



Faculté des Sciences
Département de Physique

MÉMOIRE

*Présenté en vue de l'obtention du diplôme de **MAGISTER***

ÉTUDE DE L'INTERACTION D'UN LASER FEMTOSECONDE INTENSE AVEC LES CLUSTERS ATOMIQUES LOURDS

Option :

Physique et Applications des Semi-conducteurs

Par:

Mr Khaled BEGGAS

Directeur de mémoire: Nouredine BOUCERREDJ MC. Univ. Annaba

Devant le jury

Président : Abdelaziz DOGHMANE Prof. Univ. Annaba

Examineurs : Zahia HADJOUR Prof. Univ. Annaba

Athmane MEDDOUR Prof. Univ. Guelma

Nouredine BOUKHAROUBA M.C. Univ. Guelma

DÉDICACE

A mon père et ma mère

A ma femme

A mes frères et sœurs

A tous ceux qui me sont chers



REMERCIEMENTS

Ce travail a été réalisé au sein du Laboratoire des Semi-Conducteurs (LSC), Faculté des Sciences, Département de Physique, Université Badji Mokhtar Annaba, UBMA. J'exprime ma très sincère gratitude au, Docteur Nouredine BOUCERREDJ, Maître de conférences à l'UBMA, pour m'avoir initié à la recherche dans le domaine de nanoplasma et pour le suivi des travaux présentés dans ce mémoire. C'est avec une grande sincérité, confiance et beaucoup de dynamisme et qualités scientifiques qu'il m'a encadré durant ces deux années, qu'il soit assuré de ma profonde reconnaissance.

Je remercie vivement Monsieur Abdelaziz DOGHMANE, Professeur à l'UBMA, pour l'honneur qu'il nous fait en acceptant la présidence de notre commission d'examen. Je tiens particulièrement à le remercier pour ses encouragements et ses suggestions.

Je remercie Madame Zahia HADJOUR, Professeur à l'UBMA, qui a accepté de juger ce travail. Qu'elle trouve ici l'expression de ma sincère gratitude.

J'exprime ma profonde gratitude à Monsieur Athmane MEDDOUR, Professeur à l'université de Guelma, qui me fait l'honneur de participer à ce jury.

Au Docteur Nouredine BOUKHAROUBA, Maître de conférences à l'université de Guelma, j'exprime mes remerciements et ma gratitude pour sa participation au jury de ce mémoire.

Je dis un grand merci à tous mes camarades du LSC, Issam, Beddief, Abdelhalim, Rafik et Adel pour la bonne ambiance qu'ils ont su entretenir au cours de ces années passées ensemble. J'associe également à ces remerciements tous les membres de l'UBMA, chercheurs, techniciens, étudiants et personnels administratifs avec qui j'ai eu le plaisir de travailler.

ملخص:

الهدف من هذه الدراسة، التي تتعلق بفيزياء المجاميع المادية للغاز النادر والليزر هو تحديد على وجه الخصوص تأثير مختلف العوامل الفيزيائية على التفاعل بين الليزر ومجاميع الغاز النادر . ولقد تم وضع برنامج يسمى Nanoplasma لفحص ديناميكية هذا التفاعل، هذا البرنامج وسيلة هامة للغاية لتسليط الضوء على المنافسة بين مختلف العمليات. والواقع أن فائدة المجاميع تكمن في توسطها في ترتيب المادة بين الذرات المعزولة والمادة الصلبة. تستحوذ المجاميع على كثافة ذرية عالية، مما سنع بدراسة تطور الخصائص الفيزيائية والكيميائية للذرة المعزولة ذات التركيب ضخيم.

على سبيل المثال مجاميع الغازات النادرة، التي درست في مجال حركيتها، بعد التفاعل لوحظ زيادة كبيرة في الضغط الهيدروديناميكي والكولمبي داخل المجاميع. ولقد استنتجنا أن الزيادة في الشدة تنتج حقل مغناطيسي كبير. وزيادة على ذلك ، فإن تأثير طول الموجة يظهر جليا على الضغط، وأيضا وجدنا أن الضغط الهيدروديناميكي هو المسؤول عن ديناميكية المجاميع . وقد لوحظت آثار جديدة تماما على المجاميع وإنتاج الأيونات المختلفة الشحنات والسريعة. دفع الالكترونات النشيطة وإنتاج الأشعة السينية المكثفة. وهذا يعكس، في الواقع، قوة التزاوج بين الإشعاع الكهرومغناطيسي ، والمادة على أساس المجاميع.

الكلمات المفتاحية: مجاميع الغازات النادرة ، التفاعل ليزر-بلازما ، Nanoplasma

RÉSUMÉ :

L'objectif de cette étude, qui s'inscrit dans le domaine de la physique des agrégats de gaz rare et du laser, est de repérer tout particulièrement l'influence des différents paramètres physiques sur l'interaction laser – agrégats de gaz rare. Un code appelé NANOPLASMA examine la dynamique de cette interaction, ce code est un outil extrêmement intéressant pour mettre en évidence la compétition entre les différents processus. En effet, l'intérêt pour les agrégats est le découlement de leur position intermédiaire dans l'arrangement de la matière entre les atomes isolés et le solide. Les agrégats possèdent une densité atomique locale élevée, ce qui a permis d'étudier l'évolution des propriétés physiques et chimiques d'un atome isolé à une structure plus massive. A titre d'exemple, pour les agrégats lourds, il a été examiné, dans le domaine dynamique, après l'ionisation, une augmentation considérable des pressions hydrodynamique et coulombienne à l'intérieur de l'agrégat. On a déduit que l'augmentation de l'intensité engendre un champ plus grand. De plus, l'effet de la longueur d'onde est marquant sur les pressions, avec une pression hydrodynamique toujours plus grande et responsable de la dynamique de l'agrégat. Des effets totalement nouveaux ont été observés avec les agrégats comme la production d'ions fortement multichargés et rapides, l'éjection d'électrons énergétiques ou encore la production de rayonnement X dur et intense. Ceci traduit, en fait, un renforcement du couplage entre le rayonnement électromagnétique incident et la matière en présence d'agrégats.

Mots clés : Nanoplasma, agrégats de gaz rare, interaction laser-plasma.

ABSTRACT

The objective of this study, which related to physical of rare gas and laser, is to identify and to understand the influence of various physical parameters on interaction laser-clusters rare gaze. A program has been developed called NANOPLASMA examine the dynamics of this interaction, this program is very important to shed light on the competition between the various processes. In fact the interest in the clusters is the spill of their intermediate position in the arrangement of the material among isolated atoms and the solid .the clusters have a high atomic density ,which was used to study the evolution of physical and chemical properties of a single atom with more massive. For example, clusters heavy were examined in the dynamic filed after irradiation a significant increase in hydrodynamic and irradiation a significant increase in hydrodynamic and pressure within the clusters. It was deduced that the increase in intensity produces a larger field. Moreover, the effect of wavelength on marking pressures, with still greater hydrodynamic pressure and the dynamics responsible for the clusters dynamic. Totally new effects have been observed with the clusters as the production of multicharged ions strongly and rapid ejection of energetic electrons or X-ray production hard and intense. This reflects, in fact, a stronger coupling between the incident electromagnetic radiation and matter in the presence of clusters.

Key words: nanoplasma, clusters of rare gas, laser-plasma interaction.

Liste des figures

Figure	Titre	Page
Figure I.1	<i>Potentiel de Lennard – Jones utilisé pour modéliser l'interaction de deux atomes de gaz rare.</i>	5
Figure I.2	<i>Arrangements cristallins observés pour les agrégats de gaz rare.</i>	6
Figure I.3	<i>a) Comparaison des spectres d'ions obtenus à proximité du seuil K (1s) de l'argon pour un atome, un agrégat de 400 atomes et un solide en fonction de l'énergie du photon incident [13] b) Spectres XPS d'agrégats d'argon obtenus pour trois tailles différentes et pour une énergie de photon de 310 eV [15].</i>	9
Figure I.4	<i>Principe schématique de l'ionisation multiphotonique.</i>	11
Figure I.5	<i>Représentation schématique des différents mécanismes d'ionisations</i>	13
Figure I.6	<i>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 3×10^{15} W/cm² [27].</i>	20

~~~~~

|                    |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |    |
|--------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| <b>Figure II.1</b> | <i>Schéma représentant les processus pris en compte par le modèle nanoplasma (L'agrégat est représenté par l'arc en trait plein) la polarisation et le champ à l'intérieur de l'agrégat (A), Les différents mécanismes d'ionisation (B), l'émission d'électrons (C), l'expansion de l'agrégat (D).</i>                                                                                                                                                                                                                            | 27 |
| <b>Figure II.2</b> | <i>Schéma des différents processus d'ionisation par effet de champ</i>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            | 30 |
| <b>Figure II.3</b> | <i>Taux d'ionisations collisionnels en fonction du potentiel d'ionisation <math>I_p</math> pour les ions <math>Ar^{q+}</math> (<math>q \in [0-8]</math>). Taux calculés avec une distribution aléatoire (+)((II.31) avec <math>N_{max} = 10000</math>), la forme analytique (II.32) (x), selon T.Ditmire (▲) [1]. Les paramètres fixés valent <math>N_e = 10^{21} \text{cm}^{-3}</math>, <math>T_e = 100 \text{ eV}</math>, <math>E = 10^{11} \text{V/m}</math> et <math>\lambda = 800 \text{ nm}</math>. Selon S.Micheau [2]</i> | 43 |

~~~~~

Figure III.1	<i>Variation du champ interne et externe en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $I = 1.10^{18} \text{ W/cm}^2$, $\tau = 300 \text{ fs}$)</i>	49
Figure III.2	<i>Variation du champ interne et externe en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $I = 5.10^{18} \text{ W/cm}^2$)</i>	50
Figure III.3	<i>Variation du champ externe en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $\tau=300 \text{ fs}$) avec des différentes intensités</i>	50
Figure III.4	<i>Variation du Champ interne en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $\tau=300 \text{ fs}$) avec des différentes intensités</i>	51
Figure III.5	<i>Variation de l'énergie des ions en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $\tau=300 \text{ fs}$) avec des différentes intensités</i>	52
Figure III.6	<i>Variation du nombre des électrons en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $I = 1.10^{18} \text{ W/cm}^2$, $\tau=300 \text{ fs}$)</i>	53
Figure III.7	<i>Variation du nombre des électrons en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $I = 5.10^{18} \text{ W/cm}^2$, $\tau=300 \text{ fs}$)</i>	53
Figure III.8	<i>Variation de la densité électronique par la densité critique (n_e/n_c) en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $I = 1.10^{17} \text{ W/cm}^2$, $\tau=300 \text{ fs}$)</i>	54
Figure III.9	<i>Variation des pressions hydrodynamique et coulombienne en fonction du temps pour un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $I = 3.10^{18} \text{ W/cm}^2$, $\tau=300\text{fs}$)</i>	55
Figure III.10	<i>variation des pressions hydrodynamique et coulombienne en fonction du temps pour un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $I = 5.10^{18} \text{ W/cm}^2$, $\tau=300\text{fs}$)</i>	56
Figure III.11	<i>Variation de la pression hydrodynamique dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $\tau=300\text{fs}$) avec des différente intensités</i>	56
Figure III.12	<i>Variation de la pression coulombienne dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $\tau=300\text{fs}$) avec des différente intensités</i>	57

Figure III.13	Variation du rayon de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $\tau=300\text{fs}$) avec des différentes intensités	58
Figure III.14	Variation du rayon de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$, $\tau=300\text{fs}$) avec des différentes longueurs d'onde	59
Figure III.15	Variation de la pression hydrodynamique à l'intérieur de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$) avec des différentes longueurs d'onde	60
Figure III.16	Variation de la pression colombienne à l'intérieur de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$) avec des différentes longueurs d'onde	61
Figure III.17	Variation de la pression colombienne et hydrodynamique à l'intérieur de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$, $\lambda=390\text{nm}$, $\tau=300\text{fs}$) avec des différentes longueurs d'onde	61
Figure III.18	Variation du champ externe en fonction du temps de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$, $\tau=300\text{fs}$) avec des différentes longueurs d'onde	62
Figure III.19	Variation du champ externe de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$, $\tau=300\text{fs}$) avec des différentes longueurs d'onde	63
Figure III.20	Variation du rayon de l'agrégat d'Argon soumis a un champ LAZER ($\lambda= 800\text{nm}$; $I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$, $\tau=300\text{fs}$) avec des différentes nombre d'atomes	64
Figure III.21	Variation de la pression colombienne en fonction du temps à l'intérieur de l'agrégat d'Argon soumis a un champ LAZER ($\lambda= 800\text{nm}$; $I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$) avec des différentes nombre d'atomes	65
Figure III.22	Variation de la pression hydrodynamique en fonction du temps à l'intérieur de l'agrégat d'Argon soumis a un champ LAZER ($\lambda= 800\text{nm}$; $I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$) avec des différentes nombre d'atomes	66
Figure III.23	Variation de la pression hydrodynamique et colombienne en fonction du temps à l'intérieur de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda= 800\text{nm}$; $I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$)	66
Figure III.24	Variation du champ externe à l'intérieur de l'agrégat d'Argon soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$; $I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$) avec des différentes nombre d'atomes	67
Figure III.25	Variation du champ interne en fonction du temps à l'intérieur de l'agrégat d'Argon soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$; $I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$) avec des différentes nombre d'atomes	68

Figure III.26	<i>Variation du champ interne en fonction du temps à l'intérieur de l'agrégat d'Argon soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$; $I=1.10^{18}$ W/cm^2) avec des différentes nombre d'atomes</i>	68
Figure III.27	<i>Variation du champ interne et externe à l'intérieur de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$; $I=1.10^{18}$ W/cm^2)</i>	69
Figure III.28	<i>Variation de la fréquence de collision é-ions à l'intérieur de l'agrégat d'Argon soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$; $I=1.10^{18}$ W/cm^2) avec des différentes nombre d'atomes</i>	70
Figure III.29	<i>Variation de la densité électronique normalise par la densité critique en fonction du temps pour l'agrégat d'Argon soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$; $I=1.10^{18}$ W/cm^2) avec des différentes nombre d'atomes</i>	71

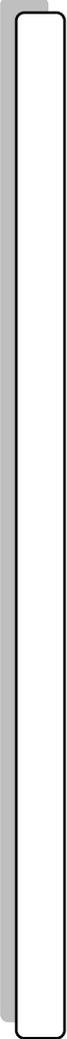
Liste des tableaux

Tableau	Titre	Page
Tableau I.1	<i>Caractéristiques du potentiel de Lennard – Jones utilisé pour modéliser l’interaction entre deux atomes de gaz rare (données d’après [8.9]).</i>	5
Tableau I.2	<i>Constantes liées à la structure cristalline de type cubique face centrée dans le cas des agrégats de gaz rare. Le paramètre de maille a est définie comme étant l’arête du cube élémentaire de la maille cristalline, la distance entre deux plus proche voisins, dans le cas d’un réseau CFC, est égale $a/2$ et le nombre d’atomes par maille est de 4 [9].</i>	7
Tableau I.3:	<i>Estimation des éclaircements BSI ainsi que de la valeur du paramètre de Keldysh γ à cet éclairciment laser pour une longueur d’onde de 400 nm.</i>	14

Sommaire

INTRODUCTION.....	1
 <u>CHAPITRE I. NOTIONS GENERALES</u>	
I.1. DEFINITIONS	4
I.1.1. L'agrégats. Généralités physiques des agrégats de gaz rare.....	4
a. Potentiel d'interaction.....	5
b. Structure cristalline.....	6
c. Déplacement des niveaux d'énergie.....	7
I.1.2. Le laser.....	9
I.2. MECANISMES FONDAMENTAUX.....	10
I.2.1. Ionisation par effet de champ	10
a. Ionisation multiphotonique.....	11
b. Ionisation par effet tunnel.....	12
c. Ionisation par suppression de la barrière coulombienne	13
I.2.2. Accélération des électrons dans le champ laser.....	15
I.2.3. Ionisation collisionnelle.....	16
a. Section efficace d'ionisation dans le formalisme de Lotz.....	17
I.3. MODELISATION DE L'INTERACTION: RESULTATS THEORIQUES	18
I.3.1. Modèle macroscopique: le modèle nanoplasma	18
I.3.2. Modèles de dynamique moléculaire.....	20
I.3.3. Bilan des résultats théoriques	23
 <u>CHAPITRE II. MODELE NANOPLASMA</u>	
II.1. PRINCIPE DU MODELE.....	26
II.2. SUPPOSITIONS	27
II.3. IONISATION OPTIQUE.....	29
II.4. CHAMP ELECTRIQUE INTERNE.....	32
II.4.1. Le champ laser.....	32
II.4.2. Le champ à l'intérieur de l'agrégat.....	33
II.5. FREQUENCE DE COLLISIONS ELECTRON-ION.....	34
II.5.1. De la nécessité d'un calcul adapté à l'interaction laser agrégat.....	34
II.5.2. Fréquence de collisions pour l'interaction laser-agrégat.....	36

II.6. IONISATION COLLISIONNELLE.....	38
II.6.1. Taux d'ionisation par collisions - méthode originelle.....	38
II.6.2. Amélioration du calcul du taux d'ionisation collisionnel par S. Micheau.	39
II.6.3. Taux d'ionisation collisionnel : forme analytique.....	41
II.7. EMISSION D'ELECTRONS.....	43
II.8. EXPANSION DE L'AGREGAT.....	44
CHAPITRE III. INTERPRETATION DES RESULTATS OBTENUS PAR L'ETUDE DE L'AGREGAT DE L'Ar AVEC LE MODEL NANOPLASMA	
III.1. Modèle dynamique d'ionisation.....	47
III.2. Effet de l'intensité LASER.....	48
III.3. Effet de la longueur d'onde.....	59
III.4. Effet du nombre d'atome.....	64
CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES.....	73
REFERENCES BIBLIOGRAPHIE.....	76



INTRODUCTION

INTRODUCTION

Depuis la découverte des agrégats atomiques dans le milieu des années 50, un nouveau domaine de recherche a été créé pour les physiciens et les chimistes. L'intérêt pour les agrégats se découle de leur position intermédiaire dans l'arrangement de la matière entre les atomes isolés et le solide. De part leur structure, les agrégats possèdent en effet une densité atomique locale élevée (de l'ordre de celle d'un solide) alors qu'en moyenne la densité atomique d'un agrégat de plusieurs ordres de grandeur inférieure et se rapproche à celle d'une cible gazeuse. Ceci a permis initialement d'étudier l'évolution des propriétés physiques et chimiques d'un atome isolé à une structure plus massive. A titre d'exemple, pour les agrégats métalliques, il a été découvert, dans le domaine optique, l'oscillation collective des électrons libres qui est responsable de l'absorption géante observée dans les spectres d'absorption.

Durant les années 90, les études concernant l'interaction laser – agrégats ont été étendues à des intensités laser dépassant 10^{14} W/cm², avec des impulsions laser ayant une durée de l'ordre de quelques dizaines de femtosecondes jusqu'à 1ps grâce au développement des sources laser de grande puissance. Dans ce régime de perturbation électronique intense de la matière des effets totalement nouveaux ont été observés avec les agrégats comme la production d'ions fortement multichargés et rapides, l'éjection d'électrons énergétiques ou encore la production de rayonnement X dure et intense. Ceci traduit, en fait, un renforcement du couplage entre le rayonnement électromagnétique incident et la matière en présence d'agrégats.

A la lumière des premières expériences réalisées par des différentes équipes concernant l'interaction laser intense – agrégats de gaz rare et les différentes études théoriques, on a tenté d'étudier l'influence des différents paramètres susceptibles de l'interaction comme l'intensité laser, la longueur d'onde, la durée d'impulsion, la taille et la nature des agrégats.

Un code appelé nanoplasma à été élaboré pour étudier la dynamique temporelle de l'interaction, ce code est un outil extrêmement intéressant pour mettre en évidence la compétition entre les différents processus.

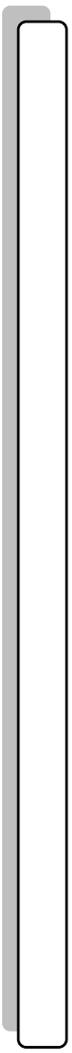
L'exposé du travail de mémoire suivant se situe dans le domaine actif de l'interaction laser agrégat. Ce mémoire est divisé en trois chapitres

Le premier chapitre comporte trois parties introductives La première consiste, après une définition des agrégats avec quelques généralités dans la physique des agrégats de gaz rare et le laser .ensuite une préention des mécanismes fondamentaux intervenant dans la dynamique de l'interaction, La troisième propose un tour d'horizon des modèles théoriques suivis par des différentes résultats théoriques

Le deuxième chapitre est promis à la description du modèle hydrodynamique que nous avons choisi pour simuler cette interaction, Ce modèle, initialement développé par T. Ditmire et coll. [1]. Nous présentons tout d'abord les propositions inhérentes à ce modèle, puis les déférents processus pris en compte pour modéliser la réponse de l'agrégat à l'impulsion laser.

Dans le troisième chapitre nous proposons une interprétation des résultats obtenus par l'étude de l'agrégat de l'Argon avec le model nanoplasma. On débute par ce modèle dynamique de l'ionisation dans un agrégat de l'argon soumis à une impulsion laser intense et brève ainsi que les différents résultats sur le champ interne et externe et sur la pression, ensuite on étudie l'effet des différents paramètres de l'interaction tel que l'intensité du laser utilisé, la longueur d'onde et la taille de l'agrégat irradiée

Enfin, nous présenterons la conclusion véhiculée par quelques perspectives offertes par ce travail.



CHAPITRE I

NOTIONS GENERALES

Chapitre I :**NOTIONS GENERALES****I.1. DEFINITIONS****I.1.1. L'agrégat**

La première observation expérimentale concernant la condensation d'atomes d'argon au sein d'un jet effusif est due à Becker et collaborateurs en 1956 [5]. Depuis cette date, les physiciens ont réalisé de nombreuses études, tant expérimentales que théoriques, afin de maîtriser la production et la caractérisation de tels jets d'agrégats [5.6]. D'un point de vue pratique, la production d'agrégats à partir d'atomes de gaz rare ne présente donc pas de réelles difficultés à l'heure actuelle même si des problèmes demeurent en ce qui concerne une caractérisation complète dans cette cible (taille des agrégats, distribution en taille, taux de condensation...). Au début de ce chapitre, nous allons présenter les principales considérations physiques (propriétés, formation, croissance) concernant les agrégats. Puis nous discuterons les travaux expérimentaux et théoriques qui nous ont permis d'évaluer les caractéristiques intrinsèques de notre jet d'agrégats (taille des agrégats, densité atomique) et quelques idées sur la distribution en taille des agrégats.

Généralités physiques des agrégats de gaz rare

Les agrégats, composés d'un nombre fini d'atomes, constituent un pont entre un atome isolé et un solide infini. En particulier, l'effet de la taille de ces objets nanométriques continue d'être intensivement étudié tant sur leurs propriétés physiques (optiques, électroniques, magnétiques...) que sur leurs propriétés chimiques (réactivité, solvatation...) : le papier de revue de J. Jortner [7] donne à ce sujet de nombreuses informations. Les principales considérations physiques concernant le potentiel d'interaction entre deux atomes de gaz rare au sein d'un agrégat, la structure des agrégats ainsi que des informations quantitatives à propos de l'énergie de liaison des électrons des atomes présents au sein d'un tel édifice nanométrique [4]. On va présenter dans ce qui suit :

a. Potentiel d'interaction

Les agrégats de gaz rare (Ar) que nous allons étudier sont des agrégats de type "Van der Waals" dont les atomes constituant l'édifice moléculaire ont une énergie de liaison de l'ordre de la dizaine de meV. Dans ces agrégats, l'interaction entre deux atomes de gaz rare est généralement décrit par un potentiel d'interaction [8] de type Lennard – Jones dont l'expression analytique (Figure I-1), comportant une partie répulsive à courte distance internucléaire et une partie attractive à grande distance, est de la forme :

$$V(R) = \varepsilon \left[\left(\frac{R}{R_0} \right)^{-12} - 2 \cdot \left(\frac{R}{R_0} \right)^{-6} \right] \quad (I.1)$$

Avec ε : la profondeur maximale du puits de potentiel pour lequel la distance internucléaire est égale à la distance d'équilibre ($R = R_0$). Les valeurs de ε , R_0 ainsi que le rayon classique de collision σ (encore appelé distance minimale d'approche, défini tel que $V(\sigma) = 0$) sont récapitulées dans le Tableau et de plus on donne aussi les valeurs des autres exemples des agrégats de gaz rare (Kr et Xe)

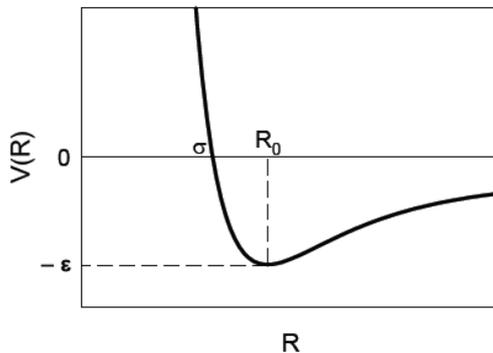


Figure I.1 : Potentiel de Lennard – Jones utilisé pour modéliser l'interaction de deux atomes de gaz rare.

GAZ	ε (en meV)	R_0 (en Å)	σ (en Å)
Ar	10,30	3,84	3,42
Kr	14,88	4,03	3,59
Xe	19,34	4,56	4,06

Tableau I.1 : Caractéristiques du potentiel de Lennard – Jones utilisé pour modéliser l'interaction entre deux atomes de gaz rare (données d'après [8.9]).

b. Structure cristalline

La structure géométrique de tels arrangements polyatomiques est bien connue grâce, notamment, aux nombreux travaux de Farges et collaborateurs dans ce domaine [10]. Dans le cas des petits agrégats de gaz rare, l'assemblage poly – icosaédrique (de symétrie pentagonale) domine [11] (*Figure 1.2*). A partir d'une taille critique encore débattue, se trouvant approximativement vers 800 atomes par agrégat d'après les résultats obtenus par diffraction d'électrons [12], la structure icosaédrique devient de moins en moins stable par rapport à la structure cristalline classique CFC (Cubique Face Centrée) ; et les agrégats de gaz rare changent ainsi progressivement de phase cristalline [10]

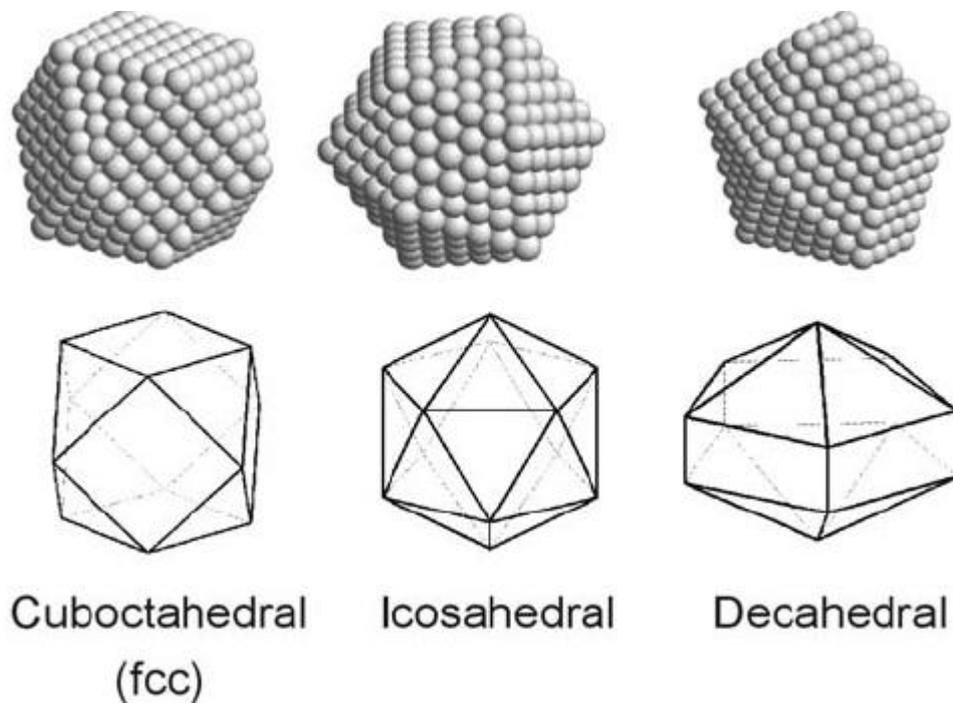


Figure 1.2 : Arrangements cristallins observés pour les agrégats de gaz rare. Les structures de symétrie d'ordre 5 (icosaédrique et décaédrique) dominent pour les petits agrégats contenant moins de 800 atomes tandis que l'arrangement cubique face centrée (cuboctaédrique) domine pour les agrégats plus gros.

A partir de 1000 à 6000 atomes / agrégat (ce qui est le domaine de taille d'agrégats dans laquelle nous travaillons), il est généralement admis que l'édifice cristallin a atteint la même structure stable CFC que celle observée dans le cas du solide massif ; les constantes pour la structure cristalline du solide sont récapitulées dans le (*Tableau 1.2*). La

stabilité de la structure cristalline cubique, plutôt qu'hexagonale compact plus stable pour ce type d'interaction, reste cependant encore à l'heure actuelle sujet à de nombreuses investigations

GAZ	Paramètre de la maille a (en Å)	Distance entre plus proche voisin (en Å)	Densité atomique locale en (at./cm ³)
Ar	5,32	3,76	$2,66 \cdot 10^{22}$
Kr	5,81	4,11	$2,04 \cdot 10^{22}$
Xe	6,34	4,49	$1,57 \cdot 10^{22}$

Tableau I.2 : Constantes liées à la structure cristalline de type cubique face centrée dans le cas des agrégats de gaz rare. Le paramètre de maille a est définie comme étant l'arête du cube élémentaire de la maille cristalline, la distance entre deux plus proche voisins, dans le cas d'un réseau CFC, est égale à $a/2$ et le nombre d'atomes par maille est de 4 [9].

c. Déplacement des niveaux d'énergie

Des changements dans la structure électronique des atomes apparaissent lorsque l'on compare les agrégats de taille nanométrique avec les mêmes atomes en phase gazeuse. En effet, l'interaction dipolaire entre les atomes de l'agrégat de Van der Waals, responsable de la cohésion de la macromolécule, va induire des déplacements des niveaux d'énergie des électrons par rapport à l'atome isolé, se traduisant par une modification des potentiels d'ionisation des atomes à l'intérieur de l'agrégat. Il n'existe pas, à notre connaissance, de données complètes sur l'évolution de l'énergie de liaison pour tous les électrons des atomes présents à l'intérieur de l'agrégat en fonction de leur taille. Cependant, certaines études expérimentales permettent d'évaluer quantitativement l'effet de la taille sur l'énergie de liaison des électrons.

1°) Evolution du premier potentiel d'ionisation avec la taille

Le premier potentiel d'ionisation des petits atomes d'agrégats de gaz rare (inférieur à 30 atomes) a été étudié par l'équipe de Ding et collaborateurs du HMI (Hahn Meitner Institut) à Berlin en utilisant une méthode de coïncidence électrons – ions lors de

l'ionisation par un rayonnement synchrotron d'agrégats de gaz rare produits par expansion adiabatique. Leurs résultats expérimentaux montrent qu'asymptotiquement le premier potentiel d'ionisation des atomes de l'agrégat tend vers le travail d'extraction du solide. Celui-ci diffère de l'ordre de 10 % (pour l'argon) à 20 % (pour le xénon) du premier potentiel d'ionisation des atomes isolés. Ceci se traduit par une baisse de l'éclairement d'apparition donnée typiquement par I_{BSI} l'ionisation par suppression de la barrière coulombienne (BSI : Barrier Suppression Ionization") comme nous allons voir dans les paragraphes suivants. Pour l'argon, I_{BSI} est déplacé de $(2,5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2)$ (atome) à $1,5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (solide) et pour le xénon cet éclairement de saturation passe de $8,7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (atome) à $3,5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (solide) [14]. Cet effet sur les électrons de valence n'est, à l'heure actuelle, pris en compte dans aucun modèle traitant de la dynamique d'un agrégat sous champ laser intense.

2°) Evolution de l'énergie de liaison des électrons internes avec la taille

La détermination des énergies de liaison des électrons internes pour les atomes d'un agrégat s'obtient par des mesures de spectroscopie d'absorption X (EXAFS : "Extended X-ray Absorption Fine structure Spectroscopy") [13] ou de spectroscopie de photoélectron induite par rayonnement X (XPS : "X-ray Photoemission Spectroscopy") [15].

En ce qui concerne l'argon, les niveaux $1s$, $2p_{1/2}$ et $2p_{3/2}$ ont été étudiés expérimentalement et nous présentons sur la (Figure 1.3) les spectres qui permettent d'en extraire l'énergie de liaison. En ce qui concerne le seuil K ($1s$) de l'argon, les auteurs estiment que le seuil d'absorption $1s$ est décalé d'un eV plus haut pour l'agrégat par rapport à un atome libre. De même, les spectres XPS dans la région $2p$ pour différentes tailles d'agrégats indiquent un décalage d'un eV pour les énergies de liaison des niveaux $2p_{1/2}$ et $2p_{3/2}$ dans le cas du solide par rapport à une cible purement atomique [14].

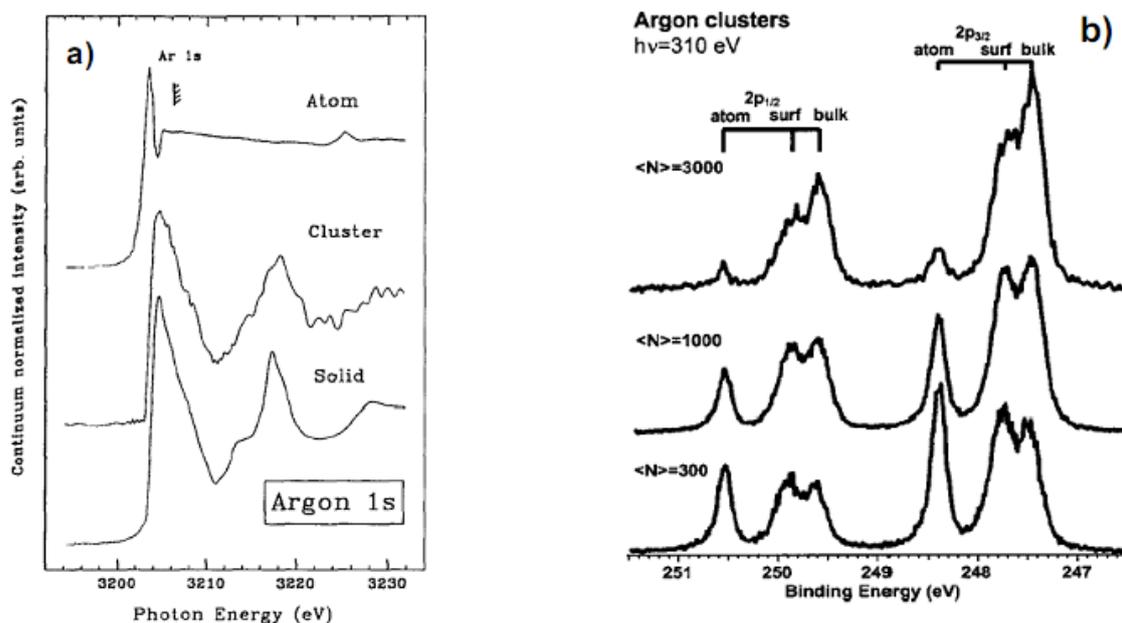


Figure 1.3: a) Comparaison des spectres d'ions obtenus à proximité du seuil K (1s) de l'argon pour un atome, un agrégat de 400 atomes et un solide en fonction de l'énergie du photon incident [13] b) Spectres XPS d'agrégats d'argon obtenus pour trois tailles différentes et pour une énergie de photon de 310 eV [15].

1.1.2. Le laser

Dans ces dernières années le développement des sources lasers ultra – courtes (jusqu'à quelques dizaines de femtosecondes) et intenses (\sim TW) a été rendu possible grâce à l'utilisation combinée de l'oxyde d'aluminium dopé au titane (Ti: Al₂O₃) comme milieu amplificateur et de la technique CPA ("Chirp Pulse Amplification") [16]. De tels lasers de puissance sont maintenant présents dans de nombreux laboratoires à travers le monde et il est actuellement possible de caractériser parfaitement les impulsions laser délivrées par ces sources femtosecondes tant du point de vue spectral et temporel que spatial. Le serveur LUCA (Laser Ultra – Court Accordable) du CEA Saclay, est un laser femtoseconde de puissance qui bénéficie de la présence de nombreux diagnostics en ligne permettant de caractériser au mieux les impulsions laser.

1.2. MECANISMES FONDAMENTAUX

Nous allons exposer dans ce paragraphe les processus fondamentaux intervenant lors de l'interaction d'un laser de puissance avec des agrégats et qui sont pris en compte dans les différentes approches théoriques [2.3.4]. Il s'agit de :

- ✓ l'ionisation par effet de champ des atomes de l'agrégat
- ✓ le chauffage par le champ laser des électrons libérés initialement par OFI (Optical field ionization).
- ✓ l'ionisation collisionnelle induite par les électrons présents au sein de l'agrégat.

II.2.1. Ionisation par effet de champ

L'ionisation par effet de champ est traditionnellement séparée en deux régimes :

L'ionisation multiphotonique et l'ionisation par effet tunnel. La classification entre ces deux régimes est guidée par la valeur du paramètre adiabatique de Keldysh γ qui correspond au rapport entre l'énergie de l'électron lié à l'atome et son énergie dans le champ laser. Ce paramètre γ est défini par :

$$\gamma = \sqrt{\frac{E_i}{2 \cdot U_p}} \quad (1.2)$$

Où E_i est l'énergie d'ionisation de l'électron et U_p l'énergie pondéromotrice d'un électron libre dans le champ laser ayant une énergie de dérive nulle. La valeur d' U_p est donnée par l'expression:

$$U_p (eV) = 9.33 \times 10^{-14} \cdot \lambda^2 \cdot I \quad (1.3)$$

Avec λ : la longueur d'onde (μm)

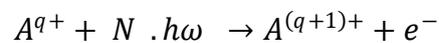
I : l'éclairement laser (W/cm^2)

La condition $\gamma \gg 1$ correspond au régime multiphotonique tandis que $\gamma \leq 1$ indique une ionisation par effet tunnel. Afin d'estimer la valeur de ce paramètre de Keldysh, nous allons tout d'abord présenter le modèle de l'ionisation multiphotonique puis ensuite les

deux modèles d'ionisation par effet de champ (effet tunnel et suppression de la barrière coulombienne BSI : "Barrier Suppression Ionization").

a. Ionisation multiphotonique

Bien que l'existence de transitions multiphotoniques ait été, théoriquement, envisagée très tôt dans les années trente, il aura fallu attendre l'arrivée de sources électromagnétiques relativement intenses pour observer ce phénomène tout d'abord dans le domaine des radiofréquences [17] puis dans le domaine optique. L'ionisation d'un atome ou d'un ion peut également être décrite par un mécanisme multiphotonique [18] du type :



L'absorption simultanée de N photons pour porter l'électron d'un état lié vers le continuum se traduit, expérimentalement, par un nombre d'ions variant en fonction de l'éclairement en I_N pour ($I < I_{BSI}$) puis en $I_{3/2}$ pour des éclairements laser plus grands [19] : ceci traduit une saturation du taux d'ionisation avec l'éclairement, le nombre d'ions augmentant par l'éclairement d'apparition (régime de saturation). A. L'Huillier et al. [19], pour la première fois, la mise en évidence expérimentalement du processus d'ionisation en régime d'impulsion longue (> ps). En particulier, ils ont montré qu'un atome de xénon, soumis à un éclairement de quelques 10^{12} W/cm², est ionisé par l'absorption simultanée de 6 photons et qu'il est ensuite possible de produire du Xe²⁺ par l'absorption de 10 photons à une longueur d'onde de 1064 μm. Ce mécanisme d'ionisation est représenté schématiquement sur la (Figure I.4)

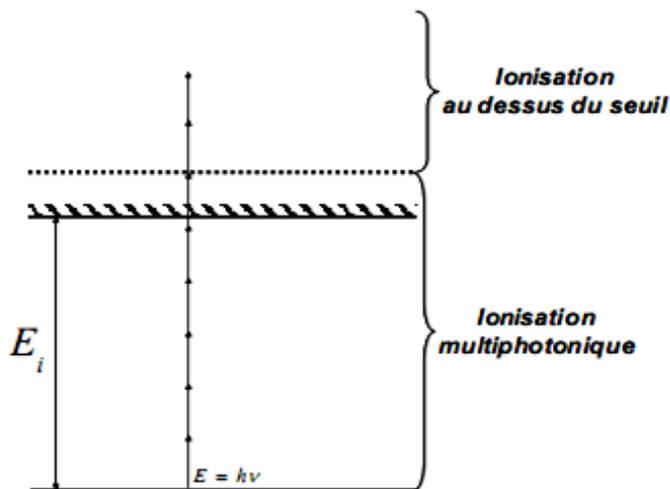


Figure I.4.: Principe schématique de l'ionisation multiphotonique.

En première approximation, la section efficace d'ionisation multiphotonique dépend de l'éclairement de saturation suivant la relation (1.4)

$$\sigma_{ionisation} \propto \left(\frac{I}{I_{BSI}} \right)^N \quad (1.4)$$

Avec N le nombre de photons absorbés : à 800 nm, $N \sim 270$ pour l'Ar⁹⁺ et $N \sim 590$ pour l'Ar¹⁶⁺. Ainsi, l'ionisation multiphotonique ne peut intervenir, même à très faible éclairement, que pour les ions de faible état de charge. Ce mécanisme n'est formellement pris en compte dans aucun modèle traitant de l'interaction laser – agrégats.

b. Ionisation par effet tunnel

D'une manière tout à fait générale, les différents modèles d'ionisation par effet tunnel considèrent le champ laser comme classique et statique. L'ajout du terme d'interaction dipolaire électrique au potentiel coulombien crée une barrière de potentiel de telle façon que l'électron peut alors avoir une probabilité assez grande pour la franchir par effet tunnel (*Figure 1.5*). Pour l'ionisation de l'atome d'hydrogène, le taux d'ionisation par effet tunnel dans un champ électrique statique a été établi par Landau et Lifshitz [20] :

$$W_{tun}^{stat}(E) = 4 \cdot \omega_0 \cdot \frac{E_H}{E} \cdot \exp \left[-\frac{2}{3} \times \frac{E_H}{E} \right] \quad (1.5)$$

Où ω_0 est l'unité atomique de fréquence ($\omega_0 = 4,134 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$) et E_H est le champ électrique sur la première orbite de Bohr $E_H = m^2 \cdot e^5 \cdot h^{-4} = 5,142 \times 10^9 \text{ V/cm}$. Cette expression se généralise facilement pour un ion hydrogénoïde en remplaçant E_H par $E_0 = (2 \cdot E_i)^3$

Quand l'équation (1.5) est moyennée, on obtient alors pour un ion hydrogénoïde de :

$$W_{tun}^{alt}(E) = \left(\frac{3 \cdot E}{\pi \cdot E_0} \right)^{\frac{1}{2}} \cdot W_{tun}^{stat}(E) \quad (1.6)$$

Pour des ions non hydrogénoïdes, le taux d'ionisation est modifié et il est habituellement donné par l'équation d'Ammosov, Delone et Krainov (appelée équation ADK), équation 1 de [21] :

$$W_{tun}^{stat}(E) = \frac{\omega_0}{2} \cdot |C_{nl}|^2 \cdot E_i \cdot \frac{(2l+1)(l+|m|)}{2^{|m|} \cdot |m|! (l-|m|)!} \left[2 \cdot \frac{E_0}{E} \right]^{2n^* - |m| - 1} \times \exp \left[-\frac{2}{3} \cdot \frac{E_H}{E} \right] \quad (1.7)$$

avec :

n^* : le nombre quantique principal effectif donné par : $n^* = Z \times (2E_i)^{-1/2}$. en unité atomique) avec Z l'état de charge de l'ion résultant ;

l : le nombre quantique associé au moment angulaire ;

m : le nombre quantique magnétique (en fait, dans le calcul, le taux d'ionisation est moyenné sur m pour un l donné) ;

C_{nl} : une constante approximativement égale à deux (pour Ar^{1+} $C_{nl} = 25$)

c. Ionisation par suppression de la barrière coulombienne

Dans le modèle BSI [22], un électron ne peut s'échapper du potentiel de l'ion parent que si l'abaissement de la barrière coulombienne dû au champ laser est suffisant (*Figure I-5*). Cette approche unidimensionnelle suppose la superposition du potentiel coulombien avec un champ laser quasi – statique (approximation basse fréquence).

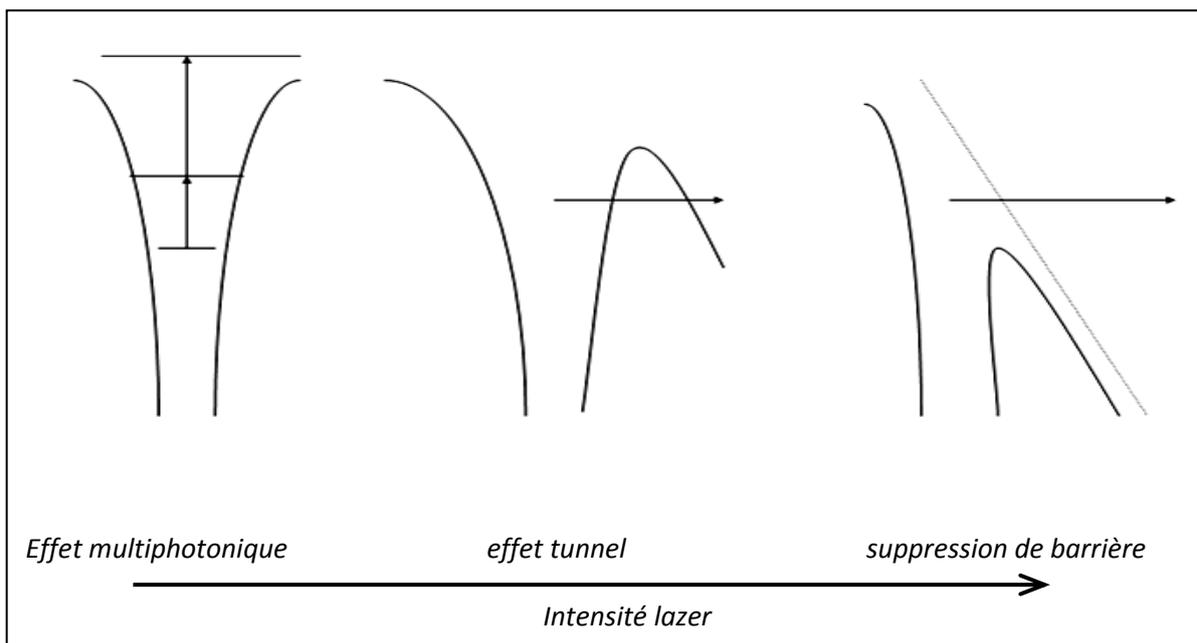


Figure I.5. Représentation schématique des différents mécanismes d'ionisations

Ce modèle binaire (soit l'électron est libre, soit il est lié) ne permet pas de calculer des taux d'ionisation ni d'estimer la variation du nombre d'ions en fonction de l'éclairement mais permet, par contre, d'évaluer l'éclairement seuil à partir duquel la saturation de la

production d'ions d'un état de charge q donné se produit. L'intensité de saturation (ou éclairement BSI : IBSI) est donnée par l'expression :

$$I_{BSI} (W / cm^2) \approx 4 \cdot 10^9 \times \frac{E_i^4 (eV)}{q^2} \quad (1.8)$$

Soit dans le système d'unités usitées

CHARGE	E_i	I (BSI)	paramètre de keldyche	
			$\lambda (\mu m) =$	0,4
1	15,76	$2,46 \cdot 10^{14}$	1,46	
2	26,63	$5,02 \cdot 10^{14}$	1,33	
3	40,74	$1,22 \cdot 10^{15}$	1,06	
4	59,81	$3,19 \cdot 10^{15}$	0,79	
5	75,02	$5,06 \cdot 10^{15}$	0,70	
6	90,01	$7,29 \cdot 10^{15}$	0,64	
7	124,32	$1,94 \cdot 10^{16}$	0,46	
8	143,46	$2,64 \cdot 10^{16}$	0,43	
9	422,45	$1,57 \cdot 10^{18}$	0,09	
10	478,69	$2,10 \cdot 10^{18}$	0,09	
11	538,96	$2,78 \cdot 10^{18}$	0,08	
12	618,26	$4,05 \cdot 10^{18}$	0,07	
13	686,11	$5,24 \cdot 10^{18}$	0,07	
14	755,15	$6,63 \cdot 10^{18}$	0,06	
15	584,78	$2,07 \cdot 10^{18}$	0,10	
16	918	$1,10 \cdot 10^{19}$	0,05	
17	4120,02	$3,98 \cdot 10^{21}$	0,01	
18	4426,2	$4,73 \cdot 10^{21}$	0,01	

Tableau I.3: estimation des éclaircements BSI ainsi que de la valeur du paramètre de Keldysh γ à cet éclaircissement laser pour une longueur d'onde de 400 nm.

Nous présentons dans le (*Tableau I-3*) les éclairagements BSI ainsi que la valeur du paramètre γ dans les cas de l'argon et du xénon que nous avons étudiés plus particulièrement dans notre étude. On notera que le laser utilisé ($I < 10^{17}$ W/cm²) ne permet en aucun cas d'obtenir de l'Ar⁹⁺ ni du Xe¹⁹⁺ dans le cadre de cette approche. Nous voyons également que le paramètre de Keldysh γ est proche ou inférieur à l'unité à proximité de I_{BSI} dans nos conditions expérimentales. L'ionisation par effet tunnel joue donc un rôle prédominant lors des étapes d'ionisation par effet de champ aux longueurs d'onde où nous travaillons et à proximité de ces éclairagements. Par contre, pour des longueurs d'onde plus petites ($\lambda < 400$ nm) ou à des éclairagements plus faibles ($I \ll I_{BSI}$), l'ionisation multiphotonique peut avoir un rôle prépondérant lors de l'ionisation par effet de champ. En particulier : pour l'Ar⁹⁺, on aura $\gamma \gg 1$ si $I \ll 3,5 \times 10^{15}$ W/cm² à 800 nm ou encore si $I \ll 1,4 \times 10^{16}$ W/cm² à 400 nm.

Des résultats expérimentaux antérieurs [22.23] dans le domaine de l'interaction laser – atome ont montré que le modèle ADK reproduit globalement l'évolution de la production ionique en fonction de l'éclairagement laser. Pour les ions de faible état de charge et à des éclairagements très inférieurs à l'éclairagement de saturation, des déviations existent néanmoins entre les prédictions de la formule [I.7] et les taux d'ions expérimentaux [24] qui peuvent s'interpréter comme étant dues à la contribution du processus d'ionisation multiphotonique.

1.2.2. Accélération des électrons dans le champ laser

En considérant un électron libéré de l'ion parent à l'instant t_0 avec une vitesse initiale nulle, il est possible de montrer que l'énergie moyenne des électrons dans le champ laser $\langle K_{e^{laser}} \rangle$ peut être séparée en deux contributions distinctes :

$$\langle K_e^{laser} \rangle = U_p + 2U_p \sin^2(\omega \cdot t_0) = \langle K_e^{osc} \rangle + T \quad (I.9)$$

Avec

T : l'énergie initiale des électrons libérés lors de l'ionisation par effet de champ. Cette énergie s'identifie à l'énergie de dérive des électrons dans le champ laser et dépend fortement de l'instant initial d'ionisation t_0 .

K_e^{osc} : L'énergie d'oscillation (encore appelée énergie pondéromotrice) des électrons dans le champ laser avec

$$(K_e^{osc})_{max} = 2U_p \quad (I.10)$$

1.2.3. Ionisation collisionnelle

L'ionisation par effet de champ est un mécanisme qui se produit aussi bien dans le cas d'une cible gazeuse atomique qu'avec des agrégats. Pour un gaz de faible densité atomique, l'ionisation par effet de champ décrit l'ensemble du processus d'ionisation. Par contre, la grande densité électronique à l'intérieur d'un agrégat (de l'ordre de celle d'un solide) permet aux électrons initialement produits par effet de champ et chauffés lors de l'interaction de continuer l'ionisation des ions par des collisions électrons – ions inélastiques.

D'une manière générale, dans un plasma, les électrons se déplacent avec une vitesse bien plus grande que les ions et la vitesse de collision peut alors être prise égale, en première approximation, à la vitesse des électrons. Le taux d'ionisation collisionnelle s'écrit sous la forme générale suivante :

$$W^{coll} = n_e \cdot \sigma_{EII} \cdot V_{\text{électrons}} \quad (I.11)$$

Avec

σ_{EII} : Section efficace d'ionisation par impact électronique (*EII* : " *Electron Impact Ionization* ").

$V_{\text{électrons}}$: la vitesse des électrons

n_e : la densité électronique.

Nous allons, dans la suite de ce paragraphe, présenter l'expression analytique de la section efficace d'ionisation par impact électronique σ_{EII} dans le cadre du formalisme de Lotz puis discuter la validité de ce formalisme à partir des mesures expérimentales existant dans la littérature.

a. Section efficace d'ionisation dans le formalisme de Lotz

La section efficace d'ionisation par impact électronique σ_{EII} dépend de l'énergie incidente (K_e) de l'électron venant collisionner ainsi que de l'état de charge de l'ion considéré ($q+$) et, plus généralement, de sa configuration électronique. Les taux d'ionisation collisionnelle sont habituellement calculés à partir de la formule analytique semi – empirique [25] pour la section efficace d'ionisation :

$$\sigma_{EII} = \sum_{i=1}^N a_i \cdot p_i \cdot \frac{\ln(K_e/E_i)}{K_e \cdot E_i} \times \left\{ 1 - b_i \cdot \exp \left[-c_i \cdot \left(\frac{K_e}{E_i} - 1 \right) \right] \right\} \text{ pour } K_e \geq E_i \quad (I.12)$$

Avec :

K_e : l'énergie cinétique (en eV) de l'électron incident ;

a_i , b_i et c_i : des constantes déterminées expérimentalement ou théoriquement. Elles dépendent a priori de l'état de charge considéré ;

p_i : le nombre d'électrons optiques présents dans la couche i ;

E_i : le potentiel d'ionisation (en eV) de l'électron dans la couche i ;

N : le nombre de couches internes à prendre en compte.

En fait, afin de simplifier le calcul de la section efficace d'ionisation par impact électronique, Lotz a également proposé une approximation généralement utilisée et qui s'écrit :

$$\sigma_{EII} = A \cdot p_i \cdot \frac{\ln(K_e/E_i)}{K_e \cdot E_i} \quad \forall K_e \geq E_i \quad (I.13)$$

Avec $A = 4,5 \times 10^{-14} \text{ cm}^2 \cdot \text{eV}^2$

Cette expression ne considère en fait que la participation à l'ionisation par impact électronique des électrons de valence (couche externe) de l'ion et néglige la contribution des couches plus internes. (donc on ne peut pas l'utiliser dans le cas des électrons de cœur.

1.3. MODELISATION DE L'INTERACTION : RESULTATS THEORIQUES

Les agrégats arrangent un milieu intermédiaire entre les atomes et les solides. Par conséquent, un modèle de dynamique moléculaire est un modèle macroscopique, le modèle nanoplasma tente 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 certains différents développements dans le cadre de ces modèles.

1.3.1. 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 nommé "modèle nanoplasma" [1]. 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 collisionnelle 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 $n_c = (m_e \epsilon_0 \omega_0^2) / e^2$,

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 [26]. La *(Figure 1.6)* 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 [27]. 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.

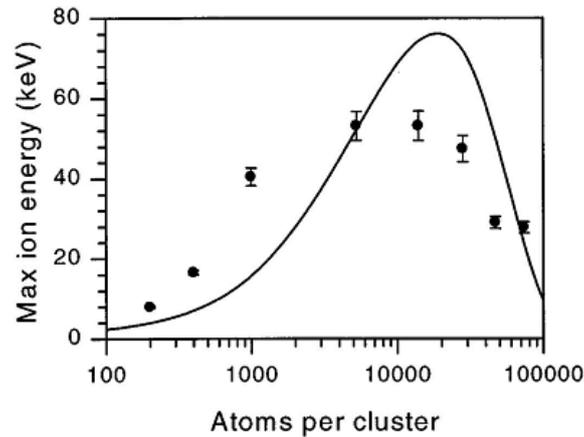


Figure 1.6 : Énergie ionique maximale obtenue expérimentalement (●) et théoriquement (—) en fonction de la taille des agrégats de xénon irradiés par une impulsion laser de 230 fs et 3×10^{15} W/cm² [27].

H. Milchberg et coll. ont étendu ce modèle en incluant une dépendance radiale de la densité électronique [28]. 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.

1.3.2. 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 [29]. 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 [2]. 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 nommé 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 [30]. Le modèle inclue 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 [31]. 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) [32]. Chaque macroparticule est composée de n particules identiques (électrons, ions ou atomes) de charge nq et de masse nm , q et m étant les charges 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/cm². 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 femtoseconds 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 termes de taille d'agrégats. En effet, d'après les auteurs, pour de plus gros agrégats, le nombre de particules composant une

macroparticule devient trop conséquente 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 restreint à des systèmes de petite taille.

1.3.3. 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'agrégat. Les électrons libres peuvent alors quitter l'agrégat si leur énergie est suffisante. D'après les modèles, plus le rayon de l'agrégat augmente et plus le nombre d'électrons éjectés en dehors de l'agrégat diminue. Ainsi, pour de petits agrégats, le défaut de charges négatives induit une explosion coulombienne de l'agrégat. Contrairement, lorsque le rayon augmente, l'expansion de l'agrégat 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.

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 [33]). 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. L'objectif de ce travail étant de comprendre, modéliser 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 nanoplasma amélioré.



CHAPITRE II

MODELE NANOPLASMA

Chapitre II :**MODELE NANOPLASMA**

T.Detmire et coll. [1] ont proposé en 1996 un modèle phénoménologique unidimensionnel permettant de décrire la dynamique conduisant à l'explosion des agrégats de gaz rares soumis à des champs lasers intenses. Ce modèle a pris l'appellation commune de modèle nanoplasma car la dynamique générale de l'interaction, une fois passées les premières phases d'excitation, peut être comprise en regardant l'évolution générale d'un groupe d'électrons libres et d'ions de différentes charges [4.5.35].

Le modèle nanoplasma donne accès à l'évolution temporelle simultanée de plusieurs propriétés de l'agrégat, à savoir entre autre son rayon, le nombre ainsi que la température des électrons libres qu'il contient, la charge [36] de chacun de ses atomes, le nombre et l'énergie des électrons émis. Il donne accès à des observables moyennes et suppose l'absence des gradients de densité et de la température.

II.1. Principe du modèle

La (Figure II.1) présente le schéma de principe du modèle nanoplasma. Lorsque l'intensité du champ électrique du laser E_{ext} devient suffisante, les charges positives et négatives se déplacent par rapport à leurs positions d'équilibre. Ce déplacement induit une polarisation P qui crée elle-même un champ électrique à l'intérieur de l'agrégat qui s'oppose au champ initialement appliqué (Cadre A). Sous l'action du champ laser, les atomes composant l'agrégat peuvent être ionisés. Le champ total résultant 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 la loi Bremsstrahlung inverse, peuvent ensuite percuter les ions ou atomes environnants. Ces collisions induisent en quelques centaines de femtoseconds un degré d'ionisation très élevé à l'intérieur de l'agrégat (Cadre B). Celui-ci peut alors être assimilé à un plasma dont la dimension correspond à la taille initiale de l'agrégat, soit une sphère de rayon de quelques centaines d'angströms. 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 (Cadre C). L'excès de charges positives résultant entraîne une augmentation de la taille du nanoplasma due à la répulsion électrostatique des ions. A cette pression coulombienne, s'ajoute une pression hydrodynamique qui provient de la conversion d'énergie thermique électronique en énergie cinétique ionique. Ces deux pressions conduisent à l'expansion ensuite l'explosion finale de l'agrégat (Cadre E).

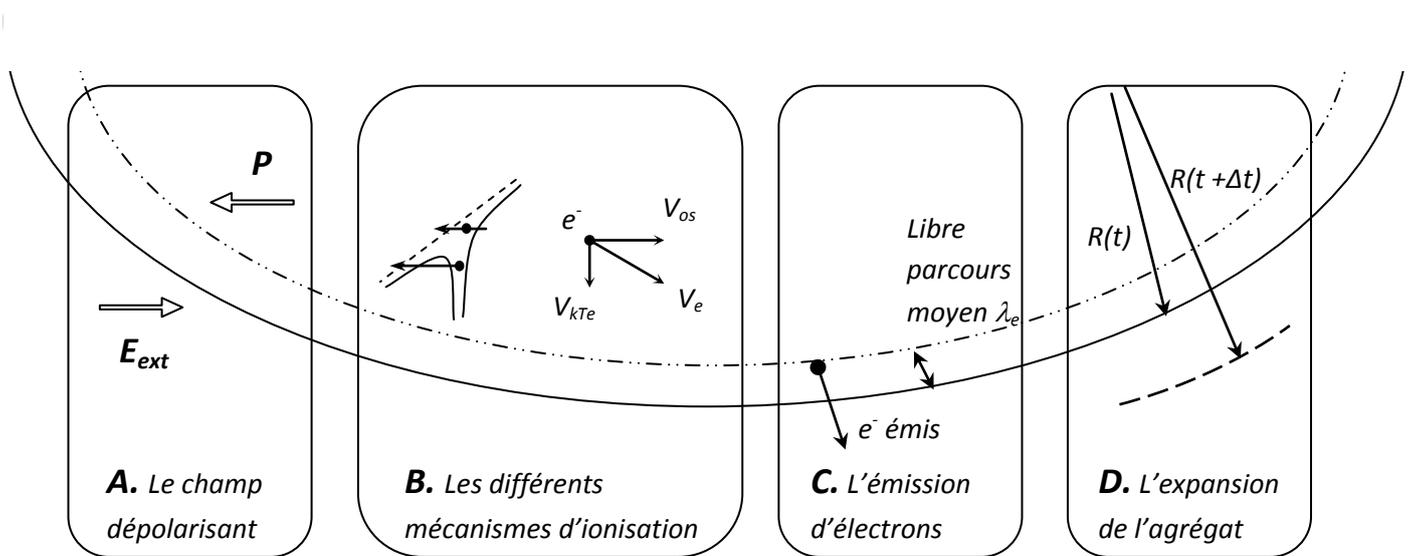


Figure. II.1 : Schéma représentant les processus pris en compte par le modèle nanoplasma (L'agrégat est représenté par l'arc en trait plein) : la polarisation et le champ à l'intérieur de l'agrégat (A), Les différents mécanismes d'ionisation (B), l'émission d'électrons (C), l'expansion de l'agrégat (D).

II.2. Suppositions

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 préalablement nécessaire de formuler certaines suppositions. 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} [25]. Compte tenu de ces valeurs élevées, il est impossible de déterminer les positions et énergies de chaque électron et certaines suppositions sur la distribution électronique sont inévitables.

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

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

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

Pour que *la première supposition* 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 :

$$\lambda \gg R \quad (\text{II.1})$$

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.

La supposition numéro deux 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, plus les électrons restent enfermés à l'intérieur de l'agrégat, d'où la densité électronique interne devienne 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.

La troisième supposition 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 (II.2). [2] :

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

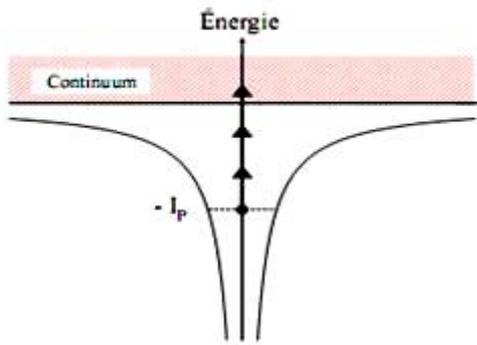
ou n_e (en cm^{-3}) et T_e (en eV) sont respectivement la densité et la température électroniques, et $\ln \Lambda_e$ est le logarithme coulombien qui vaut $\ln \Lambda_e = 24 - \ln(n_e^{1/2} / T_e)$ pour ($T_e \geq 10$ eV) [2]. Pour un agrégat, nous pouvons prendre comme valeurs caractéristiques $n_e = 10^{23} cm^{-3}$ 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 supposition du modèle peut ainsi sembler excessive. Cependant, nous avons choisi ici de conserver cette supposition afin de préserver la simplicité du modèle originel.

Ainsi, les suppositions 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.

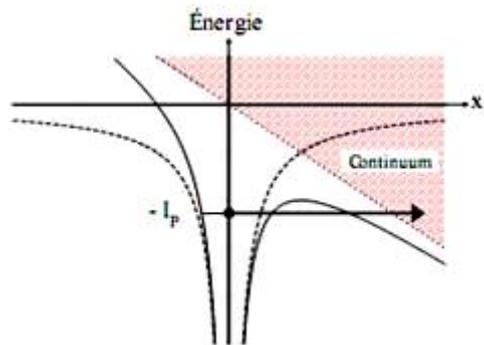
II.3. Ionisation optique

Différents mécanismes d'ionisation par effet de champ

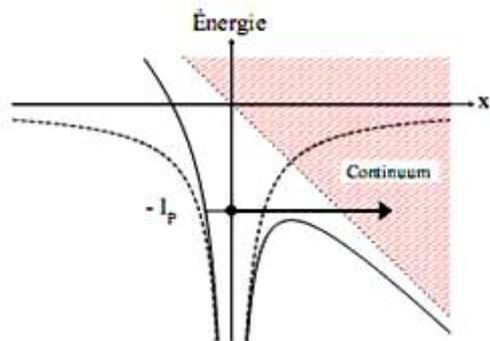
Les atomes composant l'agrégat baignent dans un champ électrique. L'interaction d'un atome avec un champ électrique E peut conduire à l'éjection d'un électron. Différents processus d'ionisation interviennent selon l'intensité de ce champ. Ces processus sont présentés sur la (figure II.2) en fonction d'un éclairement croissant.



(a) Ionisation par effet multiphotonique



(b) Ionisation par effet tunnel



(c) Ionisation par suppression de barrière

(- -) Potentiel coulombien,

(· ·) Potentiel électrique,

(—) Potentiel total ressenti par l'électron

Figure II.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 Nw des N photons absorbés est supérieure au potentiel d'ionisation IP de l'électron, celui-ci est ionisé et emporte l'énergie en excès (figure. II.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 $-IP$ 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 (*figure 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 :

$$\Gamma = \frac{\omega \sqrt{2m_e I_p}}{E} \quad (\text{II.3})$$

Où Γ 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 :

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

Où Z est la charge de l'atome (ou ion) parent. à partir de cette expression, on peut donc déterminer la valeur x_{\max} ou le potentiel sera maximal. Cette valeur vaut $x_{\max}=(Z/(4\pi\epsilon_0E))^{1/2}$ 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 :

$$E_{\text{seuil}} = \frac{4\pi\epsilon_0 I_p^2}{4Z} \quad (\text{II.5})$$

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 15,1eV, irradié par un champ laser d'amplitude $E=5\times 10^{10} \text{ V.m}^{-1}$ (soit un éclairement crêté de $3,3\times 10^{14} \text{ W/cm}^2$), et de longueur d'onde $\lambda=800 \text{ nm}$, 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.

II.4. Champ électrique interne

II.4.1. 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. Le champ interne dépend du champ laser. Celui-ci, peut se mettre sous la forme $E_{\text{ext}}(t) = E_0 f(t) \sin(\omega t) e_z$, où E_0 est l'amplitude maximum du champ, $f(t)$ correspond à l'enveloppe du champ lentement variable, et 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 :

$$E_{ext}(t) = E_0 \exp\left[-2\ln(2)\left(\frac{t}{\tau}\right)^2\right] e_z \quad (II.6)$$

Ou 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 :

$$I(t) = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c E^2(t) \quad (II.7)$$

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/cm².

II.4.2. 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 [38]:

$$E_{int}(t) = \frac{3}{|\varepsilon + 2|} E_{ext}(t) \quad (II.8)$$

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

$$\omega = 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega + i\nu_{ei})} \quad (II.9)$$

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

$$\omega_{pe} = \sqrt{\frac{n_e e^2}{\varepsilon_0 m_e}} \quad (II.10)$$

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

- 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

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 :

$$E_{int}(t) = \Re \left\{ \int_{\omega-\Delta\omega}^{\omega+\Delta\omega} d\omega' e^{i\omega't} (\omega') \varepsilon(\omega') \right\} \quad (II.11)$$

Ou $\varepsilon(\omega')$ 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 d'impulsions aussi courtes que 50 fs. - Bien que le champ électrique soit calculé pour une sphère diélectrique, la fonction diélectrique de Drude utilisée (éq. (II.9)) 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 " plus complexe que celle de l'expression (II.7) [Bychenkov 98]. Ces résultats n'indiquent pas de modification majeure pour le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat.

II.5. Fréquence de collisions électron-ion

II.5.1. 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 [39] pour des champs de faible intensité et de V. Silin [40] 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 $\ln \Lambda$ [2]. Ce logarithme est défini tel que :

$$\ln \Lambda = \ln \frac{b_{max}}{b_{min}} \quad (II.12)$$

ou 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 $b_{max} = \lambda_D$, ou $\lambda_D^2 = \varepsilon_0 k_B T_e / (e^2 n_e)$ 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 $b_{min} = b_j = Ze^2 / (4\pi\varepsilon_0 k_B T_e)$ ou b_j 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 $b_{\min} = \max(b_j; \lambda_B)$. Le logarithme coulombien prend finalement la forme :

$$\ln \Lambda = \min \left[\ln \left(\alpha \frac{T_e^{3/2}}{n_e^{1/2}} \right); \ln \left(\beta \frac{T_e}{n_e^{1/2}} \right) \right] \quad (\text{II.13})$$

ou 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 début de l'interaction, le nombre d'électrons libres au sein de l'agregat 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_e permet de déterminer le degré de couplage du plasma. En d'autres termes, ce paramètre permet d'évaluer la pertinence d'un traitement binaire des collisions :

$$\Gamma_e = \frac{e^3 \sqrt{n_e}}{(\epsilon_0 k_B T_e)^{3/2}} \quad (\text{II.14})$$

Ainsi, au début de l'interaction, lorsque la densité est élevée et la température faible, Γ_e 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 (II.12), on a nécessairement $b_{\max} > b_{\min}$ soit $\ln \Lambda > 0$).

II.5.2. Fréquence de collisions pour l'interaction laser-agregat

Le taux de chauffage par Bremsstrahlung inverse est intrinsèquement relié à la fréquence de collisions électron-ion. Suivant P. Mulser et coll. [41], la variation de quantité de mouvement par unité de temps d'un électron lors d'une collision s'écrit :

$$\dot{P}(t) = v_{ei}(t)p(t) \quad (\text{II.15})$$

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

$$\frac{\partial E}{\partial t} = m_e \overline{v_{ei} V_{osc}^2(t)} = m_e \overline{v_{ei} V_{osc}^2(t)} \quad (\text{II.16})$$

ou 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 :

$$V_{osc}(t) = \frac{e E_{int}}{m_e \omega} |\cos \omega t| \quad (\text{II.17})$$

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

$$\frac{\partial k_B T_e}{\partial t} = \frac{4}{3} \nu_{ei} U_P \quad (\text{II.18})$$

ou $U_P = \frac{e^2 E_{int}^2}{4 m_e \omega^2}$ 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 :

$$\nu_{ei}^{David} = \frac{8e^4 Z^2}{m_e^2 (4\pi \epsilon_0)^2} \frac{\alpha(n_i)}{(V_{osc}^2 + V_{th}^2)^{3/2}} \ln \Lambda_1 \quad (\text{II.19})$$

ou $V_{th}^2 = k_B T_e / m_e$ Cette expression est valide pour $\hbar \omega \ll k_B T_e$. Pour $\hbar \omega > k_B T_e$, nous

utilisons l'expression $\frac{\partial k_B T_e}{\partial t} = \frac{8e^4 Z^2}{3 m_e (4\pi \epsilon_0)^2 V_{osc}^3} \ln \Lambda_2$ obtenue par A. Polishchuk et coll.

[42] pour le taux de chauffage. En utilisant la même relation (II.18), on obtient finalement l'expression de la fréquence de collisions électron-ion pour $\hbar \omega > k_B T_e$:

$$\nu_{ei}^{Polish.} = \frac{8e^4 Z^2}{m_e^2 (4\pi \epsilon_0)^2} \frac{n_i}{V_{osc}^3} \ln \Lambda_2 \quad (\text{II.20})$$

Il faut cependant corriger les expressions (II. 19) et (II.20) afin de prendre en compte la dimension finie de l'agrégat. En suivant F. Megi et coll. [43], nous avons donc introduit un terme supplémentaire pour le calcul de la fréquence de collision électron-ion :

$$v_s = \frac{V}{R} \quad (\text{II.21})$$

ou $V = \sqrt{V_{osc}^2 + V_{th}^2}$ 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, 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 (II.19) 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 [44], a été mis en évidence pour des agrégats métalliques dans le régime de Mie [44]. Il correspond à la perte de cohérence du plasmon de Mie (atténuation de Landau). 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 [43].

II.6. IONISATION COLLISIONNELLE

II.6.1. 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 $W_{coll} = W_{th} + W_{las}$ [1]. Ces deux taux proviennent de la décomposition de la vitesse électronique en deux termes $v_e = v_{osc} + v_{th}$, où v_{th} est la vitesse thermique des électrons due à la température interne du gaz d'électrons, et $v_{osc}(t)$ est la vitesse acquise par oscillation dans le champ :

$$V_{osc}(t) = \frac{eE_{int}}{m_e \omega} |\cos(\omega t)| \quad (II.22)$$

T. Ditmire et coll. supposent donc que la probabilité d'ionisation d'un atome par collision avec un électron de vitesse V_e peut être mise 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 v_{th} et le taux d'ionisation "suprathermique" W_{las} écrivie de la composante de la vitesse acquise par oscillation $V_{osc}(t)$. 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 :

$$W_{th}[s^{-1}] = n_e \langle \sigma_j v_{th} \rangle_{distribution\ de\ vitesses} \quad (II.23)$$

$$W_{las}[s^{-1}] = n_e \langle \sigma_j v_{osc} \rangle_{période\ optique} \quad (II.24)$$

L'expression de la section efficace d'ionisation par collisions électron-ion est celle obtenue empiriquement par W. Lotz pour un niveau électronique j [25].

$$\sigma_j = a_j q_j \frac{\ln(E_{inc}/I_{pj})}{E_{inc}/I_{pj}} \quad (II.25)$$

Avec.

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.

E_{inc} est l'énergie cinétique de l'électron incident.

II.6.2. Amélioration du calcul du taux d'ionisation collisionnel par S. Micheau

S. Micheau et coll. on choisi une méthode différente pour calculer le taux d'ionisation par collision électron-ion. En effet, la décomposition $V_e = V_{th} + V_{osc}$ n'implique pas la séparabilité du taux collisionnel $W_{coll} = W_{th} + W_{las}$. [2] 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 $V_e = V_{osc} + V_{th}$. Nous avons par conséquent développé une procédure qui évite la décomposition $W_{th} + W_{las}$.

D'après la supposition 3 ° formulée au paragraphe II.2, la distribution de vitesses électroniques peut être mise sous la forme d'une fonction de distribution maxwellienne $f(v)$:

$$f(V_e) = \left(\frac{m_e}{2\pi k_B T_e} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{m_e V_e^2}{2k_B T_e} \right) \quad (II.26)$$

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

$$f(V_{ei}) = \left(\frac{m_e}{2\pi k_B T_e} \right)^{1/2} \exp\left(-\frac{m_e V_{ei}^2}{2k_B T_e} \right) \quad (II.27)$$

Ou $i = x, y, z$. Pour une température électronique T_e donnée, les composantes V_{ei} de la vitesse sont obtenues aléatoirement à l'aide d'une distribution normale en utilisant la méthode directe [46] :

$$\begin{aligned} V_{ei_n} &= V_{th} (-2 \ln U_n)^{1/2} \cos(2\pi U_{n+1}) \\ V_{ei_{n+1}} &= V_{th} (-2 \ln U_n)^{1/2} \sin(2\pi U_{n+1}) \end{aligned} \quad (II.28)$$

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

A cette distribution maxwellienne s'ajoute également la vitesse d'oscillation électronique $V_{osc}(t)$ dans le champ électrique $E_{int}(t)$ (II.22). 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_{ez} . Cependant, nous nous plaçons dans l'approximation quasi-statique (c'est à dire que l'on ne considère que l'enveloppe du champ, 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 :

$$V_{e_n} = \left(V_{ex_n}^2 + V_{ey_n}^2 + (V_{ez_n} + V_{osc_n})^2 \right)^{1/2} \quad (II.29)$$

Le taux d'ionisation collisionnel est calculé selon :

$$W_{coll}[s^{-1}] = n_e \langle \sigma_j v_e \rangle \quad (II.30)$$

Ou 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 (II.25) est déterminée à l'aide des valeurs aléatoires obtenues selon

$$E_{inc_n} = \frac{1}{2} m_e V_{en}^2.$$

Pour un nombre de valeurs aléatoires N_{max} suffisamment élevé, le taux peut alors être obtenu par :

$$W_{coll} [s^{-1}] = \frac{n_e}{N_{max}} \sum_{n=1}^{N_{max}} \sigma_{j_n} V_{e_n} \quad (II.31)$$

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.

II.6.3. 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 :

$$W_{coll} [s^{-1}] = W_{th} + n_e \frac{a_j q_j}{I_p^{3/2} m_e^{1/2}} \left[f(\mu) \exp\left(-0,7 \frac{k_B T_e}{I_p}\right) - g(\mu) \exp\left(-3,5 \frac{k_B T_e}{I_p}\right) \right] \quad (II.32)$$

Ou

$$\mu = \frac{U_p}{I_p} \quad (II.33)$$

$$f(\mu) = \frac{1,5\mu}{2+\mu} \quad (II.34)$$

$$\text{et } g(\mu) = \begin{cases} f(\mu) & \text{si } \mu \leq 0,5 \\ 0,3 & \text{sinon.} \end{cases} \quad (II.35)$$

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 (II.31) 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 et S. MICHEAU [1.2]:

$$W_{th} [s^{-1}] = n_e \frac{2\sqrt{2}}{(\pi m_e k_B T_e)^{1/2}} \frac{a_j q_j}{I_p} E_I(I_p/k_B T_e) \quad (II.36)$$

La (figure II.3) permet de comparer les taux d'ionisation collisionnel calculés à l'aide de la méthode de T. Ditmire et coll. avec l'expression analytique (II.32), et à l'aide de la méthode décrite précédemment. 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 (II.31). 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 (soit un éclairement I de $1,3 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$) pour une longueur d'onde $\lambda = 800 \text{ nm}$.

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'éclairement considérées pour la (figure II.3), l'énergie pondéromotrice U_p vaut 79 eV, nous avons alors $T_e \approx U_p$. Nous constatons sur (figure II.3) que, dans certains cas, le taux calculé selon T. Ditmire et coll. reproduit mal les résultats obtenus à l'aide de la distribution aléatoire (II.31). Pour l'Ar8+, l'erreur relative atteint 80 %. L'expression analytique (II.33) 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, 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 (II.31), et d'autre part avec l'expression analytique (II.32). 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} 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.

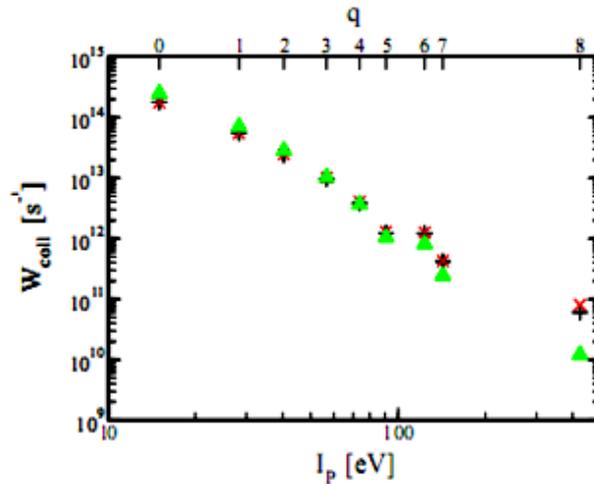


figure II.3 : Taux d'ionisations collisionnels en fonction du potentiel d'ionisation I_p pour les ions Ar^{q+} ($q \in [0-8]$). Taux calculés avec : une distribution aléatoire (+)((II.31) avec $N_{max}=10000$), la forme analytique (II.32) (x), selon T.Ditmire (▲) [1]. Les paramètres fixés valent : $N_e=10^{21}cm^{-3}$, $T_e=100$ eV, $E=10^{11}V/m$ et $\lambda=800$ nm. Selon S.Micheau [2]

D'un point de vue pratique, pour calculer les taux d'ionisation collisionnels, S.MICHEAU à donc utilisé la méthode décrite au paragraphe II.6.2 lorsque la température électronique est inférieure à 4 eV, et la forme analytique (II.31) dans toutes les autres conditions.

II.7. EMISSION D'ELECTRONS

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 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 WFS (FS pour "free streaming") est alors [3] pour un calcul détaillé) :

$$W^{FS} [s^{-1}] = n_e \frac{2\sqrt{2}}{\sqrt{m_e k_B T_e}} (E_{esc} + k_B T_e) \exp\left(-\frac{E_{esc}}{k_B T_e}\right) \times \begin{cases} \frac{\lambda_e}{4R} (12 R^2 - \lambda_e^2) & \text{pour } \lambda_e < R \\ 4 R^2 & \text{pour } \lambda_e \geq R \end{cases} \quad (II.37)$$

ou 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

$\langle V \rangle$ la vitesse moyenne de l'électron, soit, pour une distribution maxwellienne :

$$\lambda_e = \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}} \frac{1}{\nu_{ei}} \quad (II.38)$$

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 :

$$E_{esc} = \frac{(Q+1)e^2}{8\pi\epsilon_0 R} \quad (II.39)$$

II.8. EXPANSION DE L'AGREGAT

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 Q_e , 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 [47]. On obtient ainsi une expression de la forme :

$$P_c = \frac{3}{2(4\pi)^2 \epsilon_0} \frac{(Qe)^2}{R^4} \quad (II.40)$$

A 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 :

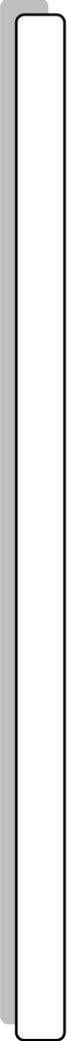
$$P_H = n_e k_B T_e \quad (\text{II.41})$$

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 [48]. 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 :

$$\frac{d^2 R}{dt^2} = 5 \frac{P_H + P_C}{n_i m_i} \frac{1}{R} \quad (\text{II.42})$$

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



CHAPITRE III

***INTERPRETATION DES RESULTATS OBTENUS PAR
L'ETUDE DE L'AGREGAT DE L'Ar AVEC LE MODEL
NANOPLASMA***

Chapitre III**INTERPRETATION DES RESULTATS OBTENUS PAR L'ETUDE DE L'AGREGAT DE L'Ar AVEC LE MODEL NANOPLASMA**

Dans ce chapitre on va présenter les différents résultats obtenus par le model nanoplasma élaboré par T. Ditmire [1] en suite amélioré par F. MIGI et al [3] et après utilisé par S. MISHEAU et son principe nous l'avons présenté dans le chapitre précédent et on premier lieu on va parler du model dynamique de l'ionisation on suite on interprète les résultats obtenu d'une façon de montre l'effet de l'intensité laser et la longueur d'onde ensuite la taille de l'agrégat sur les différents paramètres physique du nanoplasma.

III.1. Modèle dynamique d'ionisation

Dès les premiers instants de l'interaction, les atomes et les ions sont ionisés par le champ électrique du laser et la densité électronique à l'intérieur de l'agrégat augmente. Ensuite, on considère que les électrons quasi – libres ainsi formés acquièrent leurs énergies cinétiques par oscillation sous l'effet du champ électrique du laser qui augmente au cours du temps. Au fur et à mesure, l'énergie cinétique des électrons devient suffisante pour permettre d'éplucher les ions, par ionisation collisionnelle, jusqu'à des états de charge plus élevée. Quand le champ électrique devient suffisamment grand pour que les électrons aient une énergie maximale d'oscillation de l'ordre de quelques keV, la création des lacunes en couche interne débute et le volume focal à l'intérieur duquel les électrons ont cette énergie de quelques keV commence à augmenter. Dès que le rayon de l'agrégat augmente significativement sous l'action des forces de pression régnant à l'intérieur de l'agrégat, la densité électronique au sein de l'agrégat chute brutalement entraînant par conséquent une diminution importante des taux d'ionisation collisionnelle : on peut alors considérer que l'ionisation en couche interne s'arrête.

III.2. Effet de l'intensité LAZER

L'intensité du laser incident est un paramètre qui peut jouer un rôle important dans la dynamique de l'interaction laser – agrégats. Du moins, les études antérieures dans le domaine de l'interaction laser – matière réalisées pour des atomes, des molécules ou des solides ont mis en évidence un réel effet de l'intensité sur l'interaction et que on peut noté.

Pour l'ionisation d'atomes et de molécules en champ laser intense, il a été montré théoriquement [21] et observé expérimentalement [23] [49] qu'une augmentation de l'ellipticité de la radiation laser incidente induit une diminution des taux d'ionisation.

Les expériences de génération d'harmoniques d'ordre élevé ont montré une réduction importante du taux d'harmonique quand on augmente l'ellipticité de la radiation incidente [50]. Ceci peut s'interpréter, d'une manière schématique et classique, comme une diminution de la probabilité de recombinaison de l'électron vers son ion parent à cause de son orbite elliptique en polarisation circulaire.

Dans le cadre de l'interaction laser – solide, la polarisation joue un rôle très important dans le contrôle de l'efficacité de production d'un plasma chaud et dense. En effet, la polarisation s augmente le chauffage de la surface par rapport à une polarisation linéaire p [51]. Certains auteurs [52] ont également observé une baisse d'un facteur 2 de l'émission de rayons X durs avec une polarisation circulaire par rapport à une polarisation linéaire. Ils ont interprété ce phénomène par la production d'un plasma moins dense en polarisation circulaire à cause d'une moindre efficacité d'ionisation multiphotonique en polarisation circulaire (diminution du nombre de voie d'ionisation à cause des règles de sélection) qui joue ici un rôle pour ces mesures faites à faible éclairement ($\sim 3 \times 10^{13}$ W/cm²).

Dans le cadre de l'interaction d'une cible gazeuse de grande densité atomique ($\sim 10^{17}$ at./cm³) avec une impulsion laser femtoseconde ($I \sim 10^{15}$ W/cm²), l'émission de rayons X mous (entre 10 nm et 30 nm) est trouvée plus importante en polarisation circulaire qu'en polarisation linéaire. Ce résultat, en contradiction avec ce qui a été observé en cible

solide, est attribué à la présence d'électrons plus énergétiques produits par le champ laser [53].

Nous voyons ainsi que l'effet de l'intensité dépend fortement du système ainsi que de notre étude. Si nous examinons maintenant de plus près l'influence de l'intensité du laser incident sur quelques étapes intervenant lors de la dynamique de l'interaction laser – agrégats, il ressort que :

Pour le champ interne et externe.

On voit que le champ interne représente deux pics le premier dans ($\sim 5 \cdot 10^{10}$ V/m) qui correspond à l'amplification du champ et la deuxième à ($\sim 7,5 \cdot 10^{10}$ V/m) correspond à l'explosion de l'agrégat (figures III.1 et III.2)

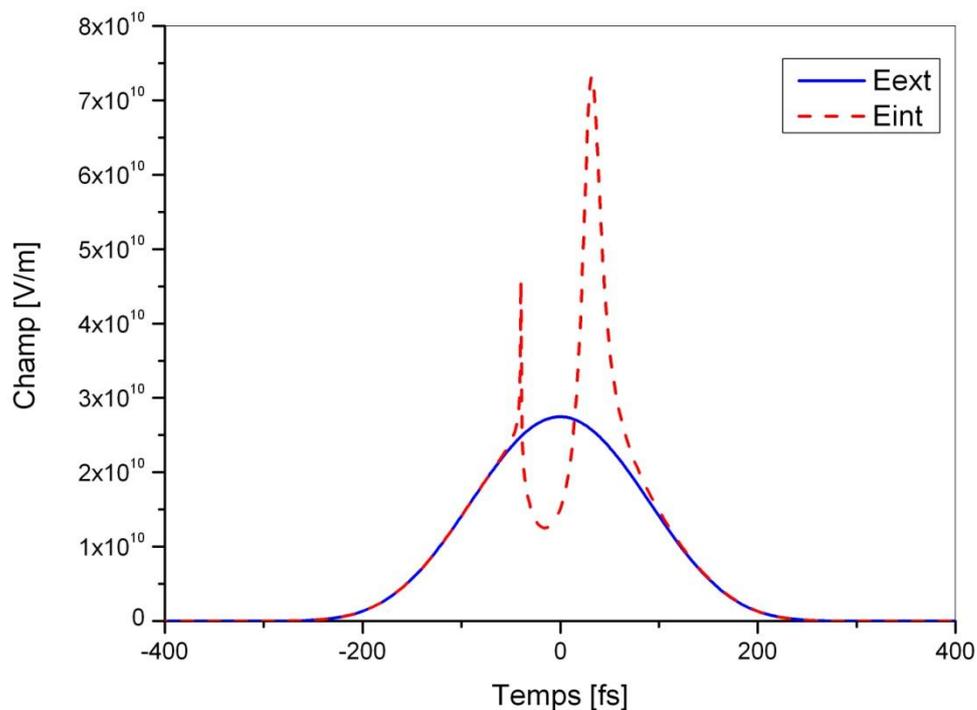


Figure III.1 : Variation du champ interne et externe en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis à un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $I = 1 \cdot 10^{18}$ W/cm², $\tau = 300$ fs)

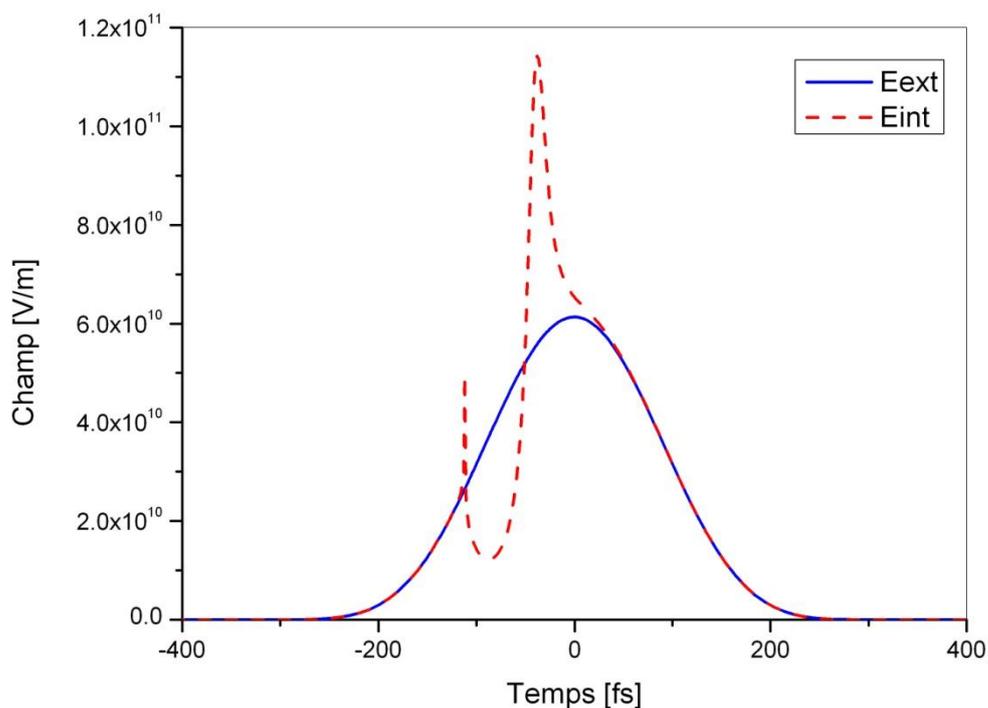


Figure III.2 : Variation du champ interne et externe en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis à un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $I = 5.10^{18} \text{ W/cm}^2$)

Et le champ externe augmente suffisamment au cours de l'interaction puis il se baisse au temps de l'ionisation

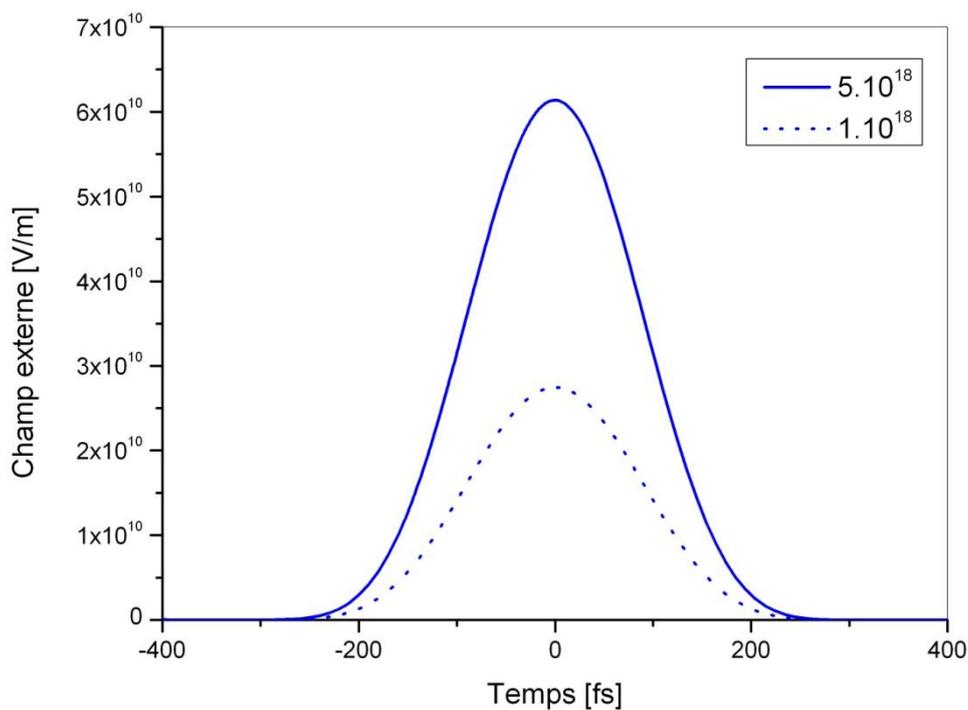


Figure III.3: Variation du champ externe en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis à un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $\tau=300 \text{ fs}$) avec des différentes intensités

Ce qui concerne le champ externe si l'intensité LAZER augmente on trouve qu'il atteint une valeur plus grande comme il est clair dans (figure III.3)

Et le champ interne aussi est entrepris par l'intensité LAZER (figure III.4) premièrement par la valeur maximal des deux pics dans chaque intensité ($I = 1.10^{18}$ et 5.10^{18} W/cm^2) et deuxièmement par le temps de l'ionisation, on voit que pour des intensités LAZER plus grande on obtient une ionisation et explosion plus rapide

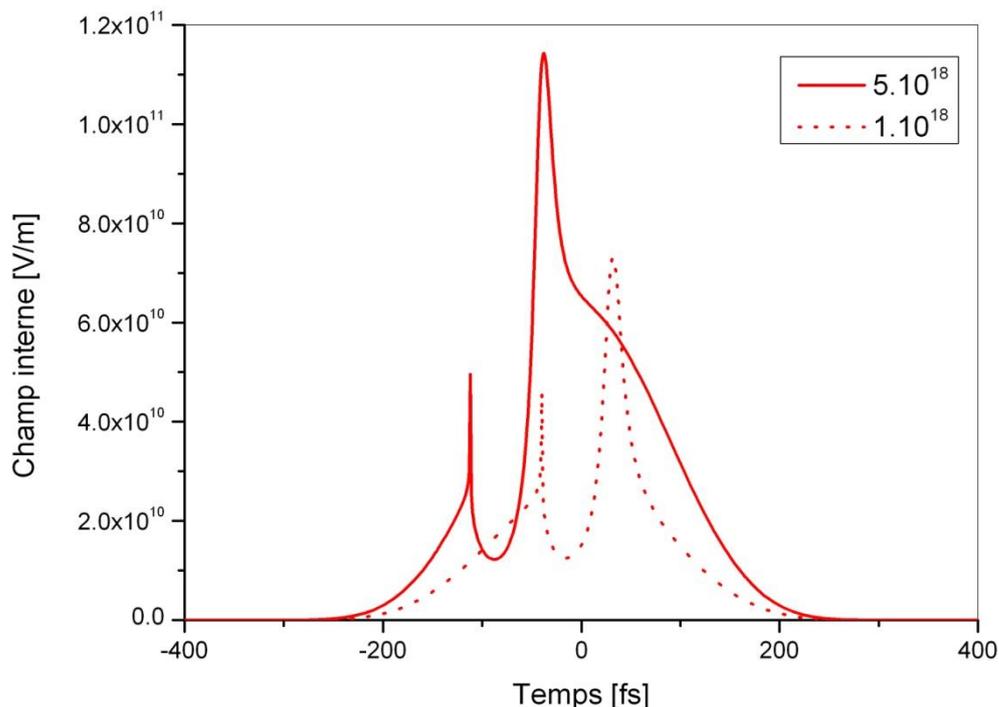


Figure III.4: Variation du Champ interne en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis à un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $\tau=300 \text{ fs}$) avec des différentes intensités

D'un autre côté l'étude sur l'énergie des ions a été réalisée sur des agrégats d'Argon de 6000 atomes avec un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$; $\tau = 300 \text{ fs}$) et des intensités ($I \geq 1.10^{18} \text{ W/cm}^2$). On remarque dans le graphe de l'évolution de l'énergie des ions en fonction du temps (figure III.5) deux pics, le premier correspond à une énergie de l'ordre de (10 eV) et le deuxième correspond à une énergie maximal des ions de l'ordre de (~70 eV) dans le cas d'une intensité ($I = 1.10^{18} \text{ W/cm}^2$) par contre on remarque une augmentation de l'énergie des ions lorsque l'intensité laser augmente à ($I = 3.10^{18} \text{ W/cm}^2$) et nous donne (~90 eV). Ce qui traduit la diminution de l'énergie vers zéro. et ($E_{\text{ion}} = 0.11 \text{ keV}$) dans le cas d'une intensité de l'ordre de ($I = 5.10^{18} \text{ W/cm}^2$)

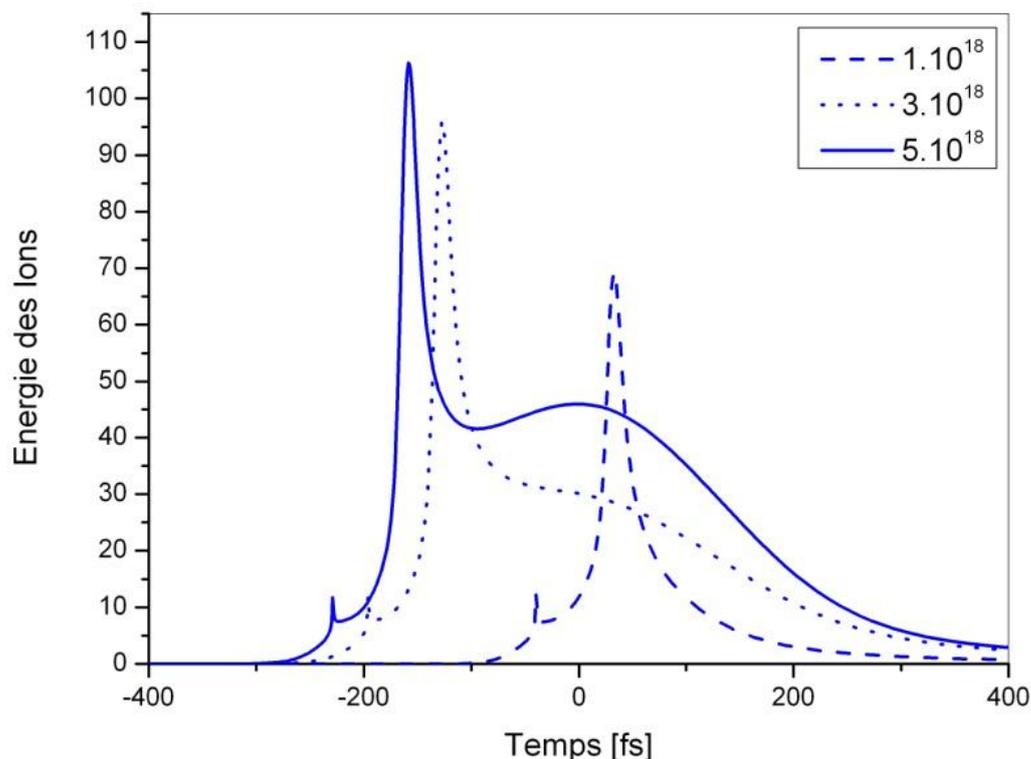


Figure III.5: Variation de l'énergie des ions en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis à un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $\tau=300\text{ fs}$) avec des différentes intensités

Dans la (figure III.5) on trouve des différentes énergies dans des différentes intensités LAZER. L'énergie se tants vers des valeurs maximal différente pour chaque intensité et aussi elle s'augment avec l'augmentation de l'intensité

En plus le début de l'expansion est lisible qu'il se fait tôt dans des grandes intensités comme on la trouver dans le cas ou on a étudié l'effet de l'intensité à travers le nombre d'atomes.

Si on étudie l'effet de l'intensité à travers le nombre d'atomes on trouve que :

Au premier lieu on trouve que le nombre d'électrons augmente au temps de l'interaction jusqu'à une valeur maximal (~ 6000) et ce nombre correspond à la taille d'agrégat (nombre d'atome) (figure III.6 et III.7) dans ce cas on peut dire qu'on a une grande ionisation. Pareillement on trouve un pic avant la stabilité de nombre d'électrons qui correspond à la collision des électrons avec la surface

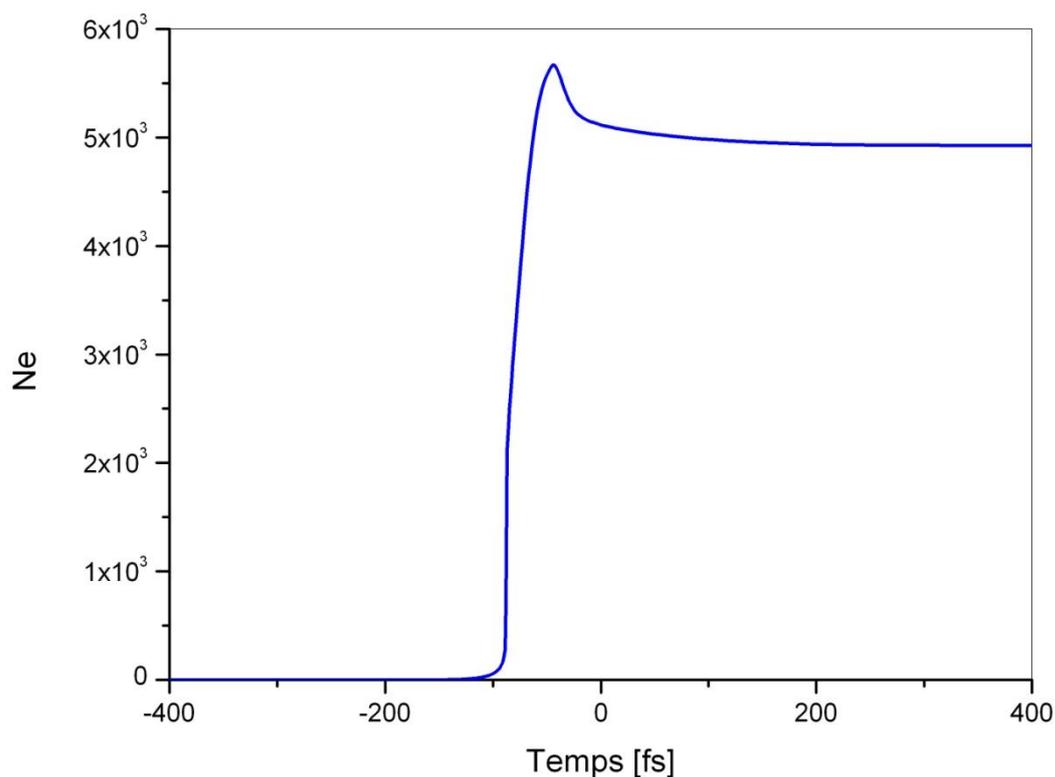


Figure III.6 : Variation du nombre des électrons en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $I = 1.10^{18} \text{ W/cm}^2$, $\tau=300 \text{ fs}$)

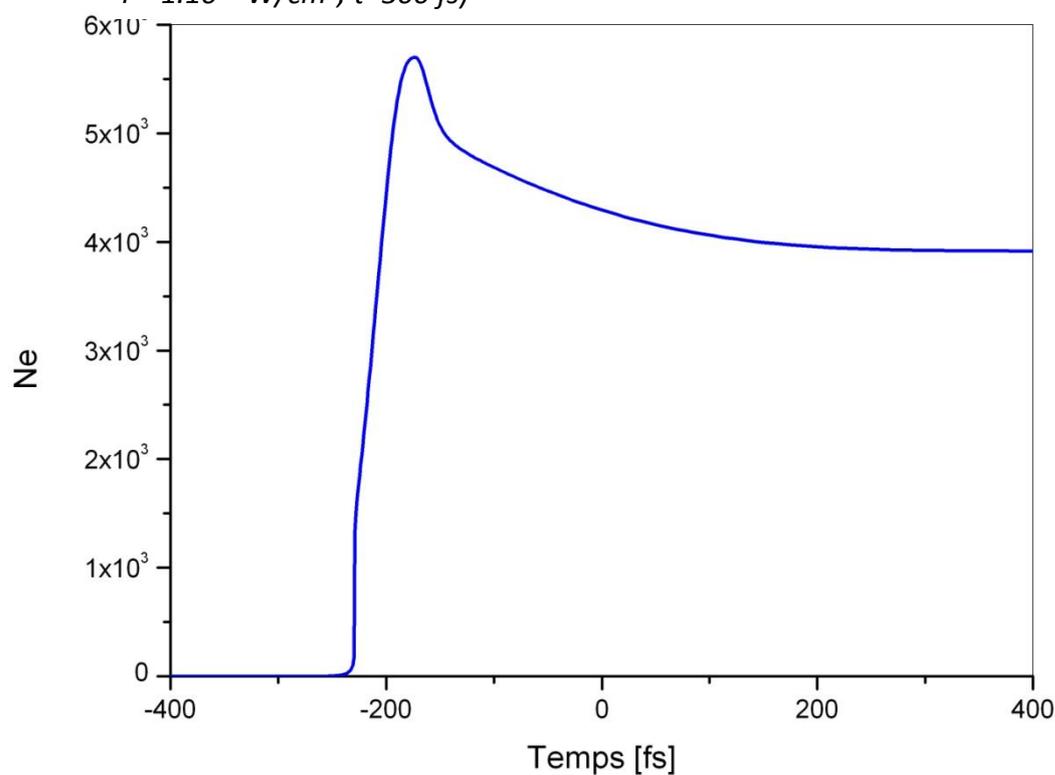


Figure III.7 : variation du nombre des électrons en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $I = 5.10^{18} \text{ W/cm}^2$, $\tau=300 \text{ fs}$)

On observe aussi que l'augmentation de nombre des électrons dans l'agrégat, se fait dans un temps plus court dans une intensité ($I=5.10^{18}W/cm^2$) que celle avec l'intensité ($I=1.10^{18}W/cm^2$) ce qui nous mène à dire que l'augmentation de l'intensité LAZER conduit a la formation rapide du nanoplasma.

Le graphe du rapport de la densité électronique par la densité critique (n_e/n_c) en fonction du temps (*figure III.8*) avec ($I=1.10^{18}W/cm^2$). Nous montre que (n_e / n_c) prend une valeur maximale importante et cette courbe nous dit qu'il ya deux résonance la première ($\frac{n_e}{n_c} = 3$) pour $\tau_1 \approx -40 fs$ correspond à une forte absorption avec amplification du champ interne et la deuxième résonance ($\frac{n_e}{n_c} = 3$) à $\tau_1 \approx 33 fs$ ou on a l'explosion final de l'agrégat

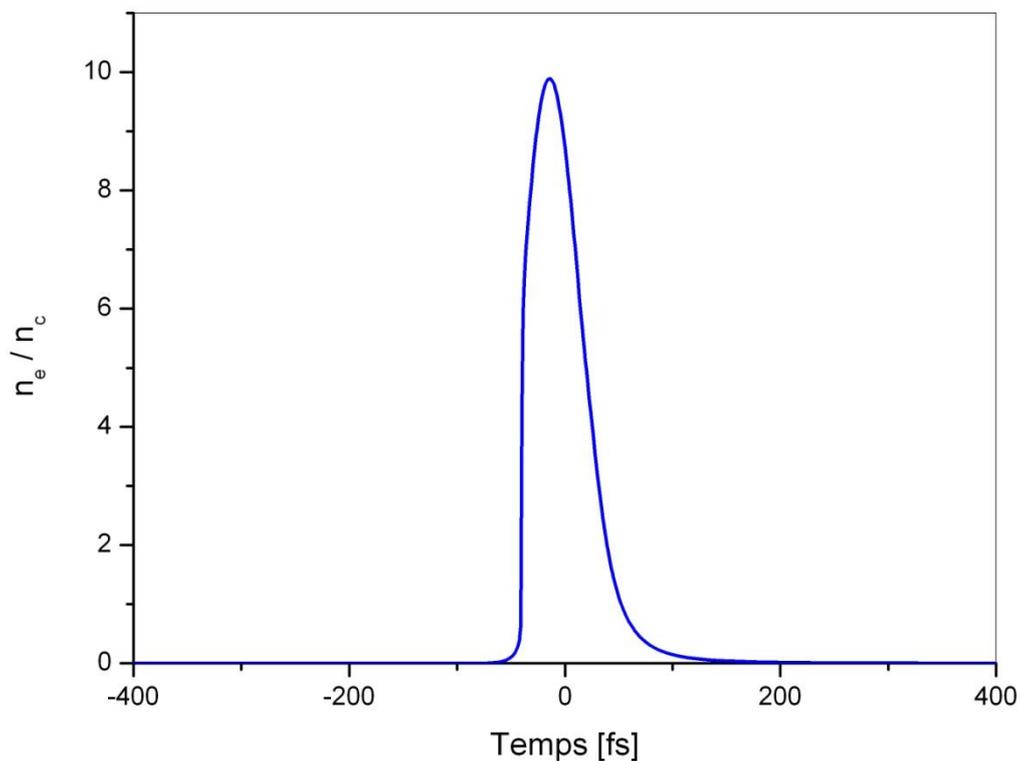


Figure III.8 : variation de la densité électronique par la densité critique (n_e/n_c) en fonction du temps dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800nm$, $I = 1.10^{17} W/cm^2$, $\tau=300 fs$)

Concernant la pression dans l'agrégat (colombienne et hydrodynamique) d'après les (figures III.09 et III.10) on voit que la pression hydrodynamique croît avec le temps même chose pour la pression colombienne, mais elle atteint une valeur plus grande par rapport a la pression colombienne et on trouve la même chose pour tous les intensités étudié.

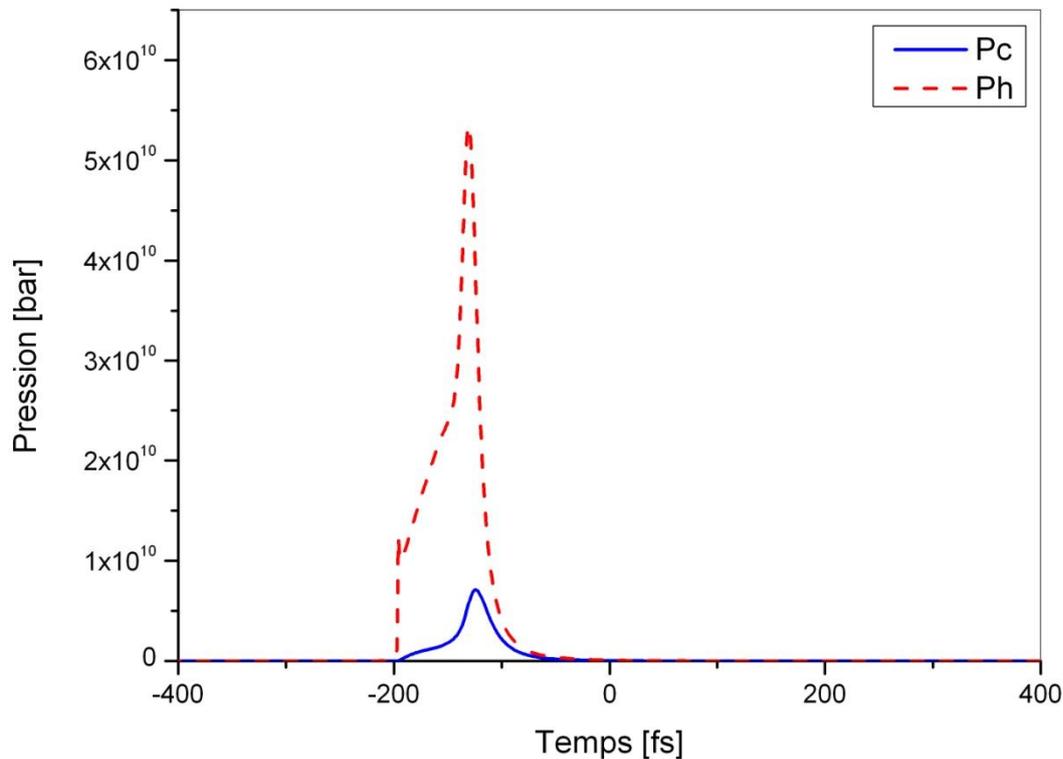


Figure III.9: variation des pressions hydrodynamique et colombienne en fonction du temps pour un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $I = 3.10^{18} \text{ W/cm}^2$, $\tau=300\text{fs}$)

Les valeurs obtenues montrent toujours que la pression hydrodynamique à des valeurs plus grande que celle de la pression colombienne. Donc la pression hydrodynamique joue un rôle plus important que la pression colombienne dans la dynamique du nanoplasma.

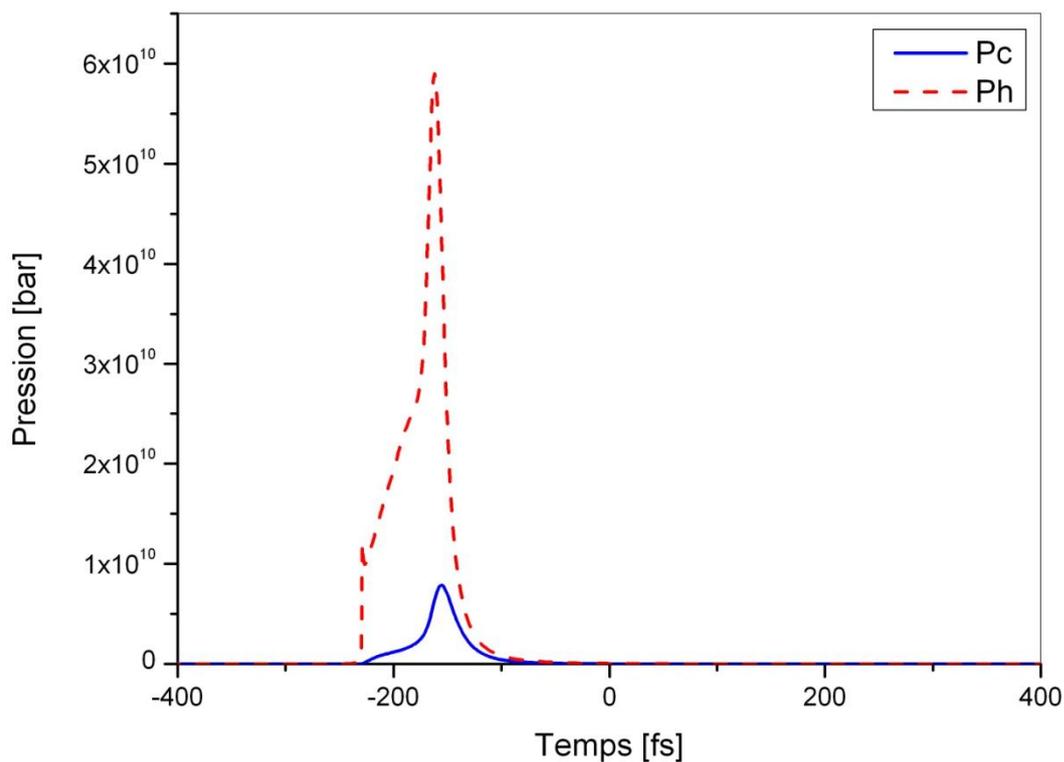


Figure III.10: variation des pressions hydrodynamique et coulombienne en fonction du temps pour un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis à un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $I = 5.10^{18} \text{ W/cm}^2$, $\tau=300\text{fs}$)

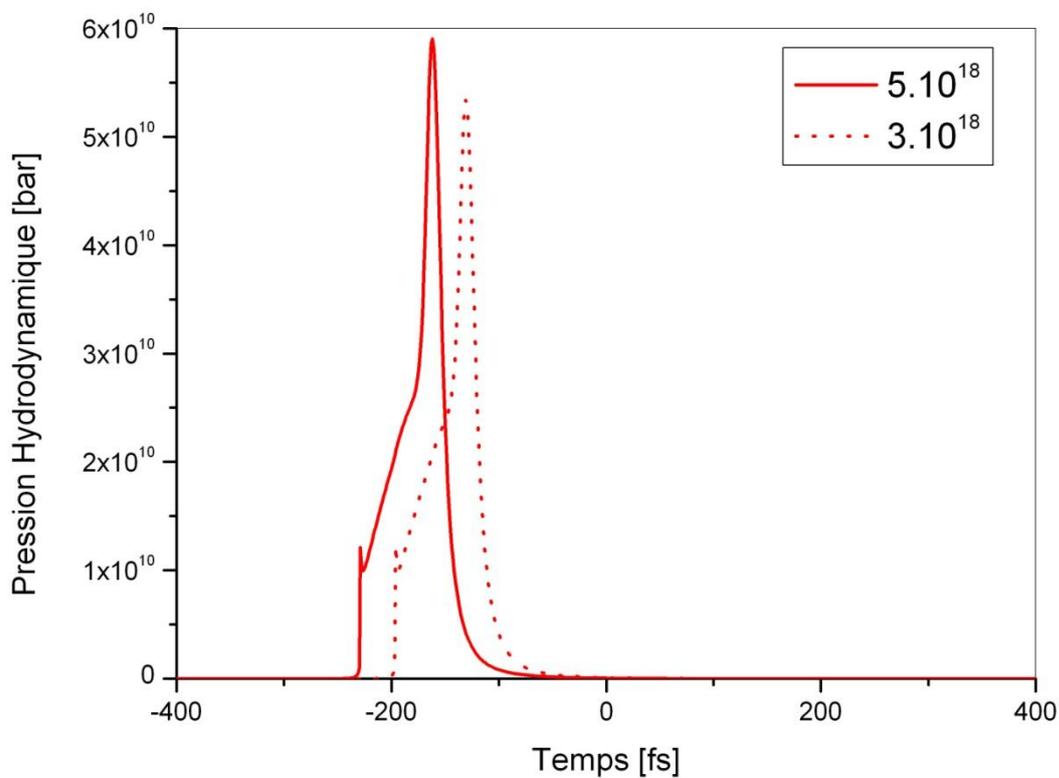


Figure III.11: Variation de la pression hydrodynamique dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis à un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $\tau=300\text{fs}$) avec des différentes intensités

Si on compare la pression entre les deux intensités LAZER (*figure III.11*) pour la pression hydrodynamique on trouve quelle a un effet sur le temps de l'ionisation, aussi pour la valeur maximal, avec ($I = 3.10^{18} \text{ W/cm}^2$) on a obtenue une valeur maximal ($P_h=5,3.10^{10} \text{ bar}$) et avec ($I = 3.10^{18} \text{ W/cm}^2$) une valeur plus grande ($P_h= 5,8.10^{10} \text{ bar}$).

Et c'est les mêmes résultats obtenue pour la pression coulombienne (*figure III.12*)

On peut dire qu'avec une intensité plus grande on obtient une ionisation plus tôt avec une pression plus haute est c'est le même résultat obtenue avec les études précédente

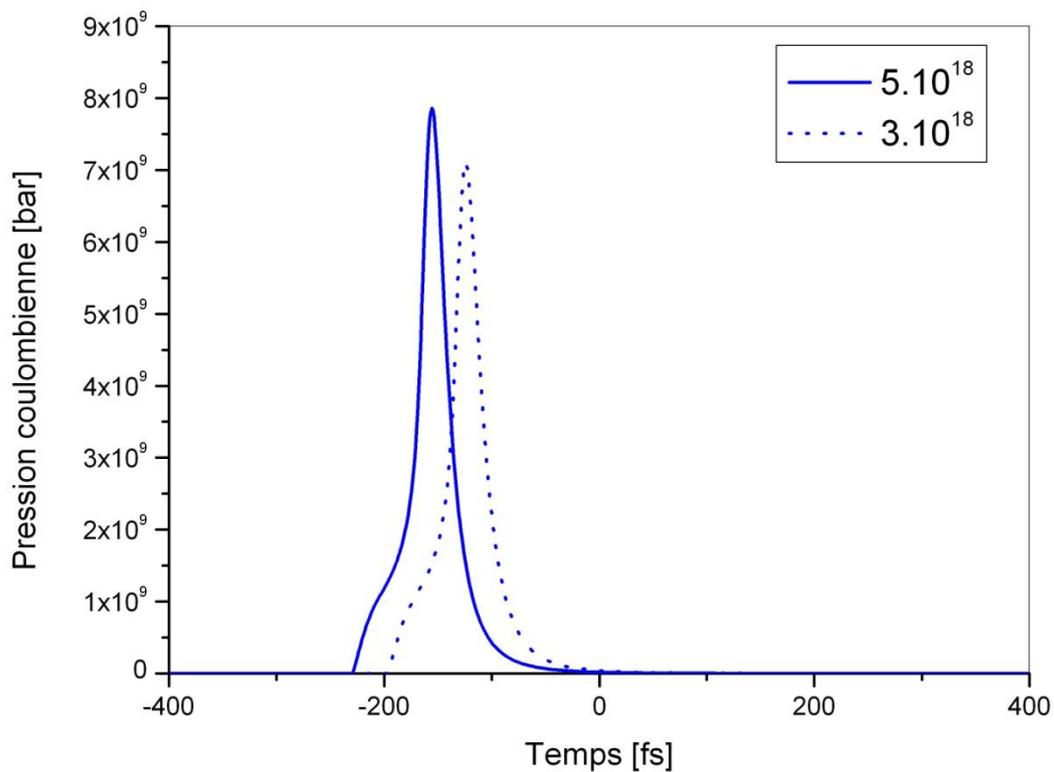


Figure III.12: variation de la pression coulombienne dans un agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $\tau=300\text{fs}$) avec des différentes intensités

concernant la variation du rayon de l'agrégat en fonction du temps (*figure III.13*). Il est clair qu'il y a une augmentation du rayon avec le temps et le temps du début d'augmentation du rayon représente le début de l'expansion et la réaction entre l'agrégat et le LAZER en suite la valeur du rayon tend vers une valeur infinie correspond à l'explosion final de l'agrégat.

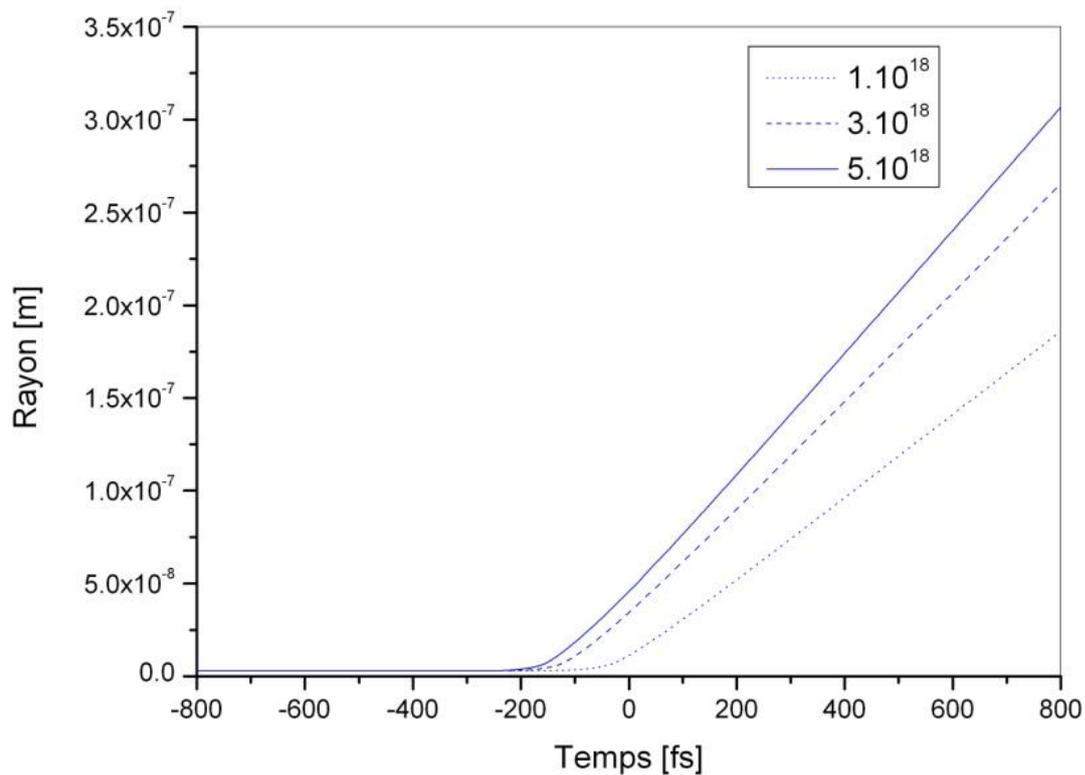


Figure III.13: Variation du rayon de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis à un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$, $\tau=300\text{fs}$) avec des différentes intensités

III.3. Effet de la longueur d'onde :

L'effet de la longueur d'onde sur la dynamique de l'interaction intervient principalement dans les mécanismes de chauffage des électrons. Cet effet fut un argument important pour établir la validité du modèle faisant intervenir le mouvement collectif et cohérent des électrons expliquant la présence de lacunes en couche interne

Premièrement ce qui concerne le rayon de l'agrégat on trouve que la longueur d'onde accélère un peu l'augmentation du rayon (*figure III.14*) mais le temps du début de l'expansion reste presque le même

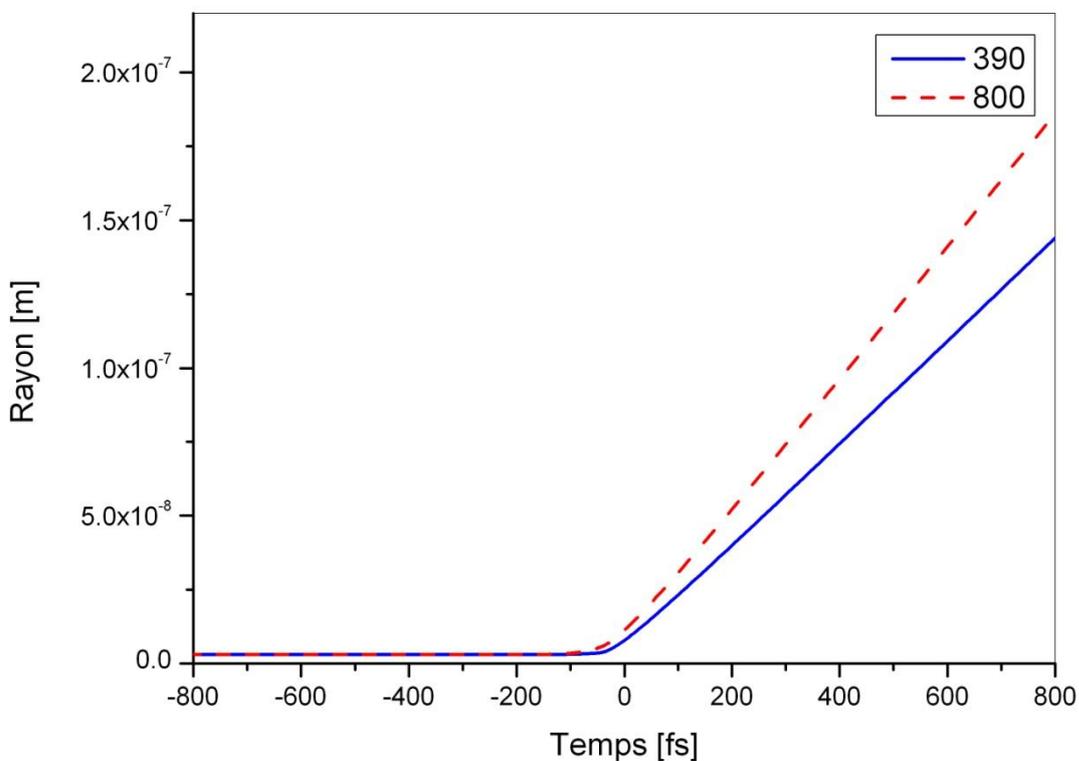


Figure III.14: Variation du rayon de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis à un champ LAZER ($I=1.10^{18}$ W/cm², $\tau=300$ fs) avec des différentes longueurs d'onde

Ce qui concerne la variation de la pression on trouve un grand changement dans la valeur maximal de la pression hydrodynamique (*figure III.15*) et aussi la valeur maximale de la pression coulombienne (*figure III.16*) lorsque on applique des grandes longueurs d'onde la valeur maximal de la pression coulombienne et hydrodynamique se diminue.

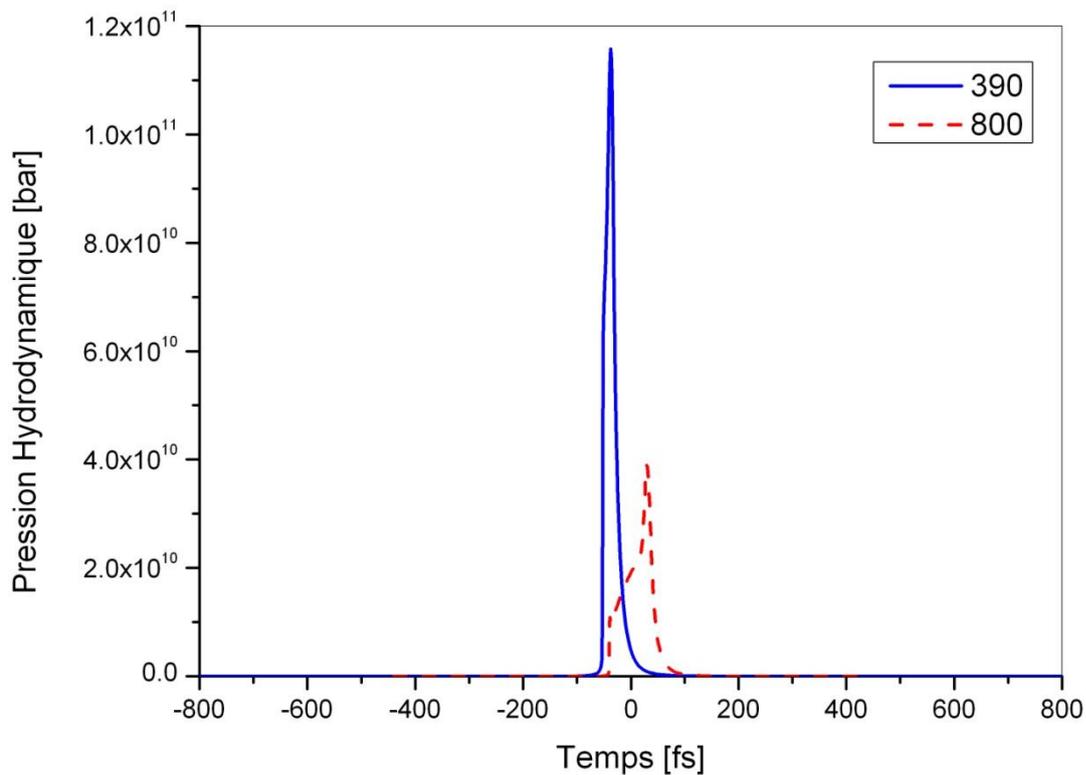


Figure III.15: Variation de la pression hydrodynamique à l'intérieur de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis à un champ LAZER ($I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$) avec des différentes longueurs d'onde

On voit que la pression hydrodynamique pour 390 nm est plus grande que pour 800 nm et pour la pression coulombienne que $P_c \approx 5.10^9 \text{ bar}$ pour 800nm et plus petite pour 390nm que $P_c \approx 1,7.10^{10} \text{ bar}$

Et la (*figure III.17*) nous montre que toujours la pression hydrodynamique atteint de grandes valeurs et que c'est elle la responsable de la dynamique du nanoplasma

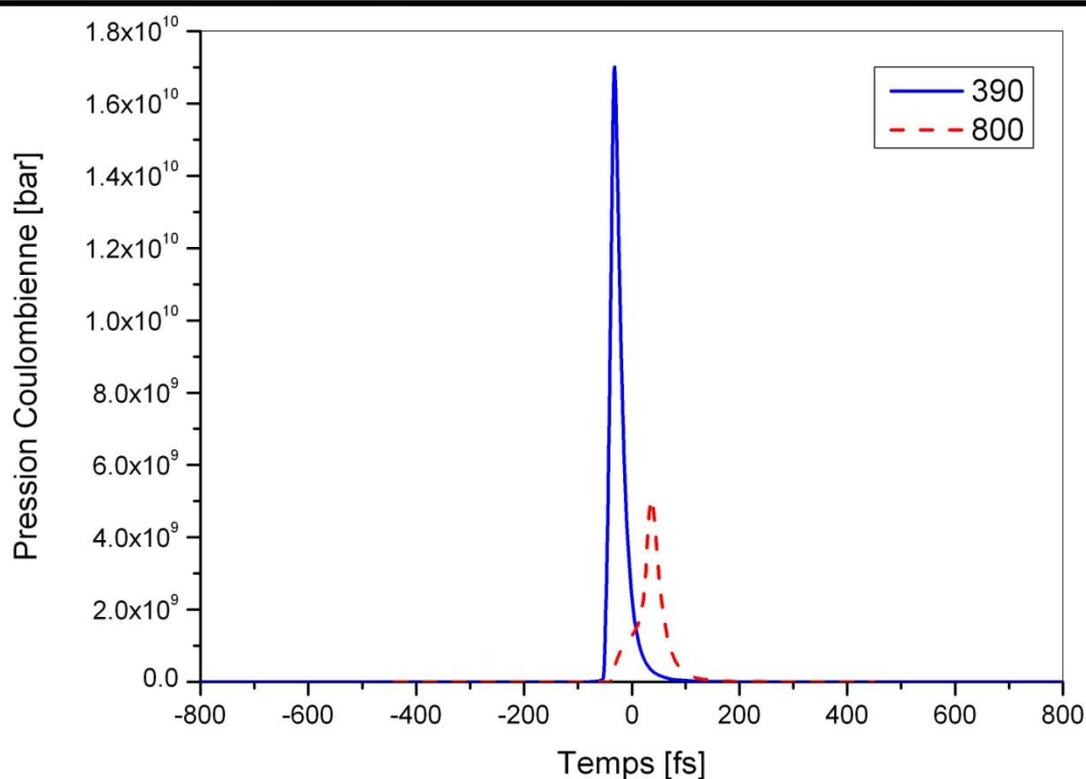


Figure III.16: Variation de la pression coulombienne à l'intérieur de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis à un champ LAZER ($I=1.10^{18}$ W/cm²) avec des différentes longueurs d'onde

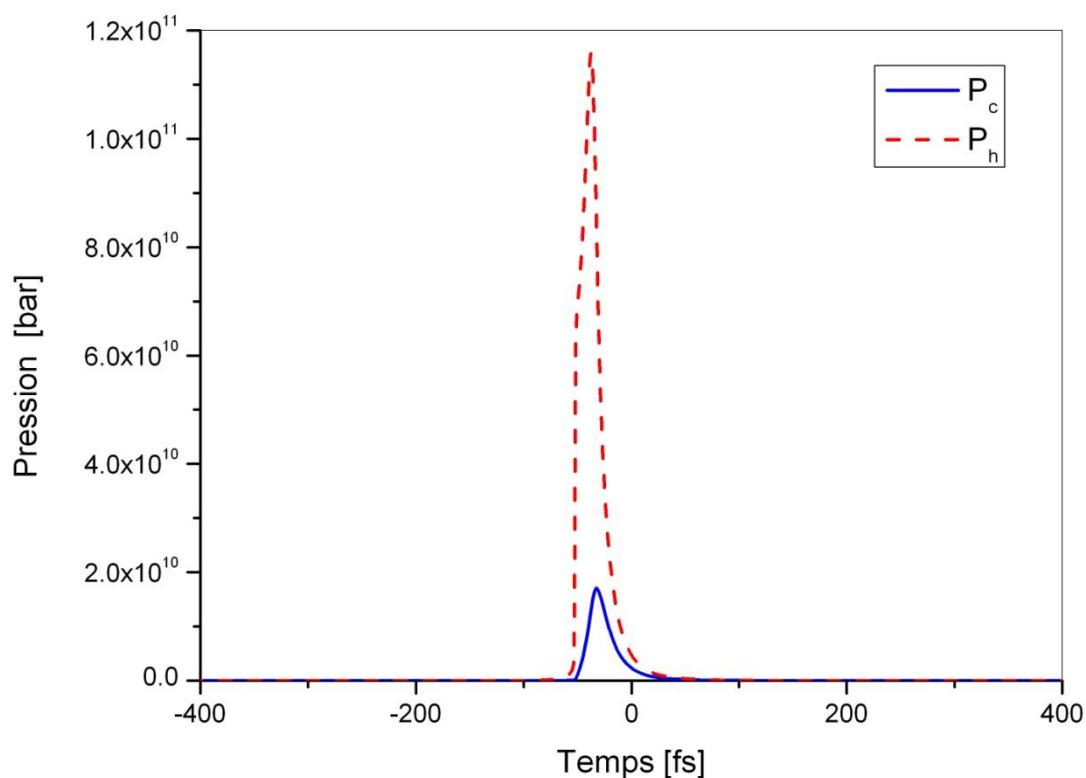


Figure III.17: Variation de la pression coulombienne et hydrodynamique à l'intérieur de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis à un champ LAZER ($I=1.10^{18}$ W/cm², $\lambda=390$ nm, $\tau=300$ fs) avec des différentes longueurs d'onde

Et pour le champ externe (*figure III.18*) on remarque qu'il y a un rétrécissement dans la longueur du pic lorsqu'on applique de grande longueur d'onde. Mais la valeur maximal reste la même et dans le même temps

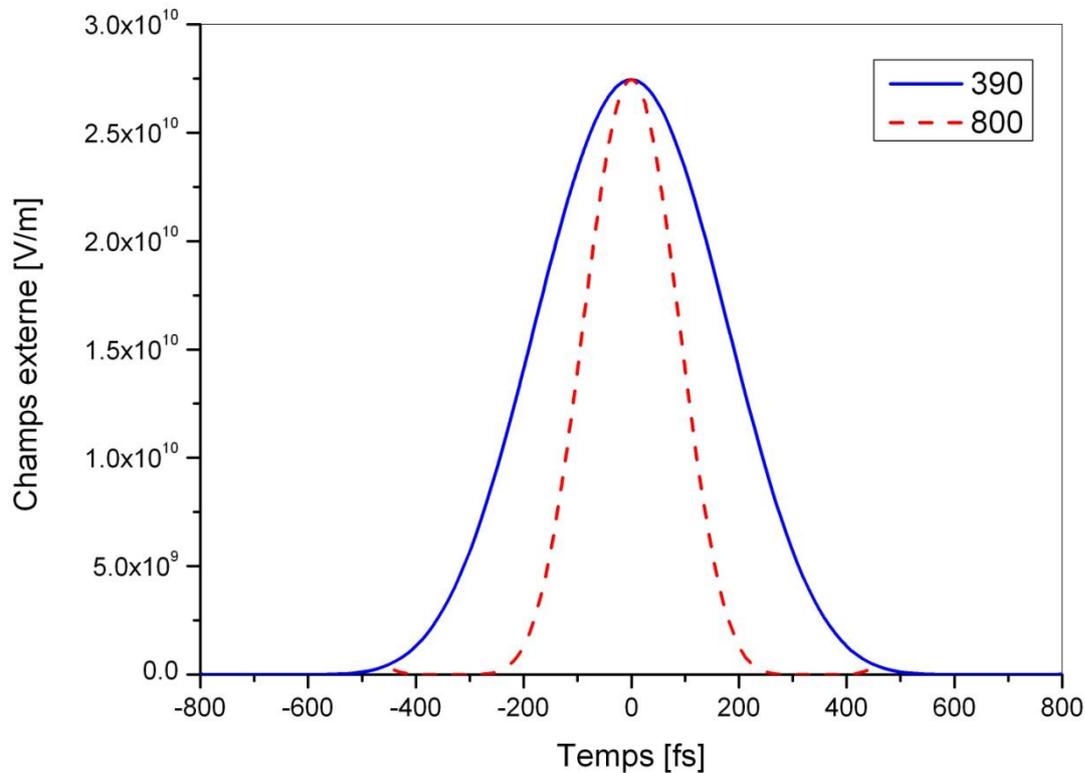


Figure III.18: le champ externe de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis à un champ LAZER ($I=1.10^{18}$ W/cm², $\tau=300$ fs) avec des différentes longueurs d'onde

Concernant la variation du champ interne (*figure III.19*), on a les mêmes remarques que celle du champ externe mais les deux pics qui se voient pour chaque longueur d'onde correspondent à : La première le champ est écranté et la deuxième à l'explosion de l'agrégat

A la fin on résulte que quand on augmente la longueur d'onde on obtient un champ plus petit

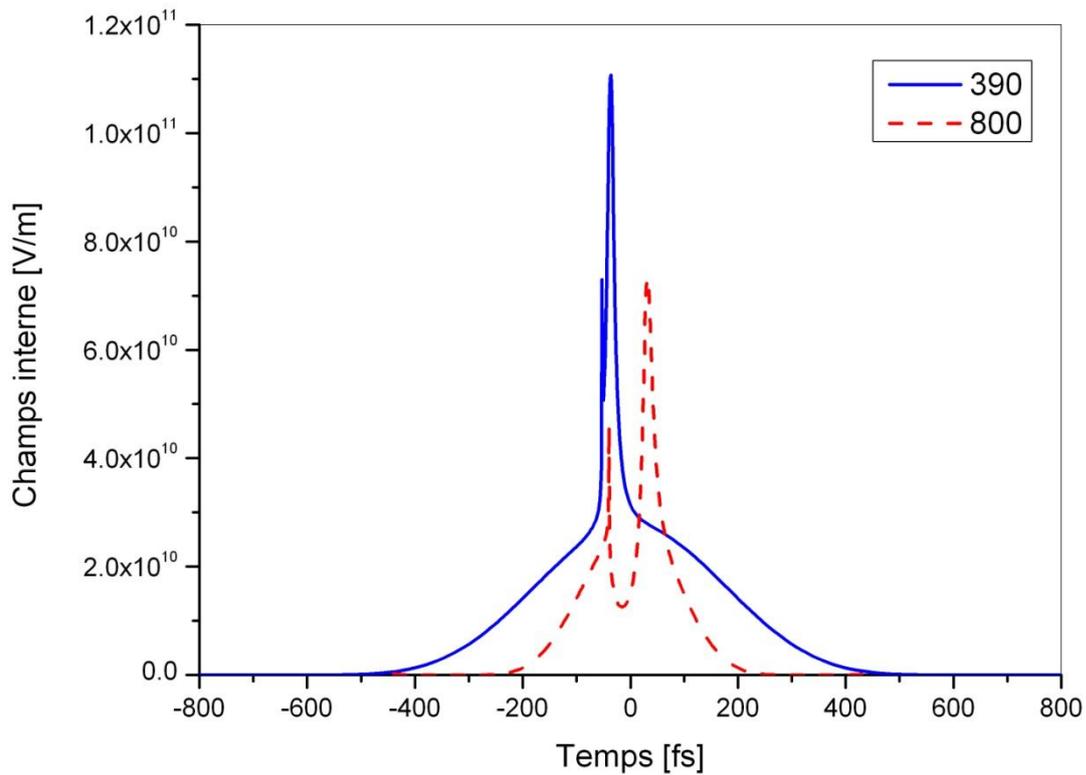


Figure III.19: Variation du champ externe de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis a un champ LAZER ($I=1.10^{18}$ W/cm², $\tau=300$ fs) avec des différentes longueurs d'onde

Ce qui concerne l'effet de la longueur d'onde on peut dire que si on la baisse on obtient des résultats plus grands tels que la pression hydrodynamique et colombienne aussi pour le champ interne et externe par contre le rayon de l'agrégat ou l'expansion se fait en une moindre vitesse

III.4. Effet du nombre d'atome:

Expérimentalement, les agrégats sont générés par détente d'un gaz au travers d'une buse. Il a été établi que la pression de la buse conditionne la taille moyenne des agrégats dans le jet. Il devient donc aisément possible sur un dispositif expérimental donné de faire varier la taille des agrégats par simple variation de la pression. Avec le code nanoplasma on peut aussi varier le nombre d'atome et on étudie les résultats.

La (figure III.20) représente la variation du rayon de l'agrégat en fonction du temps pour différentes valeurs de nombre d'atome

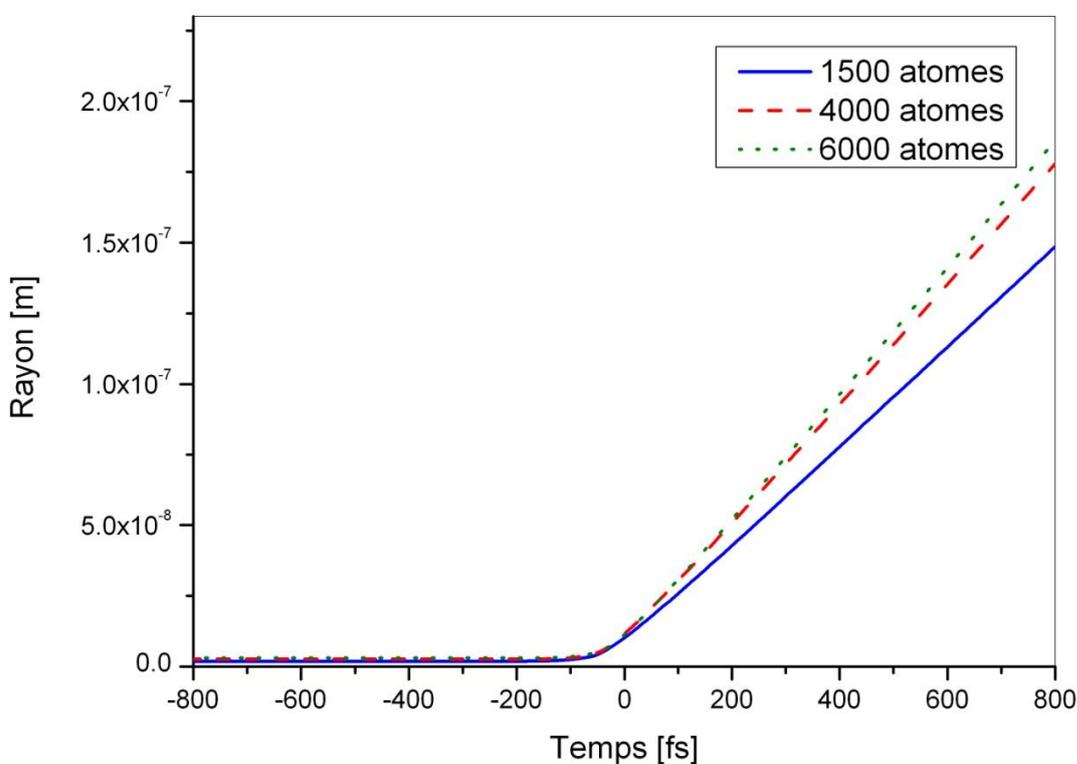


Figure III.20: la variation du rayon de l'agrégat d'Argon soumis à un champ LASER ($\lambda = 800 \text{ nm}$; $I = 1.10^{18} \text{ W/cm}^2$, $\tau = 300 \text{ fs}$) avec des différents nombre d'atomes

Le rayon augmente plus rapidement si on augmente le nombre d'atome par agrégat mais le temps de l'expansion et explosion reste presque le même

Ce qui concerne les pressions hydrodynamique et colombienne, la taille d'agrégat a une grande influence la (figure III.21) nous montre que la valeur de la pression augmente fortement avec la variation de la taille de l'agrégat, dans le cas de 1500 atomes P_c prend une petite valeur et quand on utilise un agrégat de 6000 atome la pression prend une valeur plus que le double de la précédente.

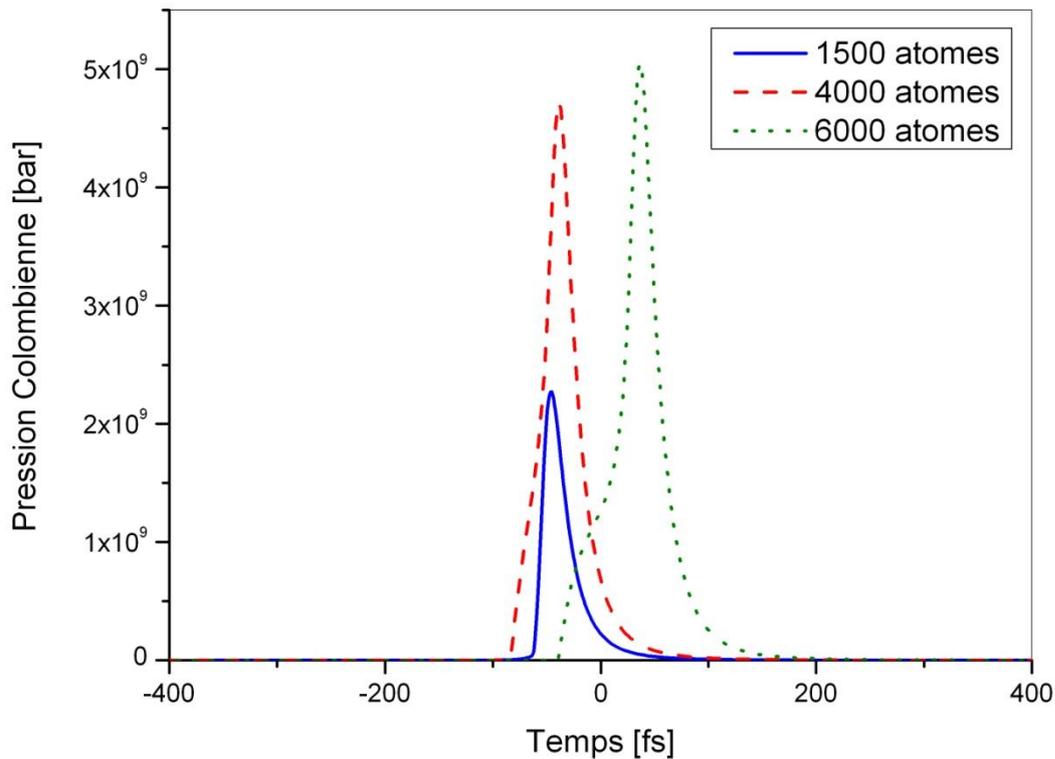


Figure III.21: Variation de la pression colombienne en fonction du temps à l'intérieur de l'agrégat d'Argon soumis à un champ LAZER ($\lambda = 800\text{nm}$; $I = 1.10^{18} \text{W/cm}^2$) avec des différentes nombre d'atomes

La pression hydrodynamique (figure III.22) aussi prend des grandes valeurs pour des gros agrégats

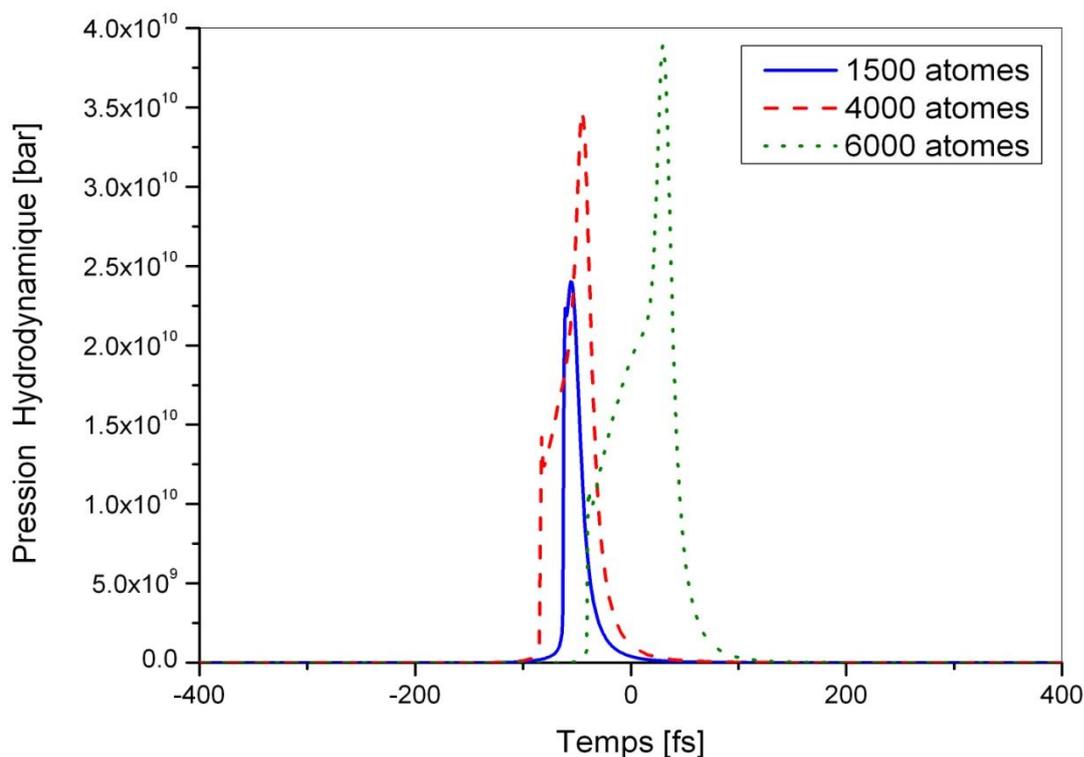


Figure III.22: Variation de la pression hydrodynamique à l'intérieur de l'agrégat d'Argon soumis à un champ LAZER ($\lambda= 800\text{nm}$; $I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$) avec des différentes

Avec toute cette variation de pression il reste toujours que la pression hydrodynamique est la responsable de l'expansion de l'agrégat comme il est clair dans (figure III.23) que la valeur de la pression hydrodynamique est plus grande de celle de la pression colombienne

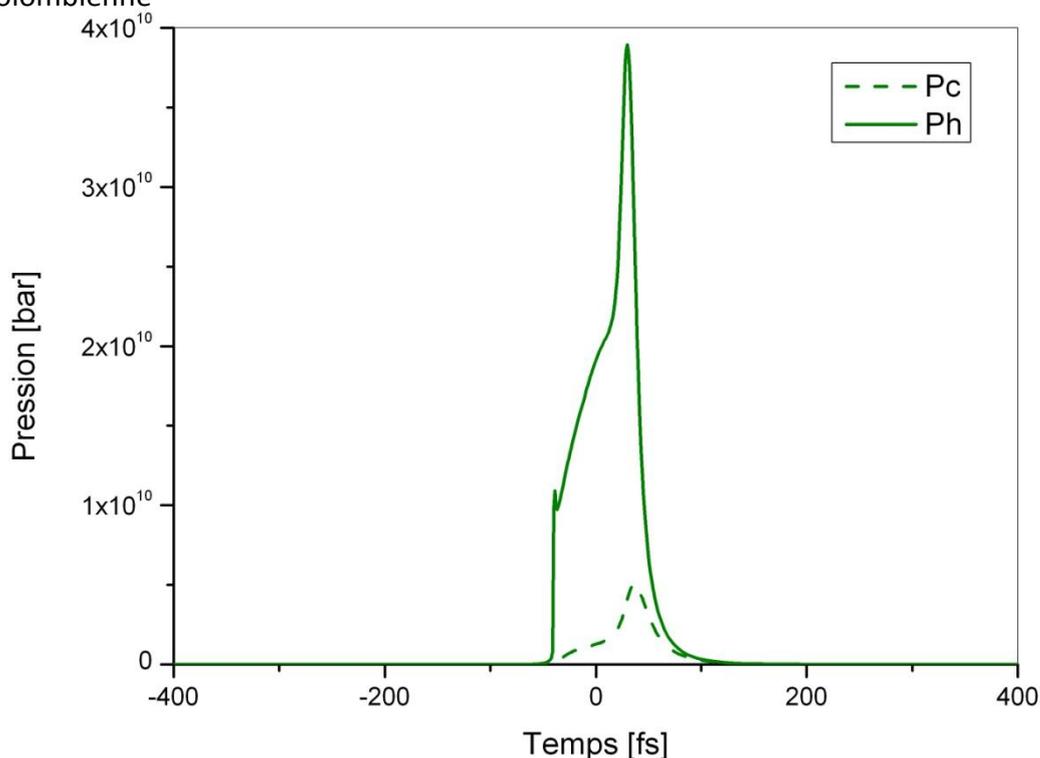


Figure III.23: Variation de la pression hydrodynamique et colombienne en fonction du temps à l'intérieur de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis à un champ LAZER ($\lambda= 800\text{nm}$; $I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$)

D'une autre côté on remarque que le champ externe (*figure III.24*) atteint la même valeur dans le cas de 4000 et 6000 atomes mais on trouve que si on applique des agrégats a grand nombre d'atome l'intervalle du champ devient un peut plus court.

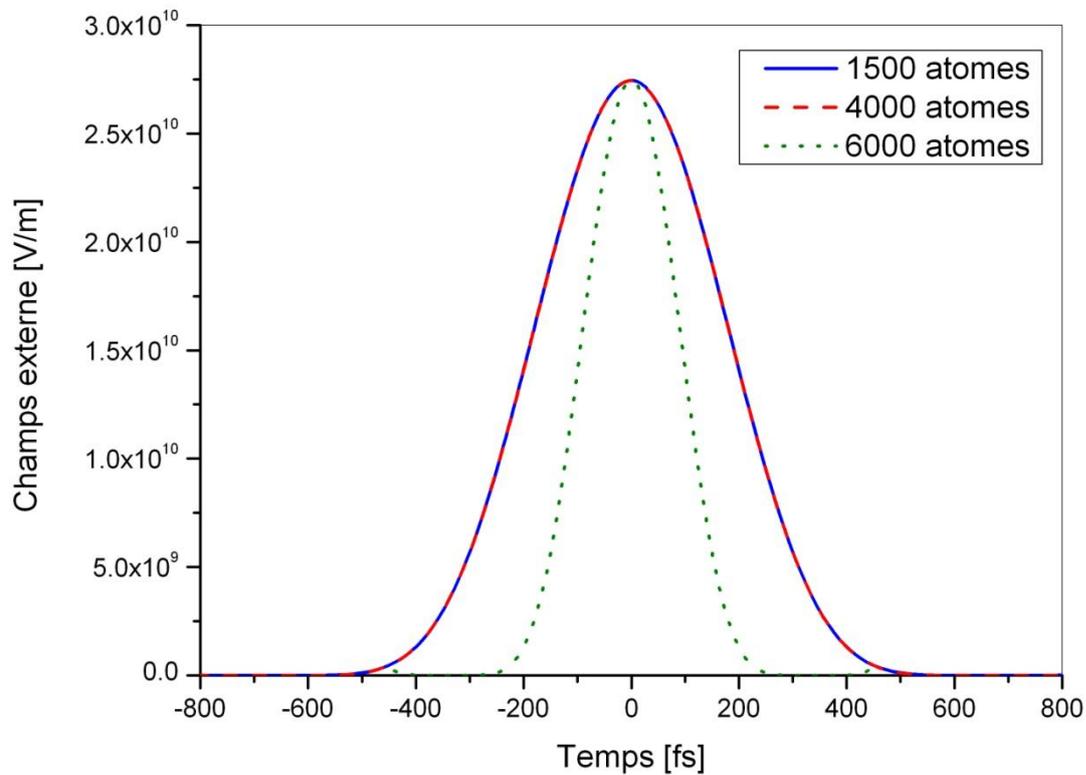


Figure III.24: Variation du champ externe en fonction du temps à l'intérieur de l'agrégat d'Argon soumis a un champ LASER ($\lambda=800\text{nm}$; $I=1.10^{18}$ W/cm^2) avec des différentes nombre d'atomes

Par contre avec le champ interne on trouve une grande variation dans les valeurs pour les deux pics (*figures III.25 et III.26*).

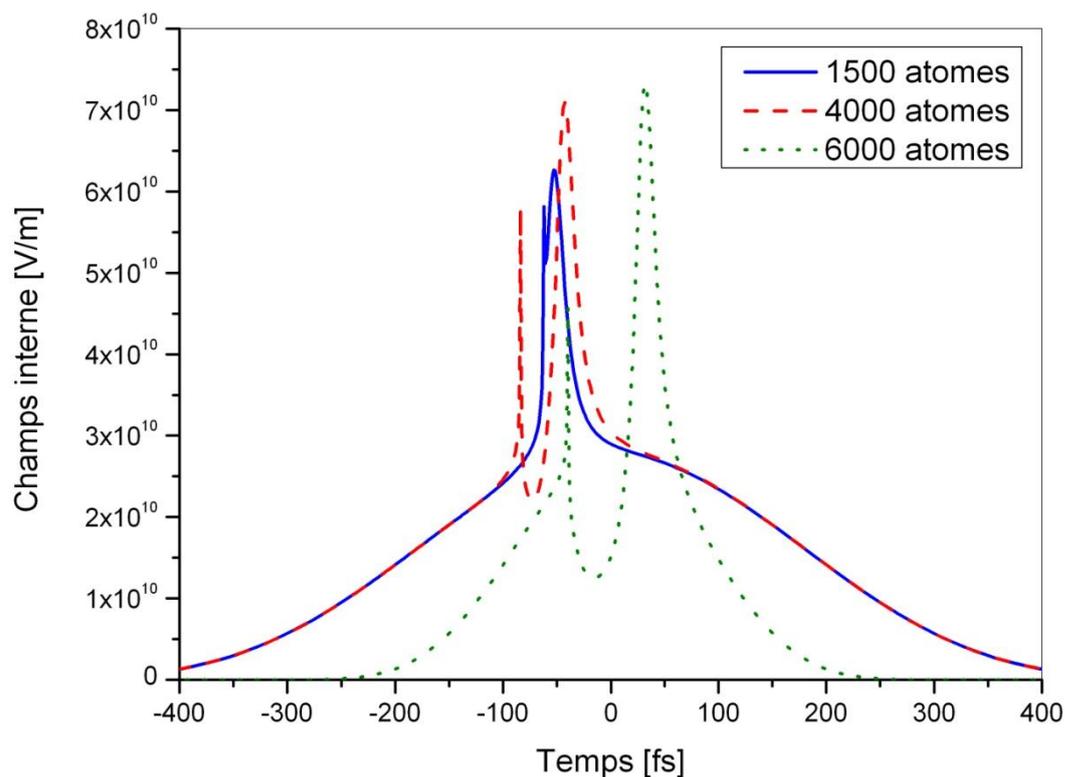


Figure III.25: Variation du champ interne en fonction du temps à l'intérieur de l'agrégat d'Argon soumis a un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$; $I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$) avec des différentes nombre d'atomes

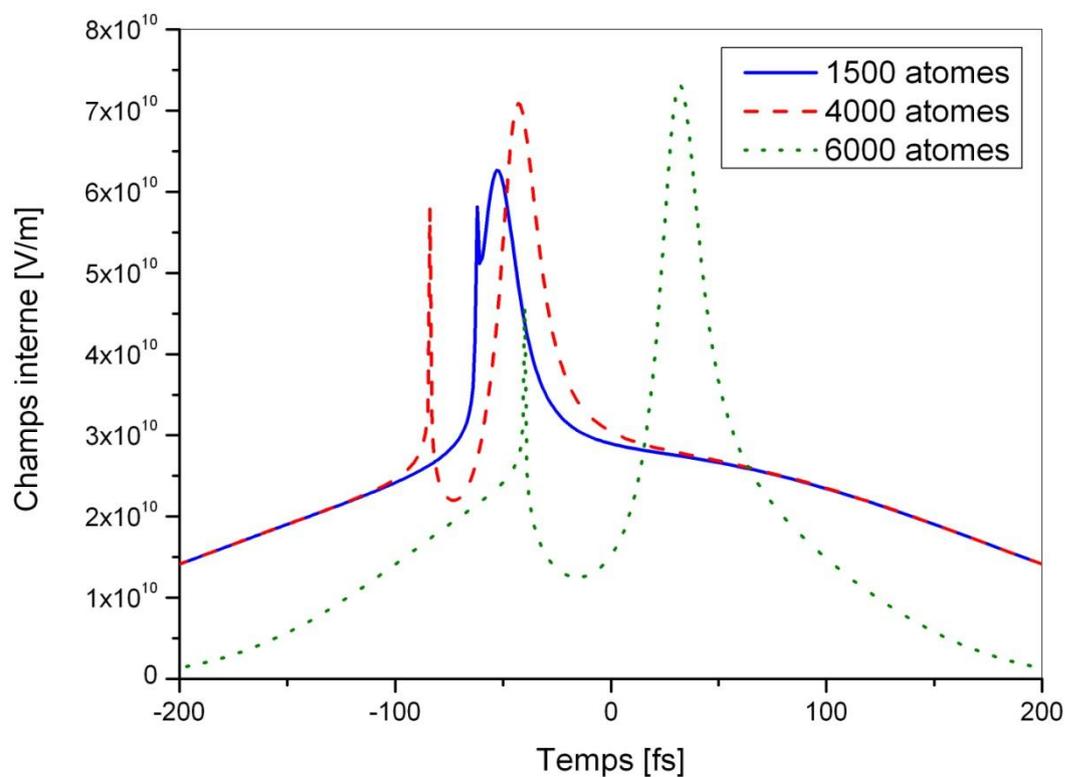


Figure III.26: Variation due champ interne en fonction du temps à l'intérieur de l'agrégat d'Argon soumis à un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$; $I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$) avec des différentes nombre d'atomes

La (figure III.27) présente la variation du champ interne et externe en fonction du temps.

En remarque toujours que le champ interne est plus grand que le champ externe

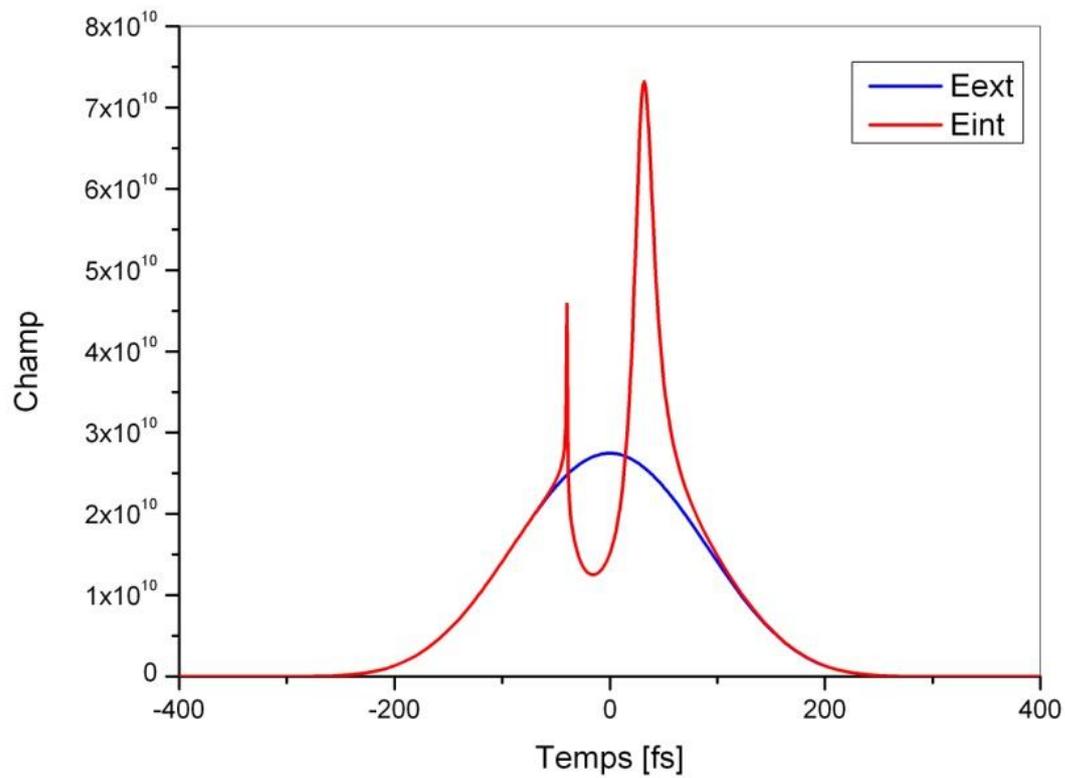


Figure III.27: Variation du champ interne et externe en fonction du temps à l'intérieur de l'agrégat d'Argon de 6000 atomes soumis à un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$; $I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$)

La fréquence de collision électrons-ions diminue légèrement (*figure III.28*) pour de gros agrégats avec un intervalle de collision plus large

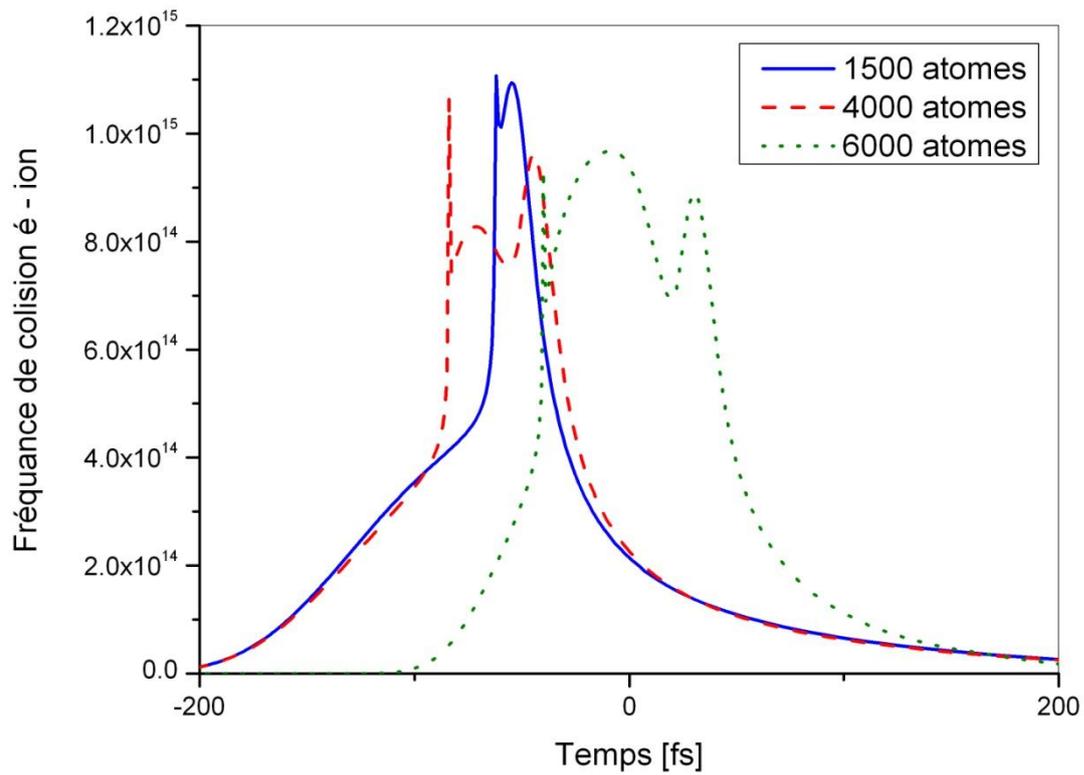


Figure III.28: Variation de la fréquence de collision é-ions à l'intérieur de l'agrégat d'Argon soumis à un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$; $I=1.10^{18}\text{ W/cm}^2$) avec des différentes nombre d'atomes

La (figure III.29) représente le rapport $\frac{n_e}{n_c}$ en fonction du temps on remarque que leurs valeurs augmentent proportionnellement avec l'augmentation du nombre d'atomes de l'agrégat. Pour un agrégat de 1500 atomes $\frac{n_e}{n_c}$ prend une valeur maximal d'environ 4 et $\frac{n_e}{n_c} \approx 6$ avec 4000 atomes et pour un agrégat de 6000 atome $\frac{n_e}{n_c}$ augmente jusqu'à 10, ensuite $\frac{n_e}{n_c}$ diminue et tend vers zéro

Avec ces trois exemples on remarque qu'on a toujours deux résonances $\frac{n_e}{n_c} = 3$

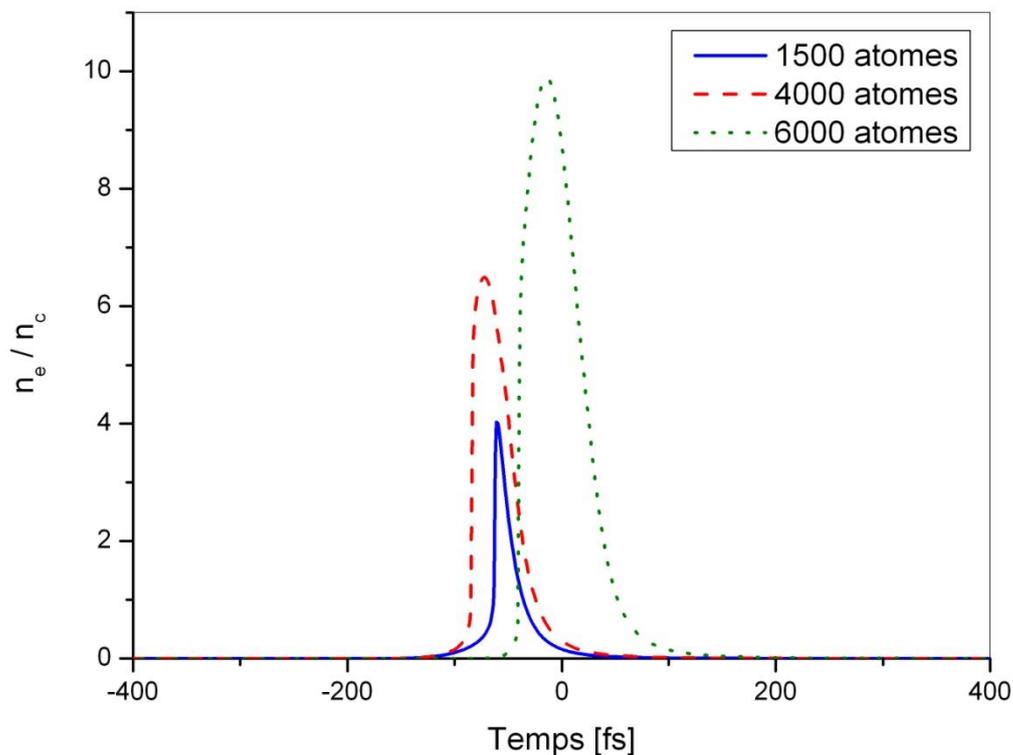
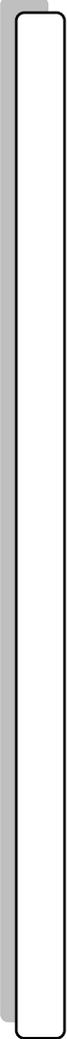


Figure III.29: Variation de la densité électronique normalisée par la densité critique en fonction du temps pour l'agrégat d'Argon soumis à un champ LAZER ($\lambda=800\text{nm}$; $I=1.10^{18} \text{ W/cm}^2$) avec des différentes nombre d'atomes



CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

CONCLUSIONS 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 mémoire, nous nous sommes attachés à étudier les différents paramètres issus de l'irradiation d'agrégats d'argon. Des résultats expérimentaux précédents démontrent clairement que ce type d'interaction permet de générer des sources X très énergétiques (multi-keV) et ultra-brèves (subpicoseconde).

Suite à l'amélioration du modèle nanoplasma par la prise en compte des processus d'ionisation collisionnel indirects par le groupe de S. MISHEAU, avec le pouvoir de 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 gérée par un ensemble de variables interdépendantes qui conduisent à la formation d'un plasma chaud et dense générant ainsi les ions multichargés. Nous avons de plus mené une étude de la variation du champ et la pression et d'autres paramètres en fonction des différents paramètres expérimentaux (intensité laser, durée d'impulsion, taille d'agrégat, longueur d'onde d'irradiation). Les résultats obtenus ont montré que l'intensité laser a un grand effet sur tous les paramètres on a remarqué que si on augmente l'intensité on obtient un champ plus grand et le champ interne se diverge entre les deux résonances et cette divergence est due à l'amélioration sur le model. En suite l'effet de la longueur d'onde est beaucoup plus clair sur la pression, avec des petites longueurs d'onde on obtient de fortes pressions à l'intérieur de l'agrégat et aussi pour le champ interne et externe l'interaction se fait dans un temps plus court si on utilise des longueurs plus grandes. Dans le cas ou on change la taille d'agrégat (le nombre d'atome) on constate que la fréquence de collision électron-ion diminue si

on augmente le nombre d'atome et aussi l'énergie des ions augmente, et le champ interne et externe atteint des valeurs plus grandes

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 des résultats utilisables par exemple pour des expériences de spectroscopie d'absorption ultra-rapide résolues en temps.

A vertical bar on the left side of the page, consisting of a thin black outline and a thicker grey shadow to its left.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIE

REFERENCES

- [1] T. DITMIRE, T. DONNELLY, A. M. RUBENCHIK, R. W. FALCONE et M. D. PERRY: Interaction of intense laser pulses with atomic clusters. *Phys. Rev. A*, 53:3379-1996, 3402.
- [2] S MICHEAU : étude théorique de l'interaction entre une impulsion laser intense et un agrégat de gaz rare Thèse de doctorat, Université bordeaux I : N° 2007, 3389.
- [3] F. MEGI : Etude théorique d'agrégats soumis à des champs laser intenses thèse de doctorat, Université Paul Sabatier .TOULOUSE III. 2005.
- [4] C. PRIGENT, L'émission X : un outil et une sonde pour l'interaction laser-agrégats, Thèse de doctorat, Université Paris VI - Pierre et Marie Curie, 2004.
- [5] BECKER, E. W. On the history of cluster beams. *Zeit. Phys. D : Atoms, Molecules and Clusters* 3 1986, 101.
- [6] SCOLES, G. Atomic and molecular beam methods. Oxford University Press, Oxford New-york. 1988
- [7] JORTNER, J. Cluster size effects. *Zeit. Phys. D : Atoms, Molecules and Clusters* 24, 1992 247-275.
- [8] KLEIN, M. L. & AZIZ, R. A. Inert gases : potentials, dynamics, and energy transfer in doped crystals. Springer Verlag, Berlin New-York. 1984
- [9] GRAY, D. E. American institute of physics handbook. AIP, New-york, London, Toronton. 1963
- [10] FARGES, J., DEFERAUDY, M. F., RAOULT, B. & TORCHET, G. Structure and temperature of rare gas clusters in a supersonic expansion. *Surface Science* 1981 106, 95.
- [11] DRAKE, W. F. G. Atomic, molecular & optical physics handbook. AIP Press, Woodbury New-York. 1996
- [12] BARTELL, L. S. Diffraction studies of clusters generated in supersonic flow. *Chem. Rev.* 1986 86, 491.
- [13] RÜHL, E. Core level excitation, ionization, relaxation, and fragmentation of free clusters. *International Journal of Mass Spectrometry* 229 2003, 117-142.
- [14] T. CAILLAUD : Etude expérimentale de l'émission x issue de l'interaction laser-agrégats. Thèse de doctorat, Université sciences et technologies - Bordeaux I, 2004.

-
- [15] TCHAPLYGUINE, M., FEIFEL, R., MARINHO, R. R., GISSELBRECHT, M., SORENSEN, S. L., NAVES DE BRITO, A., MÄRTENSSON, N., SVENSSON, S. & BJÖRNEHOLM, O. Selective probing of the electronic structure of free clusters using resonant core - level spectroscopy. *Chem. Phys.* 289, 2003, 3-13.
- [16] MOUROU, G. A., BARTY, C. P. J. & PERRY, M. D. Ultrahigh - intensity lasers: physics of the extreme on a tabletop. *Physics Today* January 98, 1998, 22-28.
- [17] BROSEL, J., CAGNAC, B. & KASTLER, A. Multiple - quanta magnetic resonance in a beam of optically oriented sodium atoms. *Compt. Rend. Acad. Sci* 237, 1953, 984-986.
- [18] MAINFRAY, G. & MANUS, C. Multiphoton ionization of atoms. *Rep. Prog. Phys.* 54, 1991, 1333-1372.
- [19] L'HUILLIER, A. Ionisation multiphotonique et multiélectronique, Thèse de l'Université Pierre et Marie Curie. 1986
- [20] LANDAU, L. D. & LIFSHITZ, E. M. *Quantum Physics*, London. 1978
- [21] AMMOISOV, M. V., DELONE, N. B. & KRAINOV, V. P. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternative electromagnetic field. *Sov. Phys. JETP* 64, 1986, 1191.
- [22] AUGST, S., MEYERHOFER, D. D., STRICKLAND, D. & CHIN, S. L. Laser ionization of noble gases by coulomb barrier suppression. *J. Opt. Soc. Am. B* 8, 1991, 858-867.
- [23] MONOT, P. Interaction laser - gaz en champ intense, Thèse de l'Université de Paris Sud (Paris XI). 1993
- [24] YAMAKAWA, K., AKAHANE, Y., FUKUDA, Y., AOYAMA, M., INOUE, N., UEDA, H. & UTSUMI, T. Many - electron dynamics of a Xe atom in strong and super strong laser fields. *Phys. Rev. Lett.* 92, 2004, 123001.
- [25] 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.
- [26] SPRINGATE, E., HAY, N., TISCH, J. W. G., MASON, M. B., DITMIRE, T., HUTCHINSON, M. H. R. & MARANGOS, J. P. Explosion of atomic clusters irradiated by high-intensity laser pulses : Scaling of ion energies with cluster and laser parameters. *Phys. Rev. A* 61, 2000, 063201.
- [27] ZWEIBACK, J., DITMIRE, T. & PERRY, M. D. Femtosecond time-resolved studies of the dynamics of noble-gas cluster explosions. *Phys. Rev. A* 59, 1999, R3166-R3169.
- [28] Milchberg H.M., McNaught S.J. et Parra E., Plasma hydrodynamics of the intense laser-cluster interaction, *Phys. Rev. E* 64, 2001 056402.

-
- [29] 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.
- [30] Ishikawa K. et Blenski T., Explosion dynamics of rare-gas clusters in an intense laser field, *Phys. Rev. A* 62, 2000, 063204.
- [31] Last I. et Jortner J., Dynamics of the coulomb explosion of large clusters in a strong laser field, *Phys. Rev. A* 62 2000, 013201.
- [32] 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.
- [33] 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.
- [34] W D. HEER, The physics of simple metal clusters: experimental aspects and simple models. *Rev. Mod. Phys.* 65, 1993, 611-676,.
- [35] S. DOBOSZ.: Interaction d'agrégats de gaz rares avec un champ laser intense, Thèse de doctorat, Université Paris 13 – Institut Galilée, 1998.
- [36] 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.
- [37] 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.
- [38] Landau L. et Lifchitz E., *Electrodynamique des milieux continus*, les éditions mir, 1969
- [39] Braginskii S.I., *Reviews of plasma physics*, m.a. leontovich consultants bureau, new york ed., vol. 1, 1965, p. 213.
- [40] Silin V.P., Nonlinear high-frequency plasma conductivity, *J. Exp. Theor. Phys.* 20, 1965, 1510.
- [41] 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.

-
- [42] 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.
- [43] 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.
- [44] Yannouleas C., The wall formula for nuclear dissipation as a special limit of RPA damping, *Nucl. Phys. A* 439, 1985, 336.
- [45] YANNOULEAS C. et BROGLIA R.A., Landau damping and wall dissipation in large metal clusters, *Ann. Phys. NY* 217, 1992, 105.
- [46] ABRAMOWITZ M. et STEGUN I.A. (ed.), *Handbook of mathematical functions*, National Bureau of Standards, 1964.
- [47] LORRRAIN P., CORSON D.P. et LORRAIN F., *Electromagnetic fields and waves*, éd. Freeman and company, N.Y. ed., 1988.
- [48] HAUGHT A.F. et POLK D.H., Formation and heating of laser irradiated solid particle plasmas, *Phys. fluids* 13, 1970, 2825.
- [49] 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.
- [50] BUDIL, K. S., SALIERES, P., L'HUILLIER, A., DITMIRE, T. & PERRY, M. D. Influence of ellipticity on harmonic generation. *Phys. Rev. A* 48, 1993, R3437-R3440.
- [51] GEINDRE, J. P. & GAUTHIER, J.-C. Rayonnement X ultra - bref de plasmas produits par laser. *Les Images de la Physique*, 1997, 128.
- [52] BANERJEE, S., RAVINDRA-KUMAR, G. & TRIBEDI, L. C. X-ray emission from aluminium under intense, ultrashort irradiation. *Eur. Phys. J. D* 11, 2000, 295-300
- [53] CORKUM, P. B. Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.* 71, 1993, 1994-1997.