_i, r_1) V_{ecr}^{(Z=1)}(r_1) R_b(r_1) \int_0^\infty dr_2 r_2 u_{l_a}(k_f, r_2) R_a(r_2) \end{aligned} \quad (4.63)$$

où δ_{l_b} est le déphasage calculé pour une impulsion k_i et un moment angulaire l_b et δ_{l_a} est le déphasage calculé pour une impulsion k_f et un moment angulaire l_a . Le symbole de Kronecker δ_{0m_b} indique que ce terme est non nul uniquement si le moment magnétique de l'état lié final est nul.

La section efficace totale d'excitation collisionnelle d'un électron d'une couche comportant N_{eq} électrons équivalents dans un état initial a de nombres quantiques $n_a l_a$ vers un état final b de nombres quantiques $n_b l_b$ s'écrit :

$$\sigma_{n_a l_a \rightarrow n_b l_b}[ua] = (2\pi)^4 N_{eq} \frac{k_f}{k_i} \frac{1}{2l_a + 1} \sum_{m_a = -l_a}^{l_a} \sum_{m_b = -l_b}^{l_b} \int d\Omega_f \left[\frac{1}{4} |T_{ab}^d + T_{ab}^e|^2 + \frac{3}{4} |T_{ab}^d - T_{ab}^e|^2 \right] \quad (4.64)$$

Les figures 4.8 présentent deux sections efficaces totales d'excitation pour l'ion Ar^{5+} en fonction de l'énergie de l'électron incident E_i . Les sections écrantées sont déterminées selon l'équation (4.64) à l'aide du potentiel de U. Gupta et A.K. Rajagopal pour un plasma de densité $n_e = 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ et de température $T_e = 30 \text{ eV}$. Les énergies de chaque niveau ainsi que les énergies de transition sont données dans le tableau 4.3. Les données non écrantées

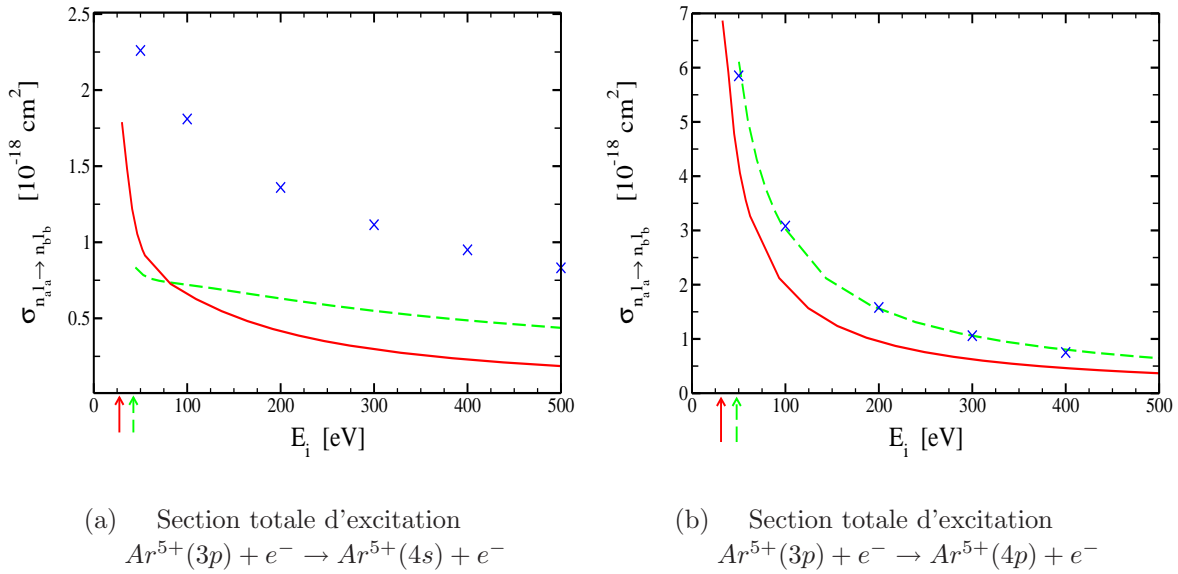


FIG. 4.8 – Sections efficaces totales d'excitation collisionnelles écrantées (—), non écrantées (- -) et partiellement écrantées (×) (voir texte) pour l'ion Ar^{5+} . Les sections écrantées sont calculées avec l'expression (4.64) pour une densité électronique de 10^{23} cm^{-3} et une température de 30 eV. Les flèches indiquent l'énergie seuil de la transition.

sont également présentées pour comparaison.

Tout d'abord nous constatons que, pour une énergie incidente fixée, les phénomènes d'écran diminuent généralement les sections efficaces totales d'excitation. De plus, le déplacement des niveaux d'énergie induit par les effets d'écran entraîne une diminution de l'énergie seuil de la transition (indiquée par une flèche sur chaque figure). Ainsi, les sections écrantées sont non nulles pour des énergies incidentes inférieures à l'énergie seuil de la transition non écrantée.

| | Avec écran | Sans écran |
|-----------------|------------|------------|
| E_{3p} [eV] | -34,64 | -90,90 |
| E_{4s} [eV] | -7,25 | -48,48 |
| ΔE [eV] | 27,39 | 42,42 |

(a) Transition $3p \rightarrow 4s$

| | Avec écran | Sans écran |
|-----------------|------------|------------|
| E_{3p} [eV] | -34,64 | -90,90 |
| E_{4p} [eV] | -3,53 | -43,07 |
| ΔE [eV] | 31,11 | 47,83 |

(b) Transition $3p \rightarrow 4p$

TAB. 4.3 – Niveaux d'énergie et énergies de transition écrantées associées aux transitions présentées sur la figure 4.8. Les données écrantées sont déterminées pour une densité électronique de 10^{23} cm^{-3} et une température de 30 eV. Les données non écrantées sont données pour comparaison.

Afin d'étudier plus en détail l'influence des phénomènes d'écran, nous avons partiellement écranté le système collisionnel. En effet, les différentes interactions du système peuvent être séparées en deux composantes :

- la structure ionique (c'est à dire l'interaction électron lié/coeur ionique),
- l'interaction projectile/cible (soit les interactions électron libre/électron lié et électron libre/coeur ionique).

Dans un premier temps, nous avons évalué les sections en écrantant seulement la structure ionique et en considérant l'interaction électron incident/cible comme étant coulombienne. Les résultats obtenus sont également présentés sur les figures 4.8.

La figure 4.8(a) présente la section efficace $3p \rightarrow 4s$ de l'ion Ar^{5+} . Nous constatons que la section partiellement écrantée est plus importante que la section non écrantée. Afin d'étudier l'influence de l'écran sur la structure ionique, nous nous plaçons à haute énergie incidente. Les fonctions d'onde de l'électron incident et diffusé non écrantées sont alors assimilées à des ondes planes et la section est déterminée dans l'approximation PWB (cf. paragraphe 3.3.3 chapitre 3) :

$$\sigma_{n_a l_a \rightarrow n_b l_b} = \frac{4\pi}{k_i^2} \frac{N_{eq}}{2l_a + 1} \sum_{m_a=-l_a}^{l_a} \sum_{m_b=-l_b}^{l_b} \int_{q_{min}}^{q_{max}} dq \frac{1}{q^3} \left| \sum_{\lambda=|l_a-l_b|}^{l_a+l_b} i^\lambda (2\lambda + 1) \mathcal{A}_{l_a l_b}^\lambda \mathcal{R}_{l_a l_b}^\lambda(q) \right|^2 \quad (4.65)$$

où q_{min} et q_{max} sont respectivement les transferts d'impulsion minimum et maximum de l'électron incident :

$$\begin{aligned} q_{min} &= k_i - k_f \\ q_{max} &= k_i + k_f \end{aligned} \quad (4.66)$$

et

$$\mathcal{A}_{l_a l_b}^\lambda = [(2l_a + 1)(2l_b + 1)]^{1/2} \begin{pmatrix} l_a & l_b & \lambda \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_a & l_b & \lambda \\ m_a & -m_b & 0 \end{pmatrix} \quad (4.67)$$

$$\mathcal{R}_{l_a l_b}^\lambda(q) = \int_0^\infty dr_2 r_2^2 R_a(r_2) j_\lambda(qr_2) R_b(r_2) \quad (4.68)$$

Pour une énergie incidente et une transition données, l'écran de l'interaction électron lié/coeur ionique modifie les bornes d'intégration sur le transfert d'impulsion \mathbf{q} . En effet, les états $3p$ et $4s$ étant peu liés, ils sont fortement déplacés par les effets d'écran (respectivement de 60% et de 85%) et l'énergie de la transition est alors réduite de 35% (cf. tab. 4.3). Ainsi, l'énergie de l'électron diffusé (et son impulsion k_f) augmente en conséquence. L'intervalle d'intégration $[q_{min}; q_{max}]$ est alors plus important dans le cas écranté ce qui entraîne un accroissement de la section. Cependant, l'écran de la structure ionique modifie également les éléments de matrice $\mathcal{R}_{l_a l_b}^\lambda(q)$ qui représentent le couplage entre les deux états liés. La figure 4.9 présente les fonctions de distributions radiales associées aux fonctions d'onde $3p$ et $4s$ écrantées et non écrantées. L'état $4s$ étant proche du continuum, sa fonction d'onde est fortement affectée par les effets d'écran : contrairement à la fonction d'onde de l'état $3p$ qui est peu modifiée, la fonction $4s$ est nettement plus diffuse, ce

qui induit une réduction du couplage entre ces deux états. Ainsi, l'écran de la structure électronique de la cible induit deux processus qui entrent en compétition :

- l'augmentation de la section due à la réduction de l'énergie de transition,
- la diminution de la section due à la réduction du couplage entre les deux états liés.

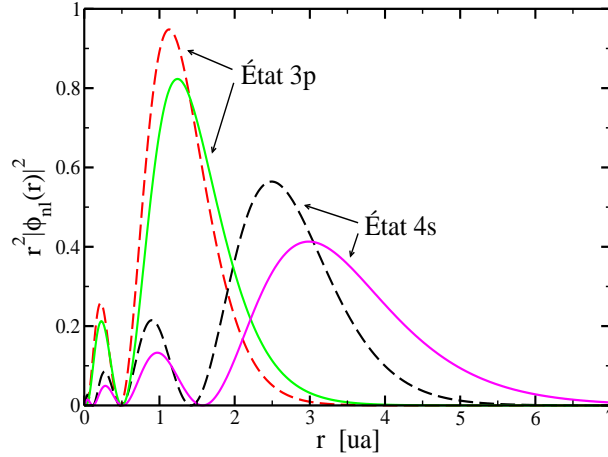


FIG. 4.9 – Fonctions de distribution radiales associées aux fonctions d'onde 3p et 4s de l'ion Ar^{5+} écrantées (—) et non écrantées (- -). Les données écrantées sont déterminées pour une densité électronique de 10^{23} cm^{-3} et une température de 30 eV.

Ces considérations effectuées à haute énergie incidente peuvent être généralisées. Le couplage entre deux états liés à faible énergie incidente est alors représenté par le potentiel de transition :

$$V_T^d(ab; \mathbf{r}_1) = \left\langle \phi_b(\mathbf{r}_2) \left| V_{ecr}^{(Z=1)}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \right\rangle \quad (4.69)$$

L'influence des phénomènes d'écran sur les fonctions d'onde liées engendre donc une réduction du couplage induit par l'interaction électron/électron. La figure 4.8(a) indique que la section totale d'excitation partiellement écrantée est supérieure à la section non écrantée quelle que soit l'énergie incidente. Ceci indique que l'effet de la réduction de l'énergie de transition est plus important que l'effet de la réduction du couplage entre les états liés.

Dans un second temps, nous avons ajouté l'influence des phénomènes d'écran sur les interactions électron libre/électron lié et électron libre/coeur ionique. La comparaison de la section partiellement écrantée et de la section entièrement écrantée indique que l'écran de l'interaction projectile/cible abaisse la section quelle que soit l'énergie incidente. En effet, le gaz d'électrons environnant réduit l'interaction entre l'électron libre et l'ion ce qui réduit en conséquence la probabilité de transition. La section totale écrantée résulte donc de plusieurs processus concomitants. À faible énergie incidente, l'effet prédominant résulte de la réduction de l'énergie de la transition ce qui conduit à une augmentation de la section par rapport au cas non écranté. En revanche à plus haute énergie, la réduction de l'interaction projectile/cible domine ce qui entraîne une réduction de la section d'excitation (de plus de 40% à 500 eV).

La figure 4.8(b) présente la section efficace totale d'excitation collisionnelle de l'état fondamental $3p$ de l'ion Ar^{5+} vers l'état excité $4p$. Nous avons également évalué la section partiellement écrantée en ne considérant que l'influence de l'écran sur la structure électronique de la cible. Les résultats obtenus indiquent que la section non écrantée n'est quasiment pas modifiée. Ainsi, bien que l'énergie de la transition soit réduite de 35% (cf. tab. 4.3(b)), cet effet est compensé par la réduction du couplage entre les états liés. L'adjonction de l'écran de l'interaction électron incident/cible induit alors une réduction de la section totale d'excitation quelle que soit l'énergie incidente.

Nous avons également évalué l'influence des phénomènes d'écran sur la transition $2p \rightarrow 3d$ de l'ion Ar^{13+} . La figure 4.10 indique que la probabilité d'excitation n'est que faiblement réduite ($\sim 10\%$) quelle que soit l'énergie de l'électron incident. En effet, il est intéressant de remarquer que, bien que la densité électronique environnante déplace les niveaux d'énergie $2p$ et $3d$ respectivement de 19% et de 43%, l'énergie de transition reste quasiment identique (cf. tab. 4.10(b)). De plus, ces états étant fortement liés, leurs fonctions d'onde sont peu modifiées. Ainsi, la prise en compte des effets d'écran sur la structure ionique ne modifie quasiment pas la section totale d'excitation. La section partiellement écrantée est alors identique à la section non écrantée. En revanche, l'écran de l'interaction projectile/cible induit une réduction de la probabilité d'excitation. La section efficace totale d'excitation écrantée est ainsi réduite par rapport à la section non écrantée quelle que soit l'énergie de l'électron incident.

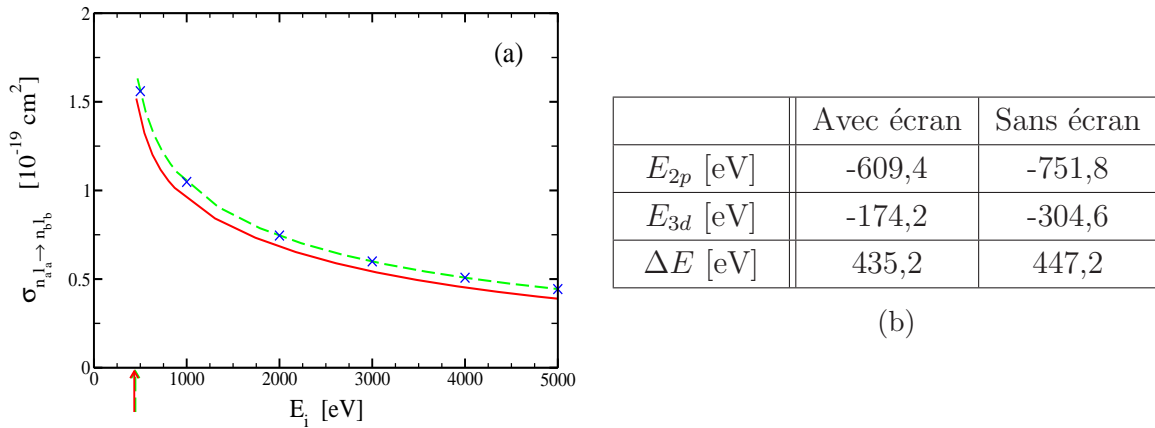


FIG. 4.10 – (a) Sections efficaces totales d'excitation collisionnelles écrantée (—), non écrantée (- -) et partiellement écrantée (\times) (voir texte) pour la transition $\text{Ar}^{13+}(2p) \rightarrow \text{Ar}^{13+}(3d)$. Les flèches indiquent l'énergie seuil de la transition. (b) Niveaux d'énergie et énergie de transition associés à la section présentée en (a). Les sections et les niveaux d'énergie écrantés sont déterminés pour une densité électronique de 10^{23} cm^{-3} et une température de 30 eV.

En conséquence, les phénomènes d'écran induisent une modification des sections efficaces totales d'excitation collisionnelles résultant de plusieurs effets :

- la réduction de l'énergie de transition qui induit une augmentation de la section,

- l'extension de la portée des fonctions d'onde liées qui modifie le couplage entre les états et réduit la section,
- la réduction de l'interaction projectile/cible qui diminue la section.

L'influence de ces différents effets se combinant pour modifier les sections totales d'excitation, il est ainsi difficile d'anticiper les conséquences de la présence d'un gaz d'électrons environnants sur la probabilité d'excitation d'une transition donnée. Il apparaît cependant que les sections sont majoritairement réduites par les effets d'écran et que ce sont les sections d'excitation impliquant des états proches du continuum qui sont principalement modifiées.

4.3.2 Sections efficaces d'ionisation collisionnelles écrantées

L'étude des effets d'écran présentée précédemment indique que la présence d'un gaz d'électrons libres joue un rôle notable sur la structure des ions et sur les sections d'excitation collisionnelles. Nous avons également étudié l'influence de cet environnement sur les sections totales d'ionisation collisionnelles. En 2002, Z.Q. Wu et coll. ont montré que pour un plasma d'or partiellement ionisé, les sections d'ionisation peuvent être amplifiées d'un facteur deux [Wu *et al.* 02]. Les auteurs ont employé le formalisme des ondes distordues pour évaluer les sections et les effets d'écran sur la structure ionique on été pris en compte à travers l'utilisation d'un modèle de type ion-sphère adapté aux plasmas de forte densité et de faible température.

En utilisant le potentiel d'écran de U. Gupta et A.K. Rajagopal, nous avons évalué les sections efficaces totales d'ionisation suivant le même principe que dans le cas non écranté (cf. paragraphe 3.3.2.2 chapitre 3) : nous considérons une collision asymétrique, c'est à dire que l'électron incident (et diffusé) est plus énergétique que l'électron éjecté. Dans ces conditions, nous négligeons l'échange des électrons et la section efficace totale d'ionisation d'un état a dans l'approximation des ondes distordues s'écrit :

$$\sigma_{ae} = (2\pi)^4 \frac{k_f}{k_i} \int dE_e k_e \int d\Omega_f \int d\Omega_e |T_{ae}^d|^2 \quad (4.70)$$

où $k_{i,f}$ désigne l'impulsion de l'électron incident/diffusé et k_e désigne l'impulsion de l'électron éjecté (d'énergie E_e). L'élément de matrice de transition direct s'écrit :

$$T_{ae}^d = \left\langle \psi_{\mathbf{k}_f}^-(\mathbf{r}_1) \psi_{\mathbf{k}_e}^-(\mathbf{r}_2) \left| V_{ecr}^{(Z=1)}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) - V_{ecr}^{(Z=1)}(r_1) \right| \phi_a(\mathbf{r}_2) \psi_{\mathbf{k}_i}^+(\mathbf{r}_1) \right\rangle \quad (4.71)$$

La fonction d'onde liée initiale $\phi_a(\mathbf{r}_2)$ est déterminée à l'aide d'une base d'orbitale de type Slater (cf. annexe B) et les fonctions d'onde du continuum sont décomposées en ondes partielles (cf. annexe C). Cependant, comme dans le cas non écranté, nous choisissons de conserver l'orthogonalité des fonctions d'onde totales en considérant que la fonction d'onde de l'électron éjecté est fonction propre du même hamiltonien que l'électron lié :

$$H_2 \psi_{\mathbf{k}_e}^-(\mathbf{r}_2) = \left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\mathbf{r}_2}^2 + V_{Ar^{q+}}^{ecr}(r_2) \right] \psi_{\mathbf{k}_e}^-(\mathbf{r}_2) = E_e \psi_{\mathbf{k}_e}^-(\mathbf{r}_2) \quad (4.72)$$

alors que les fonctions d'onde de l'électron incident et diffusé sont fonctions propres du hamiltonien :

$$H_1 \psi_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f}^\pm(\mathbf{r}_1) = \left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\mathbf{r}_1}^2 + V_{Ar^{q+}}^{ecr}(r_1) - V_{ecr}^{(Z=1)}(r_1) \right] \psi_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f}^\pm(\mathbf{r}_1) = E_{i,f} \psi_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f}^\pm(\mathbf{r}_1) \quad (4.73)$$

À l'aide du développement multipolaire du potentiel d'écran (éq. (4.49)) et du développement en ondes partielles des fonctions d'onde libres, l'élément de matrice de transition direct s'écrit :

$$T_{ae}^d = \frac{1}{2^{3/2} \pi^3} \frac{1}{k_i k_e k_f} \sum_{l_i=0}^{\infty} \sum_{l_e=0}^{\infty} \sum_{m_e=-l_e}^{l_e} (-1)^{m_e} Y_{l_e}^{m_e}(\theta_{\mathbf{k}_e}, \varphi_{\mathbf{k}_e}) \sum_{\lambda=|l_e-l_a|}^{l_e+l_a} \mathcal{A}_{l_a l_e}^\lambda \times \sum_{l_f=|l_i-\lambda|}^{l_i+\lambda} i^{l_i-l_e-l_f} e^{i(\delta_{l_i}+\delta_{l_e}+\delta_{l_f})} \mathcal{B}_{l_i l_f}^\lambda \mathcal{R}_{l_i l_f}^\lambda Y_{l_f}^{m_f}(\theta_{\mathbf{k}_f}, \varphi_{\mathbf{k}_f}) \quad (4.74)$$

où

$$\mathcal{A}_{l_a l_e}^\lambda = (2\lambda + 1)[(2l_a + 1)(2l_e + 1)]^{1/2} \begin{pmatrix} l_a & \lambda & l_e \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_a & \lambda & l_e \\ m_a & m_\lambda & -m_e \end{pmatrix} \quad (4.75)$$

$$\mathcal{B}_{l_i l_f}^\lambda = (2l_i + 1)(2l_f + 1)^{1/2} \begin{pmatrix} l_i & l_f & \lambda \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_i & l_f & \lambda \\ 0 & -m_f & -m_\lambda \end{pmatrix} \quad (4.76)$$

$$\mathcal{R}_{l_i l_f}^\lambda = \int_0^\infty dr_1 u_{l_f}(k_f, r_1) \mathcal{V}_\lambda(ae; r_1) u_{l_i}(k_i, r_1) \quad (4.77)$$

$$\mathcal{V}_\lambda(ae; r_1) = \int_0^\infty dr_2 r_2 u_{l_e}(k_e, r_2) J_\lambda(r_1, r_2) R_a(r_2) \quad (4.78)$$

L'intégration sur les angles d'émission des électrons éjecté et diffusé permet d'obtenir la section efficace totale d'ionisation. Pour un électron appartenant à une couche de valence comprenant N_{eq} électrons équivalents dans un état a de nombres quantiques $n_a l_a$, la section efficace totale d'ionisation collisionnelle s'écrit :

$$\sigma_{n_a l_a \rightarrow \epsilon} = \frac{2}{\pi^2} \frac{N_{eq}}{2l_a + 1} \times \sum_{m_a=-l_a}^{l_a} \int_0^{E_{emax}} \frac{dE_e}{k_i^3 k_f k_e} \sum_{l_e=0}^{\infty} \sum_{m_e=-l_e}^{l_e} \sum_{l_f=0}^{\infty} \left| \sum_{\lambda=|l_e-l_a|}^{l_e+l_a} \mathcal{A}_{l_a l_e}^\lambda \sum_{l_i=|l_f-\lambda|}^{l_f+\lambda} i^{l_i} e^{i\delta_{l_i}} \mathcal{B}_{l_i l_f}^\lambda \mathcal{R}_{l_i l_f}^\lambda \right|^2 \quad (4.79)$$

La figure 4.11 présente deux sections efficaces d'ionisation collisionnelles écrantées et non écrantées pour les ions Ar^{6+} et Ar^{12+} en fonction de l'énergie de l'électron incident. L'écran est évalué pour une densité électronique de 10^{23} cm^{-3} et une température de 30 eV. Les niveaux d'énergie correspondants sont indiqués dans le tableau 4.4 et représentés par une flèche sur les graphiques.

Les résultats obtenus indiquent que les phénomènes d'écran augmentent notablement les sections efficaces totales d'ionisation collisionnelles quelle que soit l'énergie incidente et l'état considéré. Lorsque l'énergie de l'électron incident est faible, les effets d'écran sont particulièrement importants : la section d'ionisation de l'état fondamental 3s de l'Ar⁶⁺ est accrue d'un facteur 4 à son maximum à $E_i/|E_a| \sim 2$). Puis à plus haute énergie incidente, cette section est quasiment doublée par rapport au cas non échanté. De même, bien que l'état 2p de l'Ar¹²⁺ soit fortement lié et donc moins sensible aux effets d'écran, la section totale d'ionisation est augmenté de plus de 60% à son maximum et de 50% à plus haute énergie. Il est également important de noter que les effets d'écran réduisent le potentiel d'ionisation du niveau d'énergie étudié ce qui abaisse incidemment l'énergie seuil de la transition.

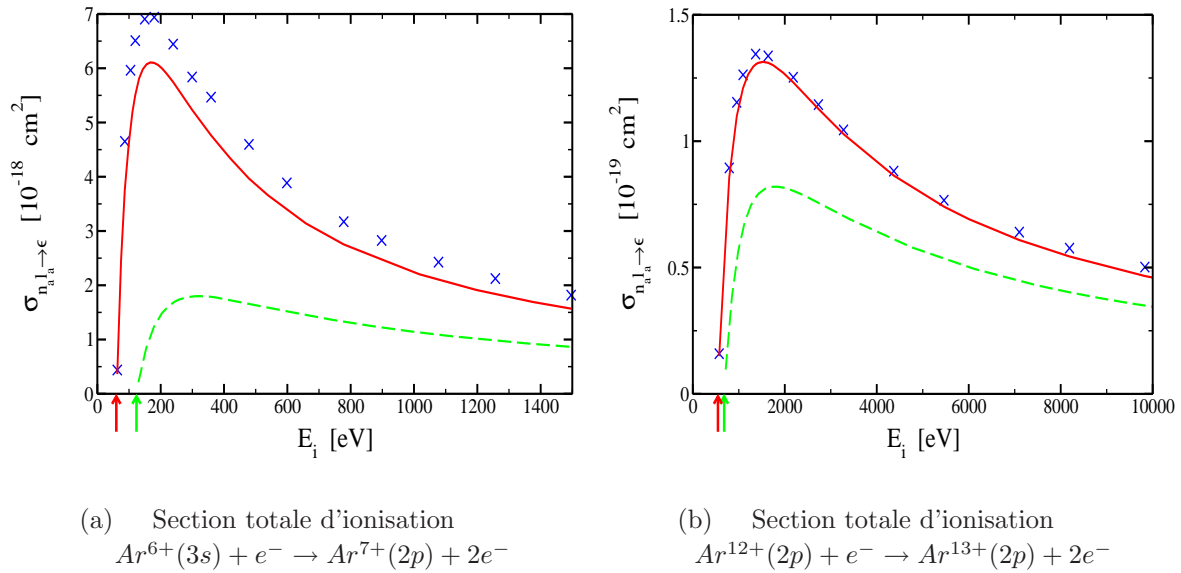


FIG. 4.11 – Sections efficaces totales d'ionisation collisionnelles échantées (—), non échantées (- -) et partiellement échantées (×) (voir texte) pour deux ions argon. Les sections échantées sont calculées avec l'expression (4.79) pour une densité électronique de 10^{23} cm^{-3} et une température de 30 eV. Les flèches indiquent l'énergie seuil de la transition.

| | E_{ecr} [eV] | E_{clb} [eV] |
|------------------------|----------------|----------------|
| Ar ⁶⁺ (3s) | -59,85 | -123,5 |
| Ar ¹²⁺ (2p) | -546,1 | -680,7 |

TAB. 4.4 – Niveaux d'énergie échantés associés aux transitions présentées sur la figure 4.11. Les données échantées sont déterminées pour une densité électronique de 10^{23} cm^{-3} et une température de 30 eV. Les données non échantées sont données pour comparaison.

Afin d'étudier plus en détail l'influence de l'écran, nous avons évalué les sections ef-

ficaces d'ionisation en écrantant partiellement le système : identiquement à la démarche mise en place pour les sections d'excitation (cf. paragraphe 4.3.1), les fonctions d'onde de l'électron lié puis éjecté sont déterminées dans le potentiel écranté alors que l'interaction entre l'électron incident (et diffusé) et la cible n'est pas écrantée. Les sections obtenues dans ce cas sont également présentées sur les figures 4.11.

Les fonctions d'onde incidente et diffusée étant non écrantées, celles-ci peuvent être approximées à haute énergie par des ondes planes. La section totale d'ionisation d'un état $n_a l_a$ prend alors la forme (cf. par. 3.3.3.2 chap. 3) :

$$\begin{aligned} \sigma_{n_a l_a \rightarrow \epsilon} = & \frac{1}{\pi^2} \frac{N_{eq}}{2l_a + 1} \times \\ & \times \sum_{m_a = -l_a}^{l_a} \int_0^{E_{e_{max}}} dE_e \frac{1}{k_i^2 k_e} \int_{k_i - k_f}^{k_i + k_f} dq \frac{1}{q^3} \sum_{l_e = 0}^{\infty} \left| \sum_{\lambda = |l_a - l_e|}^{l_a + l_e} i^\lambda (2\lambda + 1) \mathcal{A}_{l_a l_e}^\lambda \mathcal{R}_{l_a l_e}^\lambda(q) \right|^2 \end{aligned} \quad (4.80)$$

où $E_{e_{max}} = (E_i + E_a)/2$ est l'énergie maximum de l'électron éjecté et

$$\mathcal{A}_{l_a l_e}^\lambda = [(2l_a + 1)(2l_e + 1)]^{1/2} \begin{pmatrix} l_a & l_e & \lambda \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l_a & l_e & \lambda \\ m_a & -m_e & 0 \end{pmatrix} \quad (4.81)$$

$$\mathcal{R}_{l_a l_e}^\lambda(q) = \int_0^\infty dr_2 r_2 R_a(r_2) j_\lambda(qr_2) u_{l_e}(k_e, r_2) \quad (4.82)$$

Pour un électron incident d'énergie E_i et un électron éjecté d'énergie E_e fixées, la réduction du potentiel d'ionisation de l'état considéré par les effets d'écran et la conservation de l'énergie totale du système entraîne une augmentation de l'énergie E_f de l'électron diffusé (et donc de son impulsion k_f). Ainsi l'écran a pour effet d'augmenter l'intervalle d'intégration $[k_i - k_f; k_i + k_f]$. De plus, le déplacement du niveau d'énergie vers le continuum induit une augmentation de l'énergie maximale de l'électron éjecté $E_{e_{max}} = (E_i + E_a)/2$. L'écran de l'interaction coeur ionique/électron lié (puis éjecté) entraîne donc un accroissement des intervalles d'intégration sur le transfert d'impulsion q et sur l'énergie de l'électron éjecté E_e ce qui conduit à une section partiellement écrantée supérieure à la section non écrantée quelque soit l'énergie incidente. Nous pouvons également remarquer que la variation de l'intervalle d'intégration $[0; E_{e_{max}}]$ est d'autant plus importante que l'énergie du projectile est faible, ce qui explique pourquoi les sections sont plus sensibles aux effets d'écran à faible énergie incidente.

Bien que ces considérations soient effectuées à l'aide de l'approximation des ondes planes, elles peuvent être généralisées aux résultats obtenus selon l'approximation des ondes distordues. La présence d'un gaz d'électrons libres environnant a pour effet de réduire le potentiel d'ionisation de l'électron lié. Le déplacement de ce niveau d'énergie vers le continuum entraîne alors une augmentation de la probabilité d'ionisation quelle que soit l'énergie de l'électron incident, cette augmentation est plus prononcée à faible énergie.

L'ajout des phénomènes d'écran sur l'interaction projectile/cible permet ensuite de déterminer les sections d'ionisation entièrement écrantées. L'interaction entre l'électron incident (et diffusé) et la cible étant réduite par les phénomènes d'écran, pour une énergie

incidente donnée la section d'ionisation écrantée est alors réduite par rapport à la section partiellement écrantée.

En conséquence la modification des sections efficaces totales d'ionisation par les effets d'écran résultent de deux effets : la réduction du potentiel d'ionisation de l'état considéré qui augmente les probabilités d'ionisation et la réduction de l'interaction projectile/cible qui réduit les sections. L'effet prédominant provient de l'abaissement du continuum, les phénomènes d'écran entraînent donc une augmentation des sections efficaces d'ionisation quelque soit l'énergie incidente et l'état considéré.

4.3.3 Inclusion des phénomènes d'écran dans le modèle nano-plasma

L'interaction laser-agrégat produit un plasma dont la densité et la température électroniques varient rapidement au cours du temps. La prise en compte des effets d'écran induits par le milieu requiert, à chaque pas de temps, l'évaluation du potentiel d'interaction électron/ion, des niveaux d'énergie de chaque ion et des sections efficaces d'excitation et d'ionisation pour chaque transition considérée. La détermination de chacune de ces variables à chaque instant de l'évolution supposerait des temps de calcul prohibitifs.

Afin d'inclure les effets d'écran dans le modèle nanoplasma, nous avons par conséquent été amenés à effectuer certaines approximations. Pour déterminer les paramètres (densité, température ...) à un temps $t + dt$ à partir des données obtenues au temps t , la méthode itérative utilisée pour résoudre le système d'équations couplées du modèle (Runge-Kutta d'ordre 5) requiert l'évaluation de ces paramètres à six temps intermédiaires. En pratique, pour limiter le temps de calcul, le potentiel d'écran et la structure électronique de chaque ion sont évalués uniquement au temps t . Ces mêmes données sont ensuite utilisées aux pas de temps intermédiaires pour déterminer les paramètres au temps $t + dt$. En effectuant une simulation où le potentiel et les niveaux d'énergie sont évalués à chaque pas de temps intermédiaires, nous avons vérifié que cette approximation ne modifie pas les résultats obtenus.

Il est également impossible d'effectuer, à chaque pas de temps et pour une distribution de vitesses électroniques donnée, le calcul de toutes les sections efficaces totales d'excitation et d'ionisation collisionnelles écrantées. Afin d'évaluer ces sections, nous avons par conséquent eu recours à des expressions simplifiées.

4.3.3.1 Expression semi-analytique de Van Regemorter pour les sections d'excitation écrantées

Au paragraphe 3.4.1, nous avons présenté la loi d'échelle semi-analytique de H. Van Regemorter qui permet de déterminer les sections totales d'excitation de manière approchée. Celle-ci s'écrit :

$$\sigma_{n_a l_a \rightarrow n_b l_b} = \frac{8\pi^2 a_0^2}{\sqrt{3}} N_{eq} \frac{E_H^2}{E_{ab}^2} \frac{0,15 + 0,28 \ln X}{X} f_{ab} \quad (4.83)$$

où $E_H=13,6$ eV, $X = E_i/E_{ab}$ est le rapport de l'énergie de l'électron incident E_i sur l'énergie de la transition $E_{ab} = E_b - E_a$ et f_{ab} est la force d'oscillateur associée à cette transition et déterminée selon :

$$f_{ab} = \frac{2m_e E_{ab}}{3\hbar^2} \frac{1}{2l_a + 1} \max(l_a, l_b) \int_0^\infty dr r^3 R_{l_a}(r) R_{l_b}(r) \quad (4.84)$$

Cette expression prend ainsi en compte l'énergie de la transition et le couplage entre les deux états liés (par l'intermédiaire de l'intégrale intervenant dans le calcul de la force d'oscillateur). Or, nous avons démontré que ces deux paramètres jouent un rôle important dans la modification des sections efficaces d'excitation par les effets d'écran. Nous avons par conséquent évalué les sections efficaces d'excitation écrantées à l'aide de cette expression en utilisant les énergies et les parties radiales des fonctions d'onde des états liés déterminées dans le potentiel d'écran (GR, SSC ou DH selon les conditions n_e, T_e).

La figure 4.12(a) présente les sections efficaces écrantées et non écrantées déterminées à l'aide de la loi d'échelle de Van Regemorter pour la transition $3s \rightarrow 4p$ de l'ion Ar^{8+} . Les niveaux d'énergie et les forces d'oscillateur associés sont indiqués dans le tableau 4.12(b). Les sections écrantées et non écrantées obtenues à l'aide de l'approximation des ondes distordues sont également représentées sur la figure. Les données écrantées sont déterminées pour une densité de 10^{23} cm^{-3} et une température électronique de 30 eV. Nous constatons que l'inclusion des effets d'écran dans l'expression de Van Regemorter induit une modification de la section d'excitation non écrantée similaire à l'effet obtenu dans le cadre des calculs DWBA.

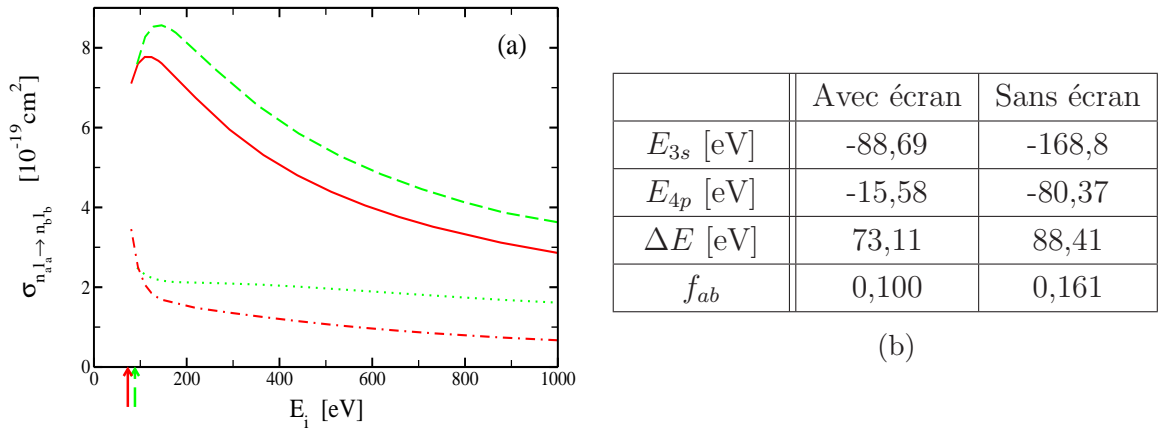


FIG. 4.12 – (a) Sections efficaces totales d'excitation collisionnelles écrantée (—) et non écrantée (- -) calculées avec l'expression de Van Regemorter (4.83) et sections écrantée (-.-) et non écrantée (· · ·) déterminées selon l'approximation des ondes distordues pour la transition $\text{Ar}^{8+}(3s) \rightarrow \text{Ar}^{8+}(4p)$. Les flèches indiquent l'énergie seuil de la transition. (b) Niveaux d'énergie, énergie de transition et force d'oscillateur associés à la section présentée en (a). Les sections et les niveaux d'énergie écrantés sont déterminés pour une densité électronique de 10^{23} cm^{-3} et une température de 30 eV.

Par conséquent, bien que l'expression de Van Regemorter soit uniquement utilisable

pour des transitions dipolaires électriques et ne permette de déterminer les sections efficaces d'excitation qu'avec une précision limitée, nous avons employé cette loi d'échelle afin d'inclure les phénomènes d'écran dans le modèle nanoplasma. En effet, cette expression semi-analytique nous permet de déterminer aisément les sections d'excitation écrantées à chaque instant de l'évolution de l'agrégat et ainsi, de mettre en évidence l'influence des effets d'écran sur cette dynamique.

4.3.3.2 Sections efficaces d'ionisation écrantées : Expression de Lotz

Au chapitre 3, nous avons montré que l'expression semi-empirique de Lotz permet de convenablement reproduire les sections efficaces totales d'ionisation obtenues à l'aide de l'approximation des ondes distordues. Pour un état a dont l'énergie d'ionisation vaut E_a , cette expression s'écrit :

$$\sigma_{n_a l_a \rightarrow \epsilon} = a_{Lotz} N_{eq} \frac{\ln(E_i/|E_a|)}{|E_a| E_i} \quad (4.85)$$

où $a_{Lotz} = 4,5 \times 10^{-18} \text{eV}^2 \text{m}^2$ est une constante déterminée empiriquement. La figure 4.13 présente les sections totales d'ionisation écrantées et non écrantées pour l'état $3s$ de l'ion Ar^{6+} déterminées avec l'expression de Lotz. Les données obtenues selon l'approximation des ondes distordues sont également représentées. L'influence de l'écran est évaluée pour une densité électronique de 10^{23}cm^{-3} et une température de 30 eV. Le potentiel d'ionisation de l'état considéré vaut alors 59,85 eV (il est de 123,5 eV dans le cas non écranté). Nous observons que, comme pour les résultats obtenus dans l'approximation des ondes distordues, l'inclusion des effets d'écran dans l'expression de Lotz induit une augmentation des sections d'ionisation par rapport au cas non écranté.

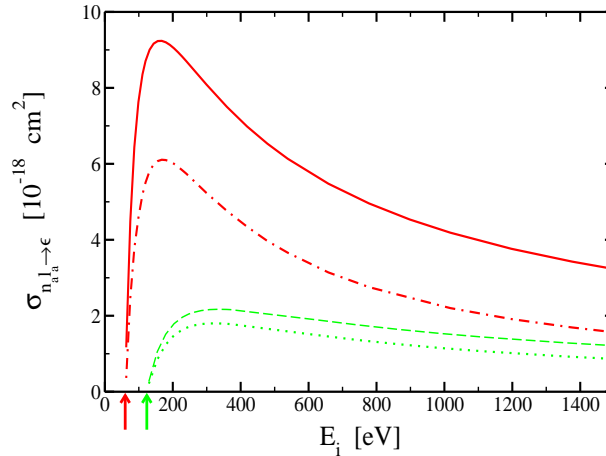


FIG. 4.13 – Sections efficaces totales d'ionisation écrantée (—) et non écrantée (- -) calculées avec l'expression de Lotz pour l'état $3s$ de l'ion Ar^{6+} . Les sections écrantée (-.-) et non écrantée (· · ·) déterminées selon l'approximation des ondes distordues sont également représentées. Les flèches indiquent l'énergie seuil de la transition. Les données écrantées sont déterminées pour une densité électronique de 10^{23}cm^{-3} et une température de 30 eV.

Ainsi, bien que l'expression de Lotz surestime l'augmentation des sections d'ionisation due aux effets d'écran, celle-ci permet en première approximation de reproduire l'influence des phénomènes d'écran sur les probabilités d'ionisation. À partir des niveaux d'énergie des ions argon déterminés à chaque pas de temps selon les conditions de densité et de température électronique, nous avons par conséquent utilisé l'expression de Lotz pour évaluer les sections efficaces d'ionisation, ce qui nous permet d'évaluer facilement les effets d'écran sur la dynamique de l'interaction.

4.4 Conclusion

L'irradiation d'un agrégat de gaz rare par une impulsion laser intense entraîne la formation d'un plasma dont les conditions de densité et de température électroniques évoluent rapidement au cours du temps. La présence de charges environnantes induit alors une modification de l'interaction électron/ion au sein du nanoplasma formé. Afin de prendre en compte cet effet et compte tenu des conditions de plasma variées rencontrées, nous avons étudié et utilisé le modèle développé par U. Gupta et A.K. Rajagopal. Ce potentiel est suffisamment sophistiqué pour permettre de rendre compte assez aisément des diverses conditions de plasma rencontrées. L'étude indique que les phénomènes d'écran réduisent les potentiels d'ionisation quel que soit l'ion et le niveau considérés. Nous avons également étudié l'influence des effets d'écran sur les sections efficaces totales d'excitation et d'ionisation collisionnelles. Les résultats indiquent que les sections d'ionisation augmentent avec les effets d'écran alors que les sections d'excitation sont majoritairement réduites par rapport au cas non écranté.

L'étude menée au cours de ce chapitre démontre que les phénomènes d'écran modifient les processus pris en compte dans le modèle nanoplasma. Nous avons par conséquent inclus ces phénomènes dans le modèle afin d'observer leur influence sur la dynamique de l'agrégat. Les résultats obtenus seront présentés dans le chapitre 5.

Chapitre 5

Modélisation de l'interaction laser-agrégat : Résultats

Sommaire

| | |
|---|------------|
| 5.1 Amélioration du modèle nanoplasma : influence de chacune des contributions | 153 |
| 5.1.1 Influence de l'inclusion d'états excités intermédiaires | 153 |
| 5.1.2 Influence des phénomènes d'écran induits par la densité d'électrons libres | 158 |
| 5.2 Dynamique de l'interaction : influence de chacun des paramètres du modèle | 160 |
| 5.3 Résultats obtenus dans le cadre du modèle nanoplasma amélioré | 163 |
| 5.3.1 Éléments de comparaison théorie/expérience | 163 |
| 5.3.1.1 Raies d'émission heliumoïdes | 163 |
| 5.3.1.2 État de charge moyen final | 164 |
| 5.3.2 Émission X en fonction de la durée de l'impulsion | 166 |
| 5.3.3 Émission X en fonction du rayon de l'agrégat | 172 |
| 5.3.4 Émission X en fonction de l'éclairement crête | 176 |
| 5.3.5 Émission X en fonction de la longueur d'onde d'irradiation | 178 |
| 5.3.6 Durée de l'émission X | 181 |

| | | |
|------------|---|------------|
| 5.3.7 | Vers l'élaboration d'un modèle nanoplasma collisionnel-radiatif auto-consistant : obtention d'un spectre d'émission X résolu en temps et en énergie | 183 |
| 5.4 | Conclusion | 187 |

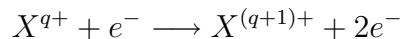
Les résultats obtenus ont démontré que le modèle nanoplasma tel que présenté au chapitre 2 n'est pas en mesure de reproduire les résultats expérimentaux. Afin d'améliorer ce modèle, nous avons donc exploré deux voies. La première, détaillée au chapitre 3, consiste en une description plus complète des processus d'ionisation collisionnels. La seconde, présentée au chapitre 4, réside dans le fait que l'évolution temporelle de l'agrégat peut être modifiée par les propres caractéristiques du nanoplasma formé. Au cours de ce chapitre, nous allons par conséquent exposer comment ces deux notions corrigent le modèle originel, ainsi que les résultats obtenus dans le cadre de ce modèle nanoplasma amélioré.

La structure de ce chapitre est la suivante : dans un premier temps, nous présentons l'influence de chacune des deux voies étudiées sur les résultats obtenus. La deuxième section expose, pour un cas donné, l'évolution typique des paramètres caractéristiques de l'agrégat (densité électronique, température électronique, champ interne, ...) en fonction du temps. Puis, dans la section suivante, nous comparons les résultats théoriques obtenus aux données expérimentales existantes. Cette comparaison est effectuée en fonction des divers paramètres expérimentaux intervenant dans l'interaction laser-agrégat. Enfin, une discussion détaillée du modèle et des résultats est proposée dans la dernière partie de ce chapitre.

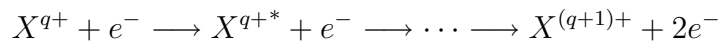
5.1 Amélioration du modèle nanoplasma : influence de chacune des contributions

5.1.1 Influence de l'inclusion d'états excités intermédiaires

Au cours du chapitre 2, nous avons vu que seuls les processus d'ionisation directs entre états fondamentaux d'espèces ioniques adjacentes sont pris en compte dans le modèle nanoplasma originel :



Afin d'améliorer la description de la dynamique d'ionisation collisionnelle, nous avons par conséquent introduit des chemins d'ionisation indirects via l'inclusion d'états excités intermédiaires :



La prise en compte de ces états excités dans le modèle nanoplasma a été présentée au cours du chapitre 3. Nous avons vu que le nombre élevé de ces états intermédiaires requiert un regroupement en configurations et, par conséquent, l'évaluation des taux de transitions moyens entre ces groupes d'états. Dès lors, le système d'équations régissant la dynamique de l'agrégat doit également prendre en compte l'évolution de ces couches d'états excités. Nous obtenons alors le système d'équations couplées 3.164 présenté page 113.

Nous avons réitéré, à l'aide de ce système d'équations, la simulation présentée au chapitre 2. Cette étude concerne l'évolution d'un agrégat d'argon de rayon initial $R_0=350 \text{ \AA}$,

irradié par une impulsion laser dont la durée à mi-hauteur est de 500 fs, et l'éclairement crête est de $1,6 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ (l'énergie sur cible est alors de 3 mJ). Il est intéressant de rappeler que, bien que les résultats expérimentaux indiquent une émission X provenant d'ions fortement chargés (jusqu'à Ar^{16+}), l'état de charge maximum obtenu à l'aide du modèle nanoplasma originel n'était que Ar^{13+} .

Nous avons par conséquent introduit, pour chaque état de charge, des états excités intermédiaires. Le tableau 5.1 présente le nombre de groupes d'états excités n_{exc} inclus pour chaque état de charge Ar^{q+} .

| | | | | | |
|------------------|-----------|-------------------|-----------|-------------------|-----------|
| | n_{exc} | | n_{exc} | | n_{exc} |
| Ar | 0 | Ar^{6+} | 3 | Ar^{12+} | 6 |
| Ar^+ | 1 | Ar^{7+} | 3 | Ar^{13+} | 6 |
| Ar^{2+} | 2 | Ar^{8+} | 4 | Ar^{14+} | 6 |
| Ar^{3+} | 3 | Ar^{9+} | 4 | Ar^{15+} | 6 |
| Ar^{4+} | 3 | Ar^{10+} | 4 | Ar^{16+} | 6 |
| Ar^{5+} | 3 | Ar^{11+} | 4 | Ar^{17+} | 6 |

TAB. 5.1 – Nombre de couches d'états excités par état de charge Ar^{q+} inclus dans le modèle nanoplasma.

Il est important de préciser que chacune des couches d'états prises en compte, comprend elle-même un certain nombre de sous-états nlm . Par exemple, pour l'ion Ar^{2+} dont l'état fondamental est $3p$, il a été nécessaire d'ajouter deux couches d'états, soit les couches dont le nombre quantique principal est $n = 4$ et $n = 5$. Chacune de ces couches est ainsi composée respectivement de 16 et de 25 sous-états nlm . Nous avons inclus jusqu'à six couches d'états excités pour les états de charge les plus élevés. Au total, le nombre de sous-états nlm inclus dans le modèle nanoplasma est de 1840.

La figure 5.1 présente l'évolution des populations totales (état fondamental + états excités) de chaque état de charge en fonction du temps obtenus dans les conditions présentées ci-dessus. L'origine des temps correspond au maximum du champ laser. Le temps initial correspond à l'instant où l'éclairement laser est de $10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$, éclairement à partir duquel l'ionisation par effet de champ devient effective. Les populations sont normalisées au nombre initial d'atomes dans l'agrégat ($N = 4,74 \times 10^6$). Nous constatons que l'état de charge maximum atteint est l' Ar^{16+} , ce qui est cohérent avec les résultats expérimentaux obtenus.

Afin d'illustrer l'importance de l'inclusion d'états excités, nous pouvons également évaluer l'état de charge final moyen. Celui-ci est déterminé en fonction des populations

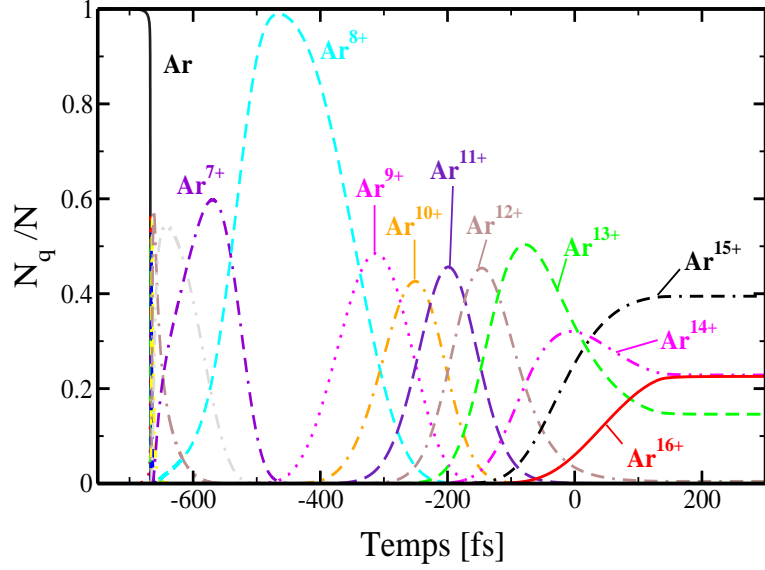


FIG. 5.1 – Évolution temporelle des populations totales N_q normalisées au nombre initial d'atomes dans l'agrégat pour chaque état de charge Ar^{q+} pour un agrégat d'argon ($R = 350 \text{ \AA}$) irradié par une impulsion laser ($FWHM = 500 \text{ fs}$; $I_0 = 1,6 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$; $E_{cible} = 3 \text{ mJ}$).

N_q des différents états de charge selon :

$$Z_{moy} = \frac{1}{N} \sum_{q=0}^{18} N_q \quad (5.1)$$

À la fin de l'interaction, l'état de charge moyen valait 10,9 dans le cas du modèle nanoplasma originel, alors qu'il atteint une valeur de 14,7 lorsque l'on prend en compte des états intermédiaires dans la dynamique d'ionisation de l'agrégat.

Les figures 5.2 présentent les évolutions temporelles des taux d'excitation et d'ionisation des états fondamentaux de plusieurs ions Ar^{q+} . Ces résultats ont été obtenus pour les mêmes paramètres que ceux indiqués sur la figure 5.1. Les taux d'excitation présentés prennent en compte les transitions de l'état fondamental vers toutes les couches d'états excités incluses dans le modèle pour l'ion considéré. Les taux d'ionisation tiennent compte de l'ionisation par effet de champ et de l'ionisation collisionnelle.

Nous observons que les taux d'excitation sont nettement supérieurs aux taux d'ionisation. Ceci indique clairement que l'ionisation de ces états de charge se fait préférentiellement de façon indirecte par l'intermédiaire des états excités. De plus, quel que soit l'ion considéré, les taux d'excitation sont non nuls durant un intervalle de temps plus long que les taux d'ionisation. Ainsi, à un temps t donné, les niveaux d'énergie qui ne peuvent être dépeuplés par ionisation, peuvent en revanche être dépeuplés par les processus d'excitation. L'inclusion des états excités permet par conséquent d'accélérer la dynamique d'ionisation.

Les résultats obtenus démontrent clairement l'importance de la prise en compte d'états

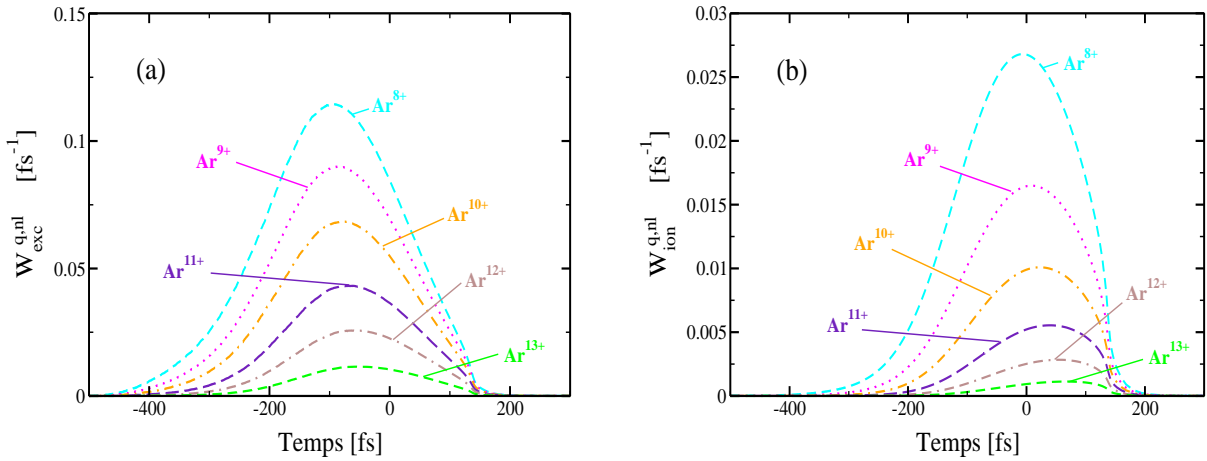


FIG. 5.2 – Évolution temporelle des taux d'excitation (a) et d'ionisation (b) des états fondamentaux des ions Ar^{q+} ($q = 8 \dots 13$). Les paramètres de l'interaction sont identiques à ceux la figure 5.1.

excités intermédiaires. L'inclusion de ces états permet d'introduire des chemins d'ionisation supplémentaires qui se révèlent être prépondérants dans la dynamique d'ionisation de l'agrégat. Ceci permet d'accélérer les processus ionisants et ainsi d'obtenir les états de charge très élevés observés expérimentalement.

Nous avons par ailleurs vérifié que le regroupement des états excités en couches d'états n (cf. paragraphe 3.5.1) ne modifie pas les résultats obtenus. Nous avons pour cela effectué des simulations en prenant directement en compte les états excités nl dans le modèle nanoplasma. L'évolution des populations de ces niveaux est alors déterminée par les taux de transition d'excitation $W_q^{nl \rightarrow n'l'}$ (avec $n \neq n'$) et d'ionisation $W_q^{nl \rightarrow \epsilon}$. Afin de comparer les résultats de ces simulations aux données obtenues à l'aide du regroupement en configurations, nous avons introduit le même nombre de couches d'états n (cf. tableau 5.1), ce qui conduit à résoudre un système d'équations couplées pour les populations de 364 états nl . La figure 5.3 présente l'évolution temporelle des populations (fondamentales + excitées) de certains états de charge. Les données représentées en trait plein correspondent aux résultats obtenus dans le cadre du regroupement en couches d'états n , et les croix indiquent les évolutions obtenues en considérant l'évolution des états nl . Les conditions de l'interaction sont identiques à celles de la figure 5.1.

Les résultats présentés sur la figure 5.3 démontrent que le regroupement des niveaux excités en couches d'états n n'induit pas de pertes d'informations sur l'évolution temporelle des populations des différents états de charge. Cette méthode, associée à l'évaluation des taux de transitions moyens entre ces configurations, peut par conséquent être utilisée afin de réduire le nombre d'équations couplées et faciliter l'évaluation de la dynamique d'ionisation de l'agrégat.

Nous avons également vérifié que le nombre de couches d'états excités incluses dans le modèle et indiquées dans le tableau 5.1 nous permet d'obtenir des résultats convergés.

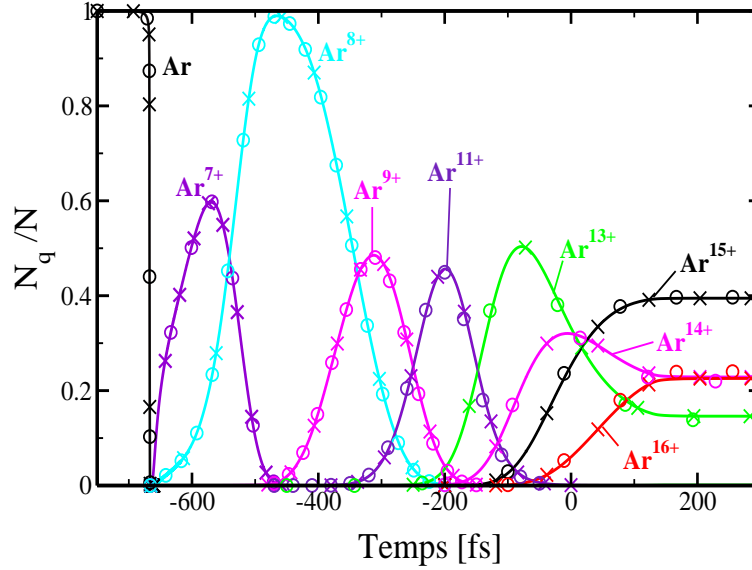


FIG. 5.3 – Évolution temporelle des populations totales N_q normalisées au nombre initial d'atomes dans l'agrégat pour certains états de charge Ar^{q+} . (—) Résultats obtenus en considérant l'évolution de couches d'états n . (x) Résultats obtenus en considérant l'évolution d'états excités nl . (o) Résultats obtenus en considérant jusqu'à 8 couches d'états excités (voir texte). Les conditions de l'interaction sont identiques à celles de la figure 5.1.

Nous avons par conséquent effectué des simulations en considérant un plus grand nombre de couches pour les états de charge les plus élevés : nous avons considéré 6 couches d'états pour l' Ar^{8+} , 7 couches pour les ions Ar^{9+} à Ar^{15+} , et 8 couches pour les ions Ar^{16+} et Ar^{17+} . Le nombre de couches d'états pour les ions Ar^{q+} avec $q < 7$ reste identique à ce qui est indiqué dans le tableau 5.1 car les niveaux les plus excités pris en compte sont proches du continuum. Les évolutions temporelles des populations totales de certains états de charge obtenues en considérant ce plus grand nombre de couches d'états sont représentées sur la figure 5.3 par des cercles. Les résultats obtenus démontrent que l'inclusion d'états excités supplémentaires ne modifie pas la dynamique d'ionisation de l'agrégat. Ainsi le nombre de couches d'états inclus tel qu'indiqué dans le tableau 5.1 permet d'obtenir des valeurs convergées pour les populations ioniques. Nous avons par ailleurs vérifié que cette convergence est atteinte aussi bien pour les états fondamentaux que pour les états excités.

Ainsi, les résultats présentés dans la suite de ce chapitre ont été obtenus en incluant des états excités dans le modèle nanoplasma. Ces états ont été pris en compte sous forme de couches d'états n , pour lesquelles les taux de transitions moyens sont évalués selon la méthode décrite au paragraphe 3.5.2. Le nombre de couches prises en compte pour chaque état de charge Ar^{q+} est indiqué dans le tableau 5.1.

5.1.2 Influence des phénomènes d'écran induits par la densité d'électrons libres

Afin d'améliorer le modèle nanoplasma, nous avons également étudié une seconde voie. La densité d'électrons libres qui se forme au sein de l'agrégat induit des phénomènes d'écran qui modifient l'interaction entre les particules chargées du nanoplasma. Nous avons vu au chapitre 4 que les variations importantes de densité et de température électroniques au cours de l'interaction requièrent l'utilisation d'un potentiel sophistiqué afin de décrire aussi correctement que possible les effets d'écran induits. L'étude préliminaire nous a permis de démontrer que la densité d'électrons libres provoque :

- une réduction des potentiels d'ionisation,
- une réduction quasi-systématique des sections efficaces totales d'excitation collisionnelle,
- une augmentation des sections efficaces totales d'ionisation collisionnelle.

Nous avons par conséquent inclus ces phénomènes d'écran dans le modèle nanoplasma selon le principe décrit au paragraphe 4.3.3 : les sections d'excitation écrantées sont déterminées à l'aide de l'expression semi-analytique de Van Regemorter et les sections d'ionisation écrantées sont calculées selon la loi d'échelle de Lotz.

Afin d'étudier les effets d'écran, nous avons de nouveau simulé l'interaction d'une impulsion laser ($FWHM=500$ fs ; $I_0=1,6\times 10^{16}$ W.cm⁻² ; $E_{cible}=3$ mJ) avec un agrégat d'argon ($R=350$ Å). Il est important de préciser que le nombre d'états excités par état de charge inclus dans la simulation est différent de celui présenté au paragraphe précédent. En effet, pour les ions peu chargés, les effets d'écran sont tels que les potentiels d'ionisation sont fortement réduits. L'excitation est alors négligeable vis à vis de l'ionisation de l'état fondamental. Nous n'avons par conséquent pas introduit d'états excités pour les ions Ar^{q+} avec $q = 0 \dots 7$. Nous avons de plus inclus une seule couche d'états excités pour l'ion Ar⁸⁺, quatre couches d'états pour les ions Ar^{q+} ($q = 9 \dots 11$) et six couches d'états excités pour les états de charge plus élevés. Nous avons par ailleurs vérifié que cela permet d'obtenir des résultats finaux convergés.

La figure 5.4(a) présente l'évolution temporelle des populations totales de chaque état de charge Ar^{q+} (normalisées au nombre d'atomes dans l'agrégat) lorsque les effets d'écran sont pris en compte dans le modèle nanoplasma. Afin d'étudier plus particulièrement l'influence des phénomènes d'écran sur la dynamique de l'interaction, nous avons également effectué une simulation non écrantée en utilisant les expressions de Van Regemorter et de Lotz. Les résultats obtenus dans ce cas sont présentés sur la figure 5.4(b). Compte tenu du fait que seules les transitions dipolaires électriques entre états excités sont prises en compte, les résultats obtenus sont différents de ceux présentés au paragraphe précédent.

La première indication apportée par ces résultats concerne la production des états de charge élevés à la fin de l'interaction. À $t=200$ fs, la composition ionique de l'agrégat est identique, que les effets d'écran soient pris en compte ou non. L'état de charge final moyen est de 13,8 que ce soit dans le cas écranté ou dans le cas non écranté, et la proportion

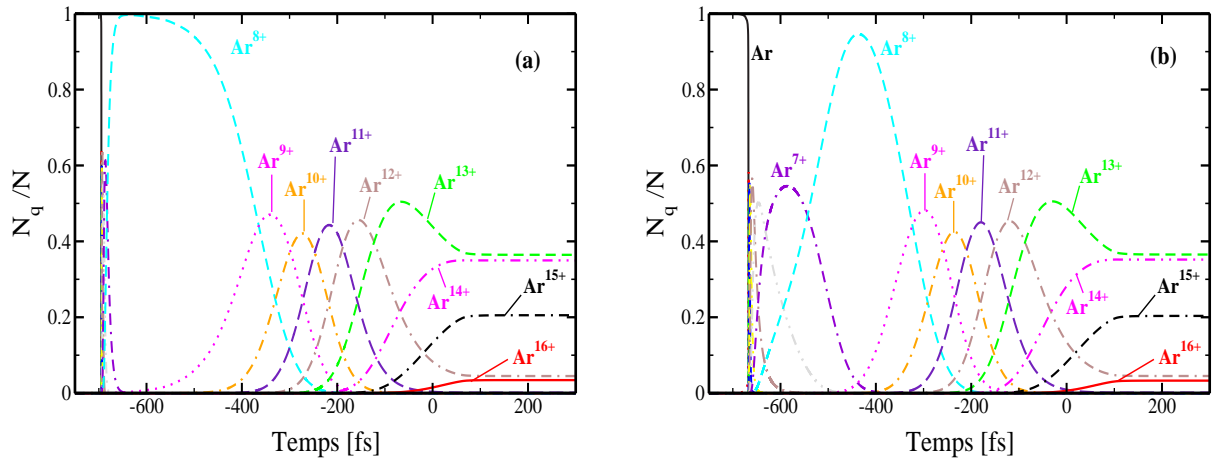


FIG. 5.4 – (a) Évolution temporelle des populations de chaque état de charge Ar^{q+} (normalisées au nombre d'atomes N dans l'agrégat) lorsque les effets d'écran induits par la densité d'électrons libres sont pris en compte. Les paramètres de la simulation sont identiques à ceux de la figure 5.1. (b) Évolution temporelle des populations sans prise en compte des effets d'écran (voir texte).

finale d' Ar^{16+} est de 3% pour les deux simulations.

En revanche, les phénomènes d'écran modifient la dynamique d'ionisation de l'agrégat. En comparaison des données non échantées, l'ionisation jusqu'à l' Ar^{8+} est nettement accélérée par les effets d'écran. En effet, au début de l'interaction, la densité d'électrons libres au sein de l'agrégat augmente très rapidement. Le champ laser n'est cependant pas suffisamment intense pour chauffer le gaz d'électrons de manière conséquente. La faible température électronique associée à la forte densité induit alors des effets d'écran importants qui déplacent les niveaux d'énergie vers le continuum. Les premiers états de charge ayant des potentiels d'ionisation peu élevés, ceux-ci sont facilement ionisés par effet de champ. En revanche, l'état fondamental de l' Ar^{8+} est nettement plus lié (la configuration électronique correspond à une fermeture de couche $1s^2 2s^2 2p^6$) : dans le cas non échanté, le potentiel d'ionisation de l' Ar^{8+} est de 423,9 eV alors que celui de l'ion Ar^{7+} n'est que de 142,7 eV. Ainsi, bien que les effets d'écran abaissent les barrières de potentiel, le champ laser est trop faible pour pouvoir ioniser l'état fondamental de l' Ar^{8+} . De même, la température électronique étant trop faible, la population de cet état ne peut être ni excitée, ni ionisée par les processus collisionnels. Par conséquent, à $t=-650$ fs, l'agrégat se retrouve quasiment exclusivement composé d'ions Ar^{8+} .

Puis, le gaz d'électrons acquiert progressivement de l'énergie par bremsstrahlung inverse, l' Ar^{8+} peut alors se dépeupler peu à peu par excitation puis ionisation collisionnelles. La température électronique devenant plus importante, les effets d'écran diminuent en conséquence. De plus, l'agrégat étant dorénavant composé d'ions très chargés, les états fortement liés sont peu sensibles à ces phénomènes d'écran. La dynamique d'ionisation de l'agrégat devient alors similaire à celle obtenue dans le cas non échanté.

En conséquence, les effets d'écran influencent principalement la dynamique d'ionisation dans les premiers instants de l'interaction. Les phénomènes d'écran accélèrent l'ionisation des premiers états de charge. Cependant, cette accélération est ensuite entièrement compensée par le fait que le nanoplasma formé ne peut poursuivre sa dynamique avant d'atteindre les conditions adéquates à l'ionisation des états de charge plus élevés.

D'après les résultats obtenus, les phénomènes d'écran influencent la dynamique d'ionisation mais ne modifient pas la composition ionique finale du nanoplasma. Or, la formation d'états de charge très élevés est l'information pertinente concernant l'émission de rayonnement X. L'inclusion des effets d'écran ne modifiant pas ces résultats, nous n'avons par conséquent pas pris en compte ces effets dans le modèle nanoplasma.

En conclusion, les résultats présentés dans la suite de ce chapitre n'incluent pas les effets d'écran. En revanche, ils ont été obtenus en incluant des états excités dans la description de la structure électronique des ions composant l'agrégat. Les sections efficaces de transitions collisionnelles entre ces états sont alors évaluées à l'aide du potentiel modèle non écranté (décrit au paragraphe 3.1.2) selon les approximations en ondes distordues et en ondes planes (cf. chapitre 3).

5.2 Dynamique de l'interaction : influence de chacun des paramètres du modèle

Au paragraphe 5.1.1, nous avons démontré que l'inclusion d'états excités intermédiaires dans le modèle nanoplasma permet de reproduire les états de charge très élevés observés expérimentalement. Compte tenu de ces résultats, il apparaît donc intéressant d'étudier en détail l'évolution des différents paramètres du nanoplasma (densité, température, champ interne, ...).

Pour les conditions indiquées sur la figure 5.1, les figures 5.5 présentent les évolutions temporelles des amplitudes des champs électriques interne et externe (fig. 5.5(a)), du rayon de l'agrégat normalisé au rayon initial (fig. 5.5(a)), de la densité et de la température électroniques (fig. 5.5(b)), de la charge totale de l'agrégat et de la charge ionique moyenne (en unités de charge élémentaire, fig. 5.5(c)), des pressions hydrodynamique et coulombienne (fig. 5.5(d)) et de la fréquence de collisions électron-ion (fig. 5.5(d)). L'évolution temporelle des populations ioniques correspondante à ces résultats est indiquée sur la figure 5.1 page 155 et n'est donc pas représentée ici de nouveau. Le temps $t=0$ fs correspond au maximum du champ laser.

La modélisation débute à -750 fs lorsque le champ laser est suffisamment intense pour ioniser les premiers atomes par effet tunnel et induire une densité d'électrons libres au sein de l'agrégat. Tant que celle-ci reste faible, le champ interne demeure identique au champ externe en accord avec les expressions (2.23) et (2.24) (fig. 5.5(a)). Puis à $t=-666$ fs, la densité atteint la valeur de $3n_c$ caractéristique de l'absorption résonante (pour une lon-

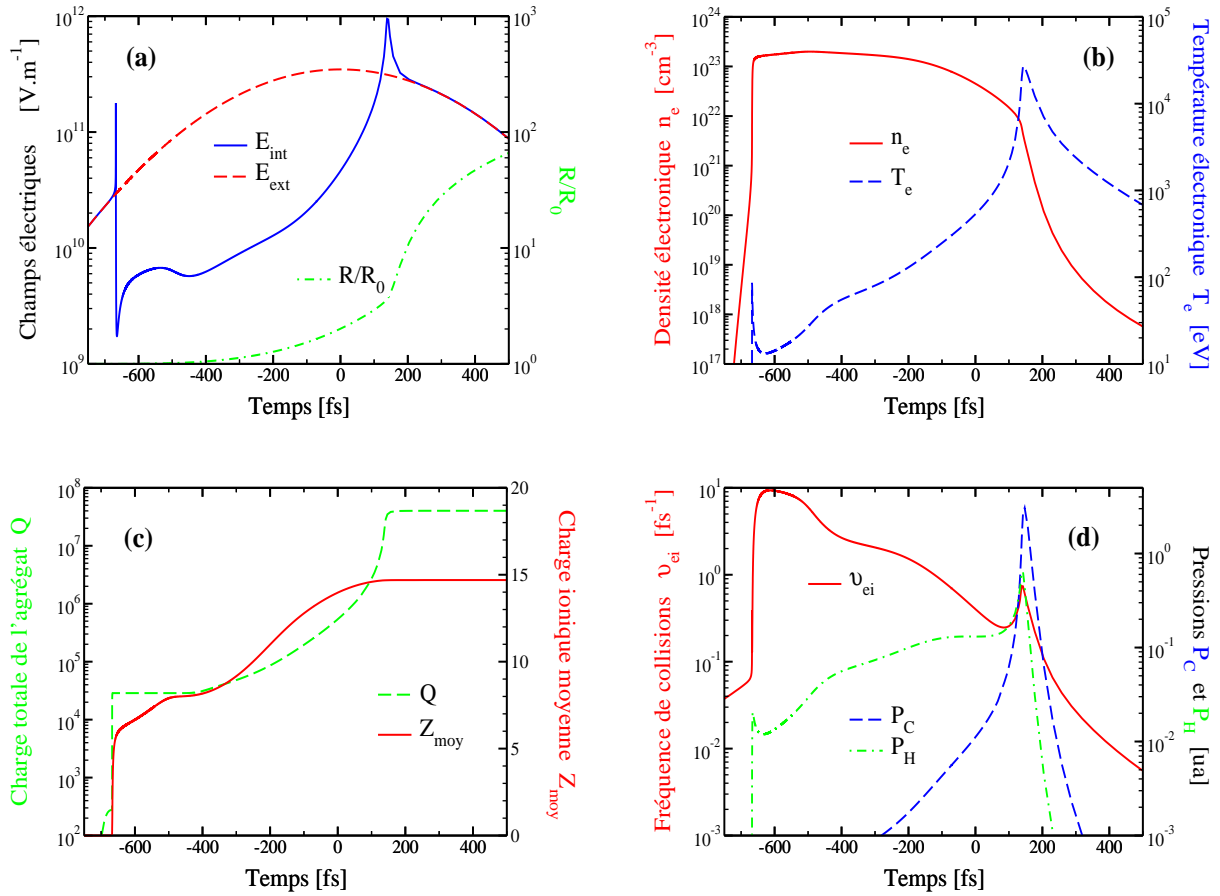


FIG. 5.5 – Évolutions temporelles des différents paramètres intervenant dans le modèle nanoplasma pour un agrégat d'argon ($R = 350 \text{ \AA}$) irradié par une impulsion laser ($\text{FWHM} = 500 \text{ fs}$; $I_0 = 1,6 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$; $E_{\text{cible}} = 3 \text{ mJ}$). (a) Amplitudes des champs électriques interne et externe, rayon de l'agrégat normalisé à sa valeur initiale; (b) densité et température électroniques; (c) charge nette de l'agrégat et état de charge moyen; (d) pressions coulombienne et hydrodynamique, fréquence de collisions électron-ion.

gueur d'onde de 800 nm, cette valeur est de $3n_c = 5,2 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$). À cet instant, le champ laser est fortement amplifié, le champ interne vaut alors $1,8 \times 10^{11} \text{ V.m}^{-1}$. Il est important de rappeler que la fréquence de collisions électron-ion, qui vaut alors 10 fs^{-1} (fig. 5.5(d)), agit comme un terme d'amortissement qui permet de limiter cette résonance. La forte absorption d'énergie induite se traduit par une importante ionisation jusqu'à un état de charge ionique moyen de 6 (fig. 5.5(c)). En conséquence, la densité électronique augmente ce qui engendre un fort champ dépolarisant qui écranterait le champ externe. Ainsi, dès lors que la densité est suffisamment importante, le champ total résultant est considérablement réduit (tant que $n_e > 6n_c$ cf. fig. 2.3).

Suite à cette première résonance, le champ interne est trop faible pour prolonger la dynamique d'ionisation. En revanche, la fréquence de collisions électron-ion est élevée.

L'absorption d'énergie par bremsstrahlung inverse peut donc se poursuivre et la température électronique augmente en conséquence (5.5(b)). La forte densité électronique, la forte fréquence de collisions électron-ion et la température électronique croissante confèrent donc à l'agrégat les conditions optimales pour l'ionisation progressive des ions argon par les processus collisionnels. En effet, les sections efficaces totales d'ionisation (ou d'excitation) collisionnelles (et donc les taux associés) sont maximales pour une distribution en énergie des électrons proche de l'énergie seuil de la transition (cf. chap. 3). L'ionisation par impact électronique (directe ou par l'intermédiaire d'états excités) permet alors de produire des états de charge très élevés.

Le nanoplasma traverse donc une période de quelques centaines de femtosecondes (entre $t=-660$ fs et $t=100$ fs) au cours de laquelle la température augmente progressivement. Cependant, cette évolution engendre une réaction du milieu : la pression hydrodynamique (liée à la température) s'accroît (fig. 5.5(d)). De même, la distribution électronique étant de plus en plus énergétique, l'éjection d'électrons hors de l'agrégat s'intensifie (fig. 5.5(c)). La charge nette de l'agrégat augmente en conséquence, ce qui induit un accroissement de la pression coulombienne. L'amplification de ces deux pressions engendre alors une dilatation du nanoplasma. À $t=100$ fs, le rayon de l'agrégat est quasiment multiplié par un facteur 3 par rapport à sa valeur initiale (fig. 5.5(a)).

Ainsi, l'accroissement du nombre d'électrons libres induit par l'ionisation progressive des ions de l'agrégat est contrebalancée par l'expansion du milieu. De plus, à cette dilatation s'ajoute l'émission d'électrons hors de l'agrégat. Ceci conduit à une diminution progressive de la densité d'électrons libres, qui atteint de nouveau la valeur singulière de $3n_c$. Cette seconde résonance, s'accompagne alors d'une forte augmentation du champ interne, de nouveau limitée par la fréquence de collisions électroniques. L'absorption résonante de l'énergie laser induit une forte augmentation de la température électronique qui atteint plusieurs keV (fig. 5.5(b)). Une importante fraction des électrons est alors suffisamment énergétique pour quitter l'agrégat. L'augmentation rapide de la pression coulombienne associée à ce défaut de charges et l'accroissement de la pression hydrodynamique associée à l'augmentation de la température engendrent alors l'explosion de l'agrégat, dont le rayon s'accroît d'un facteur 20 en quelques dizaines de femtosecondes. La seconde résonance conduit donc à la destruction du nanoplasma, et par conséquent la fin de la dynamique d'ionisation. L'état de charge moyen final est alors de 14,7 avec une proportion de 22% d'Ar¹⁶⁺.

Par conséquent, la dynamique de l'interaction laser-agrégat résulte de la combinaison des mécanismes décrits ci-dessus. Compte tenu de la forte densité d'électrons libres, le champ électrique externe est fortement écranté au sein de l'agrégat pendant la majeure partie de l'interaction. Dès lors, le champ interne n'étant pas assez intense, la dynamique d'ionisation est essentiellement gouvernée par les processus collisionnels. La formation d'états de charge très élevés requiert donc une forte densité électronique et une température croissante afin d'optimiser l'ionisation progressive des atomes de l'agrégat. Cependant, cet accroissement de la température accentue l'instabilité du nanoplasma qui finit

par exploser lors de la seconde résonance. L'évolution de l'interaction est par conséquent gouvernée par un ensemble de paramètres dont les évolutions sont intrinsèquement liées. Il est par conséquent difficile, à priori, de prédire la dynamique de l'interaction laser-agrégat pour des conditions expérimentales données.

5.3 Résultats obtenus dans le cadre du modèle nanoplasma amélioré

Nous avons montré, au cours des paragraphes précédents, que l'inclusion d'états excités intermédiaires permet de reproduire les états de charge élevés observés expérimentalement pour une taille d'agrégat et une impulsion laser données. Dans le but d'éprouver la validité du modèle nanoplasma amélioré, il est par ailleurs intéressant de comparer ces résultats aux données expérimentales présentées au chapitre 1. Cette section présente donc les résultats théoriques obtenus en fonction de la variation des différents paramètres expérimentaux intervenant dans l'interaction laser-agrégat.

5.3.1 Éléments de comparaison théorie/expérience

Les résultats expérimentaux obtenus à Bordeaux concernent majoritairement l'émission de rayonnement X provenant d'ions multichargés. Compte tenu des données accessibles à l'aide du modèle nanoplasma, nous avons par conséquent introduit plusieurs quantités afin de comparer les résultats issus du modèle aux données expérimentales.

5.3.1.1 Raies d'émission heliumoïdes

Tout d'abord, F. Dorchies et coll. ont étudié la dépendance de l'émission He_α aux différents paramètres expérimentaux [Dorchies *et al.* 05]. Or, nos simulations incluent explicitement le processus d'excitation de l'état $1s$ vers l'état $2p$ de l' Ar^{16+} . Il est donc relativement aisé d'extraire du modèle nanoplasma la dynamique de la raie de désexcitation correspondante. Les états excités étant initialement regroupés en couches d'états, nous séparons les populations de l'état $n = 2$ afin d'obtenir les populations respectives des états $2p$ et $2s$. Selon la loi statistique de Boltzmann (éq. (3.159)) et sachant que les énergies d'ionisation de ces états sont très proches vis à vis de la température électronique, nous pouvons en déduire que l'état excité $2p$ constitue 75% de la population $n = 2$. Le taux de désexcitation radiative $2p \rightarrow 1s$ de l' Ar^{16+} peut alors être évalué selon :

$$W_{16}^{2p \rightarrow 1s} [s^{-1}] = A_{16}^{2p \rightarrow 1s} N_{16,2p} \quad (5.2)$$

où $N_{16,2p}$ désigne la population d'ions Ar^{16+} dans l'état $2p$, et $A_{16}^{2p \rightarrow 1s}$ est le coefficient d'Einstein pour l'émission spontanée. Celui-ci est déterminé par l'expression [Hilborn

82] :

$$A_{16}^{2p \rightarrow 1s} [s^{-1}] = \frac{e^2 \omega_{2p \rightarrow 1s}^2}{2\pi \varepsilon_0 m_e c^3} f_{2p \rightarrow 1s} \quad (5.3)$$

où $\hbar\omega_{2p \rightarrow 1s}$ et $f_{2p \rightarrow 1s}$ sont respectivement l'énergie et la force d'oscillateur de la transition considérée. Celles-ci sont déterminées dans le cadre du potentiel-modèle décrit au chapitre 3 et valent respectivement 3,14 keV et 0,066. L'évaluation du taux de désexcitation radiative à chaque instant de l'interaction permet alors de déterminer la dynamique temporelle de l'émission de la raie He_α . De plus, l'intégration sur le temps de ce paramètre nous permet de déterminer le nombre de photons He_α émis au cours de l'interaction :

$$N_{\text{He}_\alpha} = \int_{-\infty}^{+\infty} W_{16}^{2p \rightarrow 1s} dt \quad (5.4)$$

Suivant le même principe, nous pouvons également déterminer la dynamique des raies d'émission et le nombre de photons émis pour les transitions He_β ($3p \rightarrow 1s$), He_γ ($4p \rightarrow 1s$), He_δ ($5p \rightarrow 1s$) . . . En revanche, notre approche potentiel-modèle ne permet pas la détermination des raies d'émission X associées aux états de charge Ar^{q+} ($q=11 \dots 15$) et mises en évidence expérimentalement. En effet, l'émission X provenant de tels états de charge résulte de transitions en couche interne. Par exemple, la raie d'émission à 3,1 keV de l'ion Ar^{15+} provient de la transition de l'état $1s2p^2$ vers l'état fondamental $1s^22p$. Or, selon l'approche potentiel-modèle employée pour décrire la structure électronique des ions de l'agrégat, seul l'électron de valence est actif et peut donc subir une transition. Les électrons internes (et le noyau) sont assimilés à un coeur ionique gelé, aucune lacune en couche interne ne peut par conséquent être modélisée dans le cadre de ce potentiel modèle.

5.3.1.2 État de charge moyen final

Afin de comparer nos résultats théoriques aux données expérimentales associées à l'émission X de plusieurs états de charge, nous avons donc été amené à introduire un second élément de comparaison. Nous avons présenté au paragraphe 5.1.1 l'état de charge moyen final Z_{moy} tel que :

$$Z_{\text{moy}} = \frac{1}{N} \sum_{q=0}^{18} N_q \quad (5.5)$$

où N est le nombre d'atomes composant l'agrégat et N_q désigne la population finale (dans l'état fondamental ou dans un état excité) de chaque état de charge Ar^{q+} . L'évolution de ce paramètre en fonction des diverses conditions expérimentales permet alors d'évaluer la proportion d'états de charge élevés produits (et donc l'émission X associée).

La comparaison de cette donnée aux résultats expérimentaux nécessite cependant la détermination d'un état de charge moyen expérimental $Z_{\text{moy}}^{\text{exp}}$. Celui-ci peut être évalué à partir d'un spectre d'émission X mesuré moyennant certaines approximations. La figure 5.6 présente un spectre d'émission X haute résolution typique de l'interaction entre une impulsion laser et un agrégat d'argon. L'état de charge moyen expérimental est déduit

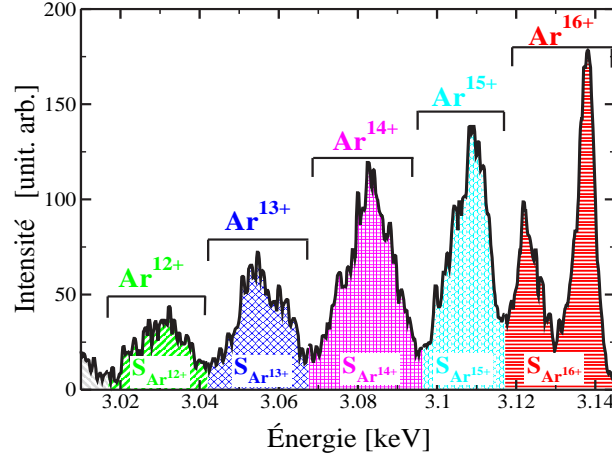


FIG. 5.6 – Évaluation de l'état de charge moyen expérimental Z_{moy}^{exp} à partir d'un spectre d'émission X mesuré. Ce spectre a été obtenu avec des agrégats d'argon irradiés par une impulsion de 70 fs et d'intensité crête $I_0=10^{18}$ W.cm⁻² [Dobosz 98].

du spectre en prenant en compte les contributions de chaque ion dans le spectre. La contribution d'un ion est définie comme q fois l'intégrale des raies émises par l'ion $S_{Ar^{q+}}$, normalisée à l'intégrale du rayonnement émis dans la bande spectrale étudiée S_{tot} :

$$Z_{moy}^{exp} = \frac{qS_{Ar^{q+}}}{S_{tot}} \quad (5.6)$$

La méthode d'évaluation employée pour l'état de charge moyen expérimental sous-entend cependant certaines hypothèses. Les différentes raies mesurées dans cette gamme spectrale résultent de transitions radiatives d'un électron de la couche L vers la couche K, soit des transitions du type $2p \rightarrow 1s$. L'expression (5.6) suppose donc que les états excités initiaux sont équiprobablement peuplés quel que soit l'ion considéré. La figure 5.7(a) présente, en fonction de l'énergie d'un électron incident, les sections efficaces d'excitation collisionnelles pour une transition d'un électron $1s$ vers un état $2p$ pour les ions Ar^{q+} ($q=12 \dots 16$). Ces résultats ont été obtenus suivant l'approximation des ondes distordues à l'aide des codes de physique atomique développés au laboratoire de Los Alamos (LANL, "Los Alamos National Laboratory") pour l'Agence Internationale à l'Énergie Atomique [IAEA]. Ces données indiquent que les sections d'excitation en couche interne $1s \rightarrow 2p$ sont du même ordre de grandeur quel que soit l'état de charge considéré. Les sections associées aux ions Ar^{16+} , Ar^{15+} et Ar^{14+} sont particulièrement proches alors que les sections d'excitation des ions Ar^{13+} et Ar^{12+} sont légèrement plus faibles.

La méthode utilisée implique également que les taux de désexcitation radiative de chacun de ces états de charge soient du même ordre de grandeur. Ceci peut être estimé à l'aide des forces d'oscillateur et des coefficients d'Einstein associés à l'émission spontanée des états excités $2p$ vers les états $1s$ pour les différents états de charge. Ceux-ci, ainsi que les énergies de transition, sont présentés dans le tableau 5.7(b). Ces données ont également été obtenus à l'aide des codes LANL¹ [IAEA]. Les résultats indiquent que les

¹Il est important de noter que ces données résultent de moyennes sur les transitions entre les sous-états LS initiaux et finaux.

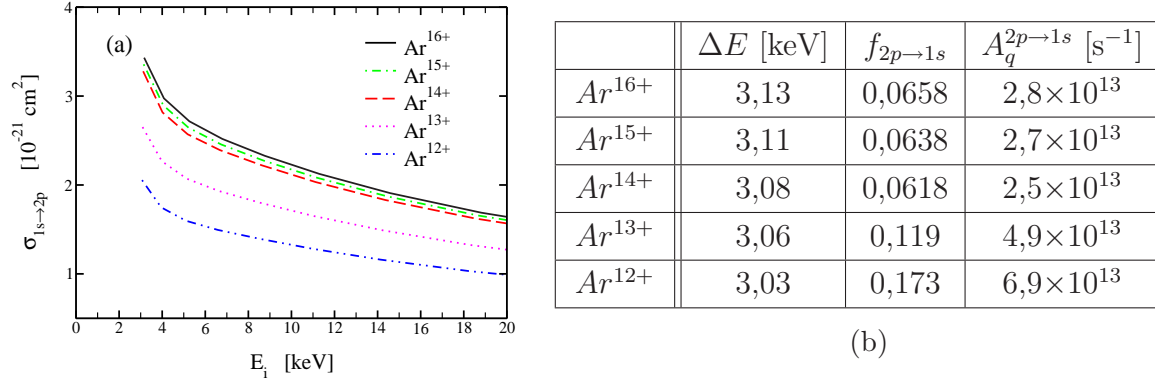


FIG. 5.7 – (a) Sections efficaces totales d'excitation collisionnelles $1s \rightarrow 2p$ déterminées selon l'approximation des ondes distordues pour différents ions Ar^{q+} en fonction de l'énergie E_i de l'électron incident [IAEA]. (b) Énergies de transition, forces d'oscillateur (en émission) et coefficients d'Einstein pour l'émission spontanée associés aux sections présentées en (a).

taux d'émission de tous les états de charge considérés sont du même ordre de grandeur, bien que les coefficients d'Einstein soient légèrement plus importants pour les ions Ar^{13+} et Ar^{12+} .

L'expression (5.6) suppose enfin que les rendements de fluorescence des différents ions émetteurs sont égaux. Or, les ions Ar^{q+} avec $q < 16$ se désexcitent également par effet Auger [Bhalla 73]. Il convient cependant de remarquer qu'une partie de l'émission provenant de ces ions n'est pas prise en compte dans l'évaluation de l'état de charge moyen expérimental. En effet, l'énergie des raies d'émission associées à la désexcitation de l'électron de valence est de quelques centaines d'eV (par exemple, l'énergie de la transition $3p \rightarrow 2s$ de l'ion Ar^{15+} est de 527 eV). Ces raies ne sont donc pas dans la gamme de mesure des spectres haute résolution tel que celui de la figure 5.6. Ainsi, l'expression (5.6) ne permet de déterminer qu'une valeur approximative de l'état de charge moyen expérimental. Nous n'étudierons par conséquent que le comportement qualitatif de ce paramètre.

5.3.2 Émission X en fonction de la durée de l'impulsion

Au chapitre 1, nous avons montré que, pour une énergie sur cible maintenue constante, il existe une durée d'impulsion pour laquelle l'émission X est maximale. La figure 5.8(a) présente les résultats expérimentaux obtenus par F. Dorchies et coll. lors de l'interaction d'un jet d'agrégats d'argon avec une impulsion laser dont l'énergie est fixée à 3 mJ. L'émission X associée à la raie He_α à 3,14 keV a été mesurée en fonction de la durée d'impulsion pour deux tailles d'agrégat différentes [Dorchies *et al.* 05].

Nous nous sommes par conséquent placés dans des conditions similaires pour effectuer des simulations à l'aide du modèle nanoplasma amélioré. L'inclusion du taux de désexcitation radiative $2p \rightarrow 1s$ pour l'ion Ar^{16+} (éqs (5.2) et (5.4)) nous permet par ailleurs de comparer directement nos résultats théoriques aux données expérimentales. Il faut cependant prendre en compte le fait que l'énergie de l'impulsion laser est distribuée tem-

porellement et spatialement (cf. éqs (1.7) et (1.8)). Nous avons par conséquent effectué, pour une durée d'impulsion donnée, plusieurs simulations en fonction de la distance au maximum de l'impulsion afin de moyenner nos résultats sur la distribution spatiale en intensité de l'impulsion :

$$\langle N_{He\alpha} \rangle_{\substack{\text{distribution} \\ \text{en intensité}}} = \frac{1}{\sum_i \alpha_i} \sum_i \alpha_i N_{He\alpha}(r_i) \quad (5.7)$$

où $N_{He\alpha}(r_i)$ désigne le nombre de photons à 3,14 keV obtenus pour un agrégat situé à une distance r_i du maximum de l'impulsion. Nous avons effectué des simulations tous les $\Delta r = 1 \mu\text{m}$ et jusqu'à $r_{max} = 6 \mu\text{m}$. Les coefficients α_i valent $\alpha_0 = \pi \left(\frac{\Delta r}{2}\right)^2$ au maximum de l'impulsion et $\alpha_{i \neq 0} = 8i\pi \left(\frac{\Delta r}{2}\right)^2$ pour un agrégat situé à une distance r_i du maximum.

Il est également important de prendre en compte le fait que les tailles d'agrégat mesurées représentent des valeurs moyennes. F. Dorchie et coll. estiment à 11% la déviation standard du rayon d'un agrégat dont la valeur moyenne est de 350 Å et à 12% celle d'un rayon moyen de 275 Å [Dorchie *et al.* 03]. Nous avons par conséquent également pris en compte cette distribution en taille des agrégats dans nos simulations :

$$\langle N_{He\alpha} \rangle_{\substack{\text{taille des} \\ \text{agrégats}}} = \frac{1}{\sum_i \alpha_i} \sum_i \alpha_i N_{He\alpha}(R) \quad (5.8)$$

où $N_{He\alpha}(R)$ désigne le nombre de photons à 3,14 keV obtenus pour une taille d'agrégat R donnée. En pratique, nous avons considéré trois tailles d'agrégats pour chaque valeur moyenne : les deux extrema associés à la déviation standard considérée ainsi que la valeur moyenne elle-même (soit 310 ; 350 et 390 Å pour $\langle R \rangle = 350 \text{ Å}$). Les coefficients α_i sont égaux à 0,5 pour la valeur moyenne et 0,25 pour les deux extrema.

La figure 5.8(b) présente les résultats théoriques obtenus en moyennant sur la distribution en intensité de l'impulsion et sur la distribution en taille des agrégats dans le jet. Le nombre de photons émis à 3,14 keV est représenté en fonction de la durée de l'impulsion pour deux tailles d'agrégat. Les conditions de l'interaction sont identiques à celles de la figure 5.8(a). Nous constatons tout d'abord que le modèle nanoplasma permet de reproduire le comportement observé expérimentalement : les résultats théoriques mettent également en évidence une durée d'impulsion optimale τ_{opt} pour laquelle l'émission X à 3,14 keV est maximale. Nous observons de plus que cet optimum dépend de la taille des agrégats et croît avec le rayon moyen, ainsi que le montrent les résultats expérimentaux. En revanche, les maxima théoriques obtenus sont légèrement plus faibles que ceux observés : pour $\langle R \rangle = 350 \text{ Å}$, l'émission à 3,14 keV est maximale pour une durée de 400 fs alors que l'optimum expérimental est plutôt de 500 fs. De même, pour $\langle R \rangle = 275 \text{ Å}$, le modèle indique un optimum de 300 fs alors qu'il est expérimentalement de 400 fs. Nous pouvons également remarquer que le comportement du signal théorique obtenu est plus piqué autour de l'optimum que ne le sont les résultats expérimentaux.

Afin de mettre en évidence l'influence des moyennes sur la répartition spatiale de l'intensité et sur la dispersion en tailles des agrégats (éqs (5.7) et (5.8)), nous avons également

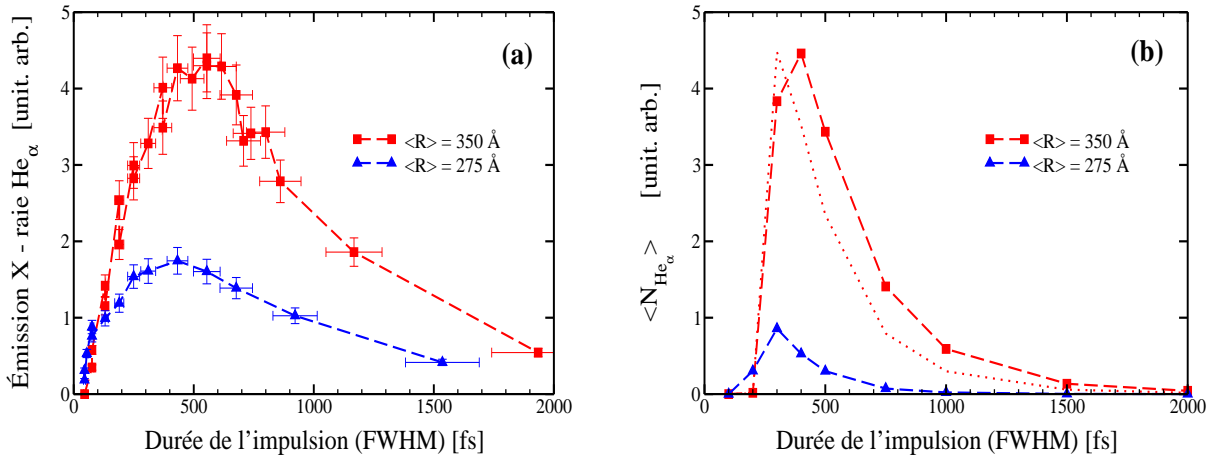


FIG. 5.8 – Intensité de l'émission X pour la raie He $_{\alpha}$ en fonction de la durée d'impulsion (FWHM). L'énergie de l'impulsion est conservée constante à 3 mJ, le rayon de l'impulsion en 1/e de l'intensité est de 2,9 μm , et la longueur d'onde est de 800 nm. Deux tailles moyennes d'agrégats sont considérées : $\langle R \rangle = 350 \text{ \AA}$ (■) et $\langle R \rangle = 275 \text{ \AA}$ (▲). (a) Résultats expérimentaux [Dorchies et al. 05] et (b) résultats théoriques. La courbe en pointillés sur la figure (b) représente les résultats non moyennés pour $R=350 \text{ \AA}$ (cf. texte).

représenté sur la figure 5.8(b) les résultats obtenus pour $R=350 \text{ \AA}$ lorsque ni la moyenne sur la distribution spatiale en intensité, ni la moyenne sur la distribution en taille des agrégats ne sont prises en compte. Ces résultats indiquent que les valeurs moyennées permettent de mieux reproduire les données expérimentales : la durée optimale obtenue est plus proche de la valeur réelle mesurée, et la gamme de durée d'impulsion pour laquelle l'émission X est favorisée est élargie.

Nous avons également comparé nos résultats aux données obtenues par E. Parra et coll. [Parra *et al.* 00]. Ces auteurs ont étudié l'émission X ($>1,5 \text{ keV}$) produite par des agrégats d'argon. Pour une énergie sur cible de 50 mJ et des agrégats de 400 \AA de rayon moyen, les auteurs obtiennent une émission maximale pour une durée d'impulsion de l'ordre de 300 fs. Les résultats obtenus par E. Parra et coll. sont représentés sur la figure 5.9. Il est important de préciser que les données expérimentales ont trait à l'émission de photons dont l'énergie est supérieure à 1,5 keV, sans discrimination du processus radiatif mis en jeu (bremsstrahlung, désexcitation) ni de l'état de charge concerné par la désexcitation. Nous ne pouvons par conséquent pas directement comparer ces résultats aux données théoriques obtenues. Cependant, l'émission X supérieure à 1,5 keV est favorisée par une importante population d'électrons chauds. En effet, cette population permet de générer des photons X par bremsstrahlung, mais est également propice à la production des états de charge les plus élevés. Nous pouvons par conséquent supposer que le maximum d'émission X supérieure à 1,5 keV correspond au maximum de photons He $_{\alpha}$ émis. La figure 5.9 présente ainsi la variation d'émission X à 3,14 keV obtenue théoriquement en fonction de la durée

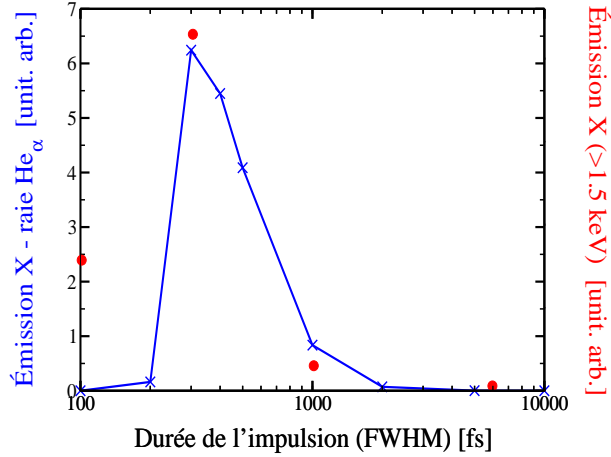


FIG. 5.9 – (×—×) Variation de l'émission X pour la raie He_α (3,14 keV) en fonction de la durée d'impulsion. Ces résultats ont été obtenus pour une énergie par impulsion de 50 mJ et une longueur d'onde de 800 nm. Le rayon de l'impulsion en 1/e de l'intensité est de 10 μm, ce qui donne un éclairement crête de $1,3 \times 10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$ pour une durée d'impulsion à mi-hauteur de 100 fs. (•) Données expérimentales obtenues par E. Parra et coll. pour l'émission X supérieure à 1,5 keV [Parra et al. 00].

de l'impulsion dans les mêmes conditions que E. Parra et coll.². Nous constatons que le modèle nanoplasma permet de reproduire le comportement des résultats expérimentaux. Nous obtenons également une émission X maximale pour une durée d'impulsion optimale de 300 fs.

Il est cependant important de remarquer que les résultats expérimentaux obtenus à faible durée d'impulsion ne sont pas reproduits par les simulations. Les données obtenues par F. Dorchie et coll. (cf. fig. 5.8), E. Parra et coll. (cf. fig. 5.9) et C. Prigent et coll. [Prigent 04] montrent en effet que l'émission de photons X est non nulle pour une durée d'impulsion de quelques dizaines de femtosecondes, contrairement aux résultats théoriques obtenus. Ceci semble par conséquent indiquer que des processus supplémentaires intervenant plus spécifiquement à faible durée d'impulsion doivent être pris en compte dans le modèle. Cette lacune sera rediscutée par la suite.

Compte tenu du bon accord théorie/expérience obtenu pour diverses conditions laser et différentes tailles d'agrégat, la description de la dynamique d'ionisation employée dans le modèle nanoplasma s'avère être appropriée pour la détermination de la durée d'impulsion optimale pour l'émission X. Nous pouvons par conséquent utiliser le modèle nanoplasma pour comprendre l'émergence de cet optimum. Les figures 5.10 présentent les évolutions temporelles de plusieurs paramètres du modèle pour trois durées d'impulsion différentes (200 fs, 300 fs, et 1 ps). Nous nous plaçons dans les conditions présentées sur la figure 5.8(b) pour $R=350 \text{ \AA}$, lorsque les distributions en intensité et en tailles d'agrégat ne sont

²Les résultats théoriques présentés ne tiennent pas compte de la distribution en intensité de l'impulsion ni de la distribution en taille des agrégats.

pas prises en compte. L'émission X maximale pour la raie He_α est alors obtenue pour une durée d'impulsion à mi-hauteur de 300 fs. Le temps $t = 0$ a été fixé sur toutes les figures 5.10 à l'instant où le champ électrique est de 10^{10} V.m^{-1} quelle que soit la durée d'impulsion afin de pouvoir comparer les évolutions des différentes données. Les paramètres présentés sont :

- Figures de gauche : Évolutions temporelles des amplitudes du champ électrique laser et du champ électrique interne.
- Figures du centre : Évolutions temporelles de la température électronique au sein de l'agrégat.
- Figures de droite : Évolutions temporelles des populations totales N_q (état fondamental + états excités) de certains états de charge Ar^{q+} (normalisées au nombre d'atomes N dans l'agrégat).

Lorsque l'impulsion est de très courte durée, le champ laser croît rapidement. Ceci induit alors une ionisation d'autant plus rapide que la durée d'impulsion est courte. Par exemple, pour une durée d'impulsion de 200 fs, l' Ar^{8+} commence à se peupler 60 fs après le début de l'interaction (cf. fig. 5.10(a)) alors qu'il faut attendre 100 fs pour une impulsion d'une durée de 300 fs (cf. fig. 5.10(b)). Cette dynamique d'ionisation plus rapide n'est cependant pas garante d'une plus forte production d' Ar^{16+} excités. En effet, lorsque la durée d'impulsion est trop courte (200 fs), la seconde résonance à $n_e = 3n_c$ survient alors que l'amplitude du champ électrique est faible (fig. 5.10(a)). L'absorption résonante de l'énergie laser est donc négligeable et la température électronique ($\lesssim 500 \text{ eV}$) ne croît pas suffisamment pour exciter les ions Ar^{16+} formés au cours de l'interaction. Une durée d'impulsion plus élevée (fig. 5.10(b)) assure en revanche un chauffage résonant conséquent qui génère une importante population d'électrons chauds ($T_e \gtrsim 1 \text{ keV}$). Celle-ci permet alors la formation d' Ar^{16+} excités et induit donc une forte émission de rayonnement X à 3,14 keV. L'augmentation de la durée d'impulsion permet par conséquent d'accroître l'absorption de l'énergie laser.

Cependant, une durée d'impulsion plus longue entraîne également une dynamique d'ionisation plus lente. Pour une durée d'impulsion de 1 ps (fig. 5.10(c)), l' Ar^{8+} commence à se peupler 300 fs après le début de l'interaction. Le peuplement des états de charge élevés se fait alors beaucoup plus progressivement que dans le cas d'une impulsion plus courte. La figure 5.10(c) indique qu'à l'amorce de la seconde résonance à $n_e = 3n_c$ ($t \sim 1200 \text{ fs}$), il n'y a quasiment aucun ion Ar^{16+} formé. La forte absorption d'énergie permet alors de peupler cet état de charge mais, la résonance induisant également l'explosion de l'agrégat, peu d' Ar^{16+} excités (et donc peu de photons He_α) peuvent être générés lors de ce court laps de temps.

Par conséquent, une trop courte durée d'impulsion permet de peupler les états de charge élevés, mais limite l'émission X de par la trop faible température électronique générée. À contrario, une trop longue durée d'impulsion ralentit la dynamique d'ionisation. Les états de charge élevés sont alors peu peuplés au moment de la forte absorption d'énergie, ce qui restreint l'émission de rayonnement X. L'apparition d'un maximum d'émission X pour une durée d'impulsion particulière résulte donc de la combinaison d'une absorption

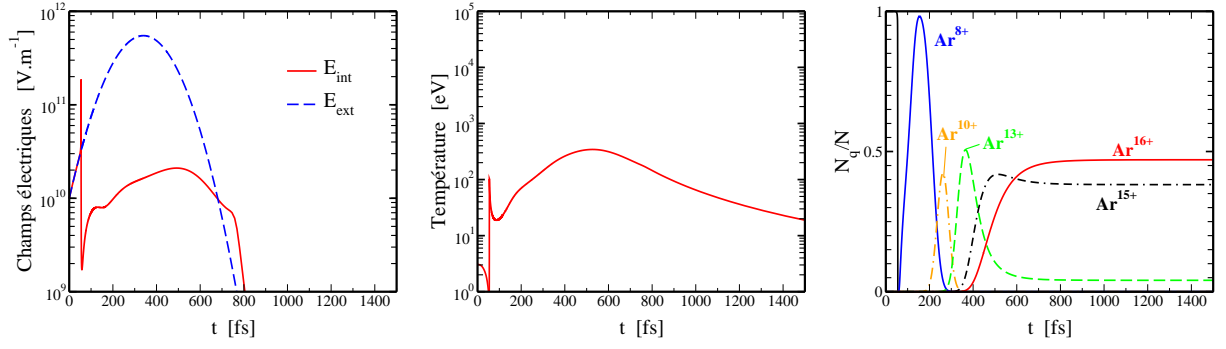
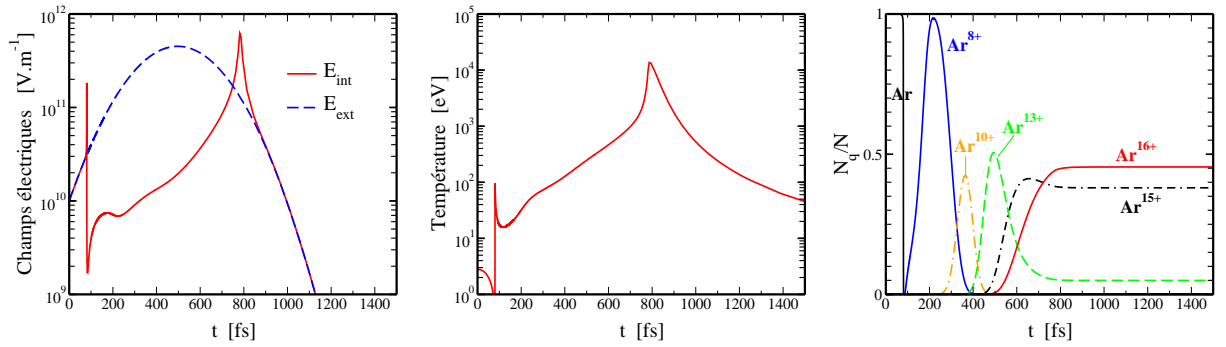
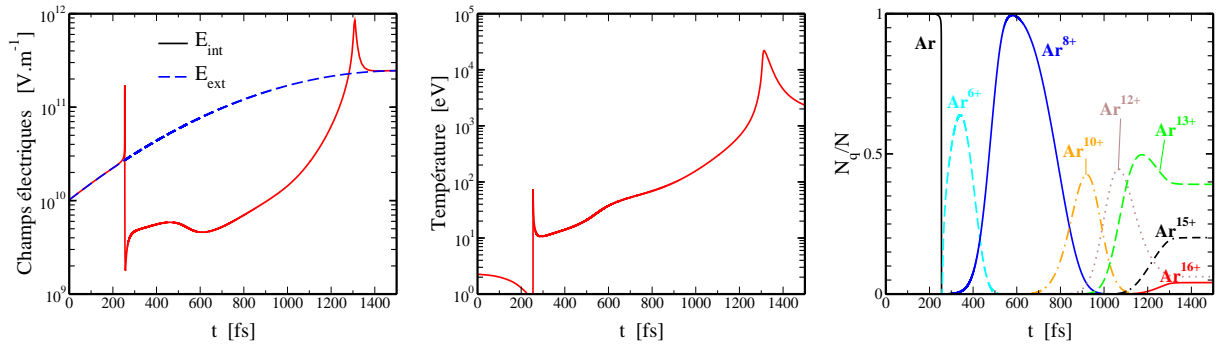

 (a) Évolutions pour une durée d'impulsion de 200 fs (soit un éclairement crête de 4×10^{16} W.cm $^{-2}$).

 (b) Évolutions pour une durée d'impulsion de 300 fs (soit un éclairement crête de $2,7 \times 10^{16}$ W.cm $^{-2}$).

 (c) Évolutions pour une durée d'impulsion de 1000 fs (soit un éclairement crête de 8×10^{15} W.cm $^{-2}$).

FIG. 5.10 – Évolutions temporelles des amplitudes des champ électriques interne et externe (figures de gauche), de la température électronique (figures du centre) et des populations de certains état de charge (normalisées au nombre d'atomes N dans l'agrégat) (figures de droite) pour l'interaction d'un agrégat d'argon ($R=350$ Å) avec une impulsion laser ($E=3$ mJ; $\lambda=800$ nm). Trois durées d'impulsion à mi-hauteur sont considérées : (a) 200 fs; (b) 300 fs; et (c) 1 ps.

(résonante) d'énergie efficace associée à une dynamique d'ionisation performante. Il est

par conséquent important de noter que ces conditions optimales ne correspondent pas nécessairement à la situation pour laquelle l'absorption résonante coïncide exactement avec le maximum de l'impulsion laser.

5.3.3 Émission X en fonction du rayon de l'agrégat

Nous avons vu au paragraphe précédent que F. Dorchies et coll. ont mis en évidence une durée d'impulsion optimale pour l'émission de rayonnement X [Dorchies *et al.* 05]. Ces auteurs ont par ailleurs démontré que cet optimum croît avec la taille de l'agrégat. Or, la figure 5.8(b) démontre que nos simulations reproduisent cette variation. Le modèle nanoplasma amélioré semble donc également adapté pour décrire l'évolution des résultats en fonction de la taille des agrégats irradiés.

Nous avons également considéré les résultats obtenus par S. Dobosz [Dobosz 98]. Pour un agrégat d'argon irradié par une impulsion laser d'une durée de 70 fs, et dont l'éclairement crête est de 10^{18} W.cm⁻², S. Dobosz a étudié l'évolution de l'état de charge moyen en fonction de la taille des agrégats. L'état de charge moyen expérimental Z_{moy}^{exp} est déterminé selon la méthode décrite au paragraphe 5.3.1.2. La figure 5.11(a) présente l'évolution de l'état de charge moyen en fonction du rayon moyen $\langle R \rangle$ des agrégats irradiés.

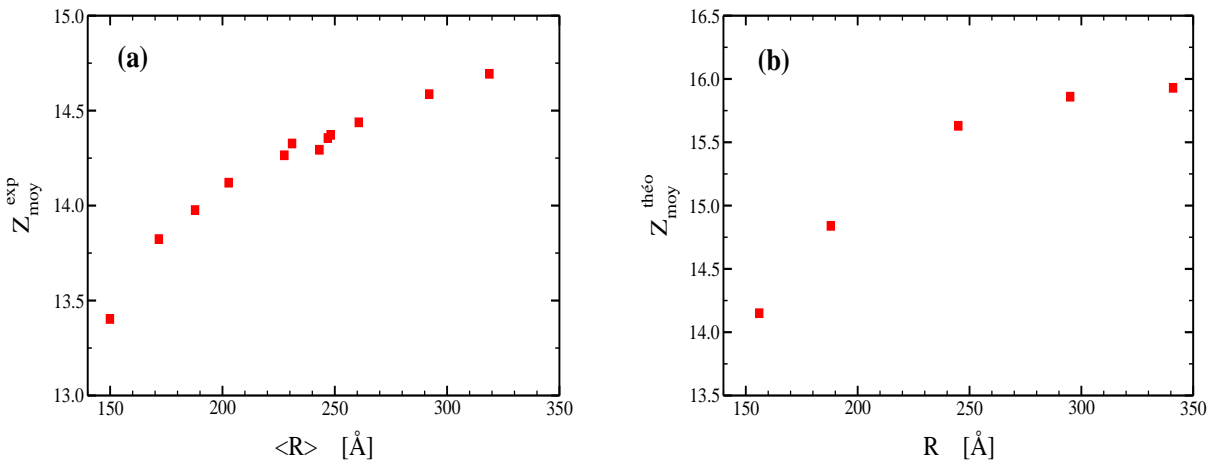


FIG. 5.11 – Variation de l'état de charge moyen en fonction du rayon des agrégats irradiés. La durée à mi-hauteur de l'impulsion est de 70 fs, et l'éclairement crête est de 10^{18} W.cm⁻². (a) Résultats expérimentaux obtenus à partir du spectre d'émission X (cf. texte) [Dobosz 98]. (b) Résultats théoriques obtenus à l'aide du modèle nanoplasma amélioré.

Les résultats théoriques obtenus à l'aide du modèle nanoplasma sont présentés sur la figure 5.11(b). Il est important de préciser que nos données ne sont pas moyennées ni sur la distribution en intensité du faisceau laser, ni sur la distribution en taille des agrégats. De plus, l'état de charge moyen expérimental est déterminé à partir du spectre d'émission X en ne considérant que les transitions associées à des lacunes en couche K pour les ions

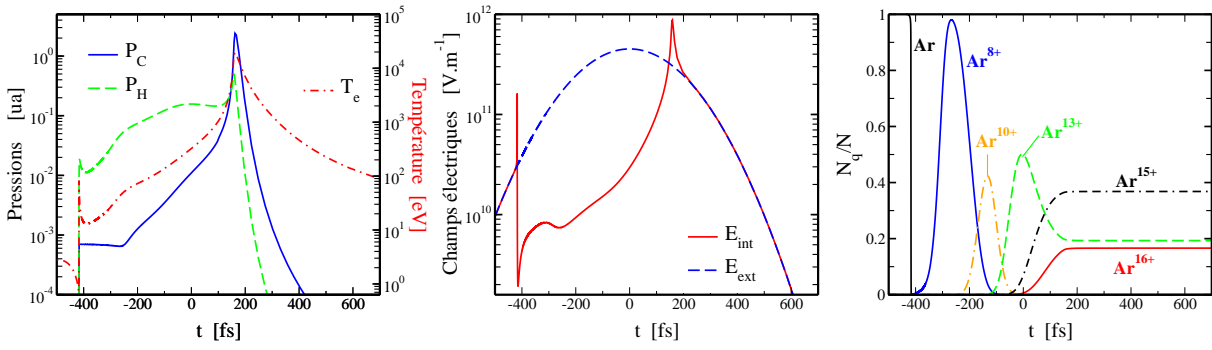
émetteurs Ar^{q+} ($q = 12 \dots 16$). Par conséquent, les états de charge moyens obtenus ne présentent qu'une valeur approximative, et seule une comparaison qualitative des données expérimentales et théoriques peut être effectuée.

La figure 5.11 indique que nos simulations permettent de reproduire le comportement obtenu expérimentalement : l'état de charge moyen augmente avec le rayon de l'agrégat, indiquant ainsi une émission X de plus en plus importante. Cependant, à partir d'une certaine taille d'agrégat, un phénomène de saturation apparaît, la croissance de l'état de charge moyen en fonction de la taille des agrégats est alors plus modérée. Les résultats théoriques indiquent que l'état de charge moyen tend vers une valeur maximale de l'ordre de 16. Ceci est cohérent avec les résultats expérimentaux puisque la présence d' Ar^{17+} n'a jamais été mise en évidence expérimentalement. Les résultats de J.P. Rozet et coll. corroborent également nos données [Rozet *et al.* 01]. En effet, ces auteurs ont étudié l'évolution de l'énergie moyenne des photons X émis en fonction de la pression en amont de la buse pour des conditions proches de celles de S. Dobosz ($I_0 = 6,7 \times 10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$, $\tau_{FWHM} = 80$ fs). Les résultats mettent en évidence que l'énergie moyenne des photons X émis converge vers une valeur supérieure à 3,1 keV lorsque le rayon des agrégats croît (jusqu'à $R \sim 340 \text{ \AA}$). Ceci indique alors que dans ces conditions, le rayonnement X provient d'ions Ar^{q+} très fortement chargés ($q \gtrsim 14$).

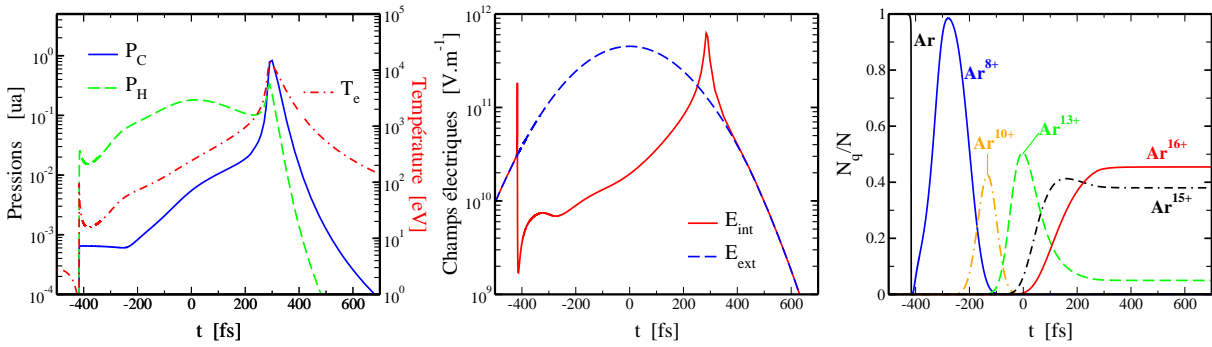
La description de l'interaction laser-agrégat selon le modèle nanoplasma amélioré s'avère donc être appropriée pour étudier la variation de l'émission X en fonction de la taille des agrégats irradiés. Afin de comprendre les mécanismes impliquant cette variation, nous avons représenté sur les figures 5.12 les évolutions temporelles de certains paramètres gouvernant la dynamique de l'interaction. Les données présentées sur ces figures ont été obtenues dans des conditions similaires à celles de F. Dorchies et coll. [Dorchies *et al.* 05] : Pour une impulsion de 3 mJ, la durée à mi-hauteur de l'impulsion laser est de 300 fs, ce qui correspond à un éclairement crête de $2,7 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$. Deux rayons d'agrégat sont considérés : $R=275 \text{ \AA}$ (fig. 5.12(a)) et $R=350 \text{ \AA}$ (fig. 5.12(b)). Le temps $t=0$ fs correspond au maximum du champ laser. Dans ces conditions, F. Dorchies et coll. ont montré que le rayonnement X à 3,14 keV ($\text{Ar}^{16+} 2p \rightarrow 1s$) croît avec la taille des agrégats. Les paramètres présentés sur ces figures sont :

- Figures de gauche : Évolutions temporelles des pressions coulombienne et hydrodynamique, ainsi que de la température électronique au sein de l'agrégat.
- Figures du centre : Évolutions temporelles des amplitudes du champ électrique laser et du champ électrique interne.
- Figures de droite : Évolutions temporelles des populations totales N_q (état fondamental + états excités) de certains états de charge Ar^{q+} (normalisées au nombre d'atomes N dans l'agrégat).

Il est tout d'abord intéressant de noter que dans la première partie de la dynamique de l'interaction (pour $t < 0$ fs), les évolutions des différents paramètres sont quasiment identiques quelle que soit la taille de l'agrégat. Au temps $t=0$ fs, la pression hydrodynamique vaut 0,15 ua pour les deux tailles d'agrégat considérées. La pression coulombienne est en revanche plus importante pour l'agrégat de petite taille. À $t=0$ fs, elle vaut 10^{-2} ua pour



(a) Évolutions pour un rayon d'agrégat de 275 Å.



(b) Évolutions pour un rayon d'agrégat de 350 Å.

FIG. 5.12 – Évolutions temporelles des pressions coulombienne et hydrodynamique, ainsi que de la température électronique (figures de gauche), des amplitudes des champs électriques interne et externe (figures du centre) et des populations de certains états de charge (normalisées au nombre d'atomes N dans l'agrégat) (figures de droite) pour l'interaction d'un agrégat d'argon avec une impulsion laser ($E=3$ mJ; $\tau_{FWHM}=300$ fs; $I_0=2,7\times 10^{16}$ W.cm $^{-2}$; $\lambda=800$ nm). Deux tailles d'agrégats sont considérées : (a) 275 Å; et (b) 350 Å.

l'agrégat de 275 Å (cf. fig. 5.12(a)) alors qu'elle vaut 5×10^{-3} ua pour l'agrégat de 350 Å (cf. fig. 5.12(b)). Cette pression varie en effet en $1/R^4$ (cf. éq. (2.69)). L'expansion du plus petit agrégat est donc plus rapide, ce qui induit une absorption résonante plus précoce. Les évolutions temporelles des champs électriques internes indiquent que la seconde résonance survient à $t \sim 180$ fs pour l'agrégat de 275 Å alors qu'elle apparaît à $t \sim 300$ fs pour l'agrégat de 350 Å. Par conséquent, plus le rayon initial de l'agrégat irradié est faible, et plus il explose rapidement.

L'évolution temporelle des populations des différents états de charge confirme que la dynamique initiale de l'interaction (pour $t < 0$ fs) est très similaire quelle que soit la taille de l'agrégat. Dans les deux cas considérés, les états de charge successifs Ar^{q+} atteignent leurs peuplements maximum pour des temps t identiques (pour $q \leq 13$), et l' Ar^{16+} se peuple à partir du temps $t=0$ fs. L'absorption résonante permet alors d'atteindre une tempéra-

ture électronique suffisante pour exciter ces ions. Cependant, pour le plus petit agrégat, la seconde résonance survenant plus rapidement que pour l'agrégat de 350 Å, le nombre d'Ar¹⁶⁺ formés avant que l'agrégat n'explose est plus faible. L'émission de rayonnement X associé à cet état de charge est donc moins importante pour l'agrégat de 275 Å.

Par conséquent, pour des conditions laser données, une taille d'agrégat plus élevée permet d'accroître le laps de temps durant lequel le système reste confiné. Ceci conduit alors à un accroissement des populations des ions multichargés, favorisant ainsi l'émission X associée à ces états de charge. Compte tenu de ce comportement, il apparaît intéressant d'extrapoler ces résultats pour des tailles d'agrégat plus élevée. Les figures 5.13 présentent les évolutions temporelles des pressions, de la température, des champs électriques et des populations de certains états de charge (normalisées au nombre N d'atomes dans l'agrégat) pour un rayon d'agrégat de 500 Å. Les conditions laser sont identiques à celles présentées sur la figure 5.12.

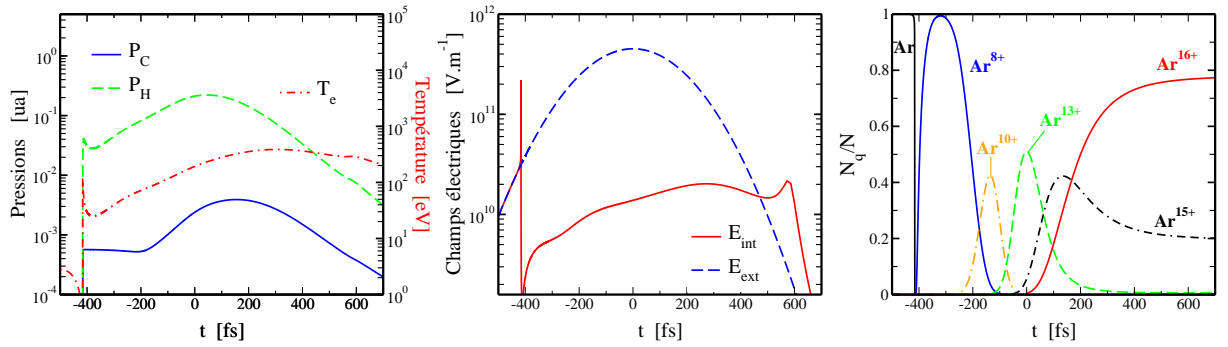


FIG. 5.13 – Évolutions temporelles des pressions coulombienne et hydrodynamique, et de la température électronique (figures de gauche), des amplitudes des champs électriques interne et externe (figures du centre) et des populations de certains états de charge (normalisées au nombre d'atomes N dans l'agrégat) (figures de droite) pour l'interaction d'un agrégat d'argon ($R=500$ Å) avec une impulsion laser ($E=3$ mJ, $\tau_{FWHM}=300$ fs ; $I_0=2,7 \times 10^{16}$ W.cm⁻² ; $\lambda=800$ nm).

Les évolutions temporelles obtenues confirment le comportement présenté précédemment. Le rayon initial de l'agrégat étant plus important, la pression coulombienne est plus faible et le système reste concentré durant un intervalle de temps plus important. Ceci permet donc d'augmenter la population des ions multichargés (à $t=600$ fs, l'agrégat est composé de 78% d'Ar¹⁶⁺). Cependant, la seconde résonance étant par conséquent retardée, le champ laser est alors trop faible pour que l'absorption d'énergie à $n_e = 3n_c$ soit significative. La température électronique n'atteint donc pas une valeur suffisante pour exciter significativement les ions Ar¹⁶⁺. L'émission X à 3,14 keV est par conséquent plus faible pour cette taille d'agrégat, en comparaison avec un agrégat de 350 Å.

Les résultats obtenus indiquent que, pour une impulsion laser donnée, il existe une taille d'agrégat optimale pour l'émission de rayonnement X. De façon similaire à l'optimum en durée d'impulsion, cet optimum résulte de la combinaison d'un ensemble de conditions idéales (absorption d'énergie importante, dynamique d'ionisation efficace) qui

permettent alors d'optimiser l'émission X.

5.3.4 Émission X en fonction de l'éclairement crête

Les résultats expérimentaux présentés au chapitre 1 indiquent que l'émission X dépend de l'énergie contenue dans l'impulsion laser. F. Dorchies et coll. ont montré que, pour une durée d'impulsion fixée, le rayonnement X à 3,14 keV provenant d'agrégats d'argon ($\langle R \rangle \sim 275 \text{ \AA}$) augmente lorsque l'énergie de l'impulsion croît de 1,8 mJ à 3,8 mJ [Dorchies *et al.* 05]. L'éclairement crête correspondant est alors respectivement de $1,6 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ et de $3,8 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ pour une durée d'impulsion de 300 fs. Ces données sont représentées sur la figure 5.14(a) en fonction de la durée d'impulsion à mi-hauteur.

Les résultats obtenus à l'aide du modèle nanoplasma amélioré pour des conditions similaires sont représentés sur la figure 5.14(b). Suivant une méthode identique à celle décrite au paragraphe 5.3.2, les résultats théoriques présentés prennent en compte la distribution spatiale de l'intensité laser ainsi que la distribution en taille des agrégats irradiés (cf. éqs (5.7) et (5.8)).

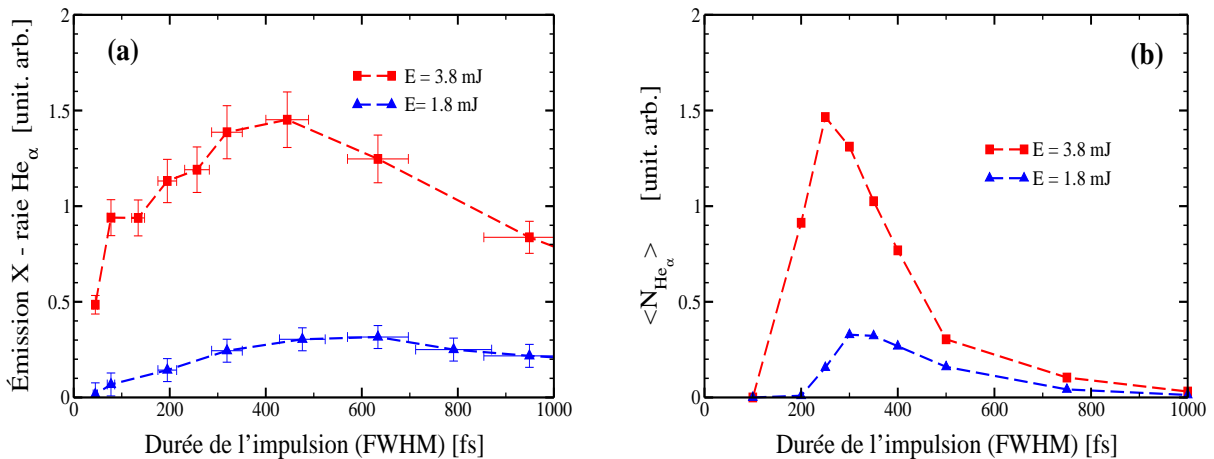


FIG. 5.14 – Intensité de l'émission X pour la raie He α en fonction de la durée d'impulsion (FWHM) pour des agrégats d'argon ($\langle R \rangle = 275 \text{ \AA}$) irradiés par une impulsion laser ($\lambda = 800 \text{ nm}$). L'énergie contenue dans l'impulsion est soit de 3,8 mJ (■), soit de 1,8 mJ (▲). (a) Résultats expérimentaux [Dorchies et al. 05] et (b) résultats théoriques.

D'après la figure 5.14(b), les simulations effectuées indiquent que l'émission X à 3,14 keV croît avec l'éclairement crête. Comme pour les résultats expérimentaux, ce comportement est observé quelle que soit la durée de l'impulsion. Au paragraphe 5.3.2, nous avons par ailleurs montré qu'il existe, pour une énergie par impulsion et une taille d'agrégat données, une durée d'impulsion optimale pour l'émission X. Les résultats expérimentaux indiquent que cet optimum croît lorsque l'énergie sur cible diminue. Il est intéressant de constater que la variation de cet optimum avec l'énergie est également reproduite par les simulations (bien que les durées optimales obtenues théoriquement soient plus faibles que

les données expérimentales). Ces résultats indiquent donc que le modèle nanoplasma amélioré permet de reproduire la variation de l'émission X associée à la raie He_α en fonction de l'éclairement crête de l'impulsion laser.

Compte tenu de ces résultats, il apparaît par conséquent intéressant d'étudier la variation du nombre de photons correspondant à la raie He_α pour de plus hautes énergies par impulsion, toutes choses étant égales par ailleurs. Nous avons donc effectué des simulations pour un agrégat de 275 \AA de rayon irradié par une impulsion de 300 fs de durée à mi-hauteur. La figure 5.15 présente la variation du nombre de photons X émis³ (à $3,14 \text{ keV}$) en fonction de l'éclairement crête I_0 . La largeur spatiale de l'impulsion en $1/e$ de l'intensité est prise égale à $2,9 \text{ \mu m}$, et l'on considère que 75% de l'énergie est concentrée dans la tâche focale. L'énergie contenue dans l'impulsion correspondante, également indiquée sur la figure, est alors déterminée selon l'expression (1.8).

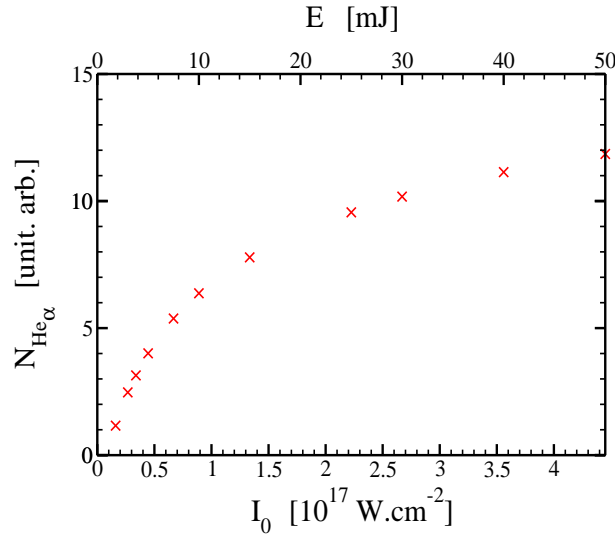


FIG. 5.15 – Nombre de photons He_α ($3,14 \text{ keV}$) émis par un agrégat d'argon en fonction de l'éclairement crête. La durée de l'impulsion à mi-hauteur est de 300 fs et le rayon de l'agrégat est de 275 \AA .

L'évolution du nombre de photons X émis en fonction de l'éclairement crête démontre l'apparition d'un phénomène de saturation à haute intensité. Nous avons montré aux paragraphes précédents que l'optimisation de l'émission X requiert une forte population d' Ar^{16+} associée à une température électronique élevée. Pour une durée laser et une taille d'agrégat données, l'augmentation de l'éclairement crête permet d'accroître l'absorption d'énergie, accélérant ainsi la dynamique d'ionisation vers les états de charge élevés. Les populations de ces ions multichargés augmentent alors, favorisant ainsi l'émission X.

Le peuplement de plus en plus important de ces états de charge élevés est cependant limité par l'instabilité de l'agrégat. En effet, lorsque le nanoplasma devient essentiellement composé d'ions multichargés, l'accroissement de l'absorption d'énergie par les électrons induit nécessairement l'explosion de l'agrégat. Sachant qu'une population d'élec-

³Les résultats présentés ne sont moyennés ni sur la distribution spatiale de l'intensité ni sur la distribution en taille des agrégats.

trons de l'ordre du keV est nécessaire pour exciter les ions multichargés, il existe alors une composition ionique limite au delà de laquelle le nanoplasma est inévitablement instable. L'augmentation de l'éclairement crête permet par conséquent de s'approcher de cette composition limite, pour laquelle la population d'ions Ar^{16+} et l'émission X associée saturent.

D'après les résultats obtenus, l'accroissement de l'éclairement crête permet donc d'accroître l'intensité de la raie He_α . Les simulations indiquent cependant qu'un phénomène de saturation apparaît à haute intensité. Il existe en effet une absorption d'énergie limite pour laquelle l'agrégat ne peut être stable. La population d'ions Ar^{16+} est alors également restreinte par cette condition, ce qui induit donc un nombre maximal de photons émis à 3,14 keV.

5.3.5 Émission X en fonction de la longueur d'onde d'irradiation

Comme nous l'avons montré au paragraphe 1.2.5, les résultats expérimentaux ne permettent pas de mettre clairement en évidence l'influence de la longueur d'onde d'irradiation sur l'émission de rayonnement X. Certains auteurs ont mis en évidence un accroissement de l'émission X pour une longueur d'onde décroissante [Honda *et al.* 00]. Au contraire, en comparant l'émission X pour des impulsions de 400 nm et 800 nm, C. Prigent obtient une différence d'un ordre de grandeur en faveur de l'impulsion infrarouge [Prigent 04].

Nous avons par conséquent effectué des simulations dans les conditions expérimentales présentées par C. Prigent. Pour un éclairement laser constant de $1,5 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$, cet auteur mesure le nombre de photons supérieurs à 3 keV émis par des agrégats d'argon ($\langle R \rangle \sim 250 \text{ \AA}$) irradié par deux impulsions laser de deux longueurs d'onde différentes. Pour l'infrarouge ($\lambda=800 \text{ nm}$), la durée à mi-hauteur de l'impulsion est de 50 fs, la largeur spatiale en $1/e$ de l'intensité est de 11 μm , et l'énergie sur cible est de 7,8 mJ. Pour l'ultraviolet ($\lambda=400 \text{ nm}$), l'énergie contenue dans l'impulsion est de 5 mJ, la largeur temporelle à mi-hauteur est de 130 fs, et la largeur spatiale en $1/e$ est de 5,5 μm . Dans ces conditions, C. Prigent obtient un rapport de 1,8 entre le taux absolu de photons X obtenus en IR et celui obtenu en UV :

$$\left[N_X^{[IR]} \right]_{50fs}^{exp.} \simeq 1,8 \left[N_X^{[UV]} \right]_{130fs}^{exp.} \quad (5.9)$$

C. Prigent utilise alors ces données afin d'évaluer la variation de l'émission X en fonction de la longueur d'onde toutes choses étant égales par ailleurs. Pour cela il prend en compte la variation d'émission X avec la durée d'impulsion observée dans l'infrarouge, et obtient alors la relation suivante, pour une durée d'impulsion à mi-hauteur de 130 fs et un éclairement crête de $1,5 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$:

$$\left[N_X^{[IR]} \right]_{130fs}^{exp.} \simeq 11 \left[N_X^{[UV]} \right]_{130fs}^{exp.} \quad (5.10)$$

Notre modèle nanoplasma tel que décrit aux chapitres 2 et 3 ne nous permet pas d'obtenir le nombre de photons d'énergie supérieure à 3 keV émis par l'agrégat irradié. Par conséquent, nos simulations ne nous permettent qu'une comparaison qualitative avec les données obtenues par C. Prigent. Nous pouvons pour cela étudier la variation de l'état de charge moyen final en fonction de la longueur d'onde d'irradiation. Pour des conditions identiques à la relation (5.9), nous obtenons :

$$\left[Z_{moy}^{[IR]} \right]_{50fs}^{theo.} = 0,65 \left[Z_{moy}^{[UV]} \right]_{130fs}^{theo.} \quad (5.11)$$

Nous avons également effectué des simulations où seule la longueur d'onde est modifiée. La durée à mi-hauteur de l'impulsion est prise égale à 130 fs, l'éclairement crête est de $1,5 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ et l'énergie contenue dans l'impulsion est de 5 mJ. La relation obtenue pour l'état de charge moyen final est alors :

$$\left[Z_{moy}^{[IR]} \right]_{130fs}^{theo.} = 0,8 \left[Z_{moy}^{[UV]} \right]_{130fs}^{theo.} \quad (5.12)$$

Ces résultats indiquent par conséquent une variation contraire à celle obtenue par C. Prigent. Les simulations montrent que l'émission X associée aux états de charge élevés est favorisée pour une plus courte longueur d'onde. Ce comportement inverse peut s'expliquer par le fait que les données expérimentales n'ont pas été obtenues dans des conditions strictement identiques. La taille de la tâche focale est plus importante pour l'impulsion infrarouge, ce qui signifie que le nombre d'agrégats irradiés est plus élevé. Par conséquent, l'accroissement de l'émission X mesurée à 800 nm peut provenir du fait que la quantité de particules émettrices est plus importante.

Compte tenu de ces résultats, nos simulations semblent donc accrédiiter les conclusions exposées par H. Honda [Honda *et al.* 00]. Bien que les données expérimentales disponibles ne nous permettent pas de valider sans ambiguïtés les variations théoriques obtenues en fonction de la longueur d'onde, les différentes concordances mise en évidence pour une impulsion infrarouge nous autorisent à nous fier aux résultats simulés pour d'autres longueurs d'onde. Nous avons par conséquent étudié l'influence de la fréquence laser sur la production de rayonnement X. La figure 5.16 présente l'évolution de l'état de charge moyen final en fonction de la longueur d'onde d'irradiation. La durée à mi-hauteur de l'impulsion et l'éclairement crête sont conservés constants, respectivement à 130 fs et $1,5 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$.

Les résultats obtenus indiquent que les plus courtes longueurs d'onde laser favorisent la formation d'états de charge élevés. Par conséquent, pour une taille d'agrégat, une durée d'impulsion et un éclairement crête donnés, la réduction de la longueur d'onde permet d'accroître l'émission X associée à ces ions multichargés.

Afin de mettre en évidence l'influence de la fréquence laser sur les différents processus, nous avons tracé sur les figures 5.17 les évolutions temporelles des champs électriques interne et externe (fig. 5.17(a)), de la température électronique (fig. 5.17(b)), et de la

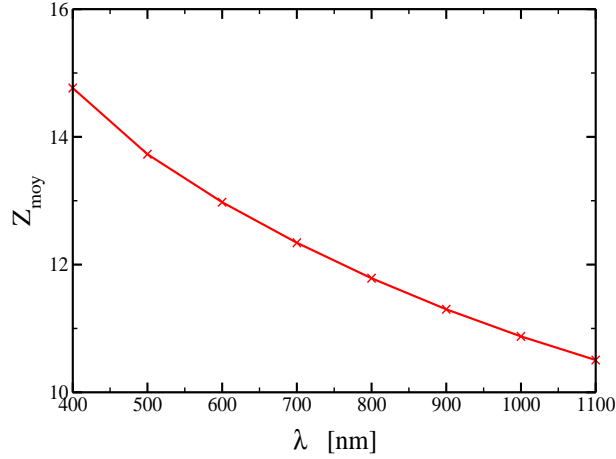


FIG. 5.16 – Variation de l'état de charge moyen final obtenu à l'aide du modèle nano-plasma en fonction de la longueur d'onde d'irradiation pour l'interaction d'un agrégat d'argon ($R \sim 250 \text{ \AA}$) avec une impulsion laser ($\tau_{FWHM}=130 \text{ fs}$; $I_0=1,5 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$).

fréquence de collisions électron-ion (fig. 5.17(c)) pour deux longueurs d'onde différentes. Dans les premiers instants de l'interaction, lorsque la densité électronique est inférieure à $3n_c = 3\epsilon_0 m_e \omega^2 / e^2$, le champ à l'intérieur de l'agrégat est égal au champ laser (fig. 5.17(a)). Puis, dès lors que la densité électronique devient supérieure à cette valeur, le champ laser est écranté et le champ interne est alors fortement réduit. Réduire la longueur d'onde de l'impulsion laser permet d'accroître cette valeur caractéristique ($3n_c=2,1 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ pour $\lambda=400 \text{ nm}$ et $3n_c=5,2 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ pour $\lambda=800 \text{ nm}$). Par conséquent, pour une plus courte longueur d'onde, le champ au sein de l'agrégat reste identique au champ externe durant un intervalle de temps plus élevé, ce qui permet une absorption d'énergie plus importante (fig. 5.17(a)). Suite à cette première phase, la température électronique au sein de l'agrégat est donc plus élevée pour l'impulsion ultraviolette : à $t=-150 \text{ fs}$, elle est de 25 eV pour l'impulsion à 400 nm et de 15 eV pour l'impulsion infrarouge (fig. 5.17(b)).

Puis, tant que la densité électronique reste supérieure à $3n_c$, le champ interne étant nettement réduit, la vitesse d'oscillation des électrons dans le champ est négligeable devant la vitesse thermique électronique. Dans ces conditions, l'expression de la fréquence de collisions électron-ion se réduit à (éq. (2.47)) :

$$\nu_{ei} \simeq \frac{8e^4 \langle Z \rangle^2}{m_e^2 (4\pi\epsilon_0)^2} \frac{1}{3} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{\alpha(n_i)}{v_{th}^3} + \frac{v_{th}}{R} \quad (5.13)$$

où $v_{th} = \sqrt{k_B T_e / m_e}$ est la vitesse liée à l'énergie thermique. Nous avons de plus montré au paragraphe 2.4.3 que le terme v_{th}/R associé aux collisions de surface n'est prépondérant que lorsque $n_e \simeq 3n_c$. Par conséquent, tant que $n_e > 3n_c$ (soit entre $t=-150 \text{ fs}$ et $t=150 \text{ fs}$ pour $\lambda=400 \text{ nm}$), ce terme peut être négligé, la fréquence de collisions électron-ion varie alors en $T_e^{-3/2}$. Ainsi, la température électronique étant plus élevée pour l'impulsion ultraviolette, la fréquence de collisions électron-ion est donc plus faible que dans le cas d'une impulsion infrarouge (fig. 5.17(c)). Or, cette fréquence de collision correspond au

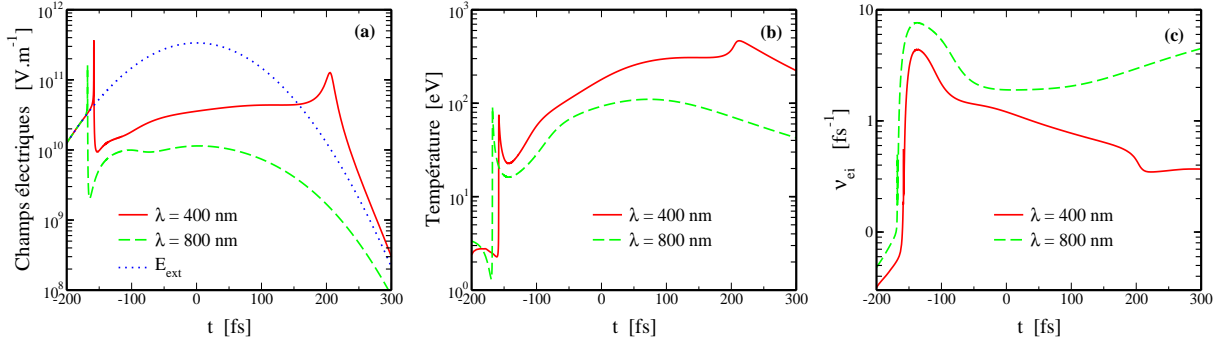


FIG. 5.17 – Évolutions temporelles des amplitudes des champ électriques interne et externe (a), de la température électronique (b), et de la fréquence de collisions électron-ion (c) pour un agrégat d'argon ($R=250 \text{ \AA}$) irradié par une impulsion laser ($\tau_{FWHM}=130 \text{ fs}$; $I_0=1,5 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$). Deux longueurs d'irradiation sont considérées : (—) $\lambda=400 \text{ nm}$ et (- -) $\lambda=800 \text{ nm}$.

terme d'amortissement du champ laser. Une fréquence plus faible induit donc un champ interne plus important pour la longueur d'onde de 400 nm (fig. 5.17(a)). Ce champ plus élevé favorise alors l'absorption d'énergie par bremsstrahlung inverse, permettant ainsi l'accroissement de la température électronique. Par conséquent, tant que $n_e > 3n_c$, les conditions obtenues dans le cas de l'impulsion ultraviolette facilitent l'ionisation vers des états de charge très élevés.

L'augmentation de la température pour $\lambda=400 \text{ nm}$ accentue cependant l'instabilité de l'agrégat. Le rayon du nanoplasma s'accroît ce qui entraîne alors une réduction de la densité électronique. Celle-ci atteint à nouveau la valeur de $3n_c = 2,1 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ à $t=210 \text{ fs}$. Le champ externe est alors encore suffisamment important pour induire une importante absorption d'énergie et conduire à l'explosion finale de l'agrégat. En revanche, pour l'impulsion de 800 nm, la température électronique reste relativement faible, de telle façon que le nanoplasma se dilate lentement. De plus, la valeur critique est plus faible (à 800 nm, $3n_c = 5,2 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$). Le temps nécessaire pour que la densité électronique atteigne cette valeur est donc beaucoup plus important. Lorsque $n_e = 3n_c$, le champ laser est donc trop faible, l'absorption résonante est alors quasiment inexistante. Ainsi, pour $\lambda=800 \text{ nm}$, la température électronique n'atteint pas une valeur suffisante pour peupler les états de charge très élevés.

La réduction de la longueur d'onde d'irradiation engendre donc une absorption d'énergie plus importante. Cette absorption plus efficace permet alors de générer des ions multichargés au sein de l'agrégat. L'émission X associée à ces états de charge élevés est par conséquent favorisée par une longueur d'onde laser plus faible.

5.3.6 Durée de l'émission X

Les résultats expérimentaux obtenus par C. Bonté et coll. ont montré que l'interaction laser-agrégat permet de générer un rayonnement X de très courte durée [Bonté 06]. Pour un agrégat d'argon ($R=275 \text{ \AA}$) irradié par une impulsion laser ($\tau_{FWHM}=300 \text{ fs}$;

$I_0=3,1 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$; $E=3,5 \text{ mJ}$), C. Bonté et coll. mesurent une durée d'émission inférieure à 2 ps pour les raies associées aux ions multichargés. Cette durée mesurée était limitée par la résolution temporelle du dispositif expérimental employé.

D'un point de vue théorique, la dynamique de la raie He_α peut aisément être déterminée à l'aide du modèle nanoplasma. En effet, cette émission résulte de la désexcitation radiative de l'état $2p$ vers l'état $1s$ de l'ion Ar^{16+} . Or, l'inclusion du coefficient d'Einstein $A_{16}^{2p \rightarrow 1s}$ telle que décrite au paragraphe 5.3.1.1 permet de décrire cette transition. L'évolution temporelle de la raie He_α correspond alors au terme $A_{16}^{2p \rightarrow 1s} N_{16,2p}(t)$, où $N_{16,2p}(t)$ est le nombre d'ions Ar^{16+} dans l'état $2p$ à un instant t de l'interaction. Cette évolution, obtenue pour des conditions identiques à celles de C. Bonté et coll.⁴, est représentée sur la figure 5.18.

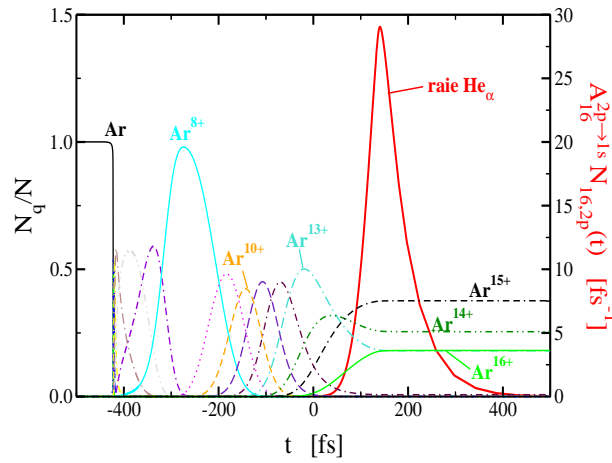


FIG. 5.18 – (—) Dynamique théorique de la raie He_α pour l'interaction d'un agrégat d'argon ($R=275 \text{ \AA}$) irradié par une impulsion laser ($\tau_{FWHM}=300 \text{ fs}$; $I_0=3,1 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$; $E=3,5 \text{ mJ}$). Les évolutions temporelles des populations de chaque état de charge (normalisées au nombre d'atomes dans l'agrégat) sont également représentées. Le temps $t=0 \text{ fs}$ correspond à l'instant où le champ laser est maximal.

La principale information apportée par cette figure est la très courte durée d'émission associée à la raie He_α . Le modèle nanoplasma indique une durée d'émission à mi-hauteur de 80 fs, ce qui affine drastiquement les résultats expérimentaux. Les évolutions temporelles des populations de chaque état de charge montrent que l'émission à 3,14 keV démarre peu après la formation d' Ar^{16+} à $t=0 \text{ fs}$. Ceci indique qu'à cet instant, les électrons sont suffisamment chauds pour exciter ces ions. Il est également intéressant de constater que la population d'ions Ar^{17+} est nulle. L'émission X ne peut par conséquent pas provenir de recombinaisons radiatives, mais uniquement de désexcitation, en accord avec les données expérimentales.

⁴Les données présentées ne sont moyennées ni sur la distribution spatiale de l'intensité, ni sur la distribution en taille des agrégats.

Les résultats obtenus par C. Bonté et coll. ont également montré que les raies provenant d'états de charge élevés (Ar^{q+} , $q=14\dots 16$) sont émises avec un écart temporel relatif inférieur à 1 ps (mesure également limitée par la résolution). Bien que la description employée dans le modèle nanoplasma ne nous permette pas de déterminer l'évolution temporelle des raies d'émission X pour $q \neq 16$, l'extrême rapidité de la dynamique d'ionisation concorde avec ces résultats. Le modèle nanoplasma indique en effet que ces états de charge se peuplent successivement en quelques dizaines de femtosecondes. Or, à $t=0$ fs, la température électronique étant suffisamment élevée pour exciter les ions Ar^{16+} , elle peut également générer des lacunes en couche K pour les ions Ar^{14+} et Ar^{15+} et ainsi induire l'émission X associée à ces états de charge. Les taux de désexcitation radiative de ces ions multichargés étant du même ordre de grandeur (cf. paragraphe 5.3.1.2), les durées des raies d'émission doivent par conséquent être aussi courtes que pour la raie He_α . L'écart temporel entre ces raies proviendrait alors essentiellement du peuplement successif des différents états de charge.

Ainsi, les résultats théoriques confirment l'extrême brièveté de l'émission X. Bien que la prise en compte de la distribution spatiale en intensité et de la distribution en taille des agrégats puisse légèrement allonger la durée d'émission, celle-ci reste inférieure à la centaine de femtosecondes. Nous avons par ailleurs vérifié que, dans les diverses conditions étudiées au cours de ce chapitre, la durée d'émission obtenue est toujours inférieure à la picoseconde. Ces résultats démontrent donc clairement que l'interaction laser-agrégat permet de générer des sources X ultra-brèves.

5.3.7 Vers l'élaboration d'un modèle nanoplasma collisionnel-radiatif auto-consistant : obtention d'un spectre d'émission X résolu en temps et en énergie

De part le potentiel-modèle utilisé pour décrire la structure électronique des ions composant l'agrégat, seule l'excitation et l'ionisation d'un électron de valence peuvent être prises en compte dans le modèle nanoplasma. Or, en dehors de la raie He_α à 3,14 keV, les raies d'émission K_α (transitions $2p \rightarrow 1s$) observées expérimentalement proviennent de lacunes en couche interne. Le rayonnement X correspondant ne peut donc *à priori* pas être déterminé dans le cadre de ce modèle.

Nous pouvons cependant tenter d'aller au-delà de la seule évaluation de la raie He_α pour obtenir une ébauche de spectre d'émission X. Nous avons pour cela inclus dans le modèle nanoplasma un état excité supplémentaire pour les ions Ar^{q+} ($q=9\dots 15$). Cet état correspond à l'excitation d'un électron $1s$ vers un état $2p$, créant ainsi une lacune en couche K. Les sections d'excitation collisionnelles correspondantes ont été obtenues à l'aide des codes de physique atomique développés au laboratoire de Los Alamos (LANL, "Los Alamos National Laboratory") pour l'Agence Internationale à l'Énergie Atomique [IAEA]. Nous avons alors considéré que cet état peut se dépeupler selon deux processus :

- soit un électron de la couche $2p$ se désexcite radiativement et comble la lacune en couche K . Le taux d'émission spontanée correspondant $A_q^{2p \rightarrow 1s}$ est déterminé à partir de la force d'oscillateur $f_{2p \rightarrow 1s}$ de la base de données de l'IAEA [IAEA] et de l'expression (5.3),
- soit l'ion se désexcite par effet Auger. L'énergie libérée lors de la transition $2p \rightarrow 1s$ est transmise à un électron périphérique qui est alors ionisé. Le taux Auger associé à chaque état de charge est obtenu selon C. Bhalla [Bhalla 73].

Les forces d'oscillateur et les taux de transition Auger inclus dans le modèle nanoplasma sont présentés dans le tableau 5.2.

| | $f_{2p \rightarrow 1s}$ | W_{Auger}^q [s ⁻¹] |
|-------------------|-------------------------|----------------------------------|
| Ar ⁹⁺ | 0,309 | $5,02 \times 10^{14}$ |
| Ar ¹⁰⁺ | 0,268 | $3,66 \times 10^{14}$ |
| Ar ¹¹⁺ | 0,223 | $2,40 \times 10^{14}$ |
| Ar ¹²⁺ | 0,173 | $1,30 \times 10^{14}$ |
| Ar ¹³⁺ | 0,119 | $4,66 \times 10^{13}$ |
| Ar ¹⁴⁺ | 0,0618 | $4,65 \times 10^{13}$ |
| Ar ¹⁵⁺ | 0,0638 | $2,43 \times 10^{13}$ |

TAB. 5.2 – Forces d'oscillateur associées à la désexcitation radiative $2p \rightarrow 1s$ et taux Auger associés à la transition $2p \rightarrow 1s$ (avec ionisation d'un électron de valence).

L'inclusion de ces états excités en couche interne dans la dynamique de l'interaction permet alors de déterminer le nombre de photons X émis pour chaque raie K_α de chaque ion Ar^{q+}. La figure 5.19 illustre les résultats obtenus pour un agrégat d'argon ($R=350$ Å) irradié par une impulsion laser ($I_0=1,6 \times 10^{16}$ W.cm⁻²; $\tau_{FWHM}=500$ fs; $E=3$ mJ). Le nombre de photons correspondant aux transitions $2p \rightarrow 1s$ est comparé au spectre mesuré expérimentalement⁵ [Caillaud 04]. Les résultats, normalisés à l'intensité de la raie Li_α, démontrent que le comportement expérimental est convenablement reproduit par les résultats théoriques. Nous observons que l'émission K_α croît en fonction de l'état de charge émetteur, et que cette émission est négligeable pour les ions Ar^{q+} avec $q < 11$.

L'évolution temporelle des populations correspondant à ces conditions expérimentales est représentée sur la figure 5.1. Il est intéressant de constater que bien que la population d'Ar¹⁵⁺ soit plus importante que celle d'Ar¹⁶⁺ (d'un facteur 1,7), l'émission X associée est plus faible. Ceci provient du fait que la section totale d'excitation collisionnelle et que le taux de désexcitation radiative sont légèrement plus importants pour l'Ar¹⁶⁺, favorisant ainsi la raie He_α par rapport à la raie Li_α.

L'inclusion des taux de désexcitation radiatifs $2p \rightarrow 1s$ dans les simulations nous permet également de déterminer la dynamique d'émission des différentes raies. La figure

⁵L'élargissement des raies observé expérimentalement est dû à l'effet Doppler, à l'effet Stark [Dobosz 98] ainsi qu'au grand nombre de sous-états nlj , mais n'est pas pris en compte dans les résultats théoriques.

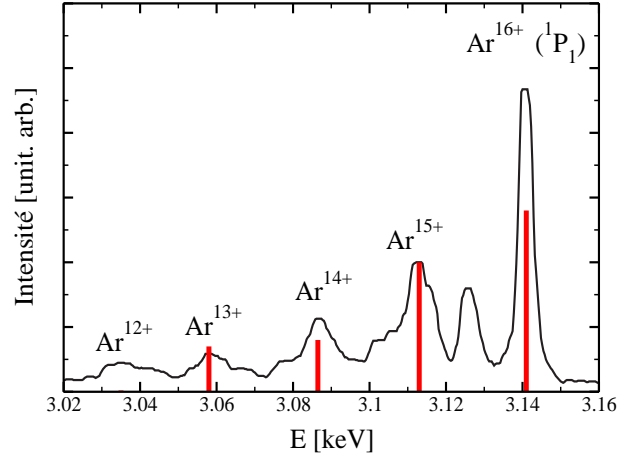


FIG. 5.19 – (—) Spectre expérimental d'émission X obtenu lors de l'interaction d'un agrégat d'argon ($R = 350 \text{ \AA}$) avec une impulsion laser ($I_0 = 1,6 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$; $\tau_{FWHM} = 500 \text{ fs}$; $E = 3 \text{ mJ}$; $\lambda = 800 \text{ nm}$) [Caillaud 04]. (|) Nombre de photons émis pour chaque raie K_α associée à chaque état de charge Ar^{q+} , normalisé au nombre de photons émis pour la raie lithuimoïde Ar^{15+} ($2p \rightarrow 1s$).

5.20 présente l'évolution temporelle des raies K_α dans le cadre du modèle nanoplasma. Les conditions de l'interaction sont identiques à celles de la figure 5.19. Le temps $t=0 \text{ fs}$ correspond au maximum de la raie He_α . Les résultats obtenus montrent que les raies provenant d'états de charge élevés sont émises avec un écart temporel inférieur à 100 fs. En effet, afin que l'émission X soit effective, il est tout d'abord nécessaire que les ions soient excités en couche interne. Ainsi, bien que les différents états de charge se peuplent progressivement, l'émission de photons X ne s'effectue que durant l'intervalle de temps pendant lequel la température électronique est suffisamment élevée pour induire ces lacunes en couche K. La durée de l'émission X correspond par conséquent à ce laps de temps, et les raies émises proviennent alors des états de charge peuplés durant cet intervalle.

Nous avons également effectué des simulations dans des conditions identiques au spectre expérimental résolu en temps et en énergie et présenté au chapitre 1 [Bonté 06]. La dynamique des raies d'émission K_α obtenue théoriquement est présentée sur la figure 5.21. Nous observons de nouveau que la durée d'émission totale est de quelques centaines de femtosecondes. Ces résultats confirment par conséquent les données obtenues par C. Bonté et coll., qui ont mesuré un écart temporel entre les raies inférieur à 1 ps (ce résultat étant limité par la résolution de l'appareil). De plus, la durée d'émission à mi-hauteur de chacune des raies est inférieure à 100 fs, ce qui est également cohérent avec les durées d'émission mesurées par C. Bonté et coll. (inférieures à 2 ps, valeurs limitées par la résolution de l'appareil).

Il est cependant intéressant de constater que, contrairement aux résultats expérimentaux pour lesquels la raie He_α est la plus intense, le spectre théorique obtenu indique une émission maximale pour la raie Li_α . L'évolution temporelle des populations des différents états de charge dans ces mêmes conditions est indiquée sur la figure 5.18. Nous obser-

Intensite [unit. arb.]

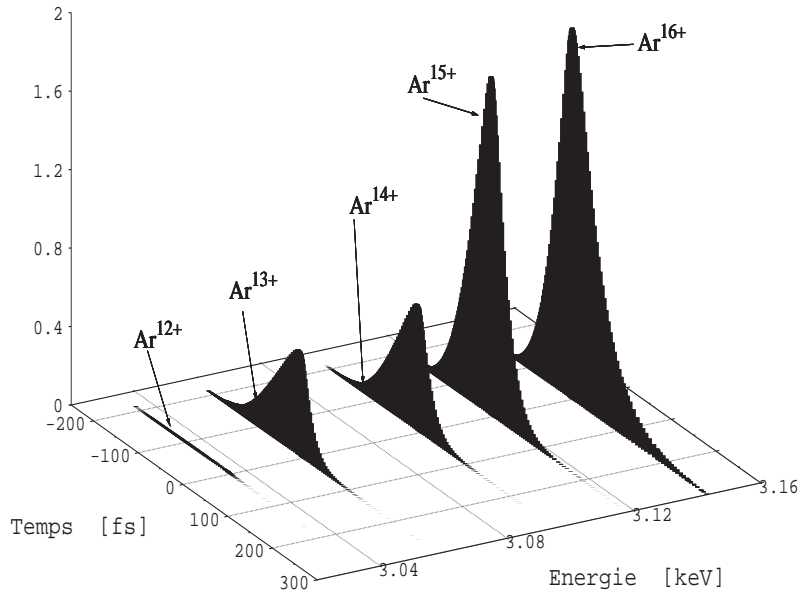


FIG. 5.20 – *Dynamique temporelle des différentes raies d'émission K_α obtenues à l'aide du modèle nanoplasma pour des conditions identiques à celles de la figure 5.19.*

vons que le rapport entre les populations d' Ar^{15+} et d' Ar^{16+} est de 2,1 en faveur des ions lithiumoïdes. Ainsi, contrairement au cas précédent, ce rapport est trop élevé pour que l'émission He_α soit prépondérante par rapport à la raie Li_α .

L'inclusion des taux de désexcitation radiative dans le modèle nanoplasma nous permet ainsi de vérifier que les raies K_α sont émises quasi-simultanément durant un intervalle de temps inférieur à la picoseconde, en accord avec les résultats expérimentaux mesurés. Les spectres d'émission K_α obtenus renforcent par conséquent la crédibilité de la description employée dans le modèle. L'adjonction des taux d'émission dans le modèle nanoplasma nous permet alors d'effectuer un premier pas vers l'élaboration d'un modèle collisionnel-radiatif auto-consistant, qui à terme, permettra de guider les futures expériences.

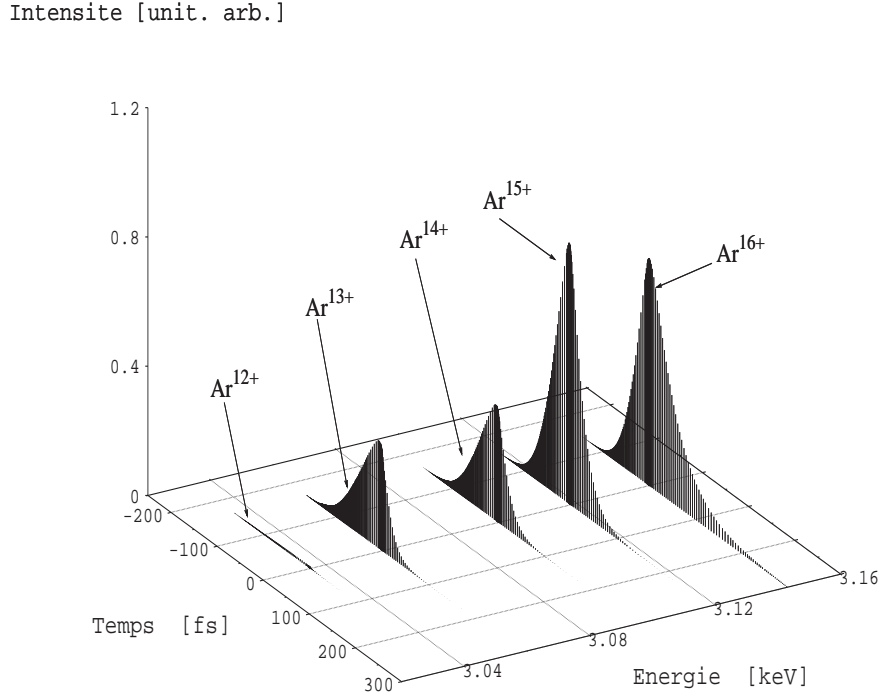


FIG. 5.21 – *Dynamique temporelle des différentes raies d'émission K_α obtenues à l'aide du modèle nanoplasma pour un agrégat d'argon ($R=275 \text{ \AA}$) irradié par une impulsion laser ($I_0=3,1 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$; $\tau_{FWHM}=300 \text{ fs}$; $E=3,5 \text{ mJ}$; $\lambda=800 \text{ nm}$).*

5.4 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons montré que l'inclusion d'états excités intermédiaires nous permet de reproduire les états de charge très élevés observés expérimentalement. En revanche, bien que les phénomènes d'écran modifient les différentes interactions électrostatiques prises en compte dans le modèle, l'inclusion de ces effets dans les simulations ne contribue pas à accentuer la formation de ces ions multichargés. Nous n'avons par conséquent pas pris en compte l'influence des phénomènes d'écran dans les résultats présentés.

L'étude de l'évolution de l'émission X (et plus particulièrement de la raie He_α) en fonction des différents paramètres expérimentaux (durée d'impulsion, éclairement crête, longueur d'onde, taille des agrégats) nous a permis de reproduire les variations mises en évidence expérimentalement. Nous avons ensuite inclus les taux d'excitation en couche interne, les taux de désexcitation radiative et les taux Auger pour les ions multichargés Ar^{q+} ($q = 9 \dots 15$), afin d'obtenir un spectre d'émission X résolu temporellement. Nous avons alors obtenu une durée d'émission X de quelques centaines de femtosecondes qui concorde également avec les valeurs mesurées. Compte tenu du bon accord théorie/expérience obtenu, le modèle nanoplasma amélioré s'avère par conséquent être adapté à la description de l'interaction laser-agrégat.

Conclusion et perspectives

Les différentes études menées sur l'interaction entre un agrégat de gaz rare et une impulsion laser brève et intense ont montré que ce type d'interaction constitue une voie prometteuse quant à la génération de photons ou de particules chargées très énergétiques. Au cours de ce travail de thèse, nous nous sommes plus particulièrement attachés à étudier l'émission X issue de l'irradiation d'agrégats d'argon. Les résultats expérimentaux correspondants démontrent clairement que ce type d'interaction permet de générer des sources X très énergétiques (multi-keV) et ultra-brèves (sub-picoseconde).

Afin de comprendre comment sont produits les importants états de charge observés, nous avons utilisé le modèle nanoplasma initialement développé par T. Ditmire et coll. [Ditmire *et al.* 96]. Nous avons cependant montré que le modèle en l'état ne permettait pas de reproduire les différents résultats expérimentaux. Nous avons alors exploré deux voies susceptibles d'améliorer ce modèle.

Dans un premier temps, nous nous sommes attachés à mieux décrire la dynamique d'ionisation collisionnelle en introduisant des processus d'ionisation d'ordres supérieurs via l'inclusion d'états excités intermédiaires $Ar^{q+} + e^- \rightarrow Ar^{q+*} + e^- \rightarrow \dots \rightarrow Ar^{(q+1)+} + 2e^-$. Nous avons alors montré que l'absence de ces chemins d'ionisation indirects est la principale cause de l'échec du modèle nanoplasma originel, sachant que les taux collisionnels d'excitation peuvent être supérieurs aux taux d'ionisation. Afin d'évaluer ces taux à chaque instant de l'interaction, nous avons utilisé une approche potentiel-modèle pour décrire la structure électronique des atomes et ions composant l'agrégat. Les sections totales d'excitation et d'ionisation collisionnelles ont alors été évaluées dans le cadre du modèle à électrons indépendants, suivant le formalisme des ondes distordues (ou des ondes planes quand celui-ci est valide). De plus, afin d'inclure ces états excités dans le modèle, et compte tenu de la structure complexe des ions, nous avons regroupé les configurations électroniques excitées par couche d'états suivant le principe des schémas collisionnels-radiatifs communément utilisés en physique des plasmas.

Dans un second temps, nous avons étudié l'influence des phénomènes d'écran induits par la densité d'électrons libres sur la dynamique de l'interaction laser-agrégat. Bien que ces effets d'écran modifient les interactions électrostatiques entre les particules chargées

composant le nanoplasma, nous avons montré que les perturbations induites par le gaz d'électrons libres ne permettent pas d'accroître les populations d'ions multichargés obtenues en fin d'interaction. Or, le rayonnement X mesuré provenant de ces états de charge élevés, nous avons par conséquent choisi de ne pas inclure ces effets dans le modèle nanoplasma. L'étude préliminaire effectuée nous a cependant permis d'obtenir différents résultats fondamentaux concernant l'influence de la densité d'électrons libres sur l'interaction électron-ion. Étant données les fortes variations de densité et de température électroniques explorées au cours de l'interaction, il a été nécessaire d'utiliser un modèle d'écran sophistiqué. Ce potentiel d'écran nous a permis de mettre en évidence les domaines de validité de différents modèles couramment utilisés en physique des plasmas (Debye-Hückel, Thomas-Fermi linéarisé) ainsi que la limite d'apparition des oscillations de Friedel à faible température. À l'aide de ce potentiel, nous avons alors montré que les phénomènes d'écran réduisent systématiquement les potentiels d'ionisation quel que soit l'ion et le niveau d'énergie considérés. Nous avons également montré que les sections efficaces totales d'ionisation collisionnelle augmentent avec les effets d'écran alors que les sections totales d'excitation sont généralement réduites par rapport aux données non écrantées.

Suite à l'amélioration du modèle nanoplasma par la prise en compte des processus d'ionisation collisionnels indirects, nous avons pu reproduire les états de charge très élevés observés expérimentalement. Les résultats obtenus ont clairement démontré l'influence prépondérante des collisions dans la dynamique de l'interaction laser-agrégat. Nous avons par ailleurs montré que cette dynamique est gouvernée par un ensemble de variables interdépendantes qui conduisent à la formation d'un plasma chaud et dense générant ainsi les ions multichargés dont l'émission X est issue. Nous avons de plus mené une étude de la variation de l'émission X (et plus particulièrement de la raie He_α) en fonction des différents paramètres expérimentaux (durée d'impulsion, taille d'agregat, éclairement crête, longueur d'onde d'irradiation). Les diverses concordances théorie/expérience obtenues nous ont alors assuré de la bonne modélisation de la réponse de l'agregat à l'excitation laser. Nous avons donc pu extrapoler ces résultats et mettre en évidence les conditions favorisant l'émission de rayonnement X. Enfin, l'inclusion d'un état excité supplémentaire en couche interne pour les ions multichargés nous a permis d'obtenir un spectre d'émission X résolu en temps et en énergie. Nous avons alors de nouveau reproduit les résultats expérimentaux concernant la durée d'émission X, confirmant ainsi que l'interaction laser-agregat permet de créer une source X ultra-brève. Le modèle nanoplasma ainsi amélioré nous a conduit à l'élaboration d'un modèle collisionnel-radiatif constituant une base prédictive solide pour de futures expériences.

Nous avons cependant relevé certaines conditions pour lesquelles le modèle nanoplasma n'est pas en mesure de reproduire les données expérimentales. À faible durée d'impulsion, la température électronique atteinte dans les simulations est trop faible pour provoquer des transitions électroniques multi-keV. Or, les résultats expérimentaux indiquent une émission de rayonnement X pour des durées de quelques dizaines de femtosecondes [Prigent 04]. Ceci indique par conséquent que le modèle nanoplasma est incomplet et que des mo-

difications additionnelles sont nécessaires.

Le modèle nanoplasma suppose que la distribution énergétique des électrons peut être représentée par une fonction de distribution maxwellienne. Ceci signifie que les collisions électron-électron doivent être suffisamment fréquentes pour assurer la thermalisation des électrons à une température T_e donnée. Or, nous avons vu au chapitre 2 que pour un plasma dont la densité électronique est de 10^{23} cm^{-3} et la température électronique est de 500 eV, la fréquence de collision électron-électron est de l'ordre de $0,1 \text{ fs}^{-1}$. Compte tenu de la dynamique ultra-rapide de l'interaction laser-agrégat (celui-ci explose en quelques centaines de femtosecondes), cette fréquence de collision apparaît par conséquent trop faible pour garantir la thermalisation du gaz d'électrons. Il semble donc nécessaire d'aller au delà de la fonction de distribution maxwellienne. Cette hypothèse est par ailleurs renforcée par les simulations PIC effectuées par Y. Fukuda et coll., qui obtiennent une distribution électronique à deux composantes avec une première structure à basse énergie (de quelques centaines d'eV) et une seconde à plus haute énergie (de quelques keV) [Fukuda *et al.* 06]. La prise en compte de cette population d'électrons chauds pourrait alors nous permettre d'induire les transitions électroniques multi-keV associées à l'émission de rayonnement X.

Afin de prendre en compte une distribution électronique plus réaliste dans le modèle nanoplasma, il est alors nécessaire de déterminer l'énergie des électrons à chaque instant de l'interaction. Considérons, à un instant t , $N_e(t)$ électrons distribués selon une fonction $f(v_e; t)$ et discrétisons cette fonction. À chaque énergie E_i correspond alors une population d'électrons $N_{E_i}(t)$. Chacune de ces populations est alors soumise aux différents processus atomiques intervenant au cours de l'interaction. Prenons par exemple un processus d'excitation collisionnelle d'un ion de charge q pour une énergie de transition de ΔE . Connaissant la section efficace totale $\sigma_{q,\Delta E}(E_i)$ associée à cette transition, nous pouvons aisément déterminer le taux d'excitation collisionnelle pour une population d'électrons d'énergie E_i :

$$W_{N_{E_i}}^{q,\Delta E} = \frac{N_{E_i}(t)}{V} \sigma_{q,\Delta E}(E_i) v_i$$

où $v_i = \sqrt{2E_i/m_e}$ est la vitesse électronique associée à l'énergie E_i et V est le volume de l'agréat. L'évolution temporelle de la population électronique $N_{E_i}(t)$ est donc régie par l'équation :

$$\frac{\partial N_{E_i}(t)}{\partial t} = -W_{N_{E_i}}^{q,\Delta E} N_q(t) N_{E_i}(t)$$

Cette réduction du nombre d'électrons d'énergie E_i s'accompagne par conséquent d'un accroissement du nombre d'électrons $N_{E'_i}(t)$ d'énergie $E'_i = E_i - \Delta E$ selon :

$$\frac{\partial N_{E'_i}(t)}{\partial t} = +W_{N_{E_i}}^{q,\Delta E} N_q(t) N_{E_i}(t)$$

De même, considérons le processus d'ionisation collisionnelle. Suivant l'approximation DWBA décrite au chapitre 3, nous pouvons aisément déterminer les sections efficaces

différentielles en énergie $\sigma_{q,a}(E_i, E_e)$, ce qui nous donne, pour une énergie incidente E_i , la probabilité pour un électron d'être éjecté avec une énergie E_e . Le taux d'ionisation d'un ion (dans un état a d'énergie E_a) par une population d'électrons d'énergie E_i , et induisant un électron éjecté d'énergie E_e est alors :

$$W_{N_{E_i}}^{q,a} [s^{-1}] = \frac{N_{E_i}(t)}{V} \sigma_{q,a}(E_i, E_e) v_i$$

Ce taux d'ionisation intervient alors également dans l'équation d'évolution de la population $N_{E_i}(t)$. Ce processus contribue de plus à accroître les populations d'électrons d'énergie E_e et d'énergie $E_f = E_i - E_a - E_e$.

Il est en outre possible de déterminer l'énergie des électrons ionisés par effet de champ [Burnett *et al.* 89]. Ainsi, pour chacune des populations d'électrons $N_{E_i}(t)$ d'énergie E_i , nous pouvons définir une équation d'évolution. Cette équation doit prendre en compte les différents processus collisionnels, mais également les divers termes de gain ou de perte d'énergie décrits au cours du chapitre 2. L'évolution de chaque population d'électrons permet alors de déterminer la fonction de distribution électronique du nanoplasma à chaque instant de l'interaction.

La discrétisation de la fonction de distribution énergétique des électrons conduit par conséquent à étudier l'évolution de i_{max} populations d'électrons différentes (i_{max} étant le nombre de valeurs utilisées pour discrétiser la fonction de distribution) et à étudier l'influence de l'ensemble de ces populations sur l'évolution des différents paramètres du nanoplasma (populations de chaque état de charge, rayon et charge de l'agrégat).

Les résultats présentés au paragraphe 5.3.2 (p.171) ont montré que pour une durée d'impulsion de 200 fs, la température électronique maximale atteinte au cours de la simulation est de quelques centaines d'eV. Ainsi, bien que la dynamique d'ionisation permette de peupler les états de charge jusqu'à l'Ar¹⁶⁺, la température électronique est trop faible pour exciter efficacement ces ions multichargés et générer ainsi des photons X. Ceci indique par conséquent que le bremsstrahlung inverse est insuffisant pour expliquer les résultats expérimentaux, et qu'il existe probablement des mécanismes de chauffage supplémentaires susceptibles de produire des électrons énergétiques plus rapidement que dans le modèle actuel.

Parmi les différents processus envisagés, C. Deiss et coll. ont montré que la succession de rétrodiffusions élastiques d'électrons en phase avec le champ laser oscillant permet de générer une population électronique suffisamment chaude pour induire des transitions multi-keV [Deiss *et al.* 06]. Ces auteurs ont de plus mis en évidence l'importance du coeur ionique pour l'évaluation des sections efficaces collisionnelles. La prise en compte d'un potentiel d'interaction électron incident-coeur ionique réaliste permet en effet d'accroître la production d'émission X d'un facteur 4 à 7.

Afin d'inclure ce mécanisme dans le modèle nanoplasma, nous devons tout d'abord calculer les sections efficaces différentielles en angle $d\sigma_{el}(q, v, \theta)/d\theta$ de diffusion élastique

pour chaque ion Ar^{q+} . Ceci peut être effectué suivant les approximations DWBA et PWBA décrites au chapitre 3. Il est par ailleurs intéressant de remarquer que l'influence du coeur ionique sur ces sections est intrinsèquement pris en compte par le potentiel-modèle utilisé dans nos simulations pour décrire les ions ou atomes de l'agrégat. À partir de ces sections efficaces, nous pouvons alors déterminer un taux de collision élastique à chaque instant de l'interaction. En considérant un ion de charge q , ce taux s'écrit pour une population d'électrons $N_{E_e}(t)$ d'énergie $E_e = m_e v_e^2/2$:

$$W_{N_{E_e}}^{q,el}(t) = \frac{N_{E_e}(t)}{V} 2\pi \int_0^\pi d\theta \frac{d\sigma_{el}(q, v_e, \theta)}{d\theta} v_e$$

où V désigne le volume de l'agrégat. Afin de prendre en compte le processus introduit par C. Deiss, il convient alors de renoncer à l'approximation quasi-statique et d'envisager chaque situation possible. Considérons un instant t_0 où le champ laser oscillant s'inverse. Sachant que la distribution de vitesses électroniques est considérée comme isotrope, nous pouvons supposer que la vitesse thermique de $N_{E_e}(t)/2$ électrons est dirigée dans le même sens que le champ laser avant inversion (que nous supposons polarisé linéairement selon l'axe z positif). Dans ces conditions, nous pouvons définir le taux de transition élastique de rétrodiffusion associé à ces électrons à l'instant t_0 :

$$W_{N_{E_e}}^{q,rétro.}(t_0) = \frac{N_{E_e}(t_0)}{2V} 2\pi \int_{\pi/2}^\pi d\theta \frac{d\sigma_{el}(q, v_e, \theta)}{d\theta} v_e$$

Si ces électrons sont rétrodiffusés élastiquement à l'instant t_0 , ils seront alors considérablement accélérés sous l'effet combiné de $\mathbf{v}_e \cos \theta$ et $\mathbf{v}_{osc}(t)$ qui sont alors colinéaires et de même sens jusqu'à l'inversion de champ suivante (soit pour $t_0 < t < t_0 + \pi/\omega$; où ω est la pulsation laser).

Cette même population d'électrons peut également être diffusé vers l'avant. Nous pouvons alors définir le taux de transition élastique de diffusion vers l'avant associé à ces électrons à l'instant t_0 :

$$W_{N_{E_e}}^{q,avant}(t_0) = \frac{N_{E_e}(t_0)}{2V} 2\pi \int_0^{\pi/2} d\theta \frac{d\sigma_{el}(q, v_e, \theta)}{d\theta} v_e$$

Si ces électrons sont diffusés vers l'avant élastiquement à l'instant t_0 , leur vitesse thermique est alors opposée à la vitesse d'oscillation dans le champ laser pendant la demi-période suivante $[t_0; t_0 + \pi/\omega]$. La variation d'énergie est alors amoindrie sachant que $\mathbf{v}_e \cdot \mathbf{v}_{osc}(t) < 0$ durant cet intervalle de temps.

Nous devons de même considérer la population d'électrons $N_{E_e}(t)/2$ dont la vitesse thermique est dans le sens opposé au champ avant l'inversion. L'évaluation de la variation d'énergie de ces électrons due aux collisions élastiques se fait alors suivant le même principe que décrit précédemment.

Ainsi, certains électrons peuvent être successivement accélérés à chaque oscillation du champ électrique et rapidement acquérir une énergie cinétique suffisante pour provoquer des transitions électroniques multi-keV. Nous pouvons alors supposer que la génération de ces électrons chauds associée à une meilleure description de la fonction de distribution

électronique nous permettra d'améliorer le modèle nanoplasma et de reproduire les résultats expérimentaux manquants.

Il pourrait paraître également intéressant d'aller au delà de la distribution uniforme des électrons en introduisant une dépendance radiale des paramètres du modèle. H. Milchberg et coll. ont montré que dans ces conditions l'absorption d'énergie résonante est étalée sur une échelle de temps plus importante et pour une densité électronique égale à la densité critique n_c [Milchberg *et al.* 01]. Cependant, en développant cette approche et en l'associant à la discrétisation de la distribution électronique, le modèle nanoplasma s'apparenterait alors de plus en plus aux simulations particulières développées par ailleurs [Fukuda *et al.* 06].

De plus, il serait utile d'étendre le modèle nanoplasma à l'étude d'agrégats composés d'un gaz d'élément atomique plus lourd tel que le krypton ou le xénon. En dehors de la validation du modèle à l'aide des nombreux résultats expérimentaux disponibles pour ces éléments, ceci pourrait permettre de déterminer les conditions optimales à l'obtention d'un "spectre plat" (provenant de l'émission de raies de couches moins profondes, comme les couches M du xénon) utilisable par exemple pour des expériences de spectroscopie d'absorption ultra-rapide résolues en temps.

Annexe \mathcal{A}

Description de la structure électronique atomique : Expression du potentiel modèle

Pour déterminer l'expression du potentiel-modèle utilisé, nous considérons un atome (ou un ion) comme étant "effectivement" monoélectronique, c'est à dire que seul un électron de la couche externe est actif, les p autres électrons des couches internes étant considérés (avec le noyau de charge Z) comme un coeur ionique gelé. L'énergie potentielle $V(r)$ de l'électron actif interagissant avec le coeur ionique doit satisfaire aux conditions :

$$\left\{ \begin{array}{l} \lim_{r \rightarrow 0} V(r) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r} \\ \lim_{r \rightarrow \infty} V(r) = -\frac{(Z-p)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \end{array} \right. \quad (\text{A.1a})$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \lim_{r \rightarrow 0} V(r) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r} \\ \lim_{r \rightarrow \infty} V(r) = -\frac{(Z-p)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \end{array} \right. \quad (\text{A.1b})$$

La densité volumique de charge $D(\mathbf{r})$ a une symétrie sphérique :

$$D(\mathbf{r}) = D_r(r)D_\Omega(\Omega) \quad (\text{A.2})$$

Par souci de simplicité, on considère de plus une distribution de charges isotrope pour laquelle $D_\Omega(\Omega) = (4\pi)^{-1}$. La densité de charge volumique d'une sous-couche de nombre quantique orbital l comportant q électrons peut alors se mettre sous la forme :

$$D(\mathbf{r}) = -\frac{1}{4\pi}D_r(r) = -\frac{q}{4\pi}|R_{nl}(r)|^2 \quad (\text{A.3})$$

où $R_{nl}(r)$ est la partie radiale de la fonction d'onde d'un électron sur la couche nl . Pour un atome hydrogénoïde [Messiah 59] (p. 411), celle-ci se met sous la forme :

$$R_{nl}(r) = \left(\frac{Z_{eff}}{a_0}\right)^{3/2} \frac{2}{n^2} \sqrt{\frac{(n-l-1)!}{[(n+l)!]^3}} \left(\frac{2rZ_{eff}}{na_0}\right)^l \exp\left(\frac{-rZ_{eff}}{na_0}\right) L_{n-l-1}^{2l+1}\left(\frac{2rZ_{eff}}{na_0}\right) \quad (\text{A.4})$$

Les électrons de coeur étant très liés au noyau (par rapport à l'électron de valence), on suppose que les structures nodales de leurs fonctions d'onde (très concentrées autour du noyau) importent peu. Par conséquent, en ne considérant pas de noeuds ($l = n - 1$), la densité radiale de charge $D_r(r)$ prend la forme¹ :

$$D_r(r) = -q \left[\frac{2Z_{eff}}{a_0(l+1)}\right]^{2l+3} \frac{r^{2l}}{(2l+2)!} \exp\left(-\frac{2Z_{eff}r}{a_0(l+1)}\right) \quad (\text{A.5})$$

où a_0 est le rayon de l'orbite de Bohr et Z_{eff} est la charge effective ressentie par l'électron de valence, soit la charge nucléaire réelle diminuée par l'écran dû aux électrons de coeur. En posant $\alpha_l = \frac{2Z_{eff}}{a_0(l+1)}$, on a pour la densité radiale :

$$D_r(r) = -q \frac{\alpha_l^{2l+3}}{(2l+2)!} e^{-\alpha_l r} r^{2l} \quad (\text{A.6})$$

L'équation de Poisson reliant le potentiel $V(r)$ cherché à la densité volumique de charge s'écrit :

$$\nabla_{\mathbf{r}}^2 V(r) = -\frac{D(\mathbf{r})}{\varepsilon_0} \quad (\text{A.7})$$

soit

$$\frac{\partial^2}{\partial r^2} (rV(r)) = -r \frac{D_r(r)}{4\pi\varepsilon_0} \quad (\text{A.8})$$

Étant données les conditions aux limites (A.1), on cherche $V(r)$ sous la forme :

$$V(r) = -\frac{(Z-q)e^2}{4\pi\varepsilon_0 r} - \frac{qe^2}{4\pi\varepsilon_0 r} e^{-\alpha_l r} f_l(\alpha_l, r) \quad (\text{A.9})$$

où $f_l(\alpha_l, r)$ devra avoir une forme polynômiale afin d'assurer (A.1b). En reportant (A.9) dans (A.8), on obtient l'équation différentielle pour $f_l(\alpha_l, r)$:

$$\frac{d^2 f_l(\alpha_l, r)}{dr^2} - 2\alpha_l \frac{\partial f_l(\alpha_l, r)}{\partial r} + \alpha_l^2 f_l(\alpha_l, r) = \frac{\alpha_l^{2l+3}}{(2l+2)!} r^{2l+1} \quad (\text{A.10})$$

On cherche une solution à cette équation sous la forme :

$$f_l(\alpha_l, r) = \sum_{k=0}^{2l+1} c_k r^k \quad (\text{A.11})$$

¹On notera que l'on a bien $\int D(\mathbf{r})dr = -q$ sachant que $\int_0^\infty r^2 |R_{nl}(r)|^2 dr = 1$.

Soit, en reportant cette forme dans l'équation (A.10) afin de trouver l'ensemble des coefficients c_k :

$$\sum_{k=0}^{2l+1} [k(k-1)c_k r^{k-2} - 2\alpha_l k c_k r^{k-1} + \alpha_l^2 c_k r^k] = \frac{\alpha_l^{2l+3}}{(2l+2)!} r^{2l+1} \quad (\text{A.12})$$

Cette expression peut être remise sous la forme :

$$\sum_{k=2}^{2l+3} [k(k-1)c_k - 2\alpha_l(k-1)c_{k-1} + \alpha_l^2 c_{k-2}] r^{k-2} = \frac{\alpha_l^{2l+3}}{(2l+2)!} r^{2l+1} \quad (\text{A.13})$$

Les coefficients c_{2l+3} et c_{2l+2} étant nuls, à l'ordre $2l+1$ (soit $k=2l+3$), on obtient :

$$c_{2l+1} = \frac{\alpha_l^{2l+1}}{(2l+2)!} \quad (\text{A.14})$$

Puis, à tout les ordres suivants ($k < 2l+3$), on doit avoir :

$$k(k-1)c_k - 2\alpha_l(k-1)c_{k-1} + \alpha_l^2 c_{k-2} = 0 \quad (\text{A.15})$$

d'où :

$$c_{k-2} = \frac{-k(k-1)}{\alpha_l^2} c_k + \frac{2(k-1)}{\alpha_l} c_{k-1} \quad (\text{A.16})$$

On obtient ainsi :

$$\begin{aligned} \text{à l'ordre } 2l \ (k=2l+2) : & \quad c_{2l} = \frac{2(2l+1)}{(2l+2)!} \alpha_l^{2l} \\ \text{à l'ordre } 2l-1 \ (k=2l+1) : & \quad c_{2l-1} = \frac{6l(2l+1)}{(2l+2)!} \alpha_l^{2l-1} \\ \text{à l'ordre } 2l-2 \ (k=2l) : & \quad c_{2l-2} = \frac{8l(2l+1)(2l-1)}{(2l+2)!} \alpha_l^{2l-2} \\ \text{à l'ordre } 2l-3 \ (k=2l-1) : & \quad c_{2l-3} = \frac{10l(2l+1)(2l-1)(2l-2)}{(2l+2)!} \alpha_l^{2l-3} \\ \text{à l'ordre } 2l-4 \ (k=2l-2) : & \quad c_{2l-4} = \frac{12l(2l+1)(2l-1)(2l-2)(2l-3)}{(2l+2)!} \alpha_l^{2l-4} \\ & \quad \dots \end{aligned}$$

soit de façon générale :

$$c_k = \frac{2(2l+2-k)l(2l+1)(2l-1)!}{(2l+2)! k!} \alpha_l^k = \frac{(2l+2-k)\alpha_l^k}{(2l+2)k!} = \left(1 - \frac{k}{2l+2}\right) \frac{\alpha_l^k}{k!} \quad (\text{A.17})$$

et donc pour $f_l(\alpha_l, r)$, selon (A.11) :

$$f_l(\alpha_l, r) = \sum_{k=0}^{2l+1} \left(1 - \frac{k}{2l+2}\right) \frac{\alpha_l^k r^k}{k!} \quad (\text{A.18})$$

et pour le potentiel $V(r)$, selon l'équation (A.9), on obtient :

$$V(r) = -\frac{(Z-q)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \frac{qe^2}{4\pi\epsilon_0 r} e^{-\alpha_l r} \sum_{k=0}^{2l+1} \left(1 - \frac{k}{2l+2}\right) \frac{\alpha_l^k r^k}{k!} \quad (\text{A.19})$$

avec $\alpha_l = 2Z_{eff}/a_0(l+1)$, inconnue à déterminer, dépendant explicitement du nombre quantique orbital l de la sous-couche considérée.

L'expression (A.19) a été obtenue en considérant une sous-couche fermée comportant q électrons. Considérons l'exemple d'une couche fermée K ($\equiv 1s^2$), le potentiel-modèle $V(r)$ vaut :

$$V_K(r) = -\frac{(Z-2)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \frac{2e^2}{4\pi\epsilon_0 r} e^{-\alpha_{1s} r} \left(1 + \frac{\alpha_{1s}}{2}\right) r \quad (\text{A.20})$$

L'hamiltonien relatif au système atomique (noyau de charge Z + sous-couche fermée $1s^2$ + un électron de valence) s'écrit :

$$H_0 = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\mathbf{r}}^2 - \frac{(Z-2)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \frac{2e^2}{4\pi\epsilon_0 r} e^{-\alpha_{1s} r} \left(1 + \frac{\alpha_{1s}}{2}\right) r \quad (\text{A.21})$$

Le paramètre α_{1s} est alors déterminé variationnellement : l'hamiltonien est diagonalisé dans une base d'orbitales de Slater (cf. Annexe B) à plusieurs reprises en faisant varier α_{1s} jusqu'à obtenir une bonne représentation des états liés relatifs à l'électron de valence (dont on connaît les énergies expérimentales).

Si on considère un système plus complexe qui se compose d'une couche n fermée elle-même composée de plusieurs sous-couches nl fermées (Ex : couche L $\equiv 2s^2 2p^6$, l'électron de valence étant sur une sous-couche externe). Le potentiel d'interaction entre l'électron actif et cette couche interne est alors simplement déterminé en sommant les contributions à l'écrantage de chaque sous-couche. Il est cependant nécessaire de pondérer la somme par la multiplicité $g = 2l + 1$ de chaque sous-couche. Pour une couche n de nombre quantique orbital maximal L_{max} , on obtient :

$$V(r) = -\frac{(Z-q)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \frac{qe^2}{4\pi\epsilon_0 r} \mathcal{G}_n(L_{max}, \{\alpha_l\}, r) \quad (\text{A.22})$$

avec

$$\mathcal{G}_n(L_{max}, \{\alpha_l\}, r) = \frac{1}{n^2} \sum_{l=0}^{L_{max}} (2l+1) e^{-\alpha_l r} f_l(\alpha_l, r) \quad (\text{A.23})$$

et

$$f_l(\alpha_l, r) = \sum_{k=0}^{2l+1} \left(1 - \frac{k}{2l+2}\right) \frac{\alpha_l^k r^k}{k!} \quad (\text{A.24})$$

Ainsi, par exemple, pour un électron dans un état $n'l'$ écranté par une couche $n = 2$ ($\equiv 2s^2 2p^6$), on aura :

$$V(r) = -\frac{(Z-8)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \left[2 \left(1 + \frac{\alpha_{2s} r}{2}\right) e^{-\alpha_{2s} r} + 6 \left(1 + \frac{3\alpha_{2p} r}{4} + \frac{(\alpha_{2p} r)^2}{4} + \frac{(\alpha_{2p} r)^3}{24}\right) e^{-\alpha_{2p} r} \right] \quad (\text{A.25})$$

Finalement, le potentiel décrivant un coeur ionique composé de N_s couches fermées comportant p_s électrons et de N_t sous-couches fermées comportant p_t électrons (ces N_t sous-couches n'appartenant pas aux couches N_s) s'écrit :

$$\begin{aligned}
 V(r) = & -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \left[Z - \left(\sum_{s=1}^{N_s} p_s + \sum_{t=1}^{N_t} p_t \right) \right] - \\
 & - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \left[\sum_{s=1}^{N_s} p_s \mathcal{G}_n(L_{s_{max}}, \{\alpha_{l_s}\}, r) + \sum_{t=1}^{N_t} p_t f_{l_t}(\alpha_{l_t}, r) \right]
 \end{aligned} \tag{A.26}$$

Annexe \mathcal{B}

Base d'orbitales de type Slater : Fonctions d'onde liées et niveaux d'énergie

Soit un hamiltonien H_0 tel que :

$$H_0 = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + V(r) \quad (\text{B.1})$$

Les fonctions d'onde et les énergies propres associées à cet hamiltonien sont déterminées à l'aide de l'équation de Schrödinger stationnaire :

$$H|\phi_{E_n l m}\rangle = E_n |\phi_{E_n l m}\rangle \quad (\text{B.2})$$

Pour résoudre cette équation, les fonctions d'onde liées ($E_n < 0$) sont développées sur une base d'orbitales de type Slater (STO, "Even-tempered Slater-Type Orbitals") :

$$\phi_{E_n l m}(\mathbf{r}) = \sum_{j=0}^{j_{max}} C_j^{E_n l} S_j^{(l)}(\mathbf{r}) \quad (\text{B.3})$$

avec

$$S_j^{(l)}(\mathbf{r}) = \mathcal{N}_j r^l e^{-a_j r} Y_l^m(\theta_r, \varphi_r) \quad (\text{B.4})$$

Les paramètres a_j sont définis suivant une loi géométrique $a_j = a_0 b^j$ et peuvent être différents selon la symétrie orbitale l considérée. En projetant l'équation de Schrödinger (B.2) sur $\phi_{E_n l m}(\mathbf{r})$, on obtient l'équation séculaire suivante :

$$\sum_{k=0}^{k_{max}} \sum_{j=0}^{j_{max}} C_k^{E_n l} (H_{jk} - S_{jk} E_n) C_j^{E_n l} = 0 \quad (\text{B.5})$$

où

$$H_{jk} = \langle S_k | H_0 | S_j \rangle \quad (\text{B.6a})$$

$$S_{jk} = \langle S_k | S_j \rangle \quad (\text{B.6b})$$

La résolution numérique de cette équation permet de déterminer les coefficients C_j^{Enl} et ainsi d'obtenir les fonctions et énergies propres de l'hamiltonien H_0 . La base de STO est par conséquent définie par les paramètres $\{a_0; b; l_{max}\}_l$ associés à chaque moment angulaire $l = 0, \dots, l_{max}$ et par l_{max} le moment angulaire maximum introduit. Ces paramètres sont déterminés variationnellement jusqu'à obtenir la précision souhaitée pour les énergies propres des états liés considérés.

En pratique, les éléments de matrice S_{jk} sont analytiques. En effet, ces éléments se réduisent à des intégrales du type :

$$\int_0^\infty dr r^n e^{-ar} = \frac{n!}{a^{n+1}} \quad \text{pour } a > 0 \quad (\text{B.7})$$

Nous avons alors :

$$S_{jk} = \delta_{l_j l_k} \delta_{m_j m_k} \mathcal{N}_j \mathcal{N}_k \frac{(l_j + l_k + 2)!}{(a_j + a_k)^{l_j + l_k + 3}} \quad (\text{B.8})$$

Cette même intégrale permet également de déterminer la norme \mathcal{N}_j des STO afin que ces orbitales soient normalisées à l'unité :

$$\mathcal{N}_j = \frac{(2a_j)^{l_j + 3/2}}{\sqrt{(2l_j + 2)!}} \quad (\text{B.9})$$

Par ailleurs, il est intéressant de remarquer que dans le cas du potentiel-modèle décrit au chapitre 3 (paragraphe 3.1), ainsi que dans le cas de certains potentiels analytiques (du type Debye-Hückel, Thomas-Fermi ...), les éléments de matrice H_{jk} sont analytiques. Par exemple, considérons le cas du potentiel-modèle utilisé pour décrire les ions (ou atomes) d'argon :

$$\begin{aligned} V_{Ar^{q+}}(r) &= -\frac{(Z - N_c)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \sum_{i=1}^3 \frac{n_{is}e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \left(1 + \frac{\alpha_{is}}{2}r\right) e^{-\alpha_{is}r} - \\ &- \sum_{i=2}^3 \frac{n_{ip}e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \left(1 + \frac{3\alpha_{ip}}{4}r + \frac{\alpha_{ip}^2}{4}r^2 + \frac{\alpha_{ip}^3}{24}r^3\right) e^{-\alpha_{ip}r} \end{aligned} \quad (\text{B.10})$$

Dans ce cas, l'élément de matrice H_{jk} s'écrit :

$$H_{jk} = \langle S_k | \frac{-\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\mathbf{r}}^2 | S_j \rangle + \langle S_k | V_{Ar^{q+}}(r) | S_j \rangle \quad (\text{B.11})$$

$$= H_{jk}^{cin} + H_{jk}^{mod} \quad (\text{B.12})$$

En utilisant l'expression (B.7), le couplage induit par l'opérateur d'énergie cinétique vaut alors :

$$H_{jk}^{cin} = \frac{-\hbar^2}{2m_e} \delta_{l_j l_k} \delta_{m_j m_k} \mathcal{N}_j \mathcal{N}_k (l_j + l_k + 1)! \frac{a_j}{(a_j + a_k)^{l_j + l_k + 2}} \left(\frac{a_j}{a_j + a_k} (l_j + l_k + 2) - 2(l_j + 1) \right), \quad (\text{B.13})$$

et le couplage associé au potentiel modèle s'écrit :

$$\begin{aligned}
 H_{jk}^{mod} = & -\delta_{l_j l_k} \delta_{m_j m_k} \mathcal{N}_j \mathcal{N}_k \left[\frac{(Z - N_c) e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{(l_j + l_k + 1)!}{(a_j + a_k)^{l_j + l_k + 2}} + \right. & (B.14) \\
 & + \sum_{i=1}^3 \frac{n_{is} e^2}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{(l_j + l_k + 1)!}{(a_j + a_k + \alpha_{is})^{l_j + l_k + 2}} + \frac{\alpha_{is}}{2} \frac{(l_j + l_k + 2)!}{(a_j + a_k + \alpha_{is})^{l_j + l_k + 3}} \right) + \\
 & + \sum_{i=2}^3 \frac{n_{ip} e^2}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{(l_j + l_k + 1)!}{(a_j + a_k + \alpha_{ip})^{l_j + l_k + 2}} + \frac{3\alpha_{ip}}{4} \frac{(l_j + l_k + 2)!}{(a_j + a_k + \alpha_{ip})^{l_j + l_k + 3}} + \right. \\
 & \left. + \frac{\alpha_{ip}^2}{4} \frac{(l_j + l_k + 3)!}{(a_j + a_k + \alpha_{ip})^{l_j + l_k + 4}} + \frac{\alpha_{ip}^3}{24} \frac{(l_j + l_k + 4)!}{(a_j + a_k + \alpha_{ip})^{l_j + l_k + 5}} \right) \left. \right]
 \end{aligned}$$

Annexe **C**

Détermination des fonctions d'onde non liées : Décomposition en ondes partielles

C.1 Décomposition dans le cas d'une diffusion par un potentiel coulombien modifié

Soit un ion (ou un atome) composé d'un noyau de charge Z et de p électrons liés. Considérons un électron libre incident (d'énergie E) interagissant avec cet ion par l'intermédiaire d'un potentiel central $V(r)$.

Cas d'un potentiel purement coulombien

Dans un premier temps, supposons que les p électrons écrantent le noyau de telle façon que l'électron incident ressent un potentiel coulombien tel que :

$$V_{clb}(r) = -\frac{(Z-p)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \quad (\text{C.1})$$

L'hamiltonien correspondant à cette interaction s'écrit :

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\mathbf{r}}^2 - \frac{(Z-p)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \quad (\text{C.2})$$

Soit $\psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ la fonction d'onde de l'électron libre, fonction propre de l'équation de Schrödinger $H\psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = E\psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ et telle que le vecteur d'onde \mathbf{k} qui lui est associé est connu. Le potentiel étant à symétrie sphérique, le système est complètement symétrique autour de

la direction d'incidence \mathbf{k} , choisie arbitrairement selon la direction \hat{z} . La fonction d'onde $\psi(\mathbf{r})$ peut alors être développée en série de polynômes de Legendre $P_l(\cos \theta)$ qui forment une base complète sur l'intervalle $-1 \leq \cos \theta \leq 1$.

$$\psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \sum_l^{\infty} a_l(k) \frac{w_l(k, r)}{r} P_l(\cos \theta) \quad (\text{C.3})$$

où k représente la norme du vecteur d'onde de l'électron libre non-relativiste telle que $k = \sqrt{2m_e E}/\hbar$.

En exprimant le laplacien en coordonnées sphériques et sachant que les polynômes de Legendre sont fonctions propres de l'opérateur moment cinétique tels que $L^2 P_l(\cos \theta) = \hbar^2 l(l+1) P_l(\cos \theta)$, l'équation de Schrödinger peut se réécrire sous la forme :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \left(\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) - \frac{l(l+1)}{r^2} \right) - \frac{(Z-p)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - E \right] \psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = 0 \quad (\text{C.4})$$

On obtient ainsi l'équation pour la fonction $w_l(k, r)$:

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} + k^2 - \frac{l(l+1)}{r^2} - \frac{2\eta k}{r} \right] w_l(k, r) = 0 \quad (\text{C.5})$$

avec

$$\eta = -\frac{m_e(Z-p)e^2}{4\pi\epsilon_0 \hbar^2 k} \quad (\text{C.6})$$

Le potentiel étant tel que $\lim_{r \rightarrow 0} r^2 V_{cl}(r) = 0$, on doit avoir une solution telle que $\lim_{r \rightarrow 0} w(k, r) = 0$. Les fonctions sphériques coulombiennes régulières $F_l(k, r)$ sont alors solutions de cette équation :

$$F_l(k, r) = \frac{2^l e^{-\pi\eta/2} |\Gamma(l+1+i\eta)|}{(2l+1)!} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} (kr)^{l+1} {}_1F_1(l+1+i\eta; 2l+2; -2ikr) \quad (\text{C.7})$$

En déterminant les coefficients $a_l(k)$ intervenant dans le développement (C.3) (cf.[Messiah 59] (p.362)), on obtient alors :

$$\psi_{\mathbf{k}}^+(\mathbf{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) i^l e^{i\sigma_l} \frac{F_l(k, r)}{kr} P_l(\cos \theta) \quad (\text{C.8})$$

où σ_l est le déphasage coulombien tel que :

$$\sigma_l = \arg \Gamma(l+1+i\eta) \quad (\text{C.9})$$

Le facteur $(2\pi)^{-3/2}$ provient de la normalisation à $\delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}')$ de la fonction $\psi(\mathbf{r})$.

L'expression (C.8) est valable pour une fonction d'onde sortante (électron incident). Pour une fonction d'onde entrante, ($t : +\infty \rightarrow -\infty$) la fonction d'onde s'écrit :

$$\psi_{\mathbf{k}}^-(\mathbf{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) i^l e^{-i\sigma_l} \frac{F_l(k, r)}{kr} P_l(\cos \theta) \quad (\text{C.10})$$

Cas d'un potentiel coulombien modifié

Les développements en ondes partielles présentés précédemment sont valables pour un potentiel purement coulombien. Considérons maintenant l'ajout d'un potentiel à courte portée $V_{corr}(r)$ tel que le potentiel total ressenti par l'électron libre est :

$$V(r) = V_{clb}(r) + V_{corr}(r) \quad (\text{C.11})$$

Pour les mêmes raisons que dans le cas coulombien, la fonction d'onde solution de l'équation de Schrödinger

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\mathbf{r}}^2 - \frac{(Z-p)e^2}{4\pi\epsilon_0 r} + V_{corr}(r) - E \right] \psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = 0 \quad (\text{C.12})$$

peut se décomposer sur la base des polynômes de Legendre :

$$\psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \sum_l^\infty a_l(k) \frac{u_l(k, r)}{r} P_l(\cos \theta) \quad (\text{C.13})$$

La fonction $u_l(k, r)$ satisfait alors l'équation :

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} + k^2 - \frac{l(l+1)}{r^2} - \frac{2\eta k}{r} - U(r) \right] u_l(k, r) = 0 \quad (\text{C.14})$$

avec

$$U(r) = \frac{2m_e}{\hbar^2} V_{corr}(r) \quad (\text{C.15})$$

Lorsque r est grand, le potentiel $U(r)$ s'annule et on retrouve alors l'équation (C.5) obtenue dans le cas d'un potentiel purement coulombien. La solution régulière de l'équation (C.14) est alors une combinaison linéaire des solutions régulières $F_l(k, r)$ et irrégulières $G_l(k, r)$ de l'équation (C.5) :

$$u_l(k, r) = B_l(k) F_l(k, r) + C_l(k) G_l(k, r) \quad (\text{C.16})$$

où $B_l(k)$ et $C_l(k)$ sont deux constantes (pour k fixé) à déterminer.

Sachant que les formes asymptotiques des fonctions coulombiennes sont :

$$\lim_{r \rightarrow \infty} F_l(k, r) = \sin \left(kr - l\frac{\pi}{2} - \eta \ln 2kr + \sigma_l \right) \quad (\text{C.17a})$$

$$\lim_{r \rightarrow \infty} G_l(k, r) = -\cos \left(kr - l\frac{\pi}{2} - \eta \ln 2kr + \sigma_l \right) \quad (\text{C.17b})$$

où η et σ_l sont définis par les expressions (C.6) et (C.9), la forme asymptotique de la fonction $u_l(k, r)$ peut être réécrite sous la forme :

$$\lim_{r \rightarrow \infty} u_l(k, r) = A_l(k) \sin \left(kr - l\frac{\pi}{2} - \eta \ln 2kr + \sigma_l + \hat{\delta}_l \right) \quad (\text{C.18})$$

où $\hat{\delta}_l$ est le déphasage additionnel (par rapport au cas purement coulombien) dû à l'ajout du potentiel $V_{corr}(r)$. On a alors :

$$\begin{cases} \cos \hat{\delta}_l = \frac{B_l(k)}{A_l(k)} \\ \sin \hat{\delta}_l = \frac{-C_l(k)}{A_l(k)} \end{cases} \quad (\text{C.19a})$$

$$\quad (\text{C.19b})$$

soit $A_l(k) = [B_l(k)^2 + C_l(k)^2]^{1/2}$.

En analogie avec le cas coulombien, les fonctions d'ondes $\psi^\pm(\mathbf{r})$ peuvent alors s'écrire sous la forme d'un développement en ondes partielles (les fonctions d'onde sont normalisées à $\delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}')$) :

$$\psi_{\mathbf{k}}^\pm(\mathbf{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) i^l e^{\pm i(\sigma_l + \delta_l)} \frac{u_l(k, r)}{kr} P_l(\cos \theta) \quad (\text{C.20})$$

C.2 Décomposition dans le cas d'une diffusion par un potentiel de portée finie

Considérons un électron libre interagissant avec un ion de charge Z écranté par une densité électronique environnante. Cette densité est telle, qu'au-delà d'une distance d , la charge positive est entièrement écrantée. En deçà de cette distance, l'électron libre interagit avec l'ion selon un potentiel $V_{scr}(r)$ à symétrie sphérique.

La fonction d'onde de l'électron libre peut être développée sur une base de polynômes de Legendre :

$$\psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \sum_l a_l(k) \frac{u_l(k, r)}{r} P_l(\cos \theta) \quad (\text{C.21})$$

La partie radiale $u_l(k, r)$ est alors régie par l'équation (cf. section C.1) :

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} + k^2 - \frac{l(l+1)}{r^2} - U(r) \right] u_l(k, r) = 0 \quad (\text{C.22})$$

où $U(r) = -2m_e V_{scr}(r)/\hbar^2$.

$U(r)$ étant à courte portée, pour $r > d$ l'équation (C.22) s'écrit en posant $\rho = kr$ et $y_l(\rho) = u_l(k, r)/\rho$:

$$\left[\frac{d^2}{d\rho^2} + \frac{2}{\rho} \frac{d}{d\rho} - \frac{l(l+1)}{\rho^2} + 1 \right] y_l(\rho) = 0 \quad (\text{C.23})$$

Cette équation est appelée équation différentielle de Bessel sphérique. Des solutions particulières de cette équation sont les fonctions de Bessel sphériques régulières $j_l(\rho)$ et les fonctions de Neumann sphériques irrégulières $n_l(\rho)$. La solution générale de l'équation (C.23) est donc une combinaison linéaire de ces deux solutions linéairement indépendantes :

$$y_l(k, r) = B_l(k) j_l(kr) + C_l(k) n_l(kr) \quad \text{pour } r > d \quad (\text{C.24})$$

Les formes asymptotiques des fonctions de Bessel sphériques régulières et irrégulières sont :

$$\lim_{r \rightarrow \infty} j_l(kr) = \frac{1}{kr} \sin \left(kr - l \frac{\pi}{2} \right) \quad (\text{C.25a})$$

$$\lim_{r \rightarrow \infty} n_l(kr) = -\frac{1}{kr} \cos \left(kr - l \frac{\pi}{2} \right) \quad (\text{C.25b})$$

La forme asymptotique de $y_l(k, r)$ peut alors être réécrite sous la forme :

$$\lim_{r \rightarrow \infty} y_l(k, r) = A_l(k) \frac{1}{kr} \sin \left(kr - l \frac{\pi}{2} + \delta_l \right) \quad (\text{C.26})$$

où le déphasage δ_l est déterminé selon :

$$\left\{ \begin{array}{l} \cos \delta_l = \frac{B_l(k)}{A_l(k)} \\ \sin \delta_l = \frac{-C_l(k)}{A_l(k)} \end{array} \right. \quad (\text{C.27a})$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \cos \delta_l = \frac{B_l(k)}{A_l(k)} \\ \sin \delta_l = \frac{-C_l(k)}{A_l(k)} \end{array} \right. \quad (\text{C.27b})$$

avec

$$A_l(k) = [B_l(k)^2 + C_l(k)^2]^{1/2} \quad (\text{C.28})$$

En choisissant une normalisation à $\delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}')$, le développement en ondes partielles des fonctions d'ondes entrantes ($-$) et sortantes ($+$) se met sous la forme :

$$\psi_{\mathbf{k}}^{\pm}(\mathbf{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) i^l e^{\pm i\delta_l} \frac{u_l(k, r)}{kr} P_l(\cos \theta) \quad (\text{C.29})$$

Annexe \mathcal{D} *Calcul des forces d'oscillateur*

Soit un électron dans un état initial a , de fonction d'onde $\phi_a(\mathbf{r})$, d'énergie E_a et de nombres quantiques $n_a l_a m_a$, et un état final b , de fonction d'onde $\phi_b(\mathbf{r})$, d'énergie E_b et de nombres quantiques $n_b l_b m_b$. La force d'oscillateur associée à la transition de l'état a vers l'état b se met sous la forme :

$$f_{ab} = \frac{2m_e E_{ab}}{3\hbar^2} |\mathbf{r}_{ab}|^2 \quad (\text{D.1})$$

où $E_{ab} = E_b - E_a$ est l'énergie de la transition et

$$\mathbf{r}_{ab} = \langle \phi_b | \mathbf{r} | \phi_a \rangle \quad (\text{D.2})$$

Les fonctions d'onde $\phi_i(\mathbf{r})$ peuvent se mettre sous la forme :

$$\phi_i(\mathbf{r}) = R_{l_i}(r) Y_{l_i}^{m_i}(\theta, \varphi) = (-1)^{m_i} \left[\frac{(2l_i + 1)(l_i - m_i)!}{4\pi(l_i + m_i)!} \right]^{1/2} R_{l_i}(r) P_{l_i}^{m_i}(\cos \theta) e^{im_i \varphi} \quad (\text{D.3})$$

où $Y_l^m(\theta, \varphi)$ est une harmonique sphérique et $P_l^m(\cos \theta)$ est la fonction de Legendre associée.

Calcul des trois coordonnées de \mathbf{r}_{ab} :

Pour la coordonnée z , on a :

$$z_{ab} = \int d\mathbf{r} \phi_b^*(\mathbf{r}) z \phi_a(\mathbf{r}) \quad (\text{D.4})$$

Or, en coordonnées sphériques $z = r \cos \theta$, d'où z_{ab} se réduit à :

$$\begin{aligned}
 z_{ab} &= (-1)^{m_a+m_b} \left[\frac{(2l_a+1)(2l_b+1)(l_a-m_a)!(l_b-m_b)!}{(4\pi)^2(l_a+m_a)!(l_b+m_b)!} \right]^{1/2} \times \\
 &\times \int_0^\infty dr r^3 R_{l_a}(r) R_{l_b}(r) \times \\
 &\times \int_0^\pi d\theta P_{l_b}^{m_b}(\cos \theta) P_{l_a}^{m_a}(\cos \theta) \sin \theta \cos \theta \times \\
 &\times \int_0^{2\pi} d\varphi e^{i(m_a-m_b)\varphi}
 \end{aligned} \tag{D.5}$$

L'intégrale sur φ est non nulle uniquement lorsque $m_a = m_b$, auquel cas, elle vaut 2π .

Soit $I(\cos \theta)$ l'intégrale sur θ . En posant $x = \cos \theta$, et avec $m_a = m_b$, cette intégrale se réduit à :

$$I(x) = \int_{-1}^1 dx x P_{l_b}^{m_a}(x) P_{l_a}^{m_a}(x) \tag{D.6}$$

À partir de la relation de récurrence

$$x P_l^m(x) = \frac{l-m+1}{2l+1} P_{l+1}^m(x) + \frac{l+m}{2l+1} P_{l-1}^m(x) \tag{D.7}$$

l'intégrale $I(x)$ se réécrit sous la forme :

$$I(x) = \frac{l_a-m_a+1}{2l_a+1} \int_{-1}^{-1} dx P_{l_b}^{m_a}(x) P_{l_a+1}^{m_a}(x) + \frac{l_a+m_a}{2l_a+1} \int_{-1}^{-1} dx P_{l_b}^{m_a}(x) P_{l_a-1}^{m_a}(x) \tag{D.8}$$

Or la relation d'orthogonalité à laquelle obéissent les fonctions de Legendre associées est :

$$\int_{-1}^1 dx P_l^m(x) P_{l'}^m(x) = \frac{2}{2l+1} \frac{(l+m)!}{(l-m)!} \delta_{ll'} \tag{D.9}$$

d'où la coordonnée z de \mathbf{r}_{ab} vaut :

$$z_{ab} = \begin{cases} 0 & \text{si } \begin{cases} m_a \neq m_b \\ l_b \neq l_a \pm 1 \end{cases} \\ \sqrt{\frac{(l_a+1)^2 - m_a^2}{(2l_a+3)(2l_a+1)}} \mathcal{R}_{ab} & \text{si } \begin{cases} m_a = m_b \\ l_b = l_a + 1 \end{cases} \\ \sqrt{\frac{l_a^2 - m_a^2}{(2l_a+1)(2l_a-1)}} \mathcal{R}_{ab} & \text{si } \begin{cases} m_a = m_b \\ l_b = l_a - 1 \end{cases} \end{cases} \tag{D.10}$$

$$\text{où } \mathcal{R}_{ab} = \int_0^\infty dr r^3 R_{l_a}(r) R_{l_b}(r) \tag{D.11}$$

Les éléments de matrice des coordonnées x et y peuvent être évalués de la même manière. Cependant, en pratique, il est plus aisé d'évaluer les combinaisons linéaires ($x +$

$iy)_{ab}$ et $(x - iy)_{ab}$ car cela conduit à la simplification des intégrales sur φ . En suivant le même raisonnement que pour la coordonnée z , avec $x = r \sin \theta \cos \varphi$ et $y = r \sin \theta \sin \varphi$, et avec la relation de récurrence :

$$(1 - x^2)^{1/2} P_l^{m-1}(x) = \frac{1}{2l+1} (P_{l+1}^m(x) - P_{l-1}^m(x)) \quad (\text{D.12})$$

on obtient :

$$(x + iy)_{ab} = \begin{cases} 0 & \text{si } \begin{cases} m_b \neq m_a + 1 \\ l_b \neq l_a \pm 1 \end{cases} \\ -\sqrt{\frac{(l_a + m_a + 1)(l_a + m_a + 2)}{(2l_a + 3)(2l_a + 1)}} \mathcal{R}_{ab} & \text{si } \begin{cases} m_b = m_a + 1 \\ l_b = l_a + 1 \end{cases} \\ \sqrt{\frac{(l_a - m_a)(l_a - m_a - 1)}{(2l_a + 1)(2l_a - 1)}} \mathcal{R}_{ab} & \text{si } \begin{cases} m_b = m_a + 1 \\ l_b = l_a - 1 \end{cases} \end{cases} \quad (\text{D.13})$$

De la même manière, on obtient pour $(x - iy)_{ab}$:

$$(x - iy)_{ab} = \begin{cases} 0 & \text{si } \begin{cases} m_b \neq m_a - 1 \\ l_b \neq l_a \pm 1 \end{cases} \\ \sqrt{\frac{(l_a - m_a + 1)(l_a - m_a + 2)}{(2l_a + 3)(2l_a + 1)}} \mathcal{R}_{ab} & \text{si } \begin{cases} m_b = m_a - 1 \\ l_b = l_a + 1 \end{cases} \\ -\sqrt{\frac{(l_a + m_a)(l_a + m_a - 1)}{(2l_a + 1)(2l_a - 1)}} \mathcal{R}_{ab} & \text{si } \begin{cases} m_b = m_a - 1 \\ l_b = l_a - 1 \end{cases} \end{cases} \quad (\text{D.14})$$

Le terme $|\mathbf{r}_{ab}|^2$ est alors calculé selon :

$$|\mathbf{r}_{ab}|^2 = |x_{ab}|^2 + |y_{ab}|^2 + |z_{ab}|^2 \quad (\text{D.15})$$

où

$$|x_{ab}|^2 + |y_{ab}|^2 = \frac{1}{2} [|(x + iy)_{ab}|^2 + |(x - iy)_{ab}|^2] \quad (\text{D.16})$$

Force d'oscillateur pour une transition $n_a l_a \rightarrow n_b l_b$:

D'après les règles de sélection obtenues, la force d'oscillateur est non nulle si et seulement si $l_b - l_a = \pm 1$, soit pour des transitions dipolaires électriques.

Si on considère des transitions d'un état $n_a l_a m_a$ vers un état $n_b l_b$ sans chercher à discerner les états finaux selon le nombre quantique magnétique m_b , alors en sommant sur les états finaux, on obtient :

$$\sum_{m_b} |\mathbf{r}_{\mathbf{ab}}|^2 = \underbrace{\frac{1}{2}|(x - iy)_{ab}|^2}_{m_b=m_a-1} + \underbrace{|z_{ab}|^2}_{m_b=m_a} + \underbrace{\frac{1}{2}|(x + iy)_{ab}|^2}_{m_b=m_a+1} \quad (\text{D.17})$$

d'où

$$\sum_{m_b} |\mathbf{r}_{\mathbf{ab}}|^2 = \begin{cases} \frac{l_a + 1}{2l_a + 1} \mathcal{R}_{ab}^2 & \text{pour } l_b = l_a + 1 \\ \frac{l_a}{2l_a + 1} \mathcal{R}_{ab}^2 & \text{pour } l_b = l_a - 1 \end{cases} \quad (\text{D.18a})$$

$$\sum_{m_b} |\mathbf{r}_{\mathbf{ab}}|^2 = \begin{cases} \frac{l_a + 1}{2l_a + 1} \mathcal{R}_{ab}^2 & \text{pour } l_b = l_a + 1 \\ \frac{l_a}{2l_a + 1} \mathcal{R}_{ab}^2 & \text{pour } l_b = l_a - 1 \end{cases} \quad (\text{D.18b})$$

soit

$$\sum_{m_b} |\mathbf{r}_{\mathbf{ab}}|^2 = \frac{\max(l_a, l_b)}{2l_a + 1} \mathcal{R}_{ab}^2 \quad \text{avec } l_b = l_a \pm 1 \quad (\text{D.19})$$

Afin de déterminer la force d'oscillateur moyenne $\bar{f}_{l_a l_b}$ d'un état $n_a l_a$ vers un état $n_b l_b$, il est de plus nécessaire de moyenner sur les états m_a initiaux :

$$\bar{f}_{l_a l_b} = \frac{1}{2l_a + 1} \sum_{m_a} \sum_{m_b} f_{ab} = \frac{1}{2l_a + 1} \sum_{m_a=-l_a}^{l_a} \frac{2m_e E_{ab}}{3\hbar^2} \frac{\max(l_a, l_b)}{2l_a + 1} \mathcal{R}_{ab}^2 \quad (\text{D.20})$$

Finalement la force d'oscillateur moyenne associée à une transition dipolaire électrique $n_a l_a \rightarrow n_b l_b$ vaut :

$$\bar{f}_{l_a l_b} = \frac{2m_e E_{ab}}{3\hbar^2} \frac{\max(l_a, l_b)}{2l_a + 1} \mathcal{R}_{ab}^2 \quad \text{avec } l_b = l_a \pm 1 \quad (\text{D.21})$$

$$\text{où } \mathcal{R}_{ab} = \int_0^\infty dr r^3 R_{l_a}(r) R_{l_b}(r) \quad (\text{D.22})$$

De plus, il est important de noter que $\bar{f}_{l_a l_b} \neq \bar{f}_{l_b l_a}$. En effet, dans le cas d'une transition $n_b l_b \rightarrow n_a l_a$, la moyenne devra être calculée sur les états initiaux m_b , on aura alors :

$$\bar{f}_{l_b l_a} = -\frac{2l_a + 1}{2l_b + 1} \bar{f}_{l_a l_b} \quad (\text{D.23})$$

Bibliographie

A

- [Abramowitz *et al.* 64] Abramowitz M. et Stegun I.A. (ed.),
Handbook of mathematical functions, National Bureau of Standards, 1964.
- [Adoui *et al.* 03] Adoui L., Gobert O., Indelicato P., Lamour E., Meynadier P., Normand D., Perdrix M., Prigent C., Rozet J. P. et D. Vernhet,
Xe(L) X-ray emission from laser-cluster interaction, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **205** (2003), 341–345.
- [Ammosov *et al.* 86] Ammosov M.V., Delone N.B. et Krainov V.P.,
Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field, J. Exp. Theor. Phys. **64** (1986), 1191.
- [Arno *et al.* 95] Arno J. et Bevan J.W.,
Jet spectroscopy and molecular dynamics, Chapman and Hall ltd ed., Blackie Academic and Professional, London, 1995.
- [Ashcroft *et al.* 76] Ashcroft N.W. et Mermin N.D.,
Solid state physics, HRW international editions ed., 1976.
- [Augst *et al.* 89] Augst S., Strickland D., Meyerhofer D.D., Chin S.L. et Eberly J.H.,
Tunneling ionization of noble gases in a high-intensity laser field, Phys. Rev. Lett. **63** (1989), 2212–2215.

B

- [Banerjee *et al.* 99] Banerjee S., Ravindra Kumar G. et Mathur D.,
Multiple ionization of n_2 in intense, linearly and circularly polarized light fields, Phys. Rev. A **60** (1999), R25–R28.
- [Bargheer *et al.* 06] Bargheer M., Zhavoronkov N., Woerner M. et Elsaesser T.,
Recent progress in ultrafast X-ray diffraction, ChemPhysChem **7** (2006), 783.

- [Becker *et al.* 56] Becker E.W., Bier K. et Henkes W.,
Strahlen aus kondensierten Atomen und Molekeln im Hochvakuum, Zeit. für Phys. (1956), 333–338.
- [Berrington *et al.* 87] Berrington K.A., Burke P.G., Butler K., Seaton M.J., Storey P.J., Taylor K.T. et Yan Y.,
Atomic data for opacity calculations. II. Computational methods, J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys. **20** (1987), 6379–6397.
- [Bhalla 73] Bhalla C.P.,
K-shell auger rates, transition energies, and fluorescence yields of variously ionized states of argon, Phys. Rev. A **8** (1973), 2877–2882.
- [Bonté 06] Bonté C.,
Caractérisation spectrale et temporelle de l'émission X issue de l'interaction laser - agrégats, Thèse de doctorat, Université Bordeaux I, 28 avril 2006.
- [Boyer *et al.* 94] Boyer K. et Rhodes C.K.,
Superstrong coherent multi-electron intense-field interaction, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **27** (1994), L633–L636.
- [Braginskii 65] Braginskii S.I.,
Reviews of plasma physics, m.a. leontovich consultants bureau, new york ed., vol. 1, p. 213, 1965.
- [Bransden *et al.* 03] Bransden B.H. et Joachain C.J.,
Physics of atoms and molecules, Pearson Education Limited, 2003.
- [Brauner *et al.* 89] Brauner M., Briggs J. S. et Klar H.,
Triply-differential cross sections for ionisation of hydrogen atoms by electrons and positrons, J. Phys. B **22** (1989), 2265.
- [Bressler *et al.* 04] Bressler C. et Chergui M.,
Ultrafast X-ray absorption spectroscopy, Chemical Reviews **104** (2004), 1781–1812.
- [Bréchnignac *et al.* 93] Bréchnignac C., Cahuzac Ph., Leygnier J. et Sarfati A.,
Optical response of large lithium clusters : Evolution toward the bulk, Phys. Rev. Lett. **70** (1993), 2036–2039.
- [Burgess *et al.* 83] Burgess A. et Chidichimo M.C.,
Electron impact ionization of complex ions, Mon. Not. R. astr. Soc. **203** (1983), 1269–1280.
- [Burnett *et al.* 89] Burnett N.H. et Corkum P.B.,
Cold-plasma production for recombination extreme-ultraviolet lasers by optical-field-induced ionization, J. Opt. Soc. Am. B **6** (1989), 1195.

- [Bychenkov 98] Bychenkov V.Yu.,
Longitudinal permittivity of a collisional plasma, Plasma Physics Reports **24** (1998), 801.

C

- [Caillaud *et al.* 06] Caillaud T., Blasco F., Bonté C., Dorchies F. et Mora P.,
Study of intense femtosecond laser propagation into a dense Ar gas and cluster jet, Phys. Plasmas **13** (2006), 33105.
- [Caillaud 04] Caillaud T.,
Etude expérimentale de l'interaction laser-agrégats : absorption, chauffage, émission X - vers la réponse de l'agrégat unique, Thèse de doctorat, Université Bordeaux I, Septembre 2004.
- [Corkum 93] Corkum P.B.,
Plasma perspective on strong field multiphoton ionization, Phys. Rev. Lett. **71** (1993), 1994–1997.
- [Cowan 81] Cowan R.D.,
Theory of atomic spectra, University of California Press, Berkeley, 1981.
- [Cyrot-Lackmann *et al.* 81] Cyrot-Lackmann F. et Friedel J. (eds.),
Entre l'atome et le cristal : les agrégats, Les Editions de physique, Les Ulis, 1981.

D

- [David *et al.* 04] David N., Spence D.J. et Hooker S.M.,
Molecular-dynamic calculation of the inverse-bremsstrahlung heating of non-weakly-coupled plasmas, Phys. Rev. E **70** (2004), 056411.
- [Deiss *et al.* 06] Deiss C., Rohringer N., Burgdorfer J., Lamour E., Prigent C., Rozet J.P. et Vernhet D.,
Laser-cluster interaction : X-ray production by short laser pulses, Phys. Rev. Lett. **96** (2006), 013203.
- [Dharma *et al.* 81] Dharma wardana M.W.C. et Taylor R.,
Exchange and correlation potentials for finite temperature quantum calculations at intermediate degeneracies, J. Phys. C **14** (1981), 629.
- [Ditmire *et al.* 95] Ditmire T., Donnelly T., Falcone R.W. et Perry M.D.,
Strong X-ray emission from high-temperature plasmas produced by intense irradiation of clusters, Phys. Rev. Lett. **75** (1995), 3122–3125.

- [Ditmire *et al.* 96] Ditmire T., Donnelly T., Rubenchik A.M., Falcone R.W. et Perry M.D.,
Interaction of intense laser pulses with atomic clusters, Phys. Rev. A **53** (1996), 3379–3402.
- [Ditmire *et al.* 97a] Ditmire T., Tisch J.W.G., Springate E., Mason M.B., Hay N., Marangos J.P. et Hutchinson M.H.R.,
High energy ion explosion of atomic clusters : Transition from molecular to plasma behavior, Phys. Rev. Lett. **78** (1997), 2732–2735.
- [Ditmire *et al.* 97b] Ditmire T., Hutchinson M.H., Marjoribanks R.S., Kulcsa G. et Smith R.A.,
X-ray yields from Xe clusters heated by short pulse high intensity lasers, Appl. Phys. Lett. **71** (1997), 166.
- [Ditmire *et al.* 97c] Ditmire T., Smith R.A., Tisch J.W.G. et Hutchinson M.H.R.,
High intensity laser absorption by gases of atomic clusters, Phys. Rev. Lett. **78** (1997), 3121.
- [Ditmire *et al.* 98] Ditmire T., Patel P. K., Smith R. A., Wark J. S., Rose S. J., Milathianaki D., Marjoribanks R. S. et Hutchinson M. H. R.,
keV X-ray spectroscopy of plasmas produced by the intense picosecond irradiation of a gas of xenon clusters, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **31** (1998), 2825–2831.
- [Ditmire *et al.* 99] Ditmire T., Zweiback J., Yanovsky V.P., Cowan T.E., Hays G. et Wharton K.B.,
Nuclear fusion from explosions of femtosecond laser-heated deuterium clusters, Nature **398** (1999), 489–491.
- [Dobosz *et al.* 97] Dobosz S., Lezius M., Schmidt M., Meynadier P., Perdrix M., Normand D., Rozet J.-P. et Vernhet D.,
Absolute keV photon yields from ultrashort laser-field-induced hot nanoplasmas, Phys. Rev. A **56** (1997), R2526–R2529.
- [Dobosz 98] Dobosz S.,
Interaction d'agrégats de gaz rares avec un champ laser intense, Thèse de doctorat, Université Paris 13 – Institut Galilée, 30 novembre 1998.
- [Donnelly *et al.* 96] Donnelly T.D., Ditmire T., Neuman K., Perry M.D. et Falcone R.W.,
High-order harmonic generation in atom clusters, Phys. Rev. Lett. **76** (1996), 2472–2475.
- [Dorchies *et al.* 03] Dorchies F., Blasco F., Caillaud T., Stevefelt J., Stenz C., Boldarev A.S. et Gasilov V.A.,

Spatial distribution of cluster size and density in supersonic jets as targets for intense laser pulses, Phys. Rev. A **68** (2003), 023201.

[Dorchies *et al.* 05]

Dorchies F., Caillaud T., Blasco F., Bonté C., Jouin H., Micheau S., Pons B. et Stevefelt J.,
Investigation of laser-irradiated Ar cluster dynamics from K-shell X-ray emission measurements, Phys. Rev. E **71** (2005), 066410.

F

[Farges *et al.* 81]

Farges J., de Feraudy M.F., Raoult B. et Torchet G.,
Structure and temperature of rare gas clusters in a supersonic expansion, Surf. Sci. **106** (1981), 95–100.

[Fetter *et al.* 71]

Fetter A.L. et Walecka J.D.,
Quantum theory of many-particles systems, New York : McGraw-Hill, 1971.

[Friedel 52]

Friedel J., Philos. Mag. **43** (1952), 153.

[Fukuda *et al.* 06]

Fukuda Y., Kishimoto Y., Masaki T. et Yamakawa K.,
Structure and dynamics of cluster plasmas created by ultra-short intense laser fields, Phys. Rev. A **73** (2006), 031201.

G

[Garibotti *et al.* 80]

Garibotti C.R. et Miraglia J.E.,
Ionization and electron capture to the continuum in the H^+ -hydrogen-atom collision, Phys. Rev. A **21** (1980), 572–580.

[Gets *et al.* 06]

Gets A.V. et Krainov V.P.,
The ionization potentials of atomic ions in laser-irradiated Ar, Kr and Xe clusters, J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys. **39** (2006), 1787–1795.

[Gouedard *et al.* 78]

Gouedard C. et Deutsch C.,
Dense electron-gas response at any degeneracy, J. Math. Phys. **19** (1978), 32.

[Grassme *et al.* 93]

Grassme R. et Bussemer P.,
Friedel oscillations for temperatures $t \neq 0$, Phys. Letters A **175** (1993), 441.

[Griffin D. *et al.* 93]

Griffin D. C., Pindzola M. S. et Badnell N. R.,
Low-energy total and differential cross sections for the electron-impact excitation of Si^{2+} and Ar^{6+} , Phys. Rev. A **47** (1993), 2871–2880.

- [Gupta *et al.* 79] Gupta U. et Rajagopal A.K.,
Plasma screening effects in the intermediate degeneracy region, J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys. **12** (1979), L703–L709.
- [Gupta *et al.* 80a] ——— ,
Exchange-correlation potential for inhomogeneous electron systems at finite temperatures, Phys. Rev. A **22** (1980), 2792–2797.
- [Gupta *et al.* 80b] ——— ,
Inhomogeneous electron gas at nonzero temperatures : Exchange effects, Phys. Rev. A **21** (1980), 2064–2068.
- [Gupta *et al.* 81] Gupta U. et Rajagopal A. K.,
Screening effects on the electronic states of an atom embedded in laser-imploded plasmas, J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys. **14** (1981), 2309–2317.
- [Gupta *et al.* 82] ——— ,
Density functional formalism at finite temperatures with some applications, Physics Reports **87** (1982), no. 6, 259–311.
- [Gutierrez *et al.* 94] Gutierrez F.A. et Diaz-Valdes J.,
Effects of non-spherical screening for inelastic electron-ion scattering, J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys. **27** (1994), 593–600.
- ## H
- [Hagena *et al.* 72] Hagena O.F. et Obert W.,
Cluster formation in expanding supersonic jets : effect of pressure, temperature, nozzle size, and test gas, J. Chem. Phys. **56** (1972), 1793–1802.
- [Hagena 92] Hagena O.F.,
Cluster ion sources, Rev. Sci. Instrum. **63** (1992), 2374–2379.
- [Hatton *et al.* 81] Hatton G.J., Lane N.F. et Weisheit J.C.,
Inelastic electron-ion scattering in a dense plasma, J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys. **14** (1981), 4879–4888.
- [Haught *et al.* 70] Haught A.F. et Polk D.H.,
Formation and heating of laser irradiated solid particle plasmas, Phys. fluids **13** (1970), 2825.
- [Hilborn 82] Hilborn R.C.,
Einstein coefficients, cross sections, f values dipole moments, and all that, Am. J. Phys. **50** (1982), 982.
- [Hirokane *et al.* 04] Hirokane M., Shimizu S., Hashida M., Okada S., Okihara S., Sato F., Iida T. et Sakabe S.,

Energy distributions of ions emitted from argon clusters coulomb-exploded by intense femtosecond laser pulses, Phys. Rev. A **69** (2004), 063201.

[Honda *et al.* 00]

Honda H., Miura E., Katsura K., Takahashi E. et Kondo K., *Evidence for wavelength dependence of Xe M-shell emission from clusters*, Phys. Rev. A **61** (2000), 023201.

[Huang 63]

Huang K.,
Statistical mechanics, New York : John Wiley and sons, 1963.

I

[IAEA]

IAEA International Atomic Energy Agency,
<http://www-amdis.iaea.org/>
<http://www-amdis.iaea.org/ALADDIN/>
<http://www-amdis.iaea.org/AAEXCITE/>
<http://aphysics2.lanl.gov/cgi-bin/ion/runlanl08d.pl>.

[Ishikawa *et al.* 00]

Ishikawa K. et Blenski T.,
Explosion dynamics of rare-gas clusters in an intense laser field, Phys. Rev. A **62** (2000), 063204.

[Issac *et al.* 04]

Issac R.C., Vieux G., Ersfeld B., Brunetti E., Jamison S.P., Gallacher J., Clark D. et Jaroszynski D.A.,
Ultra hard X rays from krypton clusters heated by intense laser fields, Phys. Plasmas **11** (2004), 3491–3496.

J

[Joachain 75]

Joachain C.,
Quantum collision theory, North Holland Publishing Company, 1975.

[Joffre 98]

Joffre M.,
Propagation linéaire et non linéaire d'une impulsion ultra-brève, cours dispensé à l'ensta, 1993–1998.

[Johnston *et al.* 73]

Johnston T.W. et Dawson J.M.,
Correct values for high-frequency power absorption by inverse bremsstrahlung in plasmas, Phys. Fluids **16** (1973), 722.

[Jungreuthmayer *et al.* 04]

Jungreuthmayer C., Geissler M., Zanghellini J. et Brabec T.,
Microscopic analysis of large-cluster explosion in intense laser fields, Phys. Rev. Lett. **92** (2004), 133401.

K

[Keldysh 65]

Keldysh L.V.,
Ionization in the field of a strong electromagnetic wave, J. Exp. Theor. Phys. **20** (1965), 1307.

- [Kieffer *et al.* 00] Kieffer J.-C., Chien C.Y., Dorchies F., Forget P., Gallant P., Jiang Z. et Pépin H.,
Ultrafast laser-based thermal X-ray sources, C. R. Acad. Sci. Paris, t. 1, Série IV (2000), 297–303.
- [Klapisch 69] Klapisch M., Thèse de doctorat, Université Paris-Sud, 1969.
- [Klapisch 71] ——— ,
A program for atomic wavefunction computations by the parametric potential method, Comput. Phys. Commun. **2** (1971), 239.
- [Kondo *et al.* 97] Kondo K., Borisov A.B., Jordan C., McPherson A., Schroeder W.A., Boyer K. et Rhodes C.K.,
Wavelength dependence of multiphoton-induced Xe(M) and Xe(L) emissions from Xe clusters, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **30** (1997), 2707–2716.
- [Krishnamurthy *et al.* 06] Krishnamurthy M., Jha J., Mathur D., Jungreuthmayer Ch, Ramunno L., Zanghellini J. et Brabec T.,
Ion charge state distribution in the laser-induced Coulomb explosion of argon clusters, J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys. **39** (2006), 625–632.
- [Kumarappan *et al.* 01] Kumarappan V., Krishnamurthy M., Mathur D. et Tribedi L.C.,
Effect of laser polarization on X-ray emission from Ar_n (n = 200-10⁴) clusters in intense laser fields, Phys. Rev. A **63** (2001), 023203.
- [Kumarappan *et al.* 03] Kumarappan V., Krishnamurthy M. et Mathur D.,
Asymmetric emission of high-energy electrons in the two-dimensional hydrodynamic expansion of large xenon clusters irradiated by intense laser fields, Phys. Rev. A **67** (2003), 043204.

L

- [Lamour *et al.* 05a] Lamour E., Prigent C., Rozet J.P. et Vernhet D.,
Physical parameter dependence of the X-ray generation in intense laser-cluster interaction, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **235** (2005), 408–413.
- [Lamour *et al.* 05b] Lamour E., Prigent C., Rozet J.P., Vernhet D., Gobert O., Meynadier P., Normand D. et Perdrix M.,
Source X par agrégats : contrôle et optimisation des paramètres gouvernant l'interaction laser de puissance - agrégats de gaz rare, J. Phys. IV **127** (2005), 3–8.

- [Landau *et al.* 69] Landau L. et Lifchitz E.,
Électrodynamique des milieux continus, les éditions mir ed., 1969.
- [Langer *et al.* 60] Langer J.S. et Vosko S.H.,
The shielding of a fixed charge in a high-density electron gas, J. Phys. Chem. Solids **12** (1960), 196.
- [Larsson *et al.* 99] Larsson J. et Sjögren A.,
Evaluation of laser-irradiated Ar clusters as a source for time-resolved X-ray studies, Rev. Sci. Instrum. **70** (1999), 2253–2256.
- [Last *et al.* 00] Last I. et Jortner J.,
Dynamics of the coulomb explosion of large clusters in a strong laser field, Phys. Rev. A **62** (2000), 013201.
- [Lezius *et al.* 98] Lezius M., Dobosz S., Normand D. et Schmidt M.,
Explosion dynamics of rare gas clusters in strong laser fields, Phys. Rev. Lett. **80** (1998), 261–264.
- [Lindhard 54] Lindhard J., Kgl. Danske Vidensk. Selsk. Mat.-Fis. Medd. **28** (1954), 1.
- [Lorrrain *et al.* 88] Lorrrain P., Corson D.P. et Lorrrain F.,
Electromagnetic fields and waves, éd. Freeman and company, N.Y. ed., 1988.
- [Lotz 68] Lotz W.,
Electron-impact ionization cross-sections and ionization rate coefficients for atoms and ions from hydrogen to calcium, Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei **216** (1968), 241–247.
- [Lüdde *et al.* 83] Lüdde H.J. et Dreizler R.M.,
Method for the calculation of global probabilities for many-electron systems, J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys. **16** (1983), 3973–3981.

M

- [McGuire *et al.* 77] McGuire J.H. et Weaver L.,
Independent electron approximation for atomic scattering by heavy particles, Phys. Rev. A **16** (1977), 41–47.
- [McPherson *et al.* 87] McPherson A., Gibson G., Jara H., Johann U., Luk T.S., McIntyre I.A., Boyer K. et Rhodes C.K.,
Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases, J. Opt. Soc. Am. B **4** (1987), 595.
- [McPherson *et al.* 93a] McPherson A., Luk T.S., Thompson B.D., Boyer K. et Rhodes C.K.,

- Multiphoton-induced X-ray emission and amplification from clusters*, Appl. Phys. B : Lasers Opt. **57** (1993), 337–347.
- [McPherson *et al.* 93b] ——— ,
Multiphoton-induced x-ray emission and amplification from clusters, Applied Physics B : Lasers and Optics **57** (1993), 337–347.
- [McPherson *et al.* 94] McPherson A., Luk T.S., Thompson B.D., Borisov A.B., Shiryayev O.B., Chen X., Boyer K. et Rhodes C.K.,
Multiphoton induced X-ray emission from Kr clusters on M-shell ($\sim 100 \text{ \AA}$) and L-shell ($\sim 6 \text{ \AA}$) transitions, Phys. Rev. Lett. **72** (1994), 1810–1813.
- [Megi *et al.* 03] Megi F., Belkacem M., Bouchene M.A., Suraud E. et Zwicknagel G.,
On the importance of damping phenomena in clusters irradiated by intense laser fields, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **36** (2003), 273–282.
- [Megi 05] Megi F.,
Étude théorique d'agrégats soumis à des champs laser intenses, Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2005.
- [Mendoza *et al.*] Mendoza C., Zeippen C. et Pradhan A.,
<http://cdsweb.u-strasbg.fr/topbase/topbase.html>, The Opacity Project.
- [Messiah 59] Messiah A.,
Mécanique quantique, vol. 1, Dunod, 1959.
- [Mewe 72] Mewe R.,
Interpolation formulae for the electron impact excitation of ions in the H-, He-, Li-, and Ne- sequences, Astron. Astrophys. **20** (1972), 215.
- [Milchberg *et al.* 01] Milchberg H.M., McNaught S.J. et Parra E.,
Plasma hydrodynamics of the intense laser-cluster interaction, Phys. Rev. E **64** (2001), 056402.
- [Mori *et al.* 01] Mori M., Shiraishi T., Takahashi E., Suzuki H., Sharma L.B., Miura E. et Kondo K.,
Extreme ultraviolet emission from Xe clusters excited by high-intensity lasers, J. Appl. Phys. **90** (2001), 3595–3601.
- [Mulser *et al.* 00] Mulser P., Cornolti F., Bésuelle E. et Schneider R.,
Time-dependent electron-ion collision frequency at arbitrary laser intensity-temperature ratio, Phys. Rev. E **63** (2000), 016406.

- [Murnane *et al.* 91] Murnane M.M., Kapteyn H.C., Rosen M.D. et Falcone R.W., *Ultrafast X-ray pulses from laser-produced plasmas*, Science **251** (1991), 531–536.

N

- [NRL 04] *NRL Plasma Formulary*, Naval Research Laboratory, Washington, DC 20375, 2004.

P

- [Parra *et al.* 00] Parra E., Alexeev I., Fan J., Kim K.Y., McNaught S.J. et Milchberg H.M., *X-ray and extreme ultraviolet emission induced by variable pulse-width irradiation of Ar and Kr clusters and droplets*, Phys. Rev. E **62** (2000), R5931–R5934.
- [Perrot *et al.* 84] Perrot F. et Dharma-Wardana M.W.C., *Exchange and correlation potentials for electron-ion systems at finite temperatures*, Phys. Rev. A **30** (1984), 2619.
- [Peterkop 61] Peterkop R.K., *Consideration of exchange in ionization*, Proc. Phys. Soc. **77** (1961), 1220.
- [Petrov *et al.* 05] Petrov G.M., Davis J., Velikovich A. L., Kepple P., Dasgupta A. et Clark R. W., *Dynamics of a Xe cluster plasma produced by an intense ultrashort pulse KrF laser*, Phys. Plasmas **12** (2005), 063103.
- [Pfeifer *et al.* 06] Pfeifer T., Spielmann C. et Gerber G., *Femtosecond X-ray science*, Rep. Prog. Phys. **69** (2006), 443–505.
- [Polishchuk *et al.* 94] Polishchuk A.Ya. et Meyer-Ter-Vehn J., *Electron-ion relaxation in a plasma interacting with an intense laser field*, Phys. Rev. E **49** (1994), 663–666.
- [Pons 00] Pons B., *Monocentric close-coupling expansion to provide ejected electron distributions for ionization in atomic collisions*, Phys. Rev. Lett. **84** (2000), 4569–4572.
- [Press *et al.* 92] Press W.H., Teukolsky S.A., Vetterling W.T. et Flannery B.P., *Numerical Recipes in Fortran 77 : the art of scientific computing*, pp. 701–716, Cambridge University Press, 1986-1992.

[Prigent 04]

Prigent C.,
L'émission X : un outil et une sonde pour l'interaction laser-agrégats, Thèse de doctorat, Université Paris VI - Pierre et Marie Curie, 7 décembre 2004.

R

[Reading *et al.* 80]

Reading J.F. et Ford A.L.,
K-shell-hole production, multiple-hole production, charge transfer, and antisymmetry, Phys. Rev. A **21** (1980), 124–131.

[Reinhold C. *et al.* 86]

Reinhold C. O. et Falcón C. A.,
Classical ionization and charge-transfer cross sections for $H^+ + He$ and $H^+ + Li^+$ collisions with consideration of model interactions, Phys. Rev. A **33** (1986), 3859–3866.

[Rose-Petruck *et al.* 97]

Rose-Petruck C., Schafer K.J., Wilson K.R. et Barty C.P.J.,
Ultrafast electron dynamics and inner-shell ionization in laser driven clusters, Phys. Rev. A **55** (1997), 1182.

[Rozet *et al.* 01]

Rozet J.-P., Cornille M., Dobosz S., Dubau J., Gauthier J.-C., Jacquemot S., Lamour E., Lezius M., Normand D., Schmidt M. et Vernhet D.,
State selective measurements of HCI produced by strong ultra-short laser-clusters interaction, Phys. Scr. **T92** (2001), 113–118.

[Rudge *et al.* 65]

Rudge M.R.H. et Seaton M.J.,
Ionization of atomic hydrogen by electron impact, Proc. Roy. Soc. Ser. A **283** (1965), 262.

S

[Saalman *et al.* 06]

Saalman U., Siedschlag Ch. et Rost J.M.,
Mechanisms of cluster ionization in strong laser pulses, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **39** (2006), R39–R77.

[Santra *et al.* 03]

Santra R. et Greene C.H.,
Xenon clusters in intense VUV laser fields, Phys. Rev. Lett. **91** (2003), 233401.

[Schroeder *et al.* 98]

Schroeder W.A., Omenetto F.G., Borisov A.B., Longworth J.W., McPherson A., Jordan C., Boyer K., Kondo K. et Rhodes C.K.,
Pump laser wavelength-dependent control of the efficiency of kilovolt X-ray emission from atomic clusters, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **31** (1998), 5031–5051.

- [Seaton 87] Seaton M.J.,
Atomic data for opacity calculations. I. General description,
J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys. **20** (1987), 6363–6378.
- [Servol 05] Servol Marina,
*Génération de rayonnement X par interaction laser-
écoulement de poudre*, Thèse de doctorat, École Polytech-
nique, 2005.
- [Shao *et al.* 96] Shao Y.L., Ditmire T., Tisch J.W.G., Springate E., Marangos
J.P. et Hutchinson M.H.R.,
*Multi-keV electron generation in the interaction of intense
laser pulses with Xe clusters*, Phys. Rev. Lett. **77** (1996),
3343–3346.
- [Shepherd *et al.* 94] Shepherd R., Price D., White W., Gordan S., Osterheld Al.,
Walling R., Goldstein W. et Stewart R.,
Characterization of short pulse laser-produced plasmas, J.
Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **51** (1994), 357–360.
- [Sherrill M. *et al.* 06] Sherrill M. E., J. Abdallah Jr., Csanak G., Dodd E. S., Fu-
kuda Y., Akahane Y., Aoyama M., Inoue N., Ueda H., Ya-
makawa K., Faenov A. Ya., Magunov A. I., Pikuz T. A. et
Skobelev I. Yu.,
*Spectroscopic characterization of an ultrashort-pulse-laser-
driven Ar cluster target incorporating both Boltzmann and
particle-in-cell models*, Phys. Rev. E **73** (2006), 066404.
- [Shiraishi *et al.* 02] Shiraishi T., Mori M. et Kondo K.,
*Estimation of the pulse width of x-ray emission from Xe clus-
ters excited by a subpicosecond intense Ti :sapphire laser
pulse*, Phys. Rev. A **65** (2002), 045201.
- [Silin 65] Silin V.P.,
Nonlinear high-frequency plasma conductivity, J. Exp. Theor.
Phys. **20** (1965), 1510.
- [Springate *et al.* 00] Springate E., Hay N., Tisch J.W.G., Mason M.B., Ditmire
T., Hutchinson M.H.R. et Marangos J.P.,
*Explosion of atomic clusters irradiated by high-intensity la-
ser pulses : Scaling of ion energies with cluster and laser
parameters*, Phys. Rev. A **61** (2000), 063201.
- [Springate *et al.* 03] Springate E., Aseyev S.A., Zamith S. et Vrakking M.J.J.,
*Electron kinetic energy measurements from laser irradiation
of clusters*, Phys. Rev. A **68** (2003), 053201.
- [Summers *et al.* 06] Summers H.P., Dickson W.J., O’Mullane M.G., Badnell
N.R., Whiteford A.D., Brooks D.H., Lang J., Loch S.D. et
Griffin D.C.,

Ionization state, excited populations and emission of impurities in dynamic finite plasmas : I. The generalized collisional-radiative model for light elements, Plasma Phys. Control. Fusion **48** (2006), 263.

T

- [Ter-Avetisyan *et al.* 01] Ter-Avetisyan S., Schnürer M., Stiel H., Vogt U., Radloff W., Karpov W. Sandner W. et Nickles P.V.,
Absolute extreme ultraviolet yield from femtosecond-laser-excited Xe clusters, Phys. Rev. E **64** (2001), 036404.
- [Tisch *et al.* 97] Tisch J.W.G., Ditmire T., Frasery D.J., Hay N., Mason M.B., Springate E., Marangos J.P. et Hutchinson M.H.R.,
Investigation of high-harmonic generation from xenon atom clusters, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **30** (1997), L709–L714.
- [Tong *et al.* 05] Tong X.M. et Lin C.D.,
Empirical formula for static field ionization rates of atoms and molecules by lasers in the barrier-suppression regime, J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys. **38** (2005), 2593–2600.

V

- [Van Regemorter 62] Van Regemorter H.,
Rate of collisional excitation in stellar atmospheres, Astrophys. J. **136** (1962), 906.

W

- [Whitten *et al.* 84] Whitten B.L., Lane N.F. et Weisheit J.C.,
Plasma-screening effects on electron-impact excitation of hydrogenic ions in dense plasmas, Phys. Rev. A **29** (1984), 945–952.
- [Wu *et al.* 02] Wu Z.Q., Han G.X., Yan J. et Pang J.Q.,
Plasma effects on electron impact ionization, J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys. **35** (2002), 2305–2311.

Y

- [Yannouleas *et al.* 92] Yannouleas C. et Broglia R.A.,
Landau damping and wall dissipation in large metal clusters, Ann. Phys. NY **217** (1992), 105.

[Yannouleas 85]

Yannouleas C.,
The wall formula for nuclear dissipation as a special limit of RPA damping, Nucl. Phys. A **439** (1985), 336.

Z

[Zhang *et al.* 02]

Zhang H., Cherkani-Hassani S., Bélenger C., Duponchelle M., Khouilid M., Oualim E.M. et Defrance P.,
Electron impact ionization of argon ions ($q=4-11$), J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys. **35** (2002), 3829–3845.

[Zweiback *et al.* 99]

Zweiback J., Ditmire T. et Perry M.D.,
Femtosecond time-resolved studies of the dynamics of noble-gas cluster explosions, Phys. Rev. A **59** (1999), R3166–R3169.

ÉTUDE THÉORIQUE DE L'INTERACTION ENTRE UNE IMPULSION LASER INTENSE ET UN AGRÉGAT DE GAZ RARE

L'irradiation d'agrégats de gaz rare de taille nanométrique par une impulsion laser brève (quelques centaines de femtosecondes) et intense ($I_0 > 10^{15}$ W.cm⁻²) génère un rayonnement X (multi-keV) de courte durée. Afin de comprendre et modéliser les mécanismes mis en jeu dans ce type d'interaction, nous avons repris un modèle hydrodynamique existant, le modèle "nanoplasma", où la cible est considérée comme une sphère diélectrique irradiée par le champ laser quasistatique, produisant un plasma de taille nanométrique. Nous avons cependant démontré que le modèle en l'état ne pouvait reproduire les résultats expérimentaux tels que les importants degrés d'ionisation observés et les spectres X associés. Nous avons alors inclus dans le modèle deux mécanismes supplémentaires qui améliorent significativement la dynamique d'ionisation :

- Nous avons introduit des processus d'ionisation d'ordres supérieurs en incluant des états excités intermédiaires $X^{q+} + e^- \rightarrow X^{q+*} + e^- \rightarrow \dots \rightarrow X^{(q+1)+} + 2e^-$. Nous avons pour cela utilisé une approche potentiel modèle pour décrire la structure électronique des ions (ou atomes) de l'agrégat et nous avons évalué les sections efficaces totales d'excitation et d'ionisation collisionnelles suivant le formalisme des ondes distordues.

- Nous avons étudié l'influence des phénomènes d'écran induits par la densité d'électrons libres sur la dynamique de l'interaction. À l'aide d'un potentiel d'écran sophistiqué, nous avons montré que les effets d'écran augmentent les sections totales d'ionisation et réduisent les sections d'excitation par rapport aux données non écrantées.

Le modèle nanoplasma amélioré permet à présent de reproduire les populations d'états de charge très élevés observés expérimentalement ainsi que la variation de l'émission He_α provenant d'agrégats d'argon en fonction des différents paramètres de l'interaction (durée d'impulsion, taille d'agrégat, éclairement crête, longueur d'onde). Nous avons également simulé les spectres d'émission X résolus en temps et en énergie. Ces spectres indiquent une durée d'émission ultra-brève (inférieure à 100 fs), et confirment ainsi que l'interaction laser-agrégat est une source de rayonnement utilisable dans le cadre d'applications à la science X ultra-rapide.

Mots clés : *Agrégats - Impulsions laser femtoseconde - Rayonnement X ultra-bref - Modèle nanoplasma amélioré - Approche potentiel modèle - Formalisme des ondes distordues - Effets d'écran*

THEORETICAL STUDY OF THE INTERACTION BETWEEN INTENSE LASER PULSES AND RARE GAS CLUSTERS

The irradiation of nanometer-scale rare gas clusters by a short (a few hundreds of femtoseconds) and intense ($I_0 > 10^{15}$ W.cm⁻²) laser pulse yields multi-keV short X-ray bursts. We employ an hydrodynamic model, the so-called "nanoplasma model", to understand the mechanisms that tailor the interaction. In this model, the cluster is treated as a dielectric sphere embedded in the quasistatic laser field leading to the formation of a plasma of nanometric size. We have shown that this model cannot reproduce the experimental results such as the high ionization states and associated X-ray spectra. We have thus included in the model two additional mechanisms that significantly improve the ionization dynamics :

- We have introduced high order ionization processes involving intermediate excited states $X^{q+} + e^- \rightarrow X^{q+*} + e^- \rightarrow \dots \rightarrow X^{(q+1)+} + 2e^-$. We have used a model potential approach to describe the electronic structure of the cluster's ions (and atoms), and we have computed the total excitation and ionization cross-sections in the distorted-wave Born approximation.

- We have studied the influence of screening phenomena induced by the electronic density on the interaction dynamics. By using a sophisticated potential, we have shown that screening effects enhance ionization and lower excitation cross sections with respect to the unscreened data.

The improved nanoplasma model allows us to reproduce the populations of highly charged states experimentally observed, and the variation of argon He_α emission with respect to the various experimental parameters (cluster's size, laser pulse duration, intensity and wavelength). We have further computed time- and energy-resolved X-ray spectra which emphasize ultra-short emission duration (less than 100 fs), and therefore indicate that cluster-based X-ray sources are adequate to ultrafast X-ray science applications.

Keywords : *Clusters - Femtosecond laser pulses - Ultrafast X-ray radiation - Improved nanoplasma model - Model potential approach - Distorted waves formalism - Screening effects*