



# Étude théorique d'agrégats soumis à des champs laser intenses

Fabien Megi

## ► To cite this version:

Fabien Megi. Étude théorique d'agrégats soumis à des champs laser intenses. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2005. Français. NNT: . tel-00011994

**HAL Id: tel-00011994**

**<https://theses.hal.science/tel-00011994>**

Submitted on 21 Mar 2006

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

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



UNIVERSITÉ PAUL SABATIER – TOULOUSE III

# THÈSE

présentée par

**Fabien MEGI**

en vue de l'obtention du grade de

Docteur ès Sciences

Discipline : Physique Théorique

École Doctorale : Physique et Nanophysique

## Étude théorique d'agrégats soumis à des champs laser intenses

Soutenue le 13 juin 2005 devant le jury composé de :

|                                                   |                           |
|---------------------------------------------------|---------------------------|
| M. Mohamed BELKACEM (LPT-IRSAMC – Toulouse)       | <b>Directeur de Thèse</b> |
| M. Mohamed Aziz BOUCHÈNE (LCAR-IRSAMC – Toulouse) | <b>Examinateur</b>        |
| M. Paul-Antoine HERVIEUX (GONLO – Strasbourg)     | <b>Rapporteur</b>         |
| M. Bernard PONS (CELIA – Bordeaux)                | <b>Rapporteur</b>         |
| M. Éric SURAUD (LPT-IRSAMC – Toulouse)            | <b>Examinateur</b>        |
| Mme Dominique VERNHET (INSP – Paris)              | <b>Examinatrice</b>       |
| M. Guenter ZWICKNAGEL (ITP II – Erlangen)         | <b>Invité</b>             |

Laboratoire de Physique Théorique (UMR 5152)



À mes parents  
À «Archimède, le magazine scientifique et technique d'Arte»



# Remerciements

Cette thèse a été effectuée au sein du Laboratoire de Physique Théorique (LPT) de Toulouse, laboratoire intégré à l'Institut de Recherche sur les Systèmes Atomiques et Moléculaires Complexes (IRSAMC). Didier Poilblanc a succédé à Éric Sørensen à la direction du LPT pendant mon séjour, et je les remercie tous deux de m'y avoir accueilli, et de m'avoir offert des conditions de travail excellentes.

Je suis très reconnaissant envers Mohamed Belkacem et Éric Suraud d'avoir assuré la direction de ma thèse. Je remercie Mohamed de m'avoir guidé sur ce sujet de thèse passionnant, de son aide et de sa générosité de tous les instants. Je remercie Éric de sa disponibilité et de son intérêt constant pour mon travail.

J'ai été honoré que MM. Paul-Antoine Hervieux et Bernard Pons acceptent de rapporter mes travaux de thèse, et je les en remercie très sincèrement. J'ai également été très honoré que Mme Dominique Vernhet accepte de faire partie du jury, et je la remercie d'en avoir assuré la présidence.

Au cours de cette thèse, j'ai pu collaborer avec Mohamed Aziz Bouchène et Guenter Zwicknagel. Ces collaborations furent très instructives et agréables, et je les en remercie tous deux. Je remercie par ailleurs Guenter de son hospitalité lors de mon bref séjour à Erlangen, dans le cadre du programme PROCOPE, et d'avoir fait le déplacement jusqu'à Toulouse pour ma soutenance.

Je remercie les membres de l'École Doctorale de Physique et Nanophysique, MM. Alberto Beswick, Armand Coujou, Jean-Paul Malrieu et Jean-Claude Ousset, pour l'organisation du congrès annuel d'Aspet, qui donne l'occasion de se régaler. Je remercie Bruno Lepetit et Joseph Morillo pour les discussions scientifiques que nous avons eues lors de ces congrès.

Je remercie l'ensemble des membres de l'IRSAMC (donc du LPT) avec lesquels j'ai pu interagir, rendant par là même mon séjour des plus agréables. Qu'ils me pardonnent de ne pas tous les citer ici. Merci à Gilles Bailly, Florent Calvo, Nicolas Destainville, Maï Dinh, Gérard Durand, Robert Fleckinger, Bertrand Georgeot, Nadine Halberstadt, Pierre Labastie, Georges Landa, Marie-Bernadette Lepetit, Fernand Spiegelmann, Georges Trinquier et Jacques Vigué. Je remercie Clément Sire et Jean-Pierre Daudey de m'avoir permis d'assister à leurs cours.

Je remercie de leur aide administrative Sylvia Scaldaferro, Gisèle Dedieu, Marianne Delrieu et Catherine Ousset. Je remercie la cellule informatique de l'IRSAMC, en particulier Patrick Pérez, que j'ai souvent étonné avec mes problèmes de mot de passe ou d'espace disque. Merci pour leurs conseils informatiques à Klaus Frahm, Sylvain Capponi et Mathieu Mambrini. Je remercie la communauté Linux, le présent manuscrit ayant été rédigé avec  $\text{\LaTeX}$ .

Je remercie mes collègues thésard(e)s ou stagiaires qui m'ont supporté successivement dans leur bureau, Carmen Legrand, Andreas Pohl, Julien Sopik, Adeline Bail et Gaspard Bousquet. Je remercie les compagnons de thèse Benoît Bocquillon, Vianney Desoutter, Alain Gellé et Nicolas Nieuwjaer, qui ont longuement cherché à comprendre l'origine de mes nanoterries, pour finalement renoncer! Je remercie Pierre-Henri Chavanis qui m'a souvent fait partager les avancées de ses recherches, usant constamment de pédagogie.

Merci aux thésard(e)s ou postdocs, de leur état passé ou présent, Guillaume Bachelier, Stefano et Eleonora Bettelli, Gaëtan Caldara, Stéphane Casimirus, Claudine Colnard, Raphaël Cherrier, Olivier Chiappa et Claire, Boucar Diouf, Éric Giglio et Vanessa Matuszewski, Étienne Gindensperger, Hervé Seitz, José Lages, Jae-Weon Lee, Leang Ming Ma et Cathy Armengaud, Benjamin Lévi, Benjamin Lévine, David Magnoux, Jérôme Polesel, Andreï Pomeransky, Guillaume Roux et Marcello Terraneo, pour tous les bons moments passés ensemble. Je salue également Matthieu Anel, Julien Keller et Ivane Pairaud.

Je remercie Yvette Petit et ses «Ouvertures de l'UPS». Souhaitons également longue vie à l'*Atelier d'Accompagnement au Projet Professionnel*, porté par Jean-Michel Baleynaud, Jean-Philippe Chevaillier et leur équipe. Je tiens à remercier pour leur soutien à la culture scientifique et technique Anne Bertrand, Gilles Colin, Olivier Montrond, et Nicolas Sassi.

Mercis à Albane, Aurore, Christine, Chico, Delphine, Fabrice, Gaëtan, Inès, Jacques, Jean-Baptiste, Jean-Charles, Jean-Luc, Juliette, Karim, Kenshi, Manu, Nanar, Nicolas, Olivier, Patricia et Stéphane.

Enfin, je terminerai ces remerciements à l'adresse de mes professeurs d'École (Monsieur Fromage, êtes vous encore en vie après toutes ces expériences de physico-chimie vivante?) et de mes parents, dont les remarques grammaticales sur le manuscrit m'ont été très précieuses.

# Table des matières

|                                                                                            |           |
|--------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>Préambule</b>                                                                           | <b>11</b> |
| <b>1 Contexte</b>                                                                          | <b>13</b> |
| 1.1 Physique en jeu . . . . .                                                              | 13        |
| 1.1.1 Scénario de l'interaction laser-agrégat. Mécanismes clés. . . . .                    | 14        |
| 1.1.2 Évidences expérimentales en champ fort . . . . .                                     | 16        |
| 1.2 Un panorama de modèles . . . . .                                                       | 22        |
| 1.2.1 À basse énergie . . . . .                                                            | 22        |
| 1.2.2 À haute énergie . . . . .                                                            | 24        |
| <b>2 Modèle nanoplasma</b>                                                                 | <b>29</b> |
| 2.1 Modèle . . . . .                                                                       | 29        |
| 2.1.1 Présentation générale . . . . .                                                      | 30        |
| 2.1.2 Prérequis : champ électrique interne . . . . .                                       | 31        |
| 2.1.2.1 Le champ laser . . . . .                                                           | 31        |
| 2.1.2.2 Amplification ou suppression du champ externe . . . . .                            | 31        |
| 2.1.3 Formation du nanoplasma . . . . .                                                    | 33        |
| 2.1.3.1 Ionisation par effet tunnel . . . . .                                              | 33        |
| 2.1.3.2 Ionisation par collisions électroniques . . . . .                                  | 34        |
| 2.1.3.3 Population ionique . . . . .                                                       | 35        |
| 2.1.4 Dynamique du nanoplasma . . . . .                                                    | 36        |
| 2.1.4.1 Émission électronique et charge de l'agréat . . . . .                              | 36        |
| 2.1.4.2 Expansion . . . . .                                                                | 37        |
| 2.1.4.3 Température électronique . . . . .                                                 | 37        |
| 2.2 Implémentation numérique . . . . .                                                     | 39        |
| 2.2.1 Nécessité d'un algorithme adapté . . . . .                                           | 39        |
| 2.2.2 D'une amélioration nécessaire du modèle . . . . .                                    | 40        |
| 2.2.2.1 La double résonance . . . . .                                                      | 41        |
| 2.2.2.2 Fréquence de collision et résonance . . . . .                                      | 42        |
| 2.2.2.3 Effet de surface . . . . .                                                         | 44        |
| 2.2.3 L'exemple d'une dynamique prenant en compte les collisions avec la surface . . . . . | 46        |
| 2.3 Dépendance avec la taille d'agréat et l'intensité laser . . . . .                      | 52        |
| 2.3.1 Dépendance des états de charge avec la taille d'agréat . . . . .                     | 52        |
| 2.3.2 Dépendance des états de charge avec l'intensité laser . . . . .                      | 54        |



|          |                                                                                       |           |
|----------|---------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>3</b> | <b>Modélisation par dynamique moléculaire</b>                                         | <b>57</b> |
| 3.1      | Principe . . . . .                                                                    | 58        |
| 3.1.1    | Choix du potentiel . . . . .                                                          | 58        |
| 3.1.2    | Implémentation numérique : algorithme de Verlet . . . . .                             | 59        |
| 3.2      | Cas test du sodium $Na = Na^+ + e^-$ . . . . .                                        | 60        |
| 3.2.1    | Largeurs de potentiel et distribution initiale . . . . .                              | 60        |
| 3.2.2    | Stabilité temporelle . . . . .                                                        | 61        |
| 3.2.3    | Centre de masse des électrons et réponse optique . . . . .                            | 64        |
| 3.2.4    | Excitation laser : réponse fréquentielle . . . . .                                    | 66        |
| 3.3      | Au-delà du modèle à un électron de conduction . . . . .                               | 68        |
| 3.3.1    | Prise en compte des électrons des niveaux $2s$ et $2p$ . . . . .                      | 68        |
| 3.3.1.1  | Choix des largeurs de potentiel . . . . .                                             | 69        |
| 3.3.1.2  | Distribution spatiale des électrons $e2$ . . . . .                                    | 70        |
| 3.3.2    | Stabilité . . . . .                                                                   | 71        |
| 3.3.3    | Réponse optique . . . . .                                                             | 72        |
| 3.3.4    | Systématique en fréquence . . . . .                                                   | 73        |
| 3.3.5    | Différents régimes d'intensité : émission des électrons $e2$ . . . . .                | 75        |
| 3.3.5.1  | Évolution générale . . . . .                                                          | 75        |
| 3.3.5.2  | Ionisation des électrons $e2$ : explosion coulombienne . . . . .                      | 77        |
| 3.4      | Vers une application au xénon et à l'argon . . . . .                                  | 81        |
| 3.4.1    | Choix des paramètres et stabilité . . . . .                                           | 81        |
| 3.4.2    | Systématique en intensité . . . . .                                                   | 82        |
|          | <b>Conclusion</b>                                                                     | <b>84</b> |
| <b>A</b> | <b>Calcul des taux d'ionisation <math>W_j^{kT_e}</math> et <math>W_j^{las}</math></b> | <b>87</b> |
| A.1      | Taux d'ionisation par collision thermique $W_j^{kT_e}$ . . . . .                      | 87        |
| A.2      | Taux d'ionisation dans le champ laser $W_j^{las}$ . . . . .                           | 88        |
| <b>B</b> | <b>Calcul de la charge de l'agrégat ou «free streaming»</b>                           | <b>91</b> |
|          | <b>Bibliographie</b>                                                                  | <b>94</b> |

# Table des figures

|                                                                                                                                                               |               |
|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------|
| <b>Figures du chapitre 1 : Contexte</b>                                                                                                                       | <b>13</b>     |
| 1.1 Différents mécanismes d'ionisation en fonction de l'éclairement laser . . .                                                                               | 15            |
| 1.2 Spectre en énergie des ions. Distribution de charge sélectionnée en énergie correspondante. . . . .                                                       | 17            |
| 1.3 Distribution en énergie cinétique des électrons mesurée. Distribution angulaire sélectionnée en énergie correspondante. . . . .                           | 20            |
| 1.4 Répartition de modèles microscopiques en fonction de leur domaine de validité . . . . .                                                                   | 23            |
| <br><b>Figures du chapitre 2 : Modèle nanoplasma</b>                                                                                                          | <br><b>29</b> |
| 2.1 Schéma de principe du modèle nanoplasma . . . . .                                                                                                         | 30            |
| 2.2 Amplification ou suppression du champ externe en fonction de la densité électronique . . . . .                                                            | 32            |
| 2.3 Taux de première ionisation tunnel et adaptation du pas de temps . . . .                                                                                  | 40            |
| 2.4 Évolution temporelle des champs électriques interne et externe ainsi que de la densité électronique normalisée à la densité critique $n_c$ . . . . .      | 41            |
| 2.5 Évolution temporelle de la charge ionique moyenne . . . . .                                                                                               | 42            |
| 2.6 Effet des collisions avec la surface sur l'amplification de la seconde résonance                                                                          | 44            |
| 2.7 Apparition et disparition du nanoplasma. Évolution des charges ioniques                                                                                   | 47            |
| 2.8 Prédominance relative des différents taux d'ionisation . . . . .                                                                                          | 48            |
| 2.9 Température du nanoplasma . . . . .                                                                                                                       | 49            |
| 2.10 Spectre énergétique des électrons émis . . . . .                                                                                                         | 50            |
| 2.11 Prédominance temporelle relative des pressions coulombienne et hydrodynamique. Effet de l'émission électronique sur le rayon de l'agrégat. . . . .       | 51            |
| 2.12 Évolutions de la charge moyenne ionique et de la charge moyenne par atome en fonction du nombre d'atomes par agrégat. Champs internes associés . . . . . | 52            |
| 2.13 Évolutions de la charge moyenne ionique et de la charge moyenne par atome en fonction de l'intensité laser. Champs internes associés . . . . .           | 55            |
| <br><b>Figures du chapitre 3 : Modélisation par dynamique moléculaire</b>                                                                                     | <br><b>57</b> |
| 3.1 Stabilité du rayon ionique. Conservation du nombre d'électrons de conduction . . . . .                                                                    | 62            |
| 3.2 Distribution d'énergie potentielle . . . . .                                                                                                              | 63            |

|                           |                                                                                                                    |           |
|---------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| 3.3                       | Effet d'un déplacement collectif : évidence de la fréquence de Mie . . . . .                                       | 64        |
| 3.4                       | Spectre de puissance du dipôle. . . . .                                                                            | 65        |
| 3.5                       | Émission électronique dépendante en fréquence. Corrélations et comparaison semi-classique (modèle VUU) . . . . .   | 67        |
| 3.6                       | Diagramme de détermination des paramètres $(\sigma_{e1}, \sigma_{e2})$ . . . . .                                   | 69        |
| 3.7                       | Distribution en niveaux énergétiques des électrons $e1$ et $e2$ . . . . .                                          | 70        |
| 3.8                       | Neutralité de la prise en compte des électrons $e2$ en termes de stabilité .                                       | 71        |
| 3.9                       | Oscillation des électrons $e2$ dans le puits de potentiel des ions . . . . .                                       | 72        |
| 3.10                      | Réponse optique des électrons $e1$ et $e2$ . . . . .                                                               | 74        |
| 3.11                      | D'une émission dépendante en fréquence vers une émission dépendante en intensité . . . . .                         | 75        |
| 3.12                      | Contribution progressive des électrons de coeur $e2$ à la charge finale en fonction de l'intensité laser . . . . . | 76        |
| 3.13                      | Ionisation et émission des électrons $e2$ . . . . .                                                                | 78        |
| 3.14                      | Apparition des différents états de charge ionique. Distribution de charge .                                        | 79        |
| 3.15                      | Spectres énergétiques des ions et électrons émis . . . . .                                                         | 80        |
| 3.16                      | Stabilité de l'énergie potentielle des électrons des niveaux 5s et 5p du xénon                                     | 82        |
| 3.17                      | Évolutions du nombre d'électrons émis en fonction de l'intensité laser . .                                         | 83        |
| 3.18                      | Vers une comparaison avec le modèle nanoplasma . . . . .                                                           | 84        |
| <b>Figures en Annexes</b> |                                                                                                                    | <b>87</b> |
| B.1                       | Couronne sphérique et élément de volume . . . . .                                                                  | 93        |
| B.2                       | Plan de section de $d\tau$ . . . . .                                                                               | 93        |

# Préambule

L'exposé du travail de thèse suivant se situe dans le domaine actif de l'interaction laser-agrégat. Cet exposé est divisé en trois chapitres. Le premier chapitre comporte deux parties introductives. La première consiste, après un rappel rapide des notions de base utiles à la compréhension du manuscrit, en une présentation des évidences expérimentales en champ fort pour de gros agrégats. La seconde propose un tour d'horizon des modèles théoriques qui s'attachent à comprendre les mécanismes de l'interaction laser-agrégat.

Dans le second chapitre, nous proposons une version modifiée du modèle nanoplasma, initialement proposé par T.Ditmire *et al.* en 1996 [1]. Ce modèle phénoménologique unidimensionnel permet de décrire la dynamique conduisant à l'explosion de gros agrégats de gaz rares soumis à des champs laser intenses. Le modèle est présenté, et les traits de la dynamique du nanoplasma sont détaillés.

De par les hypothèses simplificatrices et le caractère unidimensionnel du modèle nanoplasma, il nous a paru intéressant de développer un code de dynamique moléculaire à trois dimensions, objet du troisième chapitre. Nous nous intéressons à l'application de ce modèle à la description des propriétés statiques et dynamiques d'agrégats de sodium de 41 atomes, ainsi qu'à de petits agrégats de gaz rare.

En annexes sont détaillés des calculs concernant le second chapitre.



# Chapitre 1

## Contexte

---

|            |                                                           |           |
|------------|-----------------------------------------------------------|-----------|
| <b>1.1</b> | <b>Physique en jeu</b>                                    | <b>13</b> |
| 1.1.1      | Scénario de l'interaction laser-agrégat. Mécanismes clés. | 14        |
| 1.1.2      | Évidences expérimentales en champ fort                    | 16        |
| <b>1.2</b> | <b>Un panorama de modèles</b>                             | <b>22</b> |
| 1.2.1      | À basse énergie                                           | 22        |
| 1.2.2      | À haute énergie                                           | 24        |

---

### 1.1 Physique en jeu

Les agrégats sont des édifices atomiques, de dimensions nanométriques finies, composés de quelques dizaines à quelques milliers d'entités. Leur existence est connue depuis plusieurs siècles, constituant à l'état cristallin la base des huiles de peintures ou maquillages. De part leur taille et le grand nombre d'atomes qu'ils présentent en surface par rapport à leur volume, leurs propriétés physico-chimiques sont généralement différentes de l'état massif. L'éventail de ces nouvelles propriétés, qui nourrit les explorations du nouveau domaine de recherche des *nanosciences*, n'est pas encore totalement exploré.

Il existe essentiellement trois types d'agrégats appelés de gaz rare, covalent et métallique, de par la nature des liaisons qui assurent leur cohésion :

- gaz rare : la cohésion est assurée par les forces dipolaires de Van der Waals entre atomes
- covalent : les atomes engagent un ou plusieurs électrons dans des liaisons chimiques, ces électrons restant localisés au niveau de la liaison
- métallique : la liaison chimique est assurée par des électrons libres délocalisés dans l'ensemble de l'agrégat.

L'étude de ces agrégats suscite un intérêt croissant depuis la réalisation expérimentale simultanée au début des années quatre-vingt dix, d'une part de jets d'agrégats, d'autre part de lasers capables de délivrer des impulsions ultracourtes femtosecondes jusqu'à 30 fs, accompagnées de forts éclaircissements ( $10^{12}$  W.cm<sup>-2</sup> jusqu'à  $10^{19}$  W.cm<sup>-2</sup>). Ces lasers concentrent donc l'énergie déposée sur une courte période. Leur principe de fonctionnement, détaillé par exemple dans l'article de D.J.Fraser et M.H.R.Hutchinson [2], consiste

à étirer dans le temps une impulsion femtoseconde, qui est ensuite amplifiée puis comprimée à sa durée initiale. Grâce à ce principe, il est possible d'atteindre des éclaircements laser bien au-delà de la résistance des optiques d'amplification.

Le dispositif général de ces expérimentations consiste à disposer le faisceau laser de polarisation généralement linéaire dans un plan perpendiculaire à un jet d'agrégats. Les agrégats sont générés dans le jet après détente d'un gaz à travers une buse. L'élément choisi par commodité est généralement un gaz rare car couramment utilisé dans les laboratoires ; des jets d'agrégats à partir d'éléments solides dans les conditions de pression et de température régnant dans l'enceinte (généralement sous vide) sont toutefois réalisables, à condition de les vaporiser au préalable dans un creuset.

La densité locale d'atomes par agrégat atteint celle du solide soit  $10^{22}$ – $10^{23}$   $\text{cm}^{-3}$ , tandis que la densité plus faible de ces atomes dans le jet atteint  $10^{18}$ – $10^{19}$   $\text{cm}^{-3}$ . Cette différence de densité à l'intérieur des agrégats et dans le jet assure un couplage efficace avec le laser : dans certaines conditions la quasi-totalité de l'énergie [3], qui serait rapidement dissipée dans la masse dans le cas d'une cible solide, est déposée dans chaque agrégat. En champ fort, ce dépôt d'énergie en provoque l'explosion. Celle-ci est par exemple attendue dès un éclairciment laser de  $2 \cdot 10^{14}$   $\text{W.cm}^{-2}$  dans le cas d'agrégats d'argon [4]. Suite à cette interaction sont observés des faisceaux de rayons X de l'ordre du keV d'une durée inférieure à la picoseconde [5] (qui trouveraient application dans la diffraction de rayons X ou la lithographie ultraviolette), des ions [6] ou des fragments [7] multichargés d'énergie aussi grande que le MeV, ou bien des électrons d'énergie de l'ordre de celle du keV [8]. Ces observations dépassent celles constatées de la simple interaction d'un laser avec une cible de plasma monoatomique. En outre, un exemple d'application fascinant a été la mise en évidence expérimentale de la fusion de deutérium «table-top» par l'équipe de T.Ditmire *et al.* [9], c'est à dire réalisée dans une pièce de dimensions d'expérimentation traditionnelles.

### 1.1.1 Scénario de l'interaction laser-agrégat. Mécanismes clés.

Le scénario général de l'interaction communément admis consiste en l'ionisation des différents atomes de l'agrégat par le champ laser (ce processus porte la dénomination «inner ionisation» en anglais [10], soit ionisation interne). Les électrons issus de ces ionisations peuvent soit rester piégés à l'intérieur de l'agrégat, formant ainsi un plasma d'électrons, et être sujets à un mouvement collectif d'oscillation dans le champ laser, soit être émis en dehors de l'agrégat (dénomination «outer ionisation» en anglais [10], soit ionisation externe). L'agrégat explose alors sous l'effet soit de la pression hydrodynamique des électrons piégés et dont la température est transférée aux ions lors de collisions électron-ion, soit de la pression coulombienne consécutive au déséquilibre électrostatique par émission électronique.

**Mécanisme clé I : ionisation par effet de champ** Les mécanismes généraux d'ionisation des atomes de l'agrégat par le champ laser, qui portent le nom générique d'ionisation par effet de champ, sont essentiels à la compréhension de l'interaction. Trois des différents mécanismes d'ionisation sont présentés sur la figure 1.1 en fonction d'un éclairciment laser croissant. Les faibles intensités voient la prédominance de l'ionisation

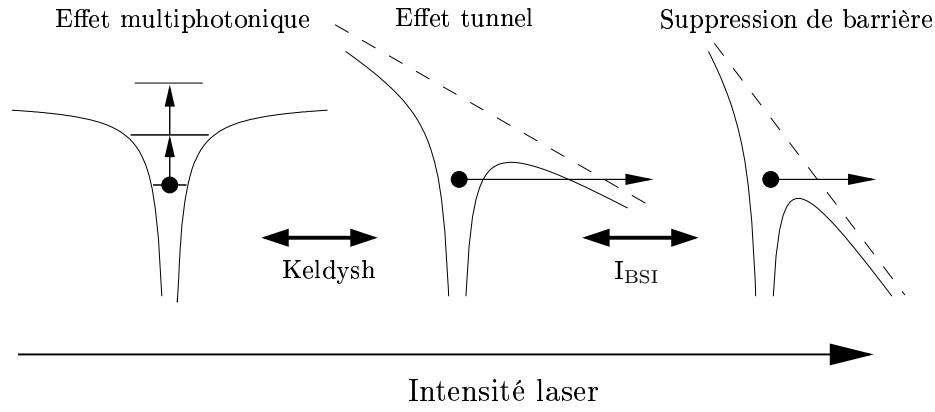


FIG. 1.1: Trois mécanismes d'ionisation sont présentés, ici dans une image simplifiée, en fonction d'un éclairage laser croissant : l'ionisation multiphotonique, l'ionisation par effet tunnel, et l'ionisation par suppression de barrière. La limite de l'ionisation multiphotonique vers l'effet tunnel est caractérisée par le paramètre de Keldysh. L'intensité seuil  $I_{BSI}$  marque la limite entre l'ionisation par effet tunnel et par suppression de barrière.

multiphotonique, l'absorption de plusieurs photons menant à ionisation. Pour de plus fortes intensités, l'effet du champ laser va consister à diminuer la barrière de potentiel qui retient l'électron, de manière plus ou moins accentuée. Pour un faible abaissement, les atomes sont ionisés par effet tunnel. L'ionisation par suppression de barrière («Barrier Suppression Ionization, BSI» en anglais) survient lorsque l'abaissement est suffisant pour que l'électron soit directement ionisé.

Le paramètre de Keldysh ou paramètre adiabatique [11] définit la limite entre le régime d'ionisation multiphotonique et le régime d'ionisation par effet tunnel. Il vaut

$$\gamma = \sqrt{I_p/2U_p} \quad (1.1)$$

avec  $I_p$  potentiel d'ionisation de l'atome ou ion considéré et  $U_p = e^2 E_{ext}^2 / (4m_e \omega^2)$  potentiel pondérateur (soit l'énergie d'un électron oscillant librement dans le champ d'amplitude  $E_{ext}$  et de pulsation  $\omega$ ;  $e$  charge élémentaire,  $m_e$  masse de l'électron). Le régime multiphotonique est caractérisé par des valeurs  $\gamma^2 \gg 1$ , soit à fréquence optique élevée et faible éclairage laser. Pour des valeurs  $\gamma^2 \ll 1$  l'ionisation par effet tunnel prend la relève, soit pour un fort éclairage laser mais pour une faible fréquence optique : le temps de traversée de la barrière doit être suffisamment court devant une période optique pour considérer le champ laser comme statique [12, 13].

L'ionisation par suppression de barrière est possible lorsque l'intensité laser atteint la valeur seuil [14]

$$I_{BSI} = 4.00 \cdot 10^9 \frac{I_p^4}{Z^2} \quad (1.2)$$

avec  $I_{BSI}$  en  $\text{W.cm}^{-2}$  et  $I_p$  en eV,  $Z$  le nombre de charge final de l'ion. Cette intensité seuil est déduite en égalant le potentiel d'ionisation avec le point selle de la barrière de potentiel modifiée supposée unidimensionnelle. Elle ne tient compte ni des autres directions du potentiel pour lesquelles la barrière de potentiel pourrait être supérieure au potentiel d'ionisation, ni de la variation du potentiel d'ionisation sous l'action du



champ à cause de l'effet Stark [15] (en prenant en compte l'effet Stark, l'intensité seuil se voit multipliée par 1.5 dans le cas du premier potentiel d'ionisation du xénon, pour une intensité laser de  $2 \cdot 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ ).

**Mécanisme clé II : plasmons** Les électrons libres à l'intérieur de l'agrégat possèdent une pulsation propre, liée à leur force de rappel électrostatique aux ions :

- dans le cas d'un milieu infini, l'excitation de cette pulsation porte le nom de plasmon de volume (correspondant alors à des ondes de compression [16]). La pulsation associée est appelée improprement fréquence plasmon, et dépend de la densité d'électrons  $n_e$  selon

$$\omega_{pe} = \sqrt{\frac{n_e e^2}{\epsilon_0 m_e}} \quad (1.3)$$

avec  $\epsilon_0$  constante diélectrique du vide,  $\omega_{pe}$  en  $\text{s}^{-1}$  (avec  $1 \text{ s}^{-1}$  équivalent à  $0.658 \cdot 10^{-15} \text{ eV}$ ).

- dans le cas de milieux limités par une surface — donc des agrégats —, l'excitation de cette pulsation porte le nom de plasmon de surface. Elle est également appelée par la suite plasmon de Mie et correspond à des oscillations collectives dipolaires de translation des électrons par rapport aux ions. La fréquence de Mie associée vaut en première approximation

$$\omega_{Mie} = \frac{\omega_{pe}}{\sqrt{3}} \quad (1.4)$$

Elle varie cependant dans les faits en fonction de la taille des agrégats ainsi que de leur température [17, 18, 19].

La fréquence de Mie peut être excitée par le champ laser : ses variations au cours du temps forcent les oscillations hors d'équilibre de la sphère électronique par rapport à celle des ions.

### 1.1.2 Évidences expérimentales en champ fort

Le poids de chacun des mécanismes dans l'explosion finale constitue l'objet de l'interprétation des différents résultats expérimentaux. Afin de tester ceux-ci, il apparaît intéressant que les dispositifs puissent mesurer non seulement l'énergie des particules mais aussi leur distribution spatiale, en discriminant éventuellement en fonction des différents états de charge ioniques. Nous présentons par la suite l'évolution de la compréhension expérimentale de l'interaction, discutée dans les thèses de doctorat de C.Prigent [20] et T.Caillaud [4], depuis les résultats de T.Ditmire *et al.* [6] lorsqu'il se trouvait à l'*Imperial College of Science* de Londres.

Chaque observation expérimentale que ce soit l'énergie des ions, des électrons ou des photons, qui nécessite une mise en oeuvre particulière, renseigne partiellement sur les mécanismes mis en jeu dans l'interaction [20]. Les rayons X proviennent des transitions radiatives de durées de vie de l'ordre de la dizaine de femtosecondes ayant lieu essentiellement avant que l'agrégat n'explose, et renseignent sur l'état d'excitation de l'atome *in situ* au moment de l'émission [21, 22] ; la résolution temporelle des spectres de rayons X constituerait la meilleure information sur la dynamique de l'interaction. Les électrons

peuvent être émis pendant ou peu après l'interaction avec le laser. Les ions sont détectés bien après l'interaction, et la mémoire individuelle de leur production peut être perdue après propagation dans le spectromètre à temps de vol suite à des recombinaisons par exemple : seules les caractéristiques générales de l'explosion sont déduites des spectres énergétiques.

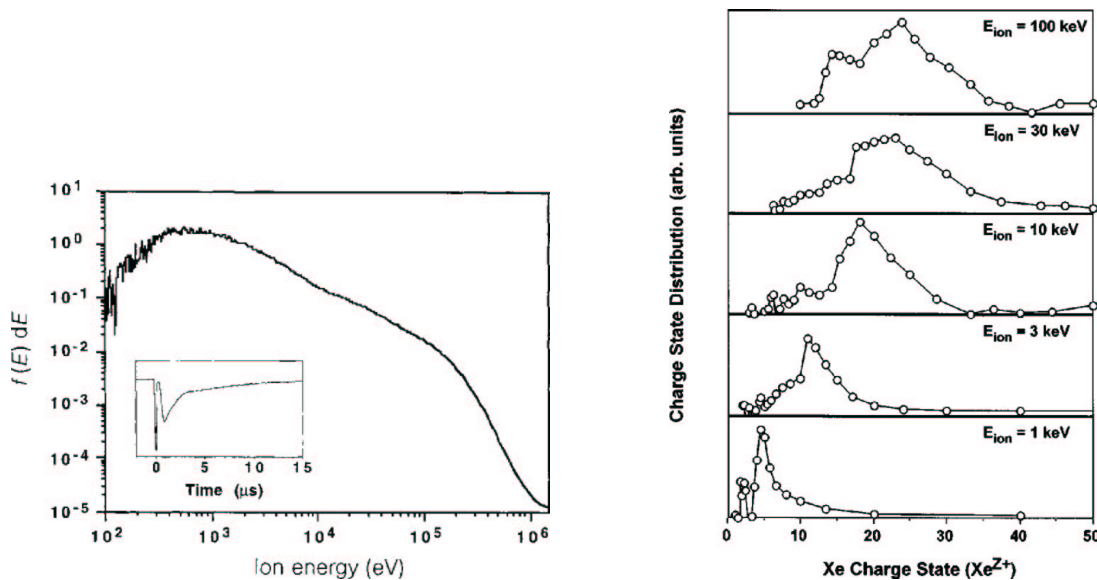


FIG. 1.2: **À gauche** Spectre en énergie des ions dans le cas de l'irradiation d'agrégats de xénon de  $65 \text{ \AA}$  de diamètre par un laser de paramètres  $I = 2.10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ ,  $FWHM = 150 \text{ fs}$  et  $\lambda = 780 \text{ nm}$ . Ce spectre est dérivé à partir de la trace temps de vol en encart. Le premier pic de cette trace correspond à des électrons rapides d'énergie supérieure à  $2 \text{ keV}$ . Figure extraite de [6]. **À droite** Chaque panneau correspond à une distribution de charge mesurée sélectionnée en fonction d'une énergie cinétique des ions différente indiquée en légende. Figure extraite de [3]

**Spectrométrie des ions** T.Ditmire *et al.* [6, 3, 23] en 1997 ont irradié des agrégats de 2500 atomes de xénon par un laser de paramètres d'intensité  $I = 2 \cdot 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ , de largeur à mi-hauteur («Full Width at Half Maximum, FWHM» en anglais)  $FWHM = 150 \text{ fs}$  et de longueur d'onde  $\lambda = 780 \text{ nm}$ . La caractérisation de l'énergie des ions est réalisée à l'aide d'un spectromètre de masse à temps de vol dont nous rappelons brièvement le principe :

les ions chargés issus de l'interaction sont extraits (zone d'extraction) et accélérés (zone d'accélération) par des champs électriques, puis se propagent avant d'être détectés dans la dernière zone de temps de vol libre dans laquelle ne règne aucun champ électrique. Les ions arrivent d'autant plus rapidement sur le détecteur qu'ils sont plus énergétiques, ce qui permet de déduire leur énergie de l'inversion des spectres de temps de vol, connaissant les différentes tensions appliquées.

Le spectre énergétique des ions reproduit sur la partie gauche de la figure 1.2, dérivé du signal temps de vol des ions dans le spectromètre, présente une énergie moyenne de  $E_{ion} = 45 \pm 5 \text{ keV}$  et une énergie maximale de l'ordre du MeV. Les distributions de charge en fonction d'une énergie ionique donnée reproduites sur la partie droite de la figure 1.2

sont obtenues à l'aide d'un potentiel retardateur de tension variable qui repousse les ions d'énergie inférieure à ce potentiel. Les ions d'énergie cinétique  $E_{ion} = 10\text{--}100$  keV sont chargés entre  $Z = 18\text{--}25+$  en moyenne, certains ions atteignant des charges de  $Z = 40+$ . Ces états de charge sont bien supérieurs à celui attendu de  $Z = 12+$  pour un atome seul placé dans un champ d'intensité comparable [14]. Ils ont observé le même phénomène en irradiant des agrégats de 1100 atomes de krypton [23] et obtiennent des ions d'énergie  $E_{ion} = 10\text{--}30$  keV chargés entre  $Z = 12\text{--}17+$  en moyenne, certains ions atteignant des charges de  $Z = 25+$ , bien au-delà de la charge attendue de  $Z = 8+$  pour un atome seul placé dans le champ. Les auteurs constatent que ces distributions de charge évoluent différemment de ce qui serait attendu d'une explosion coulombienne en fonction de l'énergie des ions. Ils suggèrent que les électrons de température élevée issus des ionisations dans le champ arrachent à leur tour des électrons aux ions par ionisation collisionnelle et déplacent ainsi globalement la distribution de charge vers les charges élevées. Ces électrons chauds gouverneraient également l'explosion, alors hydrodynamique [6]. Leur interprétation est appuyée [23] par des simulations du modèle nanoplasma introduit par les auteurs en 1996 [1], modèle présenté dans la section 2.

Depuis ces observations, M.Lezius *et al.* [8, 22] en 1998 ont pu caractériser plus précisément l'énergie des ions pour un état de charge donné en couplant une déflexion magnétique au spectromètre à temps de vol. Pour des agrégats d'argon de  $1.8 \cdot 10^5$  atomes (paramètres laser  $I = 5 \cdot 10^{17} \pm 20\%$  W.cm<sup>-2</sup>,  $FWHM = 130$  fs et  $\lambda = 780$  nm), ils ont pu mettre en évidence que l'énergie cinétique des ions varie proportionnellement au carré de la charge : l'énergie de répulsion entre deux ions étant proportionnelle au carré de la charge, ils concluent que l'agrégat explose sous l'effet des pressions coulombiennes. Cependant, reproduisant la même expérience avec des agrégats  $10^6$  atomes de xénon, ils ont observé un comportement différencié selon la charge des ions : l'énergie des ions d'états de charge inférieurs à  $Z = 6+$  suit une loi quadratique avec la charge portant le signe d'une explosion coulombienne, tandis que ceux d'états de charge compris entre  $Z = 11\text{--}20+$  suivent une loi linéaire avec la charge, signe pour les auteurs d'une explosion hydrodynamique. M.A.Lebeault *et al.* [24] ont observé également un comportement identique pour des agrégats de plomb de 250 atomes (paramètres laser  $I = 3 \cdot 10^{15}$  W.cm<sup>-2</sup>,  $FWHM = 760$  fs et  $\lambda = 790$  nm), l'état de charge  $Z = 9+$  constituant le «passage» d'un régime d'explosion coulombienne à celui d'une explosion hydrodynamique. Il pourrait donc sembler que le mécanisme d'explosion soit variable en fonction non seulement des paramètres laser, mais également des états de charge atteints à l'intérieur des agrégats.

Notons que le dispositif expérimental ne permet pas de sélectionner précisément en taille les agrégats, et que la taille avancée correspond souvent à la valeur moyenne d'une distribution ; les spectromètres n'étant pas sélectifs au regard de ces tailles, il est possible que le comportement différencié avec la charge soit lié à des agrégats de tailles différentes. Il semble cependant qu'il faille interpréter le comportement différencié avec la charge de M.Lezius *et al.* avec précaution puisque K.Ishikawa et T.Blenski [25] ont montré qu'il pourrait être la même manifestation d'une explosion coulombienne : le comportement attribué à une explosion hydrodynamique serait plutôt un effet combiné de l'explosion coulombienne ainsi que d'un effet des variations spatiales de l'intensité laser.

Précédemment, les spectromètres d'analyse étaient placés dans un plan perpendiculaire à la polarisation linéaire du laser. En faisant varier l'angle de mesure typiquement dans la direction de polarisation du laser et perpendiculairement à celle-ci, il a été constaté une anisotropie dans l'explosion. Les expériences de E.Springate *et al.* [26] en 2000 se rapportant à l'interaction d'un laser de paramètres  $I = 1.3 \cdot 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ ,  $FWHM = 170 \text{ fs}$  et  $\lambda = 780 \text{ nm}$  avec des agrégats de  $\text{Xe}_{5300}$  indiquent une énergie moyenne de  $E_{ion} \simeq 18 \text{ keV}$  des ions émis supérieure de 15% pour une mesure d'énergie dans l'axe de polarisation du laser à celle mesurée perpendiculairement. Seule est indiquée l'énergie moyenne qui semble décroître au fur et à mesure de l'éloignement de l'axe de polarisation du laser. V.Kumarappan *et al.* [27] ont travaillé dans des conditions d'irradiation comparables ( $I = 8 \cdot 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ ,  $FWHM = 100 \text{ fs}$  et  $\lambda = 806 \text{ nm}$ ) avec des agrégats d'argon  $\text{Ar}_{40000}$ . Les spectres énergétiques complets mesurés dans et perpendiculairement à la direction du laser sont similaires pour des énergies ioniques inférieures à 3 keV. Ils diffèrent à haute énergie (l'énergie maximale atteinte vaut  $E_{ion} = 200 \text{ keV}$ ) en faveur des ions émis dans la direction de polarisation du laser plus nombreux. Les auteurs ont observé un comportement similaire pour des mesures effectuées pour des gammes de paramètres  $I = 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$  à  $I = 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$  et des agrégats comportant de 5000 à 40000 atomes. M.Hirokane *et al.* [28] sont allés au-delà en discriminant l'énergie des ions les plus énergétiques ( $E_{ion} > 170 \text{ keV}$ ) en fonction de leur état de charge, toujours dans des conditions expérimentales comparables (agrégats de  $\text{Ar}_{12800}$ , intensité laser mesurée dans la zone d'interaction  $I = 2 \cdot 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ ,  $FWHM = 130 \text{ fs}$  et  $\lambda = 800 \text{ nm}$ ). La comparaison de ces distributions, similaire pour les faibles états de charges ( $q < 8+$ ) diffère pour les états de charge les plus élevés ( $q > 7+$  jusqu'à  $q = 14+$ ). Le nombre et l'énergie (qui atteint le MeV pour des états de charge  $q = 13+$ ) de ces ions sont plus élevés dans la direction suivant la polarisation du laser que celle perpendiculaire. Ainsi, il semble que les évidences expérimentales portent la signature d'une émission isotrope pour les ions les moins énergétiques et les moins chargés, et une émission anisotrope pour les ions les plus énergétiques et les plus chargés. Il serait intéressant de pouvoir combiner à ces observations l'outil de déflexion magnétique de M.Lezius *et al.* (présenté extensivement dans la thèse de S.Dobosz [22]) pour mesurer la nature de l'explosion dans la direction de polarisation du laser.

H.Wabnitz *et al.* [29] se sont récemment intéressés à l'effet d'une impulsion laser intense formée de photons X mous sur des agrégats de xénon. Ils observent pour une intensité crête de  $2 \cdot 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$  des états de charge jusqu'à 8+ pour des agrégats de  $3 \cdot 10^4$  atomes. Bien que l'énergie des photons laser soit choisie pour correspondre au potentiel d'ionisation du premier électron du xénon, les états de charge supérieurs sont inattendus pour cet éclaircissement.

**Spectroscopie des électrons** Nous présentons par la suite les résultats obtenus par spectroscopie d'électrons, résultats ayant fait l'objet de discussions. T.Ditmire *et al.* [30] ont mesuré pour la première fois le spectre énergétique des électrons émis après l'interaction d'un laser de paramètres  $I = 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ ,  $FWHM = 150 \text{ fs}$  et  $\lambda = 780 \text{ nm}$ ) avec des agrégats de taille  $\text{Xe}_{2100}$ . Le spectre reproduit sur la figure 1.3 exhibe deux pics, uniquement dans le cas de l'interaction avec des agrégats de xénon, l'un large à basse énergie de maximum situé à  $E \simeq 1 \text{ keV}$  et l'autre plus étroit situé à  $E \simeq 2.3 \text{ keV}$ .

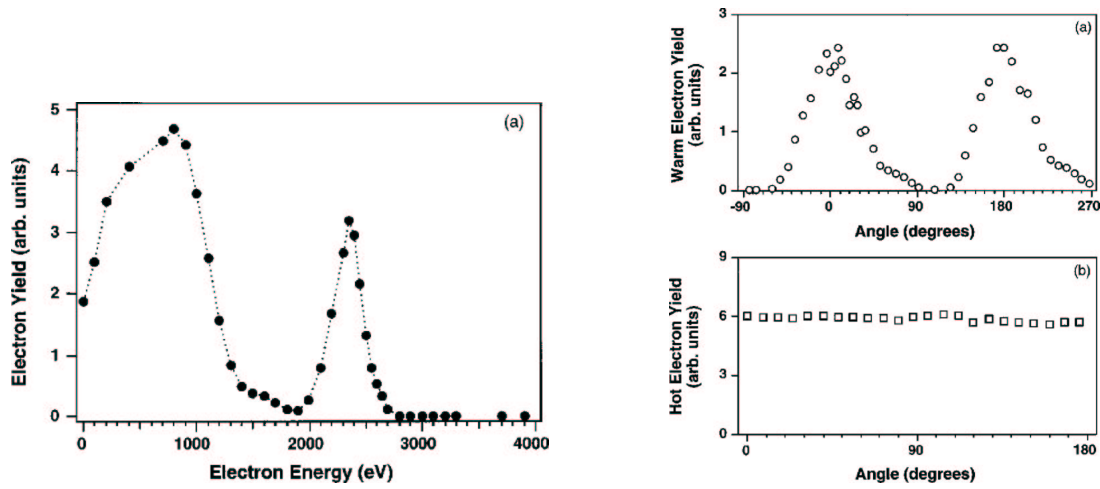


FIG. 1.3: **À gauche** Distribution en énergie cinétique des électrons mesurée dans le cas de l'irradiation d'agrégats de xénon de taille moyenne 50 Å par une impulsion laser de paramètres similaires à la figure 1.2, d'intensité  $I = 10^{16}$  W.cm<sup>-2</sup>. **À droite** Panneau (a) Distribution angulaire des électrons d'énergie comprise entre  $E = 0.3$ –1 keV. L'émission dans la direction de polarisation du champ électrique du laser est définie à 0° et 180°. Panneau (b) Distribution angulaire des électrons d'énergie comprise entre  $E = 2$ –3 keV. Figures extraites de [30]

Les électrons du premier pic sont surnommés «warm electrons» (électrons «tièdes») et proviendraient de la surface de l'agrégat suite à collision ionisante lors du front montant du champ laser. Les électrons du second pic sont surnommés «hot electrons» (électrons «chauds») et seraient émis vers les phases finales de l'interaction avec le laser, lors de l'explosion coulombienne. Les distributions angulaires des électrons reproduites sur la partie droite de la figure 1.3 corroboreraient ces origines. La distribution angulaire des électrons d'énergie jusqu'à  $E = 1$  keV (panneau (a)) présente des pics autour des valeurs 0 et 180° correspondant à la direction de polarisation du laser. La largeur à mi-hauteur  $\sim 60^\circ$ , beaucoup plus large que celle attendue de l'émission d'électrons provenant de l'ionisation directe par effet de champ des atomes (de l'ordre de  $20^\circ$ ), suggère que les électrons seraient diffusés avant émission. La distribution angulaire des électrons d'énergies entre  $E = 2$ –3 keV (panneau (b)) est isotrope, car la mémoire de la vitesse des électrons «chauds» serait perdue avant émission. E.Springate *et al.* [31], sans pour autant pouvoir reproduire le spectre des électrons de la figure 1.3, ont remis en cause récemment la nature du second pic d'électrons «chauds». Leur signal temps de vol — à partir duquel est déduit en général le spectre énergétique — présente également un pic de distribution angulaire isotrope, mais ils attribuent celui-ci à des photons car la position de ce pic est insensible aux variations de tension (jusqu'à 6 kV) d'une grille retardant les électrons. Ils observent cependant un pic d'électrons tièdes de maximum  $E \simeq 0.7$  keV qui s'étend jusqu'à 6 keV, et dont la distribution angulaire maximum le long de la direction de polarisation du laser est également anisotrope. Un spectre énergétique semblable est observé par V.Kumarappan *et al.* [32], qui l'ajustent à des électrons thermiques de température  $T_e = 0.7$  keV ; ils observent clairement une anisotropie de l'émission de ces électrons.

**Spectroscopie de rayons X** Les photons X sont quant-à eux émis de manière isotrope [33], alors même que les photons laser ont une polarisation linéaire bien définie. L'équipe de C.K.Rhodes [34] de l'*Université de l'Illinois* estime l'émission X également anormalement intense par rapport à ce qui serait attendu de l'excitation d'une cible atomique. Les rayons X ne sont généralement pas altérés depuis leur émission jusqu'à leur détection par temps de vol, et constituent une sonde non destructive *in situ* adéquate, renseignant sur l'état d'excitation et la densité locale des atomes desquels ils sont émis. L'analyse par spectroscopie en constitue la meilleure information qualitative (et quantitative). Trois types de transitions mènent à émission X : les transitions électroniques entre états lié-lié, états libre-lié et états libre-libre. Ces deux derniers types de transitions qui mettent en jeu un état libre non sélectif en énergie — ces deux processus peuvent être vus respectivement comme la capture d'un électron au voisinage d'un ion et comme le freinage (Bremsstrahlung) d'un électron dans le champ d'un ion — se traduisent par une contribution au fond continu des spectres expérimentaux. La transition entre états lié-lié sélective en énergie — la transition d'un électron d'un niveau d'énergie supérieur vers une lacune d'énergie inférieure — se traduit par des pics, et chaque pic du spectre s'identifie à une transition électronique entre deux niveaux bien définis. L'identification des niveaux, généralement sans ambiguïté pour les pics bien résolus et isolés, demande quelques précautions lorsque les pics se superposent ou lorsque deux transitions électroniques ont des énergies très proches l'une de l'autre. Pour une intensité de l'ordre de quelques  $I = 10^{18} \text{ W.cm}^{-2}$  ( $\lambda = 790 \text{ nm}$ ,  $FWHM = 70 \text{ fs}$ ,  $N_{Ar} = 1.6 \cdot 10^6$ ), les spectres se rapportant à l'excitation d'argon [22] mettent en évidence la transition radiative d'électrons entre les couches L et K (de nombres quantiques principaux respectifs  $n = 2$  et  $n = 1$ ), d'énergie de l'ordre de  $E_{L \rightarrow K} \simeq 3.1 \text{ keV}$ . De l'analyse de ces spectres est déduit un état de charge moyen de  $\langle Z \rangle = 15.4+$  et les agrégats ne possèdent plus en moyenne que deux électrons, ce qui est inattendu à de telles intensités, et tandis que les spectres de masse correspondant (M.Lezius *et al.* [8]) ne portent la trace que d'ions chargés jusqu'à  $Z = 10+$ . L'absence de la trace de ces ions de charge élevées indique, soit que le dispositif expérimental n'est pas sensible à des ions très fortement chargés nécessairement très énergétiques, soit que des recombinaisons ont lieu qui diminuent la charge avant détection. En tout état de cause les spectres de rayons X portent la trace d'une excitation intense mettant en jeu des énergies élevées de l'ordre du keV.

L'évolution du nombre total de photons émis par pulse en fonction de l'intensité laser renseigne sur le seuil d'apparition des rayons X. En effet, ce nombre est proportionnel au nombre d'atomes émetteurs. Lorsque tous les atomes ont été excités, soit lorsque l'intensité laser atteint un certain seuil, le régime de saturation est atteint. Ce régime de saturation n'est atteint que dans une certaine zone de l'espace, appelée volume focal effectif, car l'intensité du faisceau laser n'est pas homogène au point de focalisation du laser et l'intensité maximale dans cette zone varie au cours du temps (en général selon une enveloppe gaussienne). La définition théorique de ce volume effectif [22, 20], qui dépend des paramètres du faisceau laser et de l'intensité seuil, décrit bien les données expérimentales de l'évolution du nombre de photons intégré sur le pulse en fonction de l'intensité laser, et croît notamment comme une loi de puissance de l'intensité à fort éclairement [33]. L'intensité seuil est ainsi déduite du meilleur ajustement théorie-expérience et vaut par exemple  $I = 1.25 \cdot 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$  dans le cas de l'irradiation d'agrégats d'argon

avec un laser dans le domaine infrarouge [21] ( $\lambda = 800$  nm,  $P_{Ar} = 40$  bar).

## 1.2 Un panorama de modèles

### 1.2.1 À basse énergie

Nous présentons les modèles théoriques développés lorsque l'intensité laser reste suffisamment faible, soit inférieure à  $I = 10^{13}$  W.cm<sup>-2</sup>. Ces modèles sont essentiellement développés en direction d'agrégats métalliques. Pour ces agrégats, les électrons les moins liés, ceux de valence (appelés indifféremment de conduction par la suite) sont bien séparés énergétiquement des autres, les électrons de coeur. Ces derniers, beaucoup plus liés restent insensibles aux variations de leur environnement atomique [18], mais aussi au champ laser tant qu'il n'atteint pas des intensités trop grandes. Électrons de coeur et noyau sont alors réunis sous la forme d'un coeur ionique effectif. Électrons de valence et coeur ionique sont traités séparément dans le cadre de l'approximation de Born-Oppenheimer, basée sur le constat que la masse des électrons est plus petite de presque quatre ordres de grandeur que celle des ions. De par cette différence de masse, les électrons ressentent en premier l'effet de l'irradiation laser, avec un temps de réponse typique de l'ordre de 1 – 10 fs, tandis que celui des ions avoisine les 100–1000 fs.

Nous nous intéressons à un système hors équilibre composé de plusieurs particules interagissant entre elles, donc corrélées. Le traitement exact de ce système de grande taille à l'aide de l'équation de Schrödinger à plusieurs corps requerrait, de par ces corrélations, des efforts de calcul numérique aux limites des capacités informatiques actuelles. Étant donné que nous nous intéressons à l'évolution temporelle d'un tel système sous l'effet d'une excitation extérieure dont l'intensité varie sur quelques centaines de femtosecondes, il est indispensable de recourir à des approximations afin de pouvoir décrire le système sur des échelles de temps suffisamment longues. Nous discutons par la suite deux dimensions d'approximations différentes [16].

L'énergie déposée dans les électrons est répartie entre eux par le biais des corrélations. Ces corrélations sont liées notamment à l'interaction coulombienne, décrite par un potentiel à deux corps.

Un premier type d'approximation, le champ moyen, consiste à remplacer ce potentiel par un potentiel externe effectif à un corps [16]. Par conséquent les électrons ne se voient plus individuellement, et il manque entre autres au champ moyen les corrélations dynamiques qui permettent d'amortir par friction les plus fortes excitations électroniques. L'approximation de champ moyen sera donc valide pour un faible nombre de collisions entre électrons, soit dans la limite où leur libre parcours moyen  $\lambda_e$  est plus grand que la distance inter-particules  $a$ .

Un second type d'approximation consiste à ne plus décrire les électrons de manière quantique, mais sous une forme semi-classique. Le terme semi-classique vient de ce que cette description prend en compte un ou plusieurs termes d'origine quantique. Généralement, il s'agit de restituer le principe d'exclusion de Pauli : l'électron est traité comme une particule classique mais son occupation dans l'espace des phases ( $\mathbf{r}$ ,  $\mathbf{p}$ ,  $t$ ) ( $\mathbf{r}$  position,  $\mathbf{p}$  impulsion,  $t$  temps) est limitée par le blocage de Pauli [17]. Cette approximation est

valable lorsque la longueur d'onde de de Broglie [35]

$$\Lambda = h/\sqrt{2\pi m_e k T_e} \quad (1.5)$$

( $h$  constante de Planck,  $k$  constante de Boltzmann,  $m_e$  masse de l'électron,  $T_e$  température électronique) associée à l'extension spatiale des électrons est petite devant la distance inter-particules moyenne  $a$ . Ainsi pour des températures électroniques élevées, les fonctions d'onde ne se recouvrent pas et les électrons peuvent être considérés comme classiques. Notons que les ions sont généralement décrits de manière classique pour des raisons similaires.

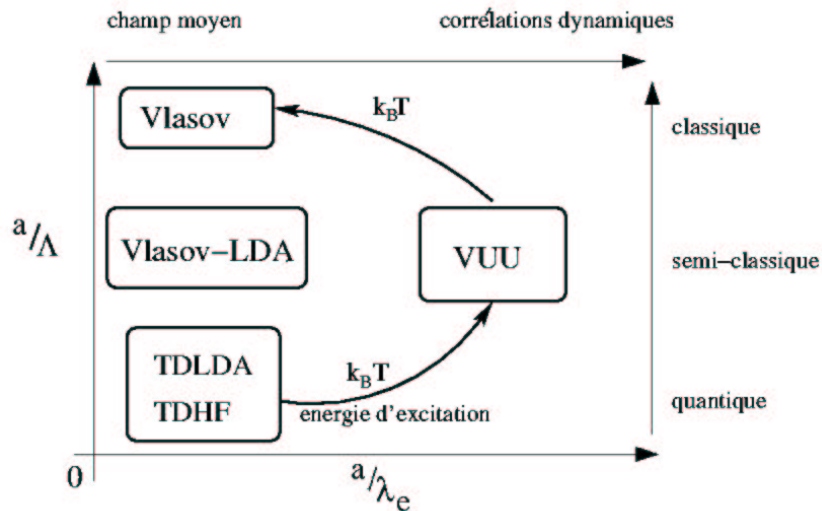


FIG. 1.4: Répartition de modèles microscopiques en fonction de leur domaine de validité, soit les catégories de champ moyen ou traitement des corrélations (axe des abscisses) et le degré d'approximation de la description quantique (axe des ordonnées). Le modèle VUU considère le cas d'énergies d'excitation modérées. À plus hautes énergies, la description par l'équation de Vlasov est suffisante. Figure extraite de [16].

La figure 1.2.1 présente la répartition des modèles dynamiques microscopiques les plus courants en fonction des approximations sur lesquelles ils s'appuient. L'axe des abscisses partant du champ moyen — pour lequel  $a/\lambda_e \ll 1$  — croît dans le sens d'une meilleure description des corrélations dynamiques. L'axe des ordonnées décrit le degré de simplification d'une description purement quantique à celle classique — pour laquelle  $a/\Lambda \ll 1$  — en passant par celle semi-classique. Les modèles quantiques TDHF («time dependant Hartree-Fock» en anglais) et TDLDA («time dependant local density approximation» en anglais) sont rangés dans la catégorie du champ moyen. Le premier correspond à la généralisation aux processus dynamiques du modèle Hartree-Fock. Le second est dérivé du formalisme de la théorie de la fonctionnelle de la densité dépendante du temps («density functional theory DFT» en anglais), dans son approximation locale de la densité («local density approximation LDA» en anglais). Le modèle Vlasov-LDA correspond à la limite semi-classique du modèle TDLDA. L'équation de Vlasov classique décrit des électrons de très haute énergie.



Présentons succinctement le principe de l'équation VUU. Afin de décrire les systèmes pour lesquels les collisions électron-électron ne peuvent plus être négligées, l'équation semi-classique VUU («Vlasov-Ühling-Uhlenbeck») complète l'équation Vlasov-LDA et restitue les corrélations dynamiques grâce à la prise en compte explicite des collisions électron-électron. Cette équation s'écrit [17, 16] :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \{f, h\} = I_{UU}[f] \quad (1.6)$$

avec  $f = f(\mathbf{r}, \mathbf{p}, t)$  fonction de distribution dans l'espace des phases, et  $h = h(\mathbf{r}, \mathbf{p}, t)$  le Hamiltonien à une particule. Le noyau de collisions à deux corps  $I_{UU}$  fait intervenir explicitement le blocage de Pauli. Dans la collision ( $12 \leftrightarrow 34$ ), le terme de Pauli assure que les états finaux d'impulsion  $\mathbf{p}_3$  et  $\mathbf{p}_4$  sont vides. Ce terme force ainsi les électrons à thermaliser vers un état d'équilibre Fermi-Dirac, ce qui reste l'effet attendu [36]. L'intégrale de collision  $I_{UU}$  fait également intervenir un terme stochastique Markovien, qui suppose que les électrons perdent rapidement la mémoire de leurs collisions précédentes. En considérant le processus Markovien, le terme de collision ajouté à l'équation Vlasov-LDA ne crée pas de double comptage des corrélations [36].

L'implémentation numérique de l'équation 1.6 nécessiterait de propager un espace à neuf dimensions, ce qui reste bien loin des capacités de calcul actuelles. Aussi cette équation est-elle résolue à l'aide des particules test [37], où la fonction de distribution  $f(\mathbf{r}, \mathbf{p}, t)$  de l'ensemble des électrons est représentée par une nuée de pseudo-particules gaussiennes. Ce nombre de pseudo-particules, typiquement de l'ordre de 8000 par électron [18, page 295], doit être choisi suffisamment grand pour limiter l'effet d'un terme de collision supplémentaire, artefact lié à leur nombre fini.

### 1.2.2 À haute énergie

Plusieurs modèles ont été élaborés afin d'expliquer les évidences expérimentales. La majorité de ces modèles peut être divisée en deux catégories.

Les modèles phénoménologiques s'efforcent de décrire chaque instant de la dynamique, de l'excitation de l'agrégat à son explosion, à l'aide de formules décrivant chaque processus. Certaines de ces formules ont été élaborées depuis le début des années 1960 dans le cadre de l'interaction d'un champ laser intense avec un atome seul, bien avant que de tels champs soient accessibles expérimentalement.

Les modèles microscopiques plus nombreux cherchent à faire émerger ces propriétés du formalisme à n-corps. Ils exigent des ressources de calcul importantes qui limitent généralement l'exploration à des petites tailles d'agrégats (de l'ordre de la centaine d'atomes), contrairement aux modèles phénoménologiques. Ils se distinguent généralement dans leur principe par leur manière de traiter les électrons, dont le nombre varie généralement au cours d'une simulation.

Les deux premiers modèles présentés ci-après ont été développés dans l'objectif de justifier les observations de rayons X, tandis que les suivants s'attachent plus à expliquer les observations des ions et électrons.

Le modèle dénommé CEMM («coherent electron motion model», modèle de mouvement cohérent des électrons) de l'équipe de C.K.Rhodes fut d'abord proposé dans le cadre de l'excitation de cibles monoatomiques [38] puis étendu aux cibles d'agrégats [39].

Ce modèle propose le point de vue original d'une création de lacunes en couche interne par collision inélastique d'une quasi-particule avec un atome. Il considère que les  $Z$  électrons ionisés par effet de champ des premiers atomes voisins d'un atome  $X$  acquièrent un mouvement collectif dans le champ laser, et forment une quasi-particule de charge  $Ze$  et de masse  $Zm_e$ . Cette quasi-particule peut alors exciter l'atome  $X$  selon



avec la section efficace de collision classique qui devient  $\sigma_{ei} \rightarrow Z\sigma_{ei}$ , les  $Z$  électrons de la pseudo-particule participant d'une interférence constructive dans le processus de diffusion inélastique. La création d'une lacune en couche interne entraîne l'émission d'un photon  $X$  lors de la désexcitation de l'atome  $(X^+)^*$  (subordonnée à la présence d'électrons sur les couches de nombre quantique principal supérieur de celle dans laquelle est créée la lacune).

Le modèle dénommé IIM («ionization ignition model», modèle d'ionisation par allumage) proposé par C.Rose-Petruck *et al.* [40] en 1997 s'appuie sur une extension du modèle «Classical Trajectory Monte-Carlo (CTMC)» au cas d'atomes à plusieurs électrons. Ce modèle a inspiré entre autres ceux de T.Ditmire [41] (en 1998) et K.Ishikawa et T.Blenski [25]. Il s'intéresse aux champs qui règnent à l'intérieur de l'agrégat, et met en évidence que le potentiel d'ionisation d'un atome est réduit par la proximité d'ions chargés. Ainsi, si chaque atome est ionisé une fois, le modèle prévoit que le champ électrique à la surface de l'agrégat vaudrait  $E = 5 \cdot 10^{14} \text{ V.m}^{-1}$  (à titre de comparaison, le champ laser associé à une intensité de  $10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$  vaut  $2.7 \cdot 10^{11} \text{ V.m}^{-1}$ ). Ce champ s'ajoute au champ laser et favorise l'ionisation au-delà des ions de l'agrégat par suppression de barrière. Le modèle CTMC donne intrinsèquement accès aux probabilités d'ionisation des couches internes K et L (la création de lacunes en ces couches constituant le préalable de l'émission  $X$ ). Il est montré que ces probabilités dépendent fortement du nombre et de l'énergie des électrons libres piégés susceptibles d'impacter. Les simulations effectuées sur des agrégats de 25 atomes de néon indiquent que le nombre des collisions électron-ion diminue avec l'intensité laser crête. En outre, l'effet de l'augmentation du rayon de l'agrégat lors de son explosion diminue la densité électronique et concomitamment la probabilité d'émission  $X$  : l'émission est donc limitée temporellement à concurrence de la durée du pulse et de l'explosion.

R.Santra et C.H.Greene [42] ont proposé un modèle d'évolution temporelle des différentes populations ioniques qui tient compte explicitement des sections efficaces d'ionisation, dans le cas de l'irradiation d'agrégats par un laser dans le domaine ultraviolet. D'après les auteurs, l'énergie pondéromotrice d'oscillation d'un électron libre à l'intérieur de l'agrégat, soit de l'ordre de 10 meV est telle que des états de charge élevés ne peuvent être atteints par collision avec un ion. Les sections efficaces sont déterminées à partir d'un potentiel ionique de Coulomb écranté fonction de la longueur de Debye, modifié de sorte que l'électron ressente une charge effective qui augmente au fur et à mesure qu'il s'approche de l'ion. Les sections efficaces sont telles que 30 photons peuvent être absorbés en considérant tous les ions ionisés une fois, alors qu'un seul photon serait absorbé dans le cas du potentiel originel. Ils complètent les équations de taux par une équation de conservation de l'énergie, où les électrons sont chauffés par Bremsstrahlung inverse. Enfin, les collisions électron-ion sont considérées comme facilitant l'équilibre thermique

entre ions et électrons ; chaque état de charge ionique est alors pondéré a posteriori en supposant une distribution de Boltzmann pour une température commune entre électrons et ions. Les distributions ioniques présentées sont en très bon accord qualitatif et quantitatif avec les expériences de H.Wabnitz *et al.* [29].

C.Siedschlag et J.M.Rost [43, 44] abordent en 2002 la physique de l'interaction laser-agrégat en y transférant une découverte réalisée pour des molécules diatomiques [45]. Il a été mis en évidence que ces molécules exhibent une amplification de l'ionisation («Enhanced ionization, ENIO», en anglais), liée à la forme du potentiel entre les atomes : le potentiel à l'intérieur de l'agrégat est abaissé par la présence des atomes voisins, par rapport à la situation d'un atome seul. Cet abaissement est fonction de la distance entre les ions, et il existe une distance optimale, qui ne correspond généralement pas à celle de l'état fondamental de l'agrégat, pour laquelle l'ionisation par effet tunnel ou suppression de barrière est facilitée. Cette distance est éventuellement atteinte au cours de la dynamique, lors de l'explosion de l'agrégat. Ils utilisent un modèle de dynamique moléculaire dans lequel le nombre d'électrons varie au cours du temps : ils évaluent une intégrale d'ionisation à partir du paysage d'énergie potentielle, qui considère simultanément les ionisations par effet tunnel et par suppression de barrière. L'électron n'est ionisé que si la probabilité d'ionisation est supérieure à un certain nombre aléatoire. En ce cas, un électron décrit de manière classique est placé le plus près possible de l'ion parent de sorte que la conservation de l'énergie soit respectée. Dans le cas d'une ionisation par suppression de barrière, l'électron est placé sur la barrière à l'endroit où elle s'annule. La charge de l'ion est augmentée de 1, et l'ionisation de l'électron suivant de l'atome est autorisée : l'ionisation est donc forcée de manière séquentielle. Ils négligent la probabilité d'ionisation par impact collisionnel des électrons sur les ions, considérant en s'appuyant sur les résultats de K.Ishikawa et T.Blenski [25], que celle-ci est faible pour des agrégats de petite taille. C.Siedschlag et J.M.Rost mettent en évidence une distance inter-atomique optimale pour l'ionisation, entre 1 et 1.5 fois le rayon d'équilibre de l'agrégat, pour plusieurs fréquences et des agrégats d'argon et de néon jusqu'à des tailles de 30 atomes, confirmant [46] que le mécanisme ENIO est valide pour des agrégats de gaz rare. Ils évaluent de manière analytique le temps nécessaire pour atteindre la taille critique par explosion coulombienne, à partir de l'instant où celle-ci est possible, instant qu'ils considèrent comme celui où la moitié des atomes est ionisée au moins une fois.

Les auteurs se sont également intéressés aux résultats de H.Wabnitz *et al.*, à l'aide d'un modèle parent de celui précédent [47] : l'ionisation est prise en compte par l'intermédiaire de sections efficaces de photoabsorption quantiques, et l'évolution temporelle subséquente traitée par mécanique classique. L'ionisation n'est possible que si l'énergie du photon incident est supérieure à la différence d'énergie du niveau ionisé et du haut de la barrière de potentiel la plus proche. Dans l'image ENIO, l'ionisation est donc facilitée par rapport à un atome seul. Dans le cas d'agrégat de  $\text{Xe}_{80}$  irradiés par un laser de paramètres  $I = 7 \cdot 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$ ,  $FWHM = 100 \text{ fs}$  et  $\omega = 12.7 \text{ eV}$ , l'énergie absorbée par Bremsstrahlung inverse est évaluée de l'ordre de 80 pourcent, de par les effets d'écrantage électrostatique. Des états de charge interne élevés jusqu'à 8+ sont atteints à cause de l'ionisation par suppression de barrière, et l'état de charge moyen final (après explosion) atteint 1.5+, tandis que des états de charge jusqu'à 5+ sont observés. Ces derniers sont imputés à des gradients de charge en surface importants : les électrons libres piégés res-

tants ne peuvent compenser la totalité des déséquilibres électrostatiques des suites de l'émission électronique, et se répartissent à concurrence de densités de charge égales près des ions les plus internes. Le poids des états de charge les plus élevés est minoré par la prise en compte de la distribution spatiale en intensité du laser, et le modèle reproduit la distribution de charge ionique expérimentale choisie.

I.Last et J.Jortner abordent l'interaction laser-agrégat dans le domaine des fortes intensités, de  $I = 10^{15}$  à  $I = 10^{20}$  W.cm<sup>-2</sup>, généralement pour de gros agrégats de xénon (quelques centaines d'atomes), et s'intéressent également entre autres aux agrégats les plus propices à la réalisation de la fusion nucléaire «table-top» [48] (voir l'article introductif au domaine [49]), que ces agrégats soient composés d'une ou plusieurs espèces atomiques [50].

Ils ont approché en 1998 [46, 10, 46] l'effet de l'abaissement de la barrière de potentiel menant à ENIO du point de vue de T.Zuo et A.D.Bandrauk [45, 51] : ils parlent d'amplification de l'ionisation par effet de charge résonante («Charge Resonance Enhanced Ionization, CREI»). Ils prennent en compte le caractère alternatif du champ laser. Lorsque la fréquence caractéristique du mouvement d'un électron entre les ions d'une molécule diatomique approche la fréquence laser, un processus quasirésonant à lieu, et l'énergie de l'électron peut augmenter de telle sorte qu'il puisse vaincre la barrière de potentiel et quitter la molécule. Cependant, cette fréquence caractéristique est très largement supérieure à la fréquence laser pour un électron se déplaçant librement à l'intérieur de la molécule ; il faut attendre que la distance entre les ions augmente pour que la barrière de potentiel entre les ions augmente. Ces barrières ne peuvent être franchies que par effet tunnel, ce qui entraîne une diminution de la fréquence caractéristique qui peut alors approcher celle du laser.

Par ailleurs, les auteurs proposent un processus CREI dynamique, plus efficace que celui statique. Ce processus d'origine classique requiert que la fréquence caractéristique de l'électron soit très supérieure à celle du champ laser. L'électron a le temps d'osciller plusieurs fois avant que le champ ne change de direction. Lors de son parcours  $l$  dans un puits de potentiel ionique donné, il acquiert une énergie  $\Delta E$  située dans la gamme  $[-eF_0l; eF_0l]$  (où  $F_0$  force du champ laser) qui peut être suffisante pour franchir la barrière de potentiel interne. L'électron est alors transféré dans le puits de potentiel ionique voisin. Comme il oscille plus vite que le champ laser, il revient dans le puits de potentiel d'origine et cède l'énergie gagnée lors de l'oscillation aller, se déplaçant contre le sens du champ laser. Dans le cas d'une barrière de potentiel fixe au cours du temps, le nombre de franchissements dans et contre le sens du champ laser est équilibré, et l'énergie  $\Delta E$  est également respectivement gagnée et perdue par l'électron. Lorsque la barrière de potentiel augmente au cours du temps (par suite de l'augmentation de la distance entre ions par exemple), la situation change légèrement : l'énergie acquise dans le champ peut ne pas être suffisante pour le retour de l'électron dans le puits de potentiel d'origine, et il reste piégé ; il doit alors attendre que la direction du champ change pour traverser de nouveau la barrière de potentiel. Par la répétition de ce processus, l'électron peut acquérir une énergie suffisante pour quitter la molécule. En considérant des agrégats de xénon de grande taille (531 et 1061 atomes), les auteurs ont mis en évidence [10] que le processus d'amplification résonante est minoré par l'effet des collisions électron-électron et électron-ion : l'effet de l'augmentation du rayon lors de l'explosion de l'agrégat est

donc double, puisqu'il entraîne une diminution de la fréquence propre des électrons, ainsi qu'une diminution des collisions de part celle de la densité électronique.

Pour conclure cette présentation, mentionnons les récents travaux de D.Bauer [52, 53] dans lequel est mis clairement en évidence un mécanisme dynamique de l'ionisation par allumage, mécanisme présenté dans l'article de D.Bauer et A.Macchi [54]. Ce mécanisme s'appuie sur le principe de l'oscillation dans le champ du nuage d'électrons libres encore piégés à l'intérieur de l'agrégat. Un ion, situé proche de la surface, verra le champ électrostatique créé par effet d'ionisation diminuer lorsque ce nuage se déplace sous l'effet du champ laser, du côté où se situe l'ion, car les électrons compensent alors une partie du déséquilibre électrostatique local. En revanche, lorsque le nuage électronique se déplace sous l'effet du champ laser de l'autre côté de l'agrégat, l'équilibre est rompu et le champ local maximisé.

D.Bauer s'est par ailleurs associé à S.V.Fomichev *et al.* [55]. Ils ont mis en évidence la génération d'harmoniques d'ordre faible par effet de résonance, par une analyse fine de l'évolution au cours du temps du champ ressenti par certains ions, choisis pour leur position dans l'agrégat par rapport à la direction de polarisation du laser.

# Chapitre 2

## Modèle nanoplasma

---

|            |                                                                                         |           |
|------------|-----------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>2.1</b> | <b>Modèle . . . . .</b>                                                                 | <b>29</b> |
| 2.1.1      | Présentation générale . . . . .                                                         | 30        |
| 2.1.2      | Prérequis : champ électrique interne . . . . .                                          | 31        |
| 2.1.3      | Formation du nanoplasma . . . . .                                                       | 33        |
| 2.1.4      | Dynamique du nanoplasma . . . . .                                                       | 36        |
| <b>2.2</b> | <b>Implémentation numérique . . . . .</b>                                               | <b>39</b> |
| 2.2.1      | Nécessité d'un algorithme adapté . . . . .                                              | 39        |
| 2.2.2      | D'une amélioration nécessaire du modèle . . . . .                                       | 40        |
| 2.2.3      | L'exemple d'une dynamique prenant en compte les collisions<br>avec la surface . . . . . | 46        |
| <b>2.3</b> | <b>Dépendance avec la taille d'agrégat et l'intensité laser . . . .</b>                 | <b>52</b> |
| 2.3.1      | Dépendance des états de charge avec la taille d'agrégat . . . . .                       | 52        |
| 2.3.2      | Dépendance des états de charge avec l'intensité laser . . . . .                         | 54        |

---

### 2.1 Modèle

T.Ditmire *et al.* [1] ont proposé en 1996 un modèle phénoménologique unidimensionnel permettant de décrire la dynamique conduisant à l'explosion de gros agrégats de gaz rares soumis à des champs laser 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'une «soupe» d'électrons libres et d'ions de différentes charges.

Le modèle nanoplasma donne accès à l'évolution temporelle simultanée de plusieurs propriétés de l'agrégat, à savoir entre autres son rayon, le nombre ainsi que la température des électrons libres qu'il contient, la charge de chacun de ses atomes, le nombre et l'énergie des électrons émis. Il donne accès à des observables moyennes et suppose l'absence de gradients de densité et de température. Ainsi, si en particulier les proportions des différentes espèces ioniques peuvent être connues avec précision au cours du temps, il n'est pas possible d'accéder à leur distribution spatiale, supposée homogène ; pour accéder à cette propriété, il sera donc nécessaire de coupler ce modèle à une simulation de dynamique moléculaire par exemple.

Si E.Constant [56], S.Dobosz [22], J.Viallon [12] ou J.S.Zweiback [57] ont déjà traité du modèle nanoplasma dans leurs thèses de doctorat, nous avons apporté quelques corrections ou améliorations qui justifient une nouvelle présentation.

Nous employons les unités du système international, sauf indication contraire spécifiée dans le texte.

### 2.1.1 Présentation générale

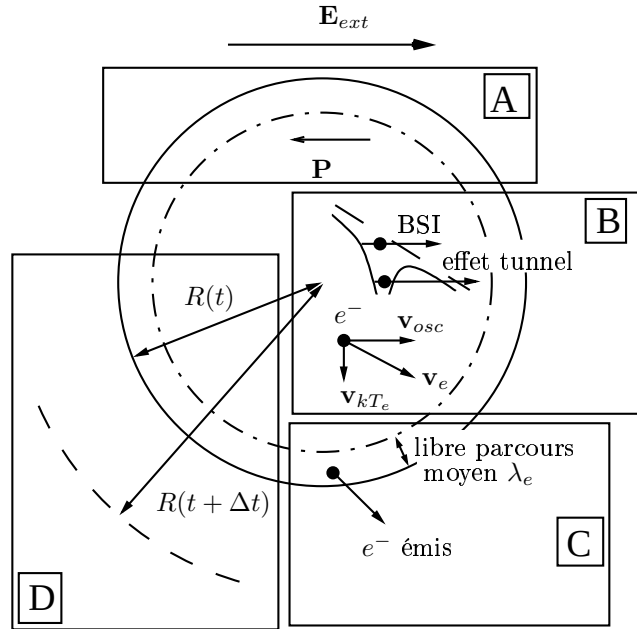


FIG. 2.1: Schéma de principe du modèle nanoplasma. L'agrégat est représenté par le cercle en trait plein. Les panneaux représentent de manière schématique le champ dépolarisant à l'intérieur de l'agrégat (A), les différents mécanismes d'ionisation (B), l'émission d'électrons (C), et l'expansion de l'agrégat (D).

La figure 2.1 représente une vue schématique des divers processus simultanés dont le modèle tient compte. Bien que ces divers processus soient détaillés dans la section suivante, donnons une idée de ce qu'ils représentent. L'agrégat est représenté par le cercle en trait plein qui court sur les quatre cadres.

L'excitation laser apparaît suffisamment intense aux intensités laser crête considérées (typiquement  $10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ ) pour ioniser par effet tunnel les atomes neutres de l'agrégat (cadre B, partie haute). Les électrons issus de ces ionisations constituent un plasma<sup>1</sup> avec les ions qui se polarise (vecteur  $\mathbf{P}$ , cadre A), et peut s'opposer au champ laser extérieur.

La vitesse de ces électrons libres se décompose en une vitesse d'oscillation dans le champ laser  $\mathbf{v}_{osc}$  et une vitesse thermique  $\mathbf{v}_{kT_e}$  issue de la thermalisation par collision (cadre B, partie basse). Piégés, ces électrons libres acquièrent de l'énergie et sont susceptibles d'ioniser à leur tour d'autres atomes ou ions lors de collisions. Ils peuvent également

<sup>1</sup>Pour des agrégats métalliques, ce plasma existe déjà sous la forme d'électrons de conduction délocalisés, l'interaction avec le laser augmente donc le nombre de ces électrons.

quitter l'agrégat s'ils possèdent une énergie supérieure à celle de la barrière électrostatique en surface et s'ils se situent à une distance inférieure à leur libre parcours moyen de la surface (cadre C).

L'effet des collisions électroniques sur les ions, ou bien le déséquilibre électrostatique qui résulte de l'émission électronique, conduisent à l'expansion finale (cadre D, avec  $R(t)$  rayon de l'agrégat au cours du temps).

## 2.1.2 Prérequis : champ électrique interne

Si au début de l'interaction les atomes de gaz rare de l'agrégat ressentent exactement le champ extérieur, ceci change lorsque le plasma se forme.

### 2.1.2.1 Le champ laser

Le modèle nanoplasma décrit l'interaction d'une onde plane polarisée linéairement avec un agrégat. Ce dernier est assimilé à une sphère, hypothèse raisonnable pour le nombre d'atomes le constituant considéré par la suite. Dans ces conditions, le rayon d'un agrégat de xénon de 5000 atomes vaut  $r \simeq 4.1$  nm. Cette dimension est très inférieure aux longueurs d'onde du laser utilisées par la suite, soit de 400 à 800 nm (correspondant à une gamme de fréquence du proche ultraviolet au proche infrarouge) et permet de supposer que l'agrégat ressent en tout point un champ électromagnétique uniforme<sup>2</sup>. Le champ laser  $\mathbf{E}_{\text{ext}}(\mathbf{t})$  s'écrit alors dans son approximation dipolaire  $\mathbf{E}_{\text{ext}}(\mathbf{t}) \simeq E_0 \sin(\omega t) f(t) \mathbf{e}_z$ , où  $E_0$  représente l'amplitude maximum du champ en  $\text{V}\cdot\text{m}^{-1}$ ,  $\mathbf{e}_z$  la direction de la polarisation, et  $f(t)$  son enveloppe qui varie au cours du temps  $t$ . Par la suite, une enveloppe gaussienne est choisie. L'ensemble des équations du modèle nanoplasma étant moyenné sur une période optique, le champ laser devient finalement

$$\mathbf{E}_{\text{ext}}(\mathbf{t}) = E_0 \exp\left(-2 \ln(2) \left(\frac{t}{\tau}\right)^2\right) \mathbf{e}_z \quad (2.1)$$

avec  $\tau$  largeur à mi-hauteur - Full Width at Half Maximum FWHM en anglais -, souvent confondue lorsque cela n'est pas précisé avec le terme «durée du pulse» dans la littérature.

### 2.1.2.2 Amplification ou suppression du champ externe

Les atomes de l'agrégat ne ressentent pas exactement le champ externe, car suite au mouvement des électrons il apparaît un champ dépolarisant qui s'oppose au champ externe lors de la formation du plasma. Ils ressentent donc un champ interne  $\mathbf{E}_{\text{int}}$ , somme du champ externe  $\mathbf{E}_{\text{ext}}$  et du champ dépolarisant, qui est ici calculé dans le cadre de l'approximation dipolaire pour une sphère diélectrique et un champ externe polarisé linéairement (voir la démonstration plaisante de Bertin *et al.* [58]), soit

$$E_{\text{int}}(t) = \frac{3}{|\epsilon + 2|} E_{\text{ext}}(t) \quad (2.2)$$

---

<sup>2</sup>Si le rayon de l'agrégat atteint des dimensions incompatibles avec cette hypothèse après explosion, ce rayon est atteint plusieurs centaines de femtosecondes après que la dynamique du nanoplasma a mené aux ionisations finales.



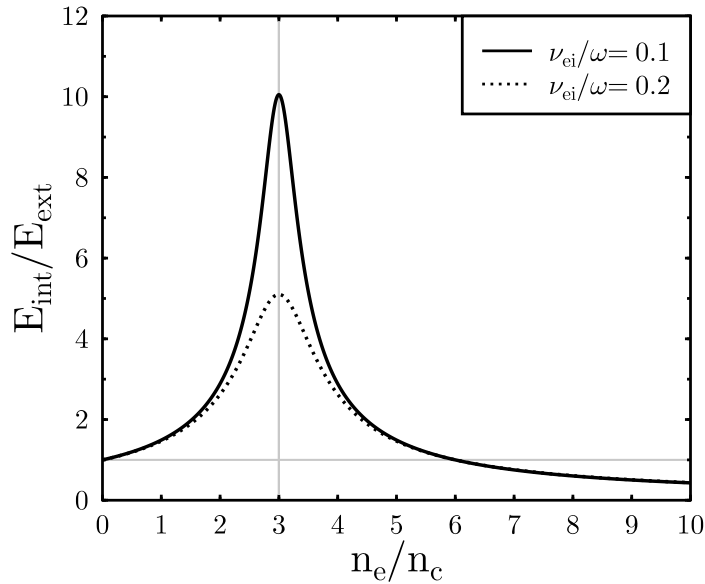


FIG. 2.2: Amplification ( $E_{int}/E_{ext} > 1$ ) ou suppression ( $E_{int}/E_{ext} < 1$ ) du champ électrique interne  $E_{int}$  par rapport au champ externe  $E_{ext}$  en fonction du rapport de la densité électronique  $n_e$  à la densité critique  $n_c$ , pour différentes valeurs du rapport de la fréquence de collision  $\nu_{ei}$  à la fréquence laser  $\omega$ . Le champ est supprimé pour  $n_e/n_c > 6$  et amplifié sinon. L'amplification est maximum lorsque  $n_e/n_c$  vaut 3 ; l'amplitude du maximum augmente lorsque la fréquence de collision  $\nu_{ei}$  diminue (à  $\omega$  fixé).

Il dépend de la fonction diélectrique complexe  $\epsilon$  établie suivant les hypothèses du modèle de Drude-Lorentz-Sommerfeld par

$$\epsilon = 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega + i\nu_{ei})} \quad (2.3)$$

$\omega$  correspond à la fréquence laser,  $\nu_{ei}$  est un terme d'amortissement lié aux collisions électron libre-ion, et  $\omega_{pe}$  la fréquence plasmon paramètre fondamental de la physique des plasmas définie à la section 1.1.1 page 16.

**Résonance** Les équations 2.2 et 2.3 font apparaître la possibilité d'une résonance entre champ laser et nanoplasma, qui intervient lorsque  $\omega = \omega_{pe}/\sqrt{3}$ , le facteur de forme  $\sqrt{3}$  provenant de ce que le plasma sphérique se polarise selon une direction privilégiée<sup>3</sup> imposée par le laser [60]. Cette relation permet de définir une densité électronique critique  $n_c$  selon  $n_c = \epsilon_0 m_e \omega^2 / e^2$ . Lorsque la densité électronique égale trois fois cette densité critique, la résonance a lieu, qui permet une forte absorption d'énergie par le nanoplasma.

La figure 2.2 représente la valeur du rapport du champ interne au champ externe en fonction du rapport de la densité électronique à la densité critique, pour deux valeurs

<sup>3</sup>Voir également la section 1.1.1. La valeur de cette fréquence de résonance pour l'ensemble des modes d'oscillation du nuage électronique est définie plus généralement [59, 55] selon  $\omega = \sqrt{\lambda/(2\lambda + 1)}\omega_{pe}$ . Seules sont considérées ici les oscillations dipolaires de multipolarité  $\lambda = 1$  étant donnée la limite de grande longueur d'onde par rapport aux dimensions de l'agrégat. Notons que pour  $\lambda \rightarrow \infty$ , la fréquence de résonance tend vers  $\omega = \omega_{pe}/\sqrt{2}$ .

différentes du rapport  $\nu_{ei}/\omega$ . Si le champ interne est toujours amplifié par rapport au champ externe pour une densité électronique inférieure à 6 fois la densité critique, et est écranté sinon — l'onde électromagnétique ne peut plus se propager dans le milieu —, on constate que l'amplitude de la résonance à  $n_e = 3n_c$  dépend de la valeur du rapport  $\nu_{ei}/\omega$  : l'amplification du champ électrique sera d'autant plus forte que le rapport de la fréquence de collision électron-ion à la fréquence laser sera minimal.

**Fréquence de collision électron-ion** La fréquence de collision électron-ion, ici différente de celle suggérée par T.Ditmire *et al.* [1], est choisie d'après [22, 61, 62]

$$\nu_{ei} = \frac{1}{2} \frac{n_i \langle Z^2 \rangle e^4 \ln \Lambda_1}{(\pi \epsilon_0 m_e)^2 (v_{kT_e}^2 + v_{osc}^2)^{\frac{3}{2}}} \quad (2.4)$$

avec  $n_i$  la densité d'ions,  $Z$  le nombre de charge des ions,  $v_{kT_e}$  vitesse thermique des électrons et  $v_{osc}$  vitesse d'oscillation des électrons dans le champ laser. Cette expression possède l'avantage de rester valable pour tout intensité laser, à condition de choisir le logarithme coulombien modifié  $\ln \Lambda_1$

$$\ln \Lambda_1 = \begin{cases} \frac{1}{4} \ln^2 \left( 1 + \frac{m_e v_{osc}^2}{\hbar \omega} \right) & , \text{ si } \hbar \omega \gg kT_e \\ \frac{1}{4} \ln^2 \left( 1 + \frac{v_{osc}^2}{v_{kT_e}^2} \right) + \ln \left( \frac{v_{osc}^2}{v_{kT_e}^2} + \exp \left( \frac{1}{3} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \right) \right) \ln \Lambda & , \text{ si } \hbar \omega \ll kT_e \end{cases} \quad (2.5)$$

avec  $T_e$  température électronique et  $\ln \Lambda$  le logarithme coulombien classique<sup>4</sup> [66] tel que

$$\ln \Lambda = \min \left[ \ln \left( 2.58 \cdot 10^9 \frac{T_e^{\frac{3}{2}}}{\langle Z \rangle \sqrt{n_e}} \right); \ln \left( 2.83 \cdot 10^{10} \frac{T_e}{\sqrt{n_e}} \right) \right] \quad (2.6)$$

avec  $T_e$  exprimé en eV et  $n_e$  en  $\text{cm}^{-3}$ .

### 2.1.3 Formation du nanoplasma

Détaillons maintenant les différents processus menant à la création du nanoplasma.

#### 2.1.3.1 Ionisation par effet tunnel

L'excitation laser est suffisamment intense pour conduire à l'ionisation des atomes de l'agrégat. Plusieurs types d'ionisation sont possibles en fonction de l'intensité laser (confer la section 1.1.1 page 14). Pour les fortes intensités considérées par la suite, les atomes peuvent être ionisés soit par effet tunnel, soit par suppression de barrière («Barrier Suppression Ionization, BSI» en anglais). L'ionisation BSI est un phénomène à seuil, l'électron n'étant émis qu'à partir du moment où l'intensité critique est atteinte, tandis que l'ionisation par effet tunnel est un phénomène probabiliste. Étant donnée la forme

<sup>4</sup>Le logarithme coulombien apparaît dans la théorie des collisions élastiques coulombiennes à plusieurs corps [63, 64]. La théorie à plusieurs corps est justifiée par la longue portée de l'interaction coulombienne, une charge interagissant alors avec plusieurs ions et électrons. Confer E.Bésuelle *et al.* [65] pour une discussion détaillée.

temporelle de l'impulsion, l'ionisation par effet tunnel peut avoir le temps d'ioniser la totalité des atomes pendant le front montant, avant que ne soit atteinte l'intensité seuil d'ionisation par suppression de barrière [11]. Cette condition est réalisée pour une durée de pulse de 200 fs (intensité crête  $8 \cdot 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ ) pour le  $\text{Xe}^{8+}$  [15], cette durée diminuant pour les états de charge inférieurs. La mise en évidence expérimentale du mécanisme dominant demanderait de disposer alors de lasers d'impulsion brève apparus récemment [15].

La formule d'ionisation par effet tunnel de M.V.Ammosov *et al.* [67], communément appelée formule ADK suivant les initiales des auteurs, sera choisie par la suite pour décrire l'ionisation — confer [14] pour une revue des différentes formules existantes et de leurs propriétés —, sachant que cette formule est également valable à haute intensité dans le domaine BSI (elle y surestime légèrement la valeur attendue par suppression de barrière, d'autant plus que l'intensité est grande [11]). Historiquement sa formulation a d'abord été établie dans le cas d'atomes hydrogénéoïdes placés dans un champ variable par A.M.Perelomov *et al.* [68]. M.V.Ammosov *et al.* ont ensuite étendu la formule au cas d'atomes et d'ions plus complexes. Par la suite la formulation en unités du système international de P.Corkum [69] valable pour une polarisation du champ laser linéaire sera utilisée :

$$W_j^{tun} = \sqrt{\frac{3}{2\pi}} \omega_s |C_{n^*l^*}|^2 G_{lm} \left( \frac{4\omega_s}{\omega_t} \right)^{2n^* - |m| - 3/2} \exp \left( -\frac{4\omega_s}{3\omega_t} \right) \quad (2.7)$$

avec  $j$  le degré d'ionisation final. Cette expression dépend de la structure quantique de l'atome considéré avec  $n^* = \langle Z \rangle \sqrt{I_p^H / I_p}$ ,  $n^*$  nombre quantique principal effectif,  $I_p$  et  $I_p^H$  potentiels d'ionisation de l'atome — ou ion —, et de l'hydrogène, le potentiel  $I_p$  augmentant avec le degré d'ionisation de l'atome,  $\omega_s = I_p / \hbar$ ,  $\omega_t = eE_{int} / \sqrt{2m_e I_p}$ . Les facteurs  $G_{lm}$  et  $|C_{n^*l^*}|^2$  s'écrivent  $G_{lm} = (2l+1)(l+|m|)!(2^{-|m|})/[|m|!(l-|m|)!]$ ,  $m$  nombre quantique magnétique,  $l$  nombre quantique orbital, et  $|C_{n^*l^*}|^2 = (4 \exp(1)^2 / (n^{*2} - l^{*2}))^{n^*} ((n^* - l^*) / (n^* + l^*))^{l^* + 1/2} / (2\pi n^*)$  pour  $l^* \leq n^*$ ,  $l^* = 0$  si  $l \ll n$  et  $l^* = n^* - 1$  dans les autres cas. La validité de la formule ADK est d'autant meilleure que  $n^*$  augmente, soit pour des atomes à grand numéro atomique [14].

### 2.1.3.2 Ionisation par collisions électroniques

Les électrons issus de l'ionisation par effet tunnel, ou les électrons de conduction dans le cas d'un agrégat métallique, peuvent s'ils possèdent une énergie suffisante ioniser les atomes et ions par collision binaire. Rappelons que leur vitesse se décompose en une vitesse acquise par oscillation dans le champ laser et une vitesse thermique due à la température interne du gaz d'électrons selon  $\mathbf{v}_e = \mathbf{v}_{osc} + \mathbf{v}_{kT_e}$ . T.Ditmire *et al.* [1] approximent que la probabilité  $W_j^{coll}$  d'ioniser par collision un autre atome se décompose sous la forme de deux taux de collision  $W_j^{kT_e}$  et  $W_j^{las}$  respectivement associés aux vitesses  $v_{kT_e}$  et  $v_{osc}$  selon  $W_j^{coll} = W_j^{kT_e} + W_j^{las}$ . Chaque taux peut être calculé à l'aide d'une section efficace de collision électron-ion  $\sigma_j$  et résulte de la moyenne

$$W_j^{kT_e} = n_e \langle \sigma_j v_{kT_e} \rangle_{\text{distribution vitesses}} \quad (2.8)$$

$$W_j^{las} = n_e \langle \sigma_j v_{osc} \rangle_{\text{période optique}} \quad (2.9)$$

L'expression choisie de cette section efficace a été établie par Lotz [70] de manière empirique. Cette section efficace dépend du degré d'ionisation  $j$  de l'ion considéré, du nombre d'électrons  $q_j$  sur sa couche externe, de son potentiel d'ionisation  $I_p$  et de l'énergie cinétique  $\epsilon$  de l'électron incident, selon

$$\sigma_j = a_j q_j \frac{\ln\left(\frac{\epsilon}{I_p}\right)}{\epsilon I_p} \quad (2.10)$$

avec  $a_j = 1.15 \cdot 10^{-55} J^2 m^2$ .

**Taux d'ionisation par collision «thermique»**  $W_j^{kT_e}$  Le taux  $W_j^{kT_e}$  d'ionisation par collision des électrons thermiques de vitesse  $v_{kT_e} = \sqrt{kT_e/m_e}$  à été de nouveau calculé à l'aide des indications de T.Ditmire *et al.* [1]. Ce calcul (détaillé en annexe A.1) consiste à effectuer une moyenne sur la distribution maxwellienne des vitesses en supposant la symétrie sphérique de l'agrégat, et en tenant compte de la condition que seuls les électrons ayant une énergie cinétique supérieure ou égale au potentiel d'ionisation de l'ion ou atome, peuvent l'ioniser. Le résultat diffère de celui proposé par l'équation (7) de [1] pour ce qui est du préfacteur, soit

$$W_j^{kT_e} = n_e \frac{2\sqrt{2}}{\sqrt{\pi m_e kT_e}} \frac{a_j q_j}{I_p} E_1\left(\frac{I_p}{kT_e}\right) \quad (2.11)$$

avec  $E_1(u) = \int_u^\infty \exp(-x)/x dx$  intégrale exponentielle d'ordre 1.

**Taux d'ionisation par collision «laser»**  $W_j^{las}$  Le taux d'ionisation par collision des électrons oscillant dans le champ laser  $W_j^{las}$  (voir annexe A.2) a également été calculé. Son expression est moyennée sur un cycle optique, car toutes les équations du modèle nanoplasma sont moyennées sur une période du laser. Pour une vitesse d'oscillation de l'électron dans le champ électrique intégrée de la relation fondamentale de la dynamique, soit  $v_{osc}(t) = eE_{int}(t)/(m_e\omega)|\sin(\omega t)|$ , le taux d'ionisation par collision optique, qui diffère sensiblement de l'équation (13) de [1] donne :

$$W_j^{las} = n_e \frac{a_j q_j}{4\pi I_p \sqrt{m_e U_p}} \times \left\{ \left[ 3 - \frac{I_p}{U_p} + \frac{3}{32} \left( \frac{I_p}{U_p} \right)^2 \right] \ln \left( \frac{1 + \sqrt{1 - \frac{I_p}{2U_p}}}{1 - \sqrt{1 - \frac{I_p}{2U_p}}} \right) - \left( \frac{7}{2} - \frac{3I_p}{8U_p} \right) \sqrt{1 - \frac{I_p}{2U_p}} \right\} \quad (2.12)$$

L'énergie pondéromotrice (confer la section 1.1.1 page 14)  $U_p = \frac{e^2 E_{int}^2}{4m_e \omega^2}$  correspond à l'énergie cinétique moyenne d'un électron oscillant dans le champ laser.

### 2.1.3.3 Population ionique

Les deux types d'ionisation cités précédemment permettent de dépeupler une population d'ions de charge  $j$  au profit d'une population de charge  $j + 1$ . Les probabilités

d'ionisation, ou taux d'ionisation par effet tunnel  $W_j^{tun}$  et par collision électronique  $W_j^{coll}$ , donnent la variation de chaque population ionique :

$$\frac{\partial N_j}{\partial t} = (W_j^{tun} + W_j^{coll}) N_{j-1} - (W_{j+1}^{tun} + W_{j+1}^{coll}) N_j \quad (2.13)$$

Le terme de gain correspondant à l'ionisation de l'ion de charge  $j-1$ , le terme de perte à celle de l'ion de charge  $j$ .

## 2.1.4 Dynamique du nanoplasma

### 2.1.4.1 Émission électronique et charge de l'agrégat

Le nanoplasma ne persiste pas, car ses électrons les plus énergétiques vont quitter l'agrégat. Le nombre d'électrons qui part par seconde, ou taux  $W^{fs}$  (les initiales fs sont mises pour free-streaming), est également évalué par T.Ditmire *et al.* selon le flux d'électrons  $\partial Q/\partial t$  susceptibles de traverser la surface sphérique  $S$  délimitant le nanoplasma

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = W^{fs} = \int_S n_e \mathbf{v} d\mathbf{S} \quad (2.14)$$

Son calcul doit respecter deux contraintes, puisque seuls ne peuvent s'échapper les électrons :

- dont le libre parcours moyen  $\lambda_e = \langle v \rangle / \nu_{ei}$  est supérieur à la distance qui les sépare de la surface, donc situés dans une couronne sphérique d'épaisseur  $\lambda_e$ .
- dont l'énergie cinétique est supérieure à celle de la barrière de potentiel électrostatique supposée répartie en surface. Cette barrière de potentiel a pour origine le rappel électrostatique des électrons par les ions, et augmente d'autant plus que les électrons partent, donc que la charge de l'agrégat augmente.

L'expression validée (confer annexe B) se réduit finalement à :

$$W^{fs} = n_e \frac{2\sqrt{2\pi}}{\sqrt{m_e k T_e}} (K_{esc} + k T_e) \exp\left(-\frac{K_{esc}}{k T_e}\right) \begin{cases} \frac{\lambda_e}{4R} (12R^2 - \lambda_e^2) & , \text{ si } \lambda_e < 2R \\ 4R^2 & , \text{ sinon} \end{cases} \quad (2.15)$$

avec  $R$  rayon de l'agrégat et  $\lambda_e = \sqrt{8kT_e/(\pi m_e)}/\nu_{ei}$  le libre parcours moyen. L'énergie cinétique minimum d'échappement  $K_{esc} = \frac{1}{2} m v_{esc}^2$  vaut l'énergie potentielle de Coulomb<sup>5</sup>

$$K_{esc} = \frac{(Q+1)e^2}{8\pi\epsilon_0 R} \quad (2.16)$$

l'électron ressentant l'équivalent de  $(Q+1)$  charges en surface lorsqu'il quitte l'agrégat.

**Population électronique** La somme du nombre d'électrons créés par effet tunnel ou par collision électronique et du nombre d'électrons qui quittent l'agrégat, soit l'équation de conservation  $N_e = \sum_j (j \times N_j) - Q$  se traduit en l'équation d'évolution du nombre d'électrons constitutifs du nanoplasma au cours du temps selon

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} = \sum_j \left( j \times \frac{\partial N_j}{\partial t} \right) - \frac{\partial Q}{\partial t} \quad (2.17)$$

où  $N_j$  représente le nombre d'ions de nombre de charge  $j$ .

<sup>5</sup>Soit d'après [71] pour un conducteur  $K_{esc} = 1/2 * qV$  où  $q = (Q+1)e$  et  $V$  est le potentiel coulombien.

### 2.1.4.2 Expansion

Deux processus différents conduisent à l'expansion de l'agrégat, donc du nanoplasma. Le premier processus peut être vu comme l'image d'un gaz d'électrons qui «cogne» les ions. Lors des chocs élastiques ou inélastiques des électrons sur les ions, les électrons transfèrent une quantité de mouvement aux ions qui peuvent ainsi s'écarter les uns des autres. La pression hydrodynamique (ou pression cinétique) quantifie cet effet, selon

$$P_h = n_e k T_e \quad (2.18)$$

avec  $k$  constante de Boltzmann. En toute rigueur ; cette pression dépend de la température ionique  $T_i$ , ici négligée car l'échelle de temps de la dynamique ionique est beaucoup plus grande, selon  $P_h = n_e k T_e + n_i k T_i$ ,  $n_i$  densité ionique.

Le second processus est d'origine électrostatique. La conservation de la neutralité est assurée par l'attraction électrostatique des ions, qui freine la fuite des électrons. Lorsque malgré tout des électrons quittent l'agrégat, l'équilibre électrostatique est rompu et un défaut de charge positif apparaît en surface qui entraîne une répulsion électrostatique entre les ions. Ceci peut également être quantifié en termes de pression coulombienne selon

$$P_c = \frac{3}{2(4\pi)^2 \epsilon_0} \frac{(Q e)^2}{R^4} \quad (2.19)$$

en supposant toujours un agrégat sphérique.

Pression hydrodynamique et pression coulombienne varient respectivement en  $1/R^3$  et  $1/R^4$ . Leur contribution relative à l'expansion de l'agrégat pourra donc varier lors de la dynamique. L'équation d'évolution du rayon de l'agrégat au cours du temps relie ces pressions suivant

$$\frac{\partial^2 R}{\partial t^2} = 5 \frac{P_c + P_h}{n_i m_i} \frac{1}{R} \quad (2.20)$$

où  $t$  est mis pour le temps. Cette équation se déduit de la seconde loi de Newton, dans laquelle l'énergie cinétique est calculée en considérant l'hypothèse d'un modèle auto-semblable.

### 2.1.4.3 Température électronique

L'équation d'évolution de la température dérive de la conservation d'énergie, équation constitutive qui s'écrit :

$$\frac{d}{dt} \left( \frac{3}{2} N_e k T_e \right) = \frac{d}{dt} (\text{termes de gain d'énergie} - \text{termes de perte d'énergie}) \quad (2.21)$$

soit :

$$\begin{aligned} \frac{\partial T_e}{\partial t} = & \frac{2}{3 N_e k} \left( \frac{\partial W}{\partial t} + \frac{\partial \langle T \rangle}{\partial t} + \frac{\partial E_{th}}{\partial t} \right) - \\ & \left[ \frac{T_e}{N_e} \frac{\partial N_e}{\partial t} + \frac{2}{R} \frac{\partial R}{\partial t} T_e + \frac{T_e - T_i}{\tau_{eq}} + \frac{2}{3 N_e k} \left( \sum_j I_p \frac{\partial N_j}{\partial t} + \frac{\partial E^{fs}}{\partial t} \right) \right] \end{aligned} \quad (2.22)$$

Détaillons l'ensemble des termes conduisant au réchauffement électronique :

1. Le taux de chauffage par Bremsstrahlung inverse  $dW/dt$  représente le gain d'énergie par absorption de photon d'un électron à proximité d'un ion. Ce taux de chauffage, dans le cas d'une sphère diélectrique par un champ électromagnétique [71], dérive du vecteur de Poynting et dépend de la formulation du champ interne (équation 2.2 page 31) et de la fonction diélectrique (équation 2.3 page 32), soit <sup>6</sup>

$$\frac{\partial W}{\partial t} = \frac{9\epsilon_0 \omega^2 \omega_{pe}^2 \nu_{ei}}{2} \frac{|\mathbf{E}_{ext}(t)|^2}{9\omega^2(\omega^2 + \nu_{ei}^2) + \omega_{pe}^2(\omega_{pe}^2 - 6\omega^2)} \left( \frac{4}{3} \pi R^3 \right) \quad (2.25)$$

où  $dW/dt$  est donné en  $J.s^{-1}$ .

2. L'énergie de dérive  $\langle T \rangle$ , ou énergie acquise dans le champ par l'électron ionisé par effet tunnel, dépend fortement de la phase du champ laser lors de l'émission de l'électron et de la probabilité d'ionisation par effet tunnel. Cette énergie sera négligée par la suite (confer N.H.Burnett *et al.* [72] pour un calcul détaillé).
3. L'acquisition de l'énergie thermique des électrons nouvellement émis, soit par collisions des électrons sur les ions, soit par effet tunnel  $E_{th}$  suppose la thermalisation instantanée des électrons. Son expression complète ici le modèle de T.Ditmire *et al.* avec :

$$\frac{\partial E_{th}}{\partial t} = \frac{3}{2} k T_e \sum_j \frac{\partial N_j}{\partial t} \quad (2.26)$$

Détaillons l'ensemble des termes contribuant au refroidissement électronique :

1. Le second terme de l'expression de la différentielle totale de l'énergie en fonction de ses différentielles partielles  $\frac{T_e}{N_e} \frac{\partial N_e}{\partial t}$  tient compte de la variation du nombre d'électrons au cours du temps.
2. Le terme  $\frac{2}{R} \frac{\partial R}{\partial t} T_e$  tient compte du refroidissement lié à l'expansion de l'agrégat et provient de l'équation constitutive 2.21 page précédente réduite à  $(3N_e k)/2 \times \partial T_e / \partial t = -P \partial V / \partial t$ .
3. Les électrons chauds se thermalisent sur les ions froids par collision coulombienne [22] proportionnellement à  $(T_e - T_i)/\tau_{eq} \simeq T_e/\tau_{eq}$ . Le temps d'équilibration  $\tau_{eq}$  vaut  $\tau_{eq} = m_i/(m_e \nu_{ei})$ , car  $m_i/m_e$  collisions sont nécessaires pour transférer significativement de l'énergie des électrons vers les ions.
4. Lors des collisions électroniques qui donnent lieu à ionisation, l'énergie thermique perdue vaut  $\sum_j I_p dN_j/dt$ , le taux  $dN_j/dt$  ne comptant alors que le taux de collision  $W_j^{coll}$ .

---

<sup>6</sup>Le vecteur de Poynting s'écrit

$$\frac{\partial W}{\partial t} = -V \epsilon_0 \mathbf{E}_{int}(t) \cdot \frac{\partial \mathbf{D}(t)}{\partial t} \quad (2.23)$$

avec  $\mathbf{D}(t) = \epsilon \mathbf{E}_{int}(t)$  vecteur déplacement,  $V$  volume,  $\epsilon_0$  constante diélectrique du vide. Le produit scalaire dans l'équation précédente requiert d'exprimer le champ  $\mathbf{E}_{int}(t)$  sous sa forme complexe. La partie réelle du produit scalaire est ensuite moyennée sur une période optique pour donner

$$\frac{\partial W}{\partial t} = \frac{\omega V \epsilon_0}{2} \text{Im}(\epsilon) |\mathbf{E}_{int}|^2 \quad (2.24)$$

qui conduit à l'expression finale 2.25.

5. L'énergie emportée par les électrons qui quittent l'agrégat

$$E^{fs} = \int_S (mv^2/2)n_e \mathbf{v} d\mathbf{S} \quad (2.27)$$

a été calculée selon les mêmes principes que ceux appliqués pour la charge de l'agrégat (équation 2.14 page 36) soit

$$\begin{aligned} \frac{\partial E^{fs}}{\partial t} = n_e 2\sqrt{2\pi} \sqrt{\frac{kT_e}{m_e}} & \left( \frac{K_{esc}^2}{kT_e} + 2K_{esc} + 2kT_e \right) \exp\left(-\frac{K_{esc}}{kT_e}\right) \times \\ & \begin{cases} \frac{\lambda_e}{4R}(12R^2 - \lambda_e^2) & , \text{ si } \lambda_e < 2R \\ 4R^2 & , \text{ sinon} \end{cases} \end{aligned} \quad (2.28)$$

## 2.2 Implémentation numérique

Les différentes équations du modèle nanoplasma sont intégrées selon la méthode Cash-Karp Runge-Kutta d'ordre 5 (routines extraites de l'ouvrage *Numerical Recipes in Fortran 77* [73]) pour des équations différentielles d'ordre 1. Pour cela, la variable intermédiaire de la vitesse d'expansion  $v_{exp}$  est définie afin de séparer l'équation d'évolution du rayon 2.20 d'ordre 2. Les équations différentielles couplées 2.20, 2.17, 2.13, 2.15 et 2.22, forment alors le système suivant :

$$(S) \left\{ \begin{aligned} \frac{\partial R}{\partial t} &= v_{exp} \\ \frac{\partial v_{exp}}{\partial t} &= 5 \frac{P_c + P_h}{n_i m_i} \frac{1}{R} \\ \frac{\partial N_e}{\partial t} &= \sum_j j \times \frac{\partial N_j}{\partial t} - \frac{\partial Q}{\partial t} \\ \frac{\partial N_j}{\partial t} &= (W_j^{tun} + W_j^{coll}) N_{j-1} - (W_{j+1}^{tun} + W_{j+1}^{coll}) N_j \\ \frac{\partial Q}{\partial t} &= n_e \frac{2\sqrt{2\pi}}{\sqrt{m_e k T_e}} (K_{esc} + kT_e) \exp\left(-\frac{K_{esc}}{kT_e}\right) \begin{cases} \frac{\lambda_e}{4R}(12R^2 - \lambda_e^2) & , \text{ si } \lambda_e < 2R \\ 4R^2 & , \text{ sinon} \end{cases} \\ \frac{\partial T_e}{\partial t} &= \frac{2}{3N_e k} \left( \frac{\partial W}{\partial t} + \frac{\partial \langle T \rangle}{\partial t} + \frac{\partial E_{th}}{\partial t} \right) - \\ & \quad \left[ \frac{T_e}{N_e} \frac{\partial N_e}{\partial t} + \frac{2}{R} \frac{\partial R}{\partial t} T_e + \frac{T_e - T_i}{\tau_{eq}} + \frac{2}{3N_e k} \left( \sum_j I_p \frac{\partial N_j}{\partial t} + \frac{\partial E^{fs}}{\partial t} \right) \right] \end{aligned} \right.$$

### 2.2.1 Nécessité d'un algorithme adapté

Un exemple de cette mise en oeuvre apparaît sur la figure 2.3 qui présente l'évolution temporelle du taux de première ionisation tunnel. L'origine des temps est déterminée de telle sorte que le maximum du champ laser gaussien (équation 2.1 page 31) soit atteint à l'instant  $t = 0$  fs ; le temps minimum est choisi équivalent à  $t_{min} = -3 FWHM$ . Pour



un pas de temps constant de 0.01 fs (trait continu), le taux chute de manière brutale de quinze ordres de grandeur en une femtoseconde à l'instant  $t \simeq -132$  fs, ce qui paraît peu vraisemblable. Une solution consisterait à diminuer le pas de temps constant jusqu'à une valeur suffisamment petite, de l'ordre ici de  $10^{-4}$  fs. Cependant ce nouveau pas ne serait pas forcément adapté à l'ensemble des taux tunnel, et plus généralement à l'ensemble des variables du système, certaines requérant un pas de temps plus petit ou d'autres variant plus lentement ne nécessitant pas une telle précision. Le recours choisi d'un pas variable suivant l'invention de Fehlberg (également d'après [73]) affranchit de la surveillance de l'ensemble des observables. Le pas de temps suggéré à l'algorithme est diminué tant que l'intégration n'est pas plus précise qu'une erreur minimale et adaptée donnée. Il est augmenté lorsque la précision requise est atteinte. La modification de l'évolution temporelle du même taux tunnel pour un pas de temps variable est mise pour comparaison sur la figure 2.3 (trait pointillé). L'affaissement de  $10^{-17}$  fs $^{-1}$  à  $t \simeq -132$  fs disparaît au profit d'une variation plus régulière, assurée alors avec une précision de  $10^{-4}$ .

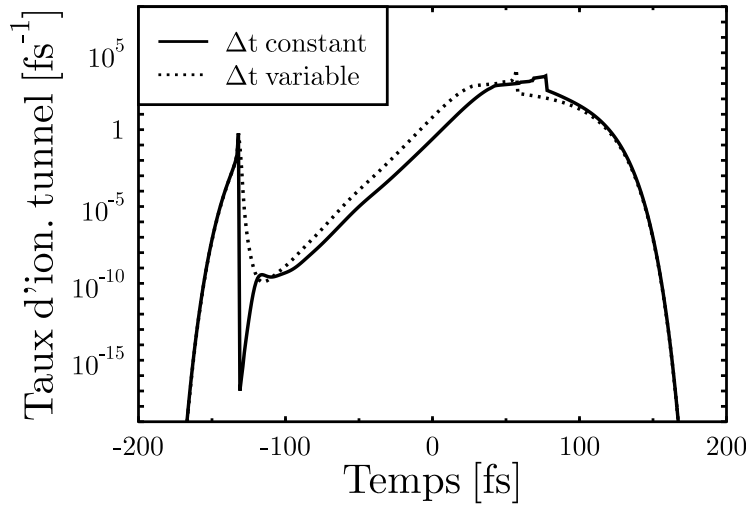


FIG. 2.3: Évolution temporelle du taux de première ionisation tunnel, pour un pas de temps d'intégration constant  $\Delta t = 0.01$  fs (trait continu), et un pas de temps variable avec pour pas de temps initial  $\delta t = 1$  fs et une précision requise  $\epsilon = 10^{-4}$  (trait pointillé).

### 2.2.2 D'une amélioration nécessaire du modèle

La figure 2.4 montre une réalisation de l'algorithme précédent pour un agrégat de 5000 atomes de xénon  $^{54}\text{Xe}$  irradié par une impulsion laser gaussienne de largeur à mi-hauteur de 100 fs, de longueur d'onde 780 nm et d'intensité crête  $10^{16}$  W.cm $^{-2}$ . Elle permet la visualisation simultanée de l'évolution au cours du temps en femtosecondes de la densité électronique normalisée à la densité critique  $n_c$  ainsi que des champs électriques interne (trait continu) et externe (trait plein).

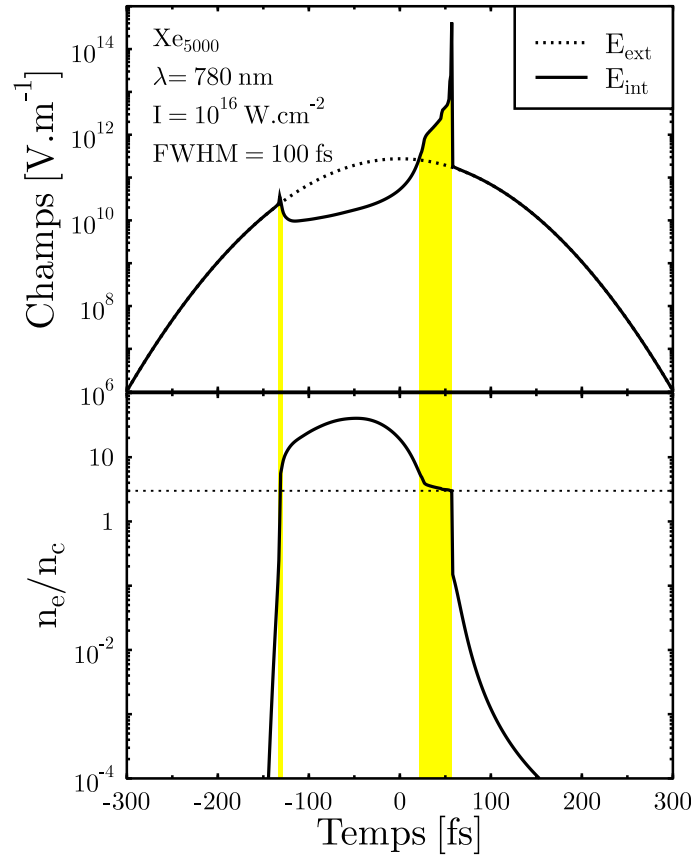


FIG. 2.4: Évolution temporelle d'un agrégat de xénon de 5000 atomes irradié par une impulsion laser de durée 100 fs, de longueur d'onde 780 nm et d'intensité crête à  $t = 0$  fs de  $10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ . **Partie supérieure** : amplitudes des champs électriques interne (trait continu) et externe (trait discontinu). **Partie inférieure** : densité électronique normalisée à la densité critique  $n_c$ ; le trait horizontal indique la condition de résonance  $n_e/n_c = 3$ . Les zones colorées matérialisent les deux résonances à  $t \simeq -135$  fs et  $t \simeq 10$  fs.

### 2.2.2.1 La double résonance

Au début de l'interaction avec le laser, le champ interne est égal au champ externe, car la densité d'électrons libres à l'intérieur de l'agrégat est nulle : le champ laser ne peut ioniser les atomes de l'agrégat par effet tunnel avant une amplitude de  $2 \cdot 10^{10} \text{ V.m}^{-1}$  qu'il atteint au temps  $t \simeq -140$  fs. La densité d'électrons libres à l'intérieur de l'agrégat croît ainsi au cours du temps proportionnellement à l'amplitude du champ interne, qui est légèrement supérieur au champ externe, car la densité électronique est inférieure à trois fois la valeur de la densité critique. La résonance est atteinte lorsque la densité d'électrons du nanoplasma égale trois fois la densité critique à l'instant  $t \simeq -132$  fs. Le champ interne est alors amplifié, jusqu'à 1.5 fois la valeur du champ externe. La densité électronique dépasse ensuite quasi-instantanément la valeur de six fois la densité critique et le nanoplasma interdit la pénétration de l'onde laser : le champ interne est très fortement écranté pendant  $\sim 150$  fs. Il faut attendre une diminution de la densité électronique conjointement liée à l'émission électronique et l'expansion de l'agrégat pour

que le champ interne ne soit plus écranté aux environs de  $t \simeq 20$  fs, puis soit longuement amplifié de nouveau lors d'une seconde résonance : à  $t = 57$  fs le champ externe vaut 2500 fois le champ interne. La densité électronique décroît ensuite jusqu'à zéro et le champ interne suit exactement le champ laser qui s'éteint.

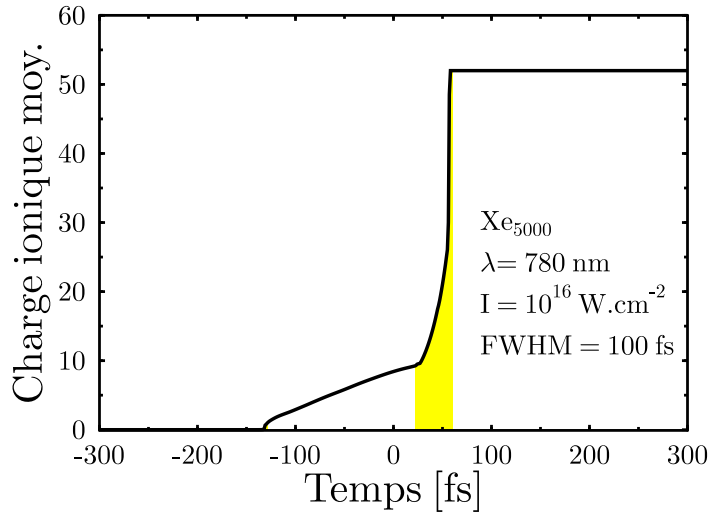


FIG. 2.5: Évolution temporelle de la charge ionique moyenne. Les paramètres de l'agrégat et du laser sont identiques à ceux de la figure 2.4. L'état de charge moyen final vaut 52+. La zone colorée rappelle la seconde résonance.

La seconde résonance intervient peu après le maximum du champ laser, ce qui a un effet non négligeable sur la charge moyenne finale des atomes de l'agrégat. La figure 2.5 représente l'évolution temporelle de la charge ionique moyenne des atomes de l'agrégat, soit  $\langle z \rangle = (\sum_j Z_j N_j) / N$  avec  $N_j$  le nombre d'ions de charges  $Z_j$  et  $N = \sum_j N_j$  le nombre total d'atomes de l'agrégat. Cette évolution suit la dynamique du champ interne et de la densité électronique. Si la charge moyenne vaut 1+ lors de la première résonance, les collisions thermiques contribuent à son évolution lente lorsque le champ externe est écranté pour atteindre 10+ peu avant la seconde résonance. La seconde résonance conduit en l'espace de temps de 50 fs à l'état de charge ionique moyen final 52+.

### 2.2.2.2 Fréquence de collision et résonance

La lecture critique des figures 2.4 et 2.5, qui confirment l'hypothèse avancée pour le modèle nanoplasma [1] d'une double résonance, interroge pourtant sur deux valeurs particulières. Ainsi, la valeur atteinte par le champ interne à la seconde résonance est supérieure à  $10^{14}$  V.m<sup>-1</sup>. Un électron qui oscille dans un tel champ à la vitesse

$$v_{osc} = eE_{int}/(m\omega) \quad (2.29)$$

devient relativiste. Ceci invalide alors les équations du modèle nanoplasma au moment de la seconde résonance.

Par ailleurs, la valeur de la charge moyenne ionique finale, soit 52+, se montre incompatible avec les résultats expérimentaux réalisés dans des conditions d'irradiation et

d'agrégat comparables. En effet, l'énergie moyenne des ions du spectre de la figure 1.2 page 17 (partie gauche) vaut entre 1 et 2 keV : les distributions de charge qui correspondent à ces énergies (même figure, partie droite) montrent une charge moyenne entre 5+ et 10+. Des états de charge moyens plus élevés sont effectivement atteints (sans dépasser toutefois 25+) pour des énergies ioniques supérieures, mais celles-ci correspondent à des événements rares intrinsèquement inaccessibles au modèle nanoplasma, puisque celui-ci ne renseigne que sur des observables moyennes.

Pour identifier l'origine de ces grandes valeurs, intéressons-nous à la compréhension détaillée de la seconde résonance, la plus prononcée. À la résonance, le champ interne passe par son maximum et s'écrit

$$|E_{int}(\omega = \omega_p/\sqrt{3})| = \sqrt{1 + \left(\frac{\omega}{\nu}\right)^2} E_{ext} \quad (2.30)$$

À la résonance également, seule la partie imaginaire de la fonction diélectrique contribue à la densité d'énergie déposée par Bremsstrahlung inverse dans l'agrégat, et l'équation 2.25 devient

$$\frac{\partial W}{\partial t} = \frac{3\omega}{c} \frac{I_{ext}}{\nu} \quad (2.31)$$

où  $I_{ext} = c\epsilon_0 E_{ext}^2/2$ . Le champ interne et le taux de chauffage par Bremsstrahlung de l'agrégat dépendent ainsi fortement à la résonance de la valeur de la fréquence de collision  $\nu$  ici égale à la fréquence de collision électron-ion  $\nu_{ei}$ . Inversement proportionnels à sa valeur, ils peuvent atteindre de grandes amplitudes si le nombre de collisions électroniques à la résonance est faible<sup>7</sup>. La fréquence de collision contrôle ainsi l'ionisation par effet tunnel mais aussi l'ionisation par collision, par l'intermédiaire respectivement du champ interne et des vitesses thermiques et d'oscillation dans le champ.

Par surcroît la fréquence de collision électron-ion  $\nu_{ei}$  est auto-cohérente du champ interne : le champ interne sera d'autant plus grand que la fréquence de collision sera faible et la fréquence de collision sera d'autant plus faible que le champ interne sera grand. En effet, en référence à l'équation 2.4 page 33, elle varie comme l'inverse au cube de la vitesse d'oscillation dans le champ  $v_{osc}$  ; or cette vitesse est directement proportionnelle au champ interne selon l'équation 2.29. Physiquement cette diminution de la fréquence de collision peut être vue comme la diminution de la section efficace de collision lorsque la vitesse relative de l'électron par rapport à l'ion augmente. Examinons l'effet d'une telle dépendance sur la figure 2.6 qui représente l'évolution de la fréquence de collision électron-ion (panneau supérieur, trait discontinu) et du champ interne (panneau inférieur, trait discontinu) au cours du temps toujours pour les mêmes paramètres que précédemment. À partir de l'instant  $t = -140$  fs, le nombre d'ions créés par effet tunnel est suffisant pour contrebalancer l'augmentation de la vitesse des électrons dans le champ et la fréquence de collision augmente. Elle atteint un maximum d'une collision par femtoseconde lorsque la densité d'électrons créés et piégés à l'intérieur de l'agrégat atteint la valeur de trois fois la densité critique. Puis le champ est écranté après cette première

<sup>7</sup>Cela peut d'ailleurs sembler contre-intuitif pour le taux de chauffage par Bremsstrahlung inverse dont l'origine tient de l'absorption d'un photon lors d'une collision électron-ion ; en fait, l'équation 2.31 montre que le flux d'énergie qui entre dans l'agrégat est important quand la fréquence de collision est faible, et le grand nombre de photons qui peut être absorbé lors des rares collisions assure un taux de chauffage élevé.

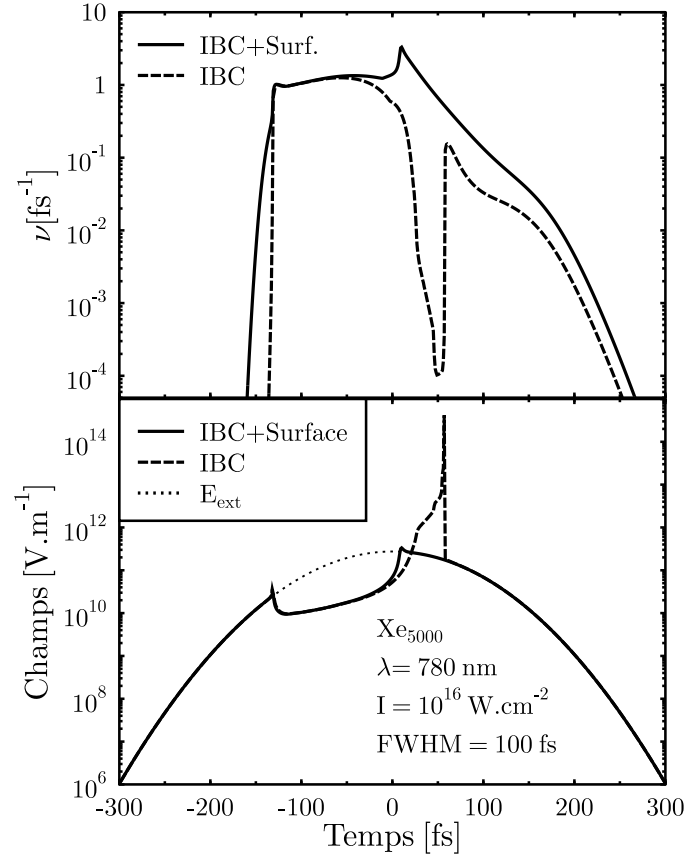


FIG. 2.6: **Partie supérieure** Fréquence de collision  $\nu_{ei}$  avec (trait plein) ou sans (trait tireté) terme de collision avec la surface. IBC est mis pour terme de collision par Bremsstrahlung inverse. **Partie inférieure** Champs internes correspondants. Le terme d'amortissement avec la surface  $\nu_s$  limite l'amplification du champ interne à la seconde résonance. Figure adaptée de la publication [74].

résonance, restant à une valeur comprise entre  $10^{10}$  et  $10^{11} \text{ V.m}^{-1}$  jusqu'à  $t \simeq -50 \text{ fs}$ , et la fréquence de collision reste presque constante. Au delà, la température des électrons piégés augmente, ce qui conjointement à l'émission des électrons les plus énergétiques, a pour effet de diminuer la fréquence de collision (toujours selon l'équation 2.4) jusqu'à  $0.6 \text{ fs}^{-1}$  à l'instant  $t = 0 \text{ fs}$ . Durant la seconde résonance le champ interne et la fréquence de collision entretiennent l'avalanche, le premier dont découlent les états de charge élevés augmentant considérablement, la seconde chutant à quelques  $10^{-4} \text{ fs}^{-1}$ .

### 2.2.2.3 Effet de surface

Si l'amortissement lié aux collisions électron-ion n'est plus efficace lors de la seconde résonance, d'autres phénomènes d'amortissement non pris en compte jusqu'à présent peuvent prendre la relève, qui auront pour effet de briser la cohérence des oscillations électroniques, contribuant ainsi à un changement de la dynamique. Il peut s'agir entre autres de collisions électron-électron, ou bien de collisions avec la surface.

Bien que les collisions électron-électron assurent la thermalisation de la distribution des vitesses, elles ne participent pas directement à l'amortissement des oscillations car elles conservent le courant<sup>8</sup> [75, 19].

Lorsque la vitesse des électrons augmente, ceux-ci peuvent rapidement atteindre la surface de l'agrégat et être alors réfléchis plusieurs fois pendant toute la durée de la résonance. Afin de quantifier ce phénomène, en analogie avec la description de gros agrégats métalliques dans le régime de Mie par le formalisme de l'approximation de la phase aléatoire («random phase approximation RPA» en anglais) de C.Yannouleas et R.Brogia [59], la formulation suivante de la fréquence de collision électron-surface a été choisie

$$\nu_s = \frac{v}{R} \quad (2.32)$$

où  $R$  est le rayon de l'agrégat et  $v = \sqrt{v_{kT_e}^2 + v_{osc}^2}$  la vitesse effective des électrons. La fréquence de collision électron-surface peut ainsi être interprétée comme l'inverse du temps nécessaire à un électron pour qu'il traverse l'agrégat, après réflexion sur la surface diffusive de l'agrégat. L'image quantique de ce phénomène d'amortissement porte le nom de fragmentation de Landau [76] en analogie avec l'amortissement de Landau («Landau damping») de la physique des plasmas, et correspond à la perte de cohérence du plasmon de surface avec les états particule-trou voisins. Il présente également une forte analogie avec le phénomène de physique nucléaire de dissipation à une paroi mobile [77] («wall dissipation» en anglais).

L'ouvrage de U.Kreibig [19] répertorie les expressions améliorées de la proposition de l'équation 2.32 selon  $\nu_s = A v/R$  où  $A$  est une constante qui varie selon les modèles, et vaut de l'ordre de l'unité. L'usage comparatif de l'expression proposée par [59] n'a pas conduit à des différences sensibles dans la dynamique, et l'expression 2.32 sera donc utilisée par la suite.

Le terme d'amortissement devient  $\nu = \nu_{ei} + \nu_s$ . Son évolution temporelle apparaît en trait continu sur le panneau supérieur de la figure 2.6. Le comportement décroissant de la fréquence  $\nu$  observé pendant la deuxième résonance disparaît quand le terme de collisions avec la surface est inclus. Ce terme est proportionnel à la vitesse des électrons, tout particulièrement à la vitesse d'oscillation dans le champ, et il prévaut sur les collisions électron-ion. L'amortissement, qui tombait auparavant autour de quelques dixièmes de  $\text{ps}^{-1}$  au temps  $t \simeq 50$  fs, soit au maximum de l'amplification du champ, reste même raisonnablement dans une décade centrée autour de quelques  $\text{fs}^{-1}$ , atteignant à son maximum  $3 \text{ fs}^{-1}$  au temps  $t \simeq 10$  fs. L'effet des collisions avec la surface intervient favorablement pendant la seconde résonance lorsque le champ laser à son maximum est largement amplifié, mais disparaît aux autres instants de la dynamique pour lesquels le champ interne est faible et qui sont gouvernés par les collisions électron-ion. La fréquence de collision électron-surface assure ainsi la «relève» de la fréquence de collision électron-ion spécifiquement à la résonance.

---

<sup>8</sup>Les collisions électron-électron n'ont aucun effet sur l'amortissement, car le courant électronique  $\mathbf{j}_e = \rho_e \mathbf{v}_e$ , avec  $\rho_e = q * n_e$  se décompose en  $\mathbf{j}_e = \rho_e \sum_{i=1, N_e} \mathbf{v}_i$ ,  $N_e$  nombre d'électrons. Or, lors d'une collision, l'impulsion est conservée, soit pour deux électrons de vitesses respectives avant collision  $\mathbf{v}_1$  et  $\mathbf{v}_2$ , et après collision  $\mathbf{v}_3$  et  $\mathbf{v}_4$ ,  $\mathbf{v}_1 + \mathbf{v}_2 = \mathbf{v}_3 + \mathbf{v}_4$ . En sommant sur l'ensemble des électrons, la vitesse  $\mathbf{v}_e$  est conservée et le courant ne change pas.

La nouvelle évolution du terme d'amortissement présentée précédemment n'est pas sans conséquence sur la dynamique du champ interne, représentée par un trait continu sur la partie inférieure de la figure 2.6. Bien que l'amortissement augmente quelques 20 fs plus tôt qu'auparavant, la première résonance a lieu au même instant, et l'amplitude du champ interne reste comparable. S'ensuit la phase de suppression du champ, qui dure un peu moins qu'auparavant, car la seconde résonance survient légèrement plus tôt à  $t \simeq 10$  fs. Le champ externe n'est alors amplifié qu'à une valeur modérée de  $\sim 3 \cdot 10^{11}$  V.m<sup>-1</sup> en comparaison à la valeur observée sans terme d'amortissement avec la surface ( $> 10^{14}$  V.m<sup>-1</sup>). En conséquence, l'augmentation brutale de la charge ionique moyenne finale dans le cas sans collisions avec la surface liée à un champ externe fortement amplifié disparaît, comme détaillée dans la section suivante (voir la figure 2.7). La prise en compte des collisions électron-surface est donc fondamentale à la seconde résonance en ce qui concerne le champ interne et la charge moyenne ionique finale.

### 2.2.3 L'exemple d'une dynamique prenant en compte les collisions avec la surface

Prenant en compte la contribution des collisions électron-surface à l'amortissement, détaillons par la suite l'évolution de l'ensemble des variables du modèle nanoplasma.

**Populations** Présentons d'abord l'évolution temporelle des différentes populations électroniques et ioniques à l'aide des figures 2.7 et 2.8. La partie supérieure de la figure 2.7 représente pour le même ensemble de paramètres que précédemment l'évolution de la charge ionique moyenne  $\langle z \rangle$  (trait continu) et de la charge de l'agrégat normalisée au nombre d'atomes de l'agrégat, soit  $\langle Q \rangle = Q/N$  (trait discontinu). La zone entre les deux courbes renseigne donc sur le nombre d'électrons libres par atome encore piégé à l'intérieur de l'agrégat. L'évolution des diverses populations ioniques apparaît sur la partie inférieure de cette même figure, chaque courbe représentant un état de charge ionique donné. Enfin, la figure 2.8 retrace l'évolution des taux d'ionisation par effet tunnel et par collisions électroniques moyennés sur les états de charge ionique selon respectivement  $W^{tun} = \sum_j W_j^{tun}/N$  et  $W^{coll} = \sum_j W_j^{coll}/N$ .

La première résonance se produit en l'espace de quelques 5 fs. Initialement, l'ensemble des atomes de l'agrégat est neutre. Le champ laser qui augmente progressivement devient suffisamment intense à  $t \simeq -135$  fs pour ioniser une fois quelques atomes. Aucun des électrons libres issus de ces ionisations n'a encore acquis l'énergie nécessaire pour quitter l'agrégat et la densité électronique augmente très rapidement pour atteindre la valeur de trois fois la densité électronique critique à  $t \simeq -130$  fs. La première résonance a lieu et le champ interne augmente : le taux d'ionisation par effet tunnel atteint quelques  $10^{-3}$  fs<sup>-1</sup> et le tiers des atomes est ionisé au moins une fois.

Notons que cet effet est dû uniquement à l'ionisation tunnel, car un calcul sans prise en compte des taux d'ionisation par collision donne un résultat similaire, lors de la première résonance.

La densité électronique continue d'augmenter, et le champ laser est écranté. L'ionisation par collisions électroniques relaie alors l'ionisation par effet tunnel. Le nombre d'atomes neutres chute en l'espace de quelques femtosecondes, tandis que les états de

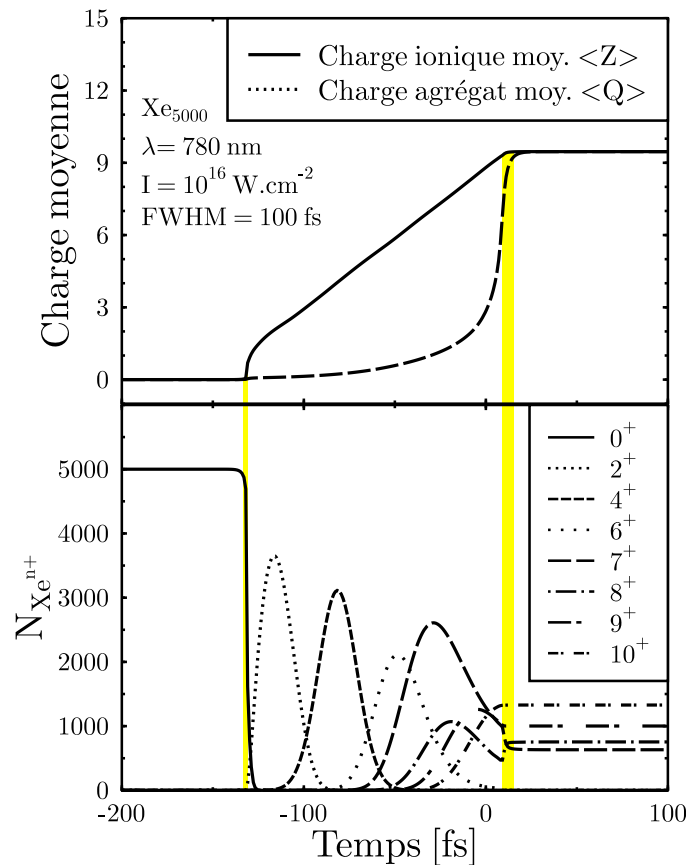


FIG. 2.7: **Partie supérieure** La différence entre les courbes de la charge ionique moyenne  $\langle Z \rangle$  (trait plein) et de la charge de l'agrégat moyennée sur le nombre d'atome  $\langle Q \rangle$  représente le nombre d'électrons piégés à l'intérieur de l'agrégat. Ceux-ci constituent le nanoplasma. **Partie inférieure** L'évolution séquentielle intrinsèque au modèle nanoplasma des différentes populations ioniques est limitée temporellement par les deux résonances, matérialisées par les zones colorées.

charge successifs de 1 jusqu'à 8 sont atteints progressivement à l'instant  $t \simeq 10 \text{ fs}$ . Ces ionisations sont séquentielles, car l'équation 2.13 page 36 impose que l'état de charge ionique  $j + 1$  ne peut être peuplé qu'aux dépens d'un état de charge ionique  $j$  et uniquement de celui-ci. Le taux d'ionisation par collision atteint un maximum de  $0.5 \text{ fs}^{-1}$  vers  $t = -40 \text{ fs}$ . Cet instant correspond à un maximum, car de plus en plus d'électrons acquièrent une énergie suffisante pour quitter l'agrégat; si jusqu'à présent leur nombre augmentait petit à petit pour rejoindre la valeur d'un électron émis en moyenne par atome, ce nombre va croître très rapidement en trente femtosecondes jusqu'à trois électrons émis en moyenne par atome à l'instant  $t = 0 \text{ fs}$ .

La densité électronique diminue fortement, d'autant plus que le rayon de l'agrégat augmente, et le champ externe est de moins en moins écranté. Dès lors le taux d'ionisation par effet tunnel domine et augmente progressivement jusqu'à ce que la seconde résonance soit possible. Étant donnée la proximité de la seconde résonance avec le maximum du champ laser, plus rien ne s'oppose à l'accroissement de la charge ionique moyenne par



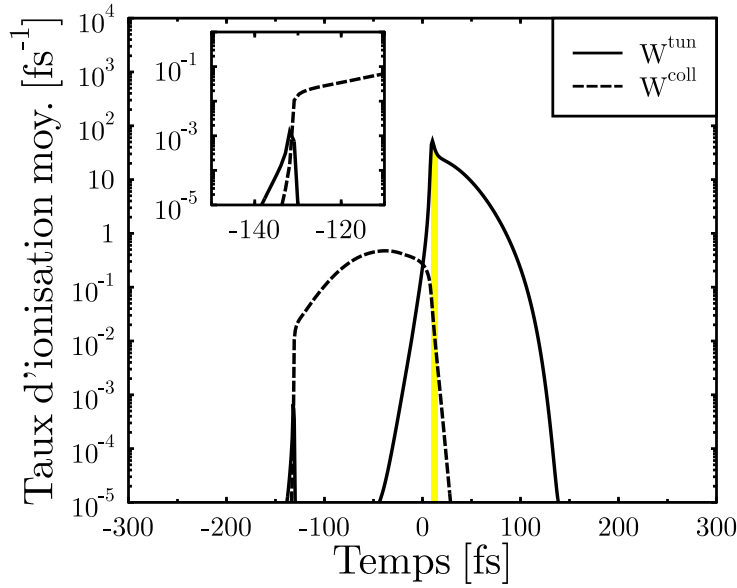


FIG. 2.8: Taux d'ionisation moyennés sur l'ensemble des degrés d'ionisation. Le taux d'ionisation par collision regroupe ceux par collision dans le champ laser et thermique. L'encart correspond à un agrandissement des taux entre les instants  $-150$  et  $-110$  fs.

amplification du champ externe. Cette dernière est faible puisque les seuls électrons qui restent piégés à l'intérieur de l'agrégat sont amortis par collisions avec la surface, et la seconde résonance ne contribue à l'augmentation de la charge ionique moyenne finale que d'une demie-unité. Sous l'effet du champ cependant, la totalité des électrons déjà libres ou ionisés est émise dès la fin de la seconde résonance et le taux d'ionisation par collision diminue. Au-delà de la seconde résonance le champ interne n'est plus suffisant pour permettre l'ionisation par effet tunnel des états de charge les plus élevés. Plus aucun processus d'ionisation n'est efficace, et l'état de charge ionique moyen ainsi que les différentes populations ioniques sont «gelés». L'état de charge moyen final  $\simeq 9+$  est en accord avec les résultats expérimentaux de T.Ditmire *et al.* (confer sections 2.2.2.2 page 42 et 1.1.2 page 16).

**Température électronique** La figure 2.9 retrace l'évolution au cours du temps de la température (en eV) des électrons libres piégés à l'intérieur de l'agrégat. Cette évolution suit les caractéristiques de la présentation précédente. Les électrons libres issus des premières ionisations par effet tunnel puis par collisions thermiques restent piégés par la surface de l'agrégat, et leur température augmente progressivement pour atteindre 70 eV au temps  $t \simeq -40$  fs. Elle augmente même par la suite jusqu'à 200 eV à  $t \simeq 0$  fs, alors qu'un nombre d'électrons important commence à être émis. Ces électrons émis contribuent au refroidissement électronique, de par l'énergie qu'ils emportent en dehors de l'agrégat lors de leur émission. L'augmentation progressive du champ interne en sortie d'écrantage est suffisante pour que le chauffage par Bremsstrahlung inverse compense cette perte. Ce chauffage domine même l'augmentation de température par thermalisation des électrons

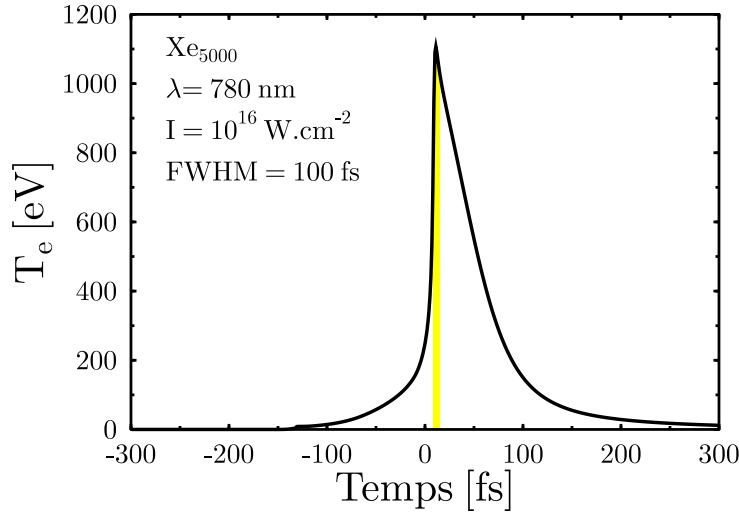


FIG. 2.9: Évolution temporelle de la température électronique du nanoplasma. La température s'entend pour une thermalisation instantanée des électrons participant du nanoplasma.

qui apparaissent suite à ionisation par collision électronique, phénomène majoritairement efficace pendant la période d'écrantage du champ.

La température croît ensuite logiquement lors de la seconde résonance, très rapidement jusqu'à 1.1 keV à  $t \simeq 10$  fs. La barrière de potentiel en surface qui vaut 4 keV au maximum de la seconde résonance, diminue ensuite à cause de l'expansion de l'agrégat. Ainsi les quelques 1000 électrons restant piégés à l'instant  $t = 15$  fs peuvent s'échapper, et la température diminue. Au-delà de l'instant  $t = 40$  fs, la température concerne un nombre d'électrons fractionnaire et l'observation de son évolution n'est plus pertinente.

Il est à noter que les températures électroniques sont très inférieures à celles obtenues par T.Ditmire *et al.* (de l'ordre de quelques dizaines de keV) dans le cadre du modèle nanoplasma original [23]. Si les résultats de T.Ditmire *et al.* semblent en contradiction avec les spectres théoriques d'électrons émis rapportés dans la même étude, les résultats de la figure 2.9 sont consistents aussi bien avec les spectres théoriques obtenus (figure 2.10) qu'avec les spectres expérimentaux (confer la figure 1.3 page 20).

**Spectre énergétique des électrons émis** Le modèle nanoplasma donne accès à l'énergie cinétique des électrons émis, observable très attendue, car il est possible de la mesurer expérimentalement (confer figure 1.3 page 20). La figure 2.10 représente le spectre énergétique total des électrons émis. Ce spectre est calculé à partir du taux de «free streaming» de l'équation 2.14 page 36, intégré uniquement dans l'espace des positions. La figure 2.10 représente alors le cumul intégré pour un pas de temps  $\Delta t$  donné pour une énergie d'échappement  $E_e = 1/2 m_e v_e^2$  du rendement

$$\frac{\partial N(E_e)}{\partial E} = \Delta t n_e \sqrt{\pi} \left( \frac{E_e}{kT_e} \right)^{1.5} \exp \left( -\frac{E_e}{kT_e} \right) \begin{cases} \frac{\lambda_e}{R} (12R^2 - \lambda_e^2) & , \text{ si } \lambda_e < 2R \\ 16R^2 & , \text{ sinon} \end{cases} \quad (2.33)$$

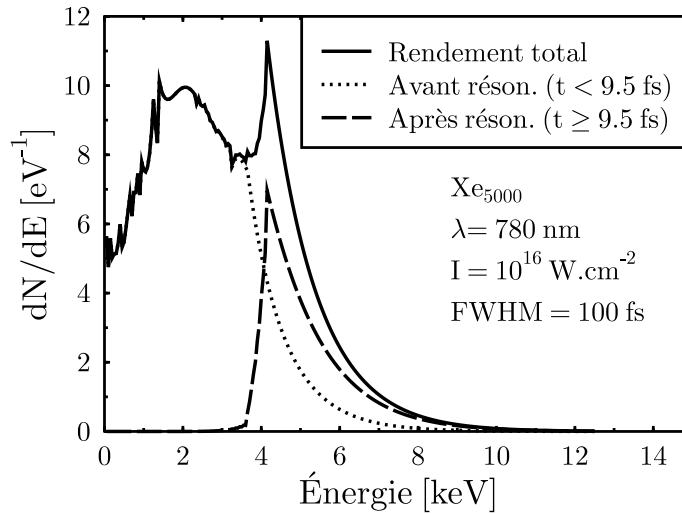


FIG. 2.10: Le spectre énergétique total (trait plein) des électrons émis est composé de ceux émis avant (trait pointillé) et après (trait tireté) la seconde résonance. Figure adaptée de [74].

Le spectre total «bifide» en trait continu apparaît comme la somme de deux pics. Le premier pic en trait pointillé, d'une largeur à mi-hauteur de  $\sim 4$  keV, s'identifie aux électrons émis avant la seconde résonance, pendant que le second en trait tireté, plus piqué de largeur à mi-hauteur  $\sim 1.3$  keV s'identifie aux électrons émis pendant et après la seconde résonance. Les maxima de ces pics se situent à  $\sim 2$  keV et  $\sim 4.2$  keV ; si cela paraît surprenant eût égard aux valeurs de températures maximales atteintes respectivement avant résonance avec  $T_e \simeq 0.2$  keV et pendant la résonance avec  $T_e \simeq 1.1$  keV (confer figure 2.9), rappelons que ces dernières correspondent aux valeurs moyennes au sens de la distribution de Maxwell des températures. Les électrons émis doivent posséder une énergie suffisante pour vaincre la barrière de potentiel en surface : ils proviennent des queues de distribution, et les énergies du spectre de la figure 2.10 sont décalées vers les hautes énergies.

Bien qu'il soit possible de relier chaque pic à une période d'émission temporelle donnée, il n'est pas possible de conclure quant-à la distribution angulaire des électrons émis car le modèle nanoplasma reste un modèle unidimensionnel.

**Pressions** Pour conclure, mesurons l'importance des pressions hydrodynamique et coulombienne dans la dynamique de l'explosion de l'agrégat. D'après les équations 2.19 et 2.18 page 37, il est respectivement attendu que la pression hydrodynamique soit importante lorsque les électrons sont piégés à l'intérieur de la surface de l'agrégat, et que la pression coulombienne le soit lorsque l'agrégat se charge. Cela se vérifie sur la figure 2.11 qui montre l'évolution temporelle de ces pressions. Au début de l'interaction, la température électronique augmente avec la densité électronique, et la pression hydrodynamique (trait discontinu) domine la pression coulombienne (trait continu), qui augmente seulement depuis les premières émissions électroniques à travers la barrière de potentiel de l'agrégat. La pression coulombienne rejoint cependant la pression hydrodynamique à l'instant  $t \simeq -45$  fs, à la valeur de  $P_h \simeq P_c \simeq 8$  Mbar, lorsque le nombre d'électrons

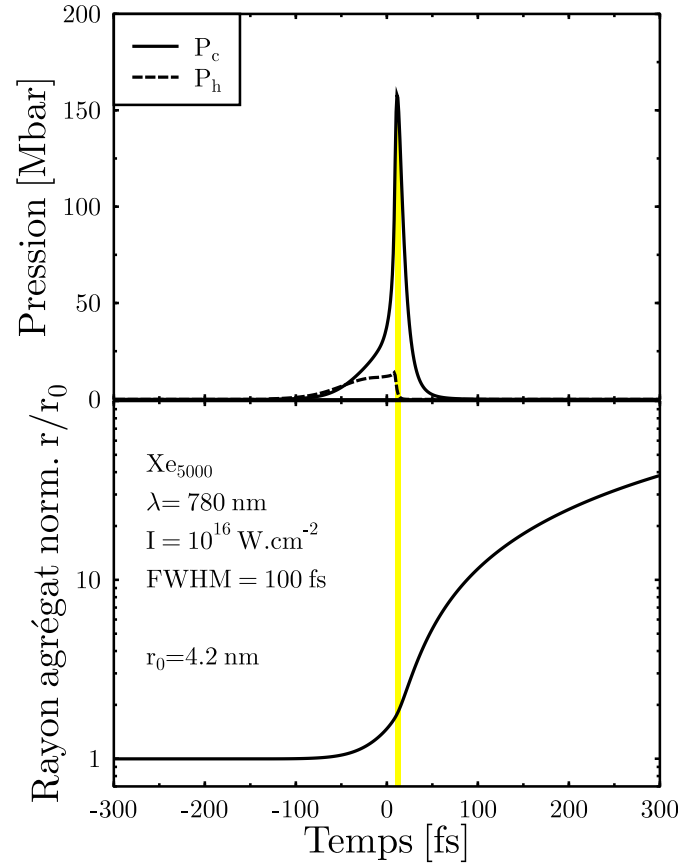


FIG. 2.11: **Partie supérieure** Évolution temporelle des pressions hydrodynamique (trait tireté) et pression coulombienne (trait tireté). **Partie inférieure** Évolution temporelle du rayon de l'agrégat. Figure adaptée de [74].

libres émis n'est plus négligeable. La pression hydrodynamique stagne alors à la valeur de  $P_h \simeq 12$  Mbar, tandis que la pression coulombienne augmente très rapidement. Elle atteint en particulier la valeur  $P_c = 160$  Mbar lors de la seconde résonance. Dans ces conditions, le rayon de l'agrégat, qui augmentait déjà sous l'effet conjoint de ces pressions depuis l'instant  $t \simeq -40$  fs, explose et atteint  $r/r_0 \simeq 40$  fois son rayon initial à l'instant  $t \simeq 300$  fs. L'explosion reste gouvernée par la pression coulombienne bien qu'elle varie en fonction du rayon en  $1/R^4$  alors que la pression hydrodynamique varie en  $1/R^3$ . À l'instant  $t \simeq 100$  fs, leurs valeurs sont négligeables par rapport aux maxima atteints à  $t \simeq 10$  fs. Ainsi, la prédominance d'une pression sur l'autre évolue au cours de l'interaction. À partir de l'instant  $t = 200$  fs le rayon augmente de manière presque constante : le temps caractéristique du transfert d'énergie potentielle en énergie cinétique est atteint. Avec les paramètres de taille d'agrégat et de forme d'impulsion laser choisis, l'explosion s'identifie à celle d'une explosion coulombienne.

## 2.3 Dépendance des charges moyennes avec la taille d'agrégat et l'intensité laser

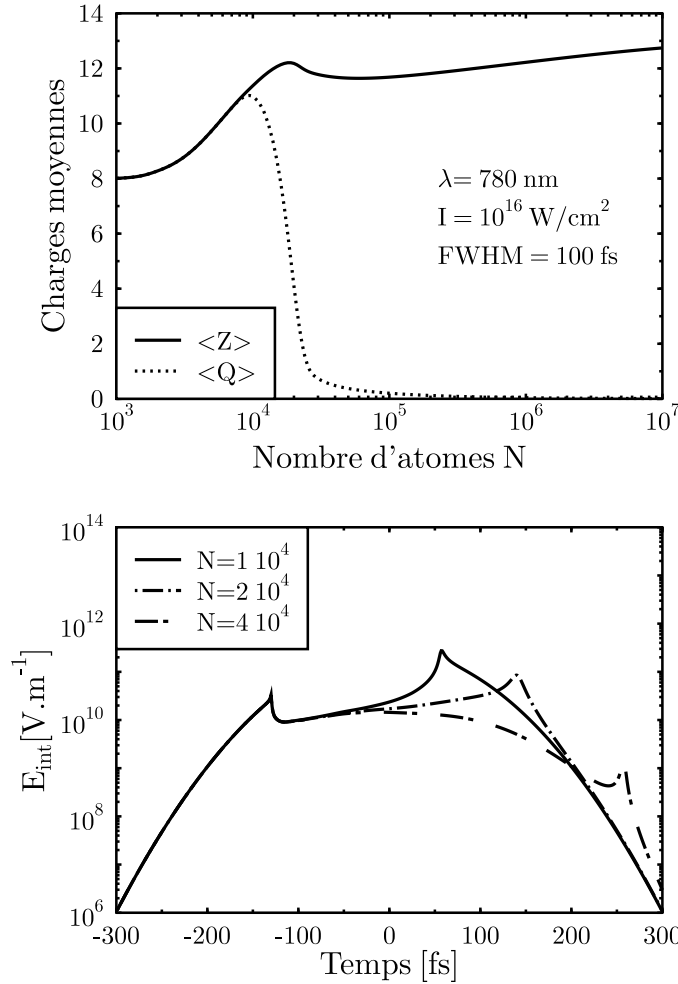


FIG. 2.12: **Partie supérieure** Évolutions de la charge moyenne ionique  $\langle Z \rangle$  (trait plein) et de la charge moyenne par atome  $\langle Q \rangle$  (trait pointillé) en fonction du nombre d'atomes par agrégat. **Partie inférieure** Évolution temporelle du champ électrique interne  $E_{int}$  pour différents nombres d'atomes par agrégat.

Après avoir observé la dynamique du nanoplasma en prenant en compte les collisions des électrons avec la surface, décrivons maintenant la variation des états de charge moyens finaux  $\langle z \rangle$  et  $\langle Q \rangle$  en fonction de deux paramètres différents, à savoir le nombre d'atomes par agrégats (figure 2.12) et l'intensité laser (figure 2.13).

### 2.3.1 Dépendance des états de charge avec la taille d'agrégat

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. Si la pression maximale du dispositif limite la taille des agrégats, ce maximum peut varier aussi en fonction du gaz injecté : la taille est reliée à la pression par la formule empirique d'Hagena avec  $N \propto kP^\alpha$  où  $\alpha$  proche de 2 et  $k$  sont des constantes qui dépendent de l'espèce atomique considérée. La constante  $k$  du xénon est élevée ce qui permet pour une pression usuelle de 30 Bars d'atteindre  $N \simeq 6 \cdot 10^6$  atomes, soit une taille d'agrégats de  $R_0 = 44.5$  nanomètres, dimension compatible avec l'approximation dipolaire (confer section 2.1.2.1 page 31).

La partie supérieure de la figure 2.12 présente l'évolution des états de charge moyens finaux à l'instant  $t = 500$  fs en fonction de la taille des agrégats, qui varie entre  $N = 10^3$  et  $N = 10^7$  atomes, pour des paramètres laser identiques à ceux de la section précédente. La charge ionique moyenne en trait plein vaut  $\langle z \rangle = 8+$  pour  $10^3$  atomes et évolue rapidement à  $\langle z \rangle = 12.2+$  pour  $N = 2 \cdot 10^4$  atomes, où elle atteint un maximum local. Elle chute à  $\langle z \rangle = 11.6+$  pour  $N = 6 \cdot 10^4$  atomes pour ensuite rejoindre lentement une valeur asymptotique de  $\langle z \rangle = 13+$  pour  $N = 10^7$  atomes. La partie inférieure de la figure 2.12 permet d'interpréter cette évolution globale, en particulier le changement de régime entre  $N = 10^4 - 10^5$  atomes et au-delà. Il y est représentée l'évolution temporelle du champ électrique interne  $E_{int}$  pour différentes tailles d'agrégats. La seconde résonance a lieu de plus en plus tard au fur et à mesure de l'augmentation du nombre d'atomes. Rappelons que pour  $N = 5 \cdot 10^3$  atomes, celle-ci a lieu au maximum de l'enveloppe du champ externe (confer section 2.2.2). Elle est ensuite décalée à  $t \simeq 60$  fs pour  $N = 10^4$ , et  $t \simeq 140$  fs pour  $N = 2 \cdot 10^4$ . L'amplitude de la seconde résonance reste cependant supérieure à la première, ce qui ne se vérifie plus pour les tailles supérieures. Pour  $N = 4 \cdot 10^4$ , la seconde résonance a lieu à  $t \simeq 260$  fs, mais son amplitude ne compense pas le fort écrantage du champ externe. Ainsi l'augmentation de la charge ionique moyenne pour  $N = 10^3 - 2 \cdot 10^4$  est liée à la position de la seconde résonance : pour  $N = 2 \cdot 10^4$  sa position optimise l'efficacité des taux d'ionisation par collision et par effet tunnel, et l'état de charge ionique moyen atteint son maximum<sup>9</sup>. L'ionisation par effet de champ est ensuite diminuée par un champ interne très réduit et l'état de charge diminue légèrement, tandis que les taux d'ionisation par collisions, d'autant plus efficaces que le nombre d'atome par agrégat augmente, prennent le relais jusqu'à  $N = 10^7$ .

La figure 2.12 présente également l'évolution de la charge moyenne par atome de l'agrégat  $\langle Q \rangle$  en fonction de la taille d'agrégat (en trait pointillé sur le panneau supérieur). Celle-ci correspond au nombre des électrons par atome issu des ionisations qui peut franchir la barrière de potentiel en surface de l'agrégat (équation 2.16). Cette barrière grandit d'autant plus que l'agrégat se charge, et diminue d'autant plus que le rayon de l'agrégat augmente. La charge moyenne de l'agrégat suit celle de la charge ionique moyenne jusqu'à  $\langle Q \rangle = 11+$  pour une taille  $N = 10^4$ , puis diminue rapidement à  $\langle Q \rangle = 0.5+$  pour  $N = 3 \cdot 10^4$ . Elle devient progressivement nulle jusqu'à  $N = 10^7$ . La position du maximum à  $N = 10^4$  est inférieure à celle précédente, soit  $N = 2 \cdot 10^4$ . En effet, rappelons que seuls les électrons les plus énergétiques peuvent franchir la barrière de potentiel en surface (généralement au moins trois à quatre fois plus grande que la température moyenne électronique), condition qui sera d'autant plus facilement réalisée

<sup>9</sup>Ceci apparaît contraire à l'intuition générale qui veut que l'état de charge maximal soit atteint lorsque la seconde résonance a lieu au maximum du champ laser.

pour une température électronique moyenne élevée. Cette température augmente fortement lors de la seconde résonance (confer le commentaire de la figure 2.9), ce beaucoup plus vite que la charge de l'agrégat qui augmente concomitamment. Ainsi, l'émission électronique sera d'autant plus importante que l'amplitude de la seconde résonance sera grande. Or la position de la seconde résonance varie en fonction de la taille d'agrégat (confère le panneau inférieur de la figure précédente) de sorte que son amplitude devient insuffisante pour permettre l'émission électronique pour de grandes tailles d'agrégats : pour une taille comprise entre  $N = 10^3 - 3 \cdot 10^3$ , la température électronique reste suffisante pour permettre l'émission des électrons les plus énergétiques, condition difficilement réalisée pour des tailles supérieures. Ainsi contrairement à la charge ionique moyenne, l'intensité de la seconde résonance contrôle la charge moyenne de l'agrégat. Notons que l'abaissement de la barrière de potentiel suite à l'expansion de l'agrégat ne compense pas l'affaiblissement de la seconde résonance pour des tailles d'agrégat élevées.

Les charges moyennes ionique et de l'agrégat conditionnent la dynamique de l'explosion de l'agrégat. Rappelons que l'agrégat explose sous la concurrence des pressions hydrodynamique et coulombienne. La pression coulombienne qui varie en  $1/R^4$  devient rapidement plus grande que la pression hydrodynamique qui varie en  $1/R^3$ , dès lors que l'agrégat se charge. L'énergie par ion liée à la pression coulombienne, soit  $\langle E_C \rangle = (Qe)^2 / (8\pi\epsilon_0 RN)$  vaut par exemple à son maximum  $\langle E_C \rangle \simeq 60$  keV tandis que celle liée à la pression hydrodynamique  $\langle E_H \rangle = N_e kT_e / N$  vaut  $\langle E_H \rangle \simeq 4.5$  keV pour  $N = 10^4$ . Lorsque l'agrégat est faiblement chargé la pression hydrodynamique l'emporte sur la pression coulombienne, ces mêmes énergies maximales valant respectivement par exemple  $\langle E_C \rangle = 0.65$  keV et  $\langle E_H \rangle = 1.5$  keV pour  $N = 3 \cdot 10^4$ . Ainsi, lorsque la pression hydrodynamique domine la pression coulombienne, l'énergie proportionnellement transférée aux ions de l'ordre du keV est moindre que dans le cas inverse, de l'ordre de plusieurs dizaines de keV. L'énergie cinétique moyenne des ions suit donc les variations de la pression coulombienne. Celle-ci présente en particulier un maximum qui va dans le sens des constatations expérimentales de [78] (figure 6) et [79] (figure 3). Une meilleure comparaison avec l'expérience nécessiterait cependant de tenir compte de la distribution en taille des agrégats, qui dans le meilleur des cas aurait pour effet de déplacer le maximum et d'élargir la largeur à mi-hauteur : pour une taille donnée l'absorption d'énergie peut être optimale pour une taille de la distribution différente de la taille moyenne [80].

### 2.3.2 Dépendance des états de charge avec l'intensité laser

La partie supérieure de la figure 2.13 présente la variation des charges moyennes ioniques et de l'agrégat en fonction de l'intensité laser qui varie de  $I = 10^{13}$  à  $I = 10^{17}$  W.cm<sup>-2</sup>, pour un agrégat de 5000 atomes de xénon. La charge moyenne ionique (en trait plein) évolue très rapidement à basse intensité et atteint  $\langle Z \rangle = 2+$  pour  $I = 5 \cdot 10^{13}$  W.cm<sup>-2</sup>. Puis elle augmente de manière quasi-linéaire à  $\langle Z \rangle = 9+$  pour  $I = 3 \cdot 10^{15}$  W.cm<sup>-2</sup>. Elle suit ensuite un plateau qui rejoint  $\langle Z \rangle = 10+$  jusqu'à  $I = 7 \cdot 10^{16}$  W.cm<sup>-2</sup>. Finalement il semble qu'elle augmente de nouveau jusqu'à  $\langle Z \rangle = 10.5+$  pour  $I = 10^{17}$  W.cm<sup>-2</sup>, intensité au-delà de laquelle les équations du modèle nanoplasma devraient être traitées en régime relativiste. À titre d'indication, la courbe en trait tireté représente pour un état de charge donné (en ordonnée) l'intensité correspondante qui prévoit qu'un électron est directement ionisé par suppression de la barrière, selon la

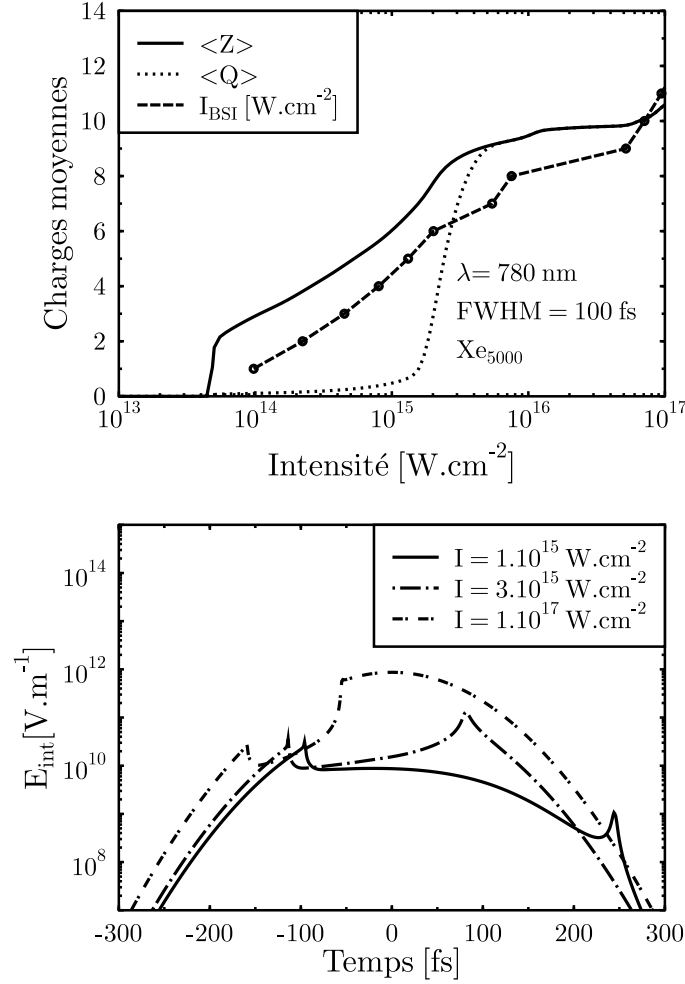


FIG. 2.13: **Partie supérieure** Évolutions de la charge moyenne ionique  $\langle Z \rangle$  (trait plein) et de la charge moyenne par atome  $\langle Q \rangle$  (trait pointillé) en fonction de l'intensité laser. Les points représentent l'intensité seuil d'ionisation par suppression de barrière  $I_{BSI}$  pour un état de charge donné (la courbe en trait tireté est mise pour guider l'oeil). **Partie inférieure** Évolution temporelle du champ électrique interne  $E_{int}$  pour différentes intensités.



formule de l'ionisation par suppression de barrière (équation 1.2 page 15) pour un atome seul dans le champ. La charge ionique moyenne suit qualitativement son évolution, bien que les mécanismes d'ionisation soient décrits différemment dans le modèle nanoplasma. Le seuil d'apparition des différentes charges au fur et à mesure de l'augmentation de l'intensité est même généralement inférieur à celui attendu par suppression directe de barrière jusqu'à  $I = 7 \cdot 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ . S'il apparaît supérieur au-delà de cette intensité, rappelons que la charge ionique moyenne tient compte de l'ensemble des états de charge, présumant l'existence d'états de charge supérieurs à la moyenne : pour l'intensité  $I = 10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$ , si 3000 ions sont ionisés 10+, 1500 sont ionisés 11+. Ainsi, malgré une description en terme d'ionisation par effet tunnel ou par collision électronique, il semble que le modèle nanoplasma assure une efficacité d'ionisation bien avant l'intensité attendue par suppression de barrière.

L'apparition d'états de charge d'au moins  $\langle Z \rangle = 10+$  en deçà de l'intensité seuil prévue par suppression de barrière dans la gamme d'énergies  $I = 3 \cdot 10^{15} - 7 \cdot 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$  apparaît comme une confirmation de cet efficacité. En effet, si seuls quelques 10 eV séparent les potentiels d'ionisation successifs des 8 électrons qui se situent sur les couches 5s et 5p (rappelons la structure en couche du xénon  $[Kr]4d^{10}5s^25p^6$ ), un gap relativement important de 75 eV sépare le potentiel d'ionisation du dernier électron restant du niveau 5s de l'électron le moins lié du niveau 4d. Par ailleurs, cette répartition énergétique des potentiels d'ionisation explique la forme généralement progressive de l'ionisation moyenne à basse intensité, ainsi que son plateau pour  $I = 3 \cdot 10^{15} - 7 \cdot 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ .

La charge moyenne de l'agrégat représentée en trait pointillé sur la même figure ne suit les variations de la charge ionique moyenne qu'au-delà de l'intensité  $I = 6 \cdot 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ . En deçà, une minorité d'électrons ionisés est émise en dehors de l'agrégat. La position de la seconde résonance permet également d'expliquer cette variation (confer la section précédente). La partie inférieure de la figure 2.13 présente la variation au cours du temps du champ interne pour les intensités croissantes — en légende sur la figure — de  $I = 1 \cdot 10^{15}$  à  $I = 10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$ . La première tout comme la seconde résonance apparaissent de plus en plus tôt au cours de la dynamique, au fur et à mesure de l'augmentation de l'intensité. L'absence ou l'intensité faible de la seconde résonance aux basses intensités expliquent alors la faible émission électronique, qui augmente progressivement entre  $I \simeq 2 \cdot 10^{15}$  et  $I \simeq 6 \cdot 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ .

# Chapitre 3

## Modélisation par dynamique moléculaire

---

|                                                                    |           |
|--------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>3.1 Principe</b>                                                | <b>58</b> |
| 3.1.1 Choix du potentiel                                           | 58        |
| 3.1.2 Implémentation numérique : algorithme de Verlet              | 59        |
| <b>3.2 Cas test du sodium <math>Na = Na^+ + e^-</math></b>         | <b>60</b> |
| 3.2.1 Largeurs de potentiel et distribution initiale               | 60        |
| 3.2.2 Stabilité temporelle                                         | 61        |
| 3.2.3 Centre de masse des électrons et réponse optique             | 64        |
| 3.2.4 Excitation laser : réponse fréquentielle                     | 66        |
| <b>3.3 Au-delà du modèle à un électron de conduction</b>           | <b>68</b> |
| 3.3.1 Prise en compte des électrons des niveaux $2s$ et $2p$       | 68        |
| 3.3.2 Stabilité                                                    | 71        |
| 3.3.3 Réponse optique                                              | 72        |
| 3.3.4 Systématique en fréquence                                    | 73        |
| 3.3.5 Différents régimes d'intensité : émission des électrons $e2$ | 75        |
| <b>3.4 Vers une application au xénon et à l'argon</b>              | <b>81</b> |
| 3.4.1 Choix des paramètres et stabilité                            | 81        |
| 3.4.2 Systématique en intensité                                    | 82        |

---

Par la suite est présenté un modèle de dynamique moléculaire à trois dimensions. Ce modèle microscopique suit la dynamique de chaque atome de l'agrégat de manière individuelle. Ainsi il donne accès à des informations plus détaillées par rapport au modèle nanoplasma, modèle unidimensionnel qui renseigne uniquement sur des observables moyennes.

Les unités seront exprimées dans un système adapté aux dimensions. Les unités de distance d'énergie, et de temps deviennent respectivement le bohr (noté parfois  $a_0$ ), l'électron volt (eV) et la femtoseconde (fs).<sup>1</sup>

---

<sup>1</sup>Dans ce système d'unités, les constantes universelles ou produits de ces constantes deviennent :  $c = 5667.1542 \text{ bohr.fs}^{-1}$ ,  $k = 8.6174 \cdot 10^{-5} \text{ eV.K}^{-1}$ ,  $\hbar c = 3730.189 \text{ eV.bohr}$  ( $\hbar$  constante de Planck,  $\hbar = h/2\pi$ ),  $m_e = 510999.06/c^2 \text{ eV.fs}^2.\text{bohr}^{-2}$ ,  $e^2/(4\pi\epsilon_0) = 27.2205 \text{ eV.bohr}$ .

## 3.1 Principe

La terminologie générique «dynamique moléculaire» désigne tout problème qui s'attache à résoudre l'accélération  $\mathbf{\Gamma}_j(t)$  de la deuxième loi de Newton pour des particules d'indices  $j$  de masse  $m_j$  soumises à la force  $\mathbf{F}_j(\mathbf{r}_j)$ , soit la loi

$$\mathbf{F}_j(\mathbf{r}_j) = m_j \mathbf{\Gamma}_j(t) \quad (3.1)$$

En ce qui nous concerne, il s'agira de décrire par cette équation le mouvement au cours du temps des atomes, ions et électrons de l'agrégat. Il peut paraître discutable de vouloir décrire le mouvement de particules quantiques par une équation déterministe [81]). Une telle approximation suppose que la longueur d'onde de de Broglie  $\Lambda = h/p$  ( $p$  impulsion, confer également équation 1.5 page 23) des particules est inférieure à la distance inter-particules  $a$ , de sorte que les fonctions d'onde ne se recouvrent pas. Cette hypothèse est généralement complètement vérifiée pour les ions, de masse élevée. Pour une distance inter-électron de l'ordre de 4 bohr et une impulsion moyenne de 10 eV.fs.bohr<sup>-1</sup> atteintes dès les premiers instants de la dynamique, le rapport  $\Lambda/a$  est de l'ordre de 0.1. La longueur d'onde de de Broglie est telle que plus l'impulsion des électrons est élevée, plus l'approximation devient valide.

### 3.1.1 Choix du potentiel

La force  $\mathbf{F}_j(\mathbf{r}_j)$  à laquelle est soumise une particule d'indice  $j$  est telle que

$$\mathbf{F}_j(\mathbf{r}_j) = q_j(-\mathbf{grad}V_j(r_j) + \mathbf{E}_{ext}(t)) \quad (3.2)$$

où  $\mathbf{E}_{ext}(t)$  représente le champ laser externe et où  $V_j(r_j)$  est la somme selon  $V_j(r_j) = \sum_{k \neq j} V_{jk}(r_{jk})$  des potentiels  $V_{jk}(r_{jk})$  créés par l'ensemble des particules d'indice  $k$  qui environnent la particule d'indice  $j$ , «particule» étant mise pour ion ou électron.

Dans la plupart des cas la forme exacte du potentiel  $V_{jk}(r_{jk})$  n'est pas connue avec exactitude, et le choix du potentiel est souvent guidé par des intuitions théoriques. Comme son calcul représente la majorité du temps imparti d'une simulation de dynamique moléculaire, la forme souvent analytique et générale du potentiel pourra être réfléchie ou simplifiée à l'avantage d'un temps de calcul processeur le moins coûteux. Par exemple, le potentiel de Lennard-Jones, utilisé initialement pour décrire l'interaction entre sphères dures, peu coûteux en termes numériques car variant en fonction de lois de puissance de la distance inter-particules, sert souvent la description d'autres systèmes dans des domaines transverses.

En ce qui nous concerne, les particules constituant l'agrégat interagissent par l'intermédiaire d'un potentiel coulombien, potentiel à longue portée. Nous décrivons chaque particule par une gaussienne, de largeur  $\sigma_j$  associée. De part cette extension des particules, le potentiel coulombien entre particules ponctuelles est alors équivalent au potentiel mou interparticules

$$V_{jk}(r_{jk}) = \frac{q_k}{4\pi\epsilon_0} \text{erf}\left(\frac{r_{kj}}{\sigma_{kj}}\right) \frac{1}{r_{jk}} \quad (3.3)$$

où  $q_k$  charge de la particule d'indice  $k$ ,  $r_{kj} = |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k|$  distance entre les particules d'indices  $j$  et  $k$  et

$$\sigma_{jk} = \sqrt{\sigma_j^2 + \sigma_k^2} \quad (3.4)$$

largeur à mi-hauteur effective, qui dépend des particules interagissant. La fonction erf est la fonction erreur définie selon  $\text{erf}(x) = 2/\sqrt{\pi} \times \int_0^x \exp(-y^2) dy$ .

La force qui dérive de ce potentiel s'écrit

$$\mathbf{F}_{jk}(\mathbf{r}_{jk}) = \frac{q_j q_k}{4\pi\epsilon_0} \left( \frac{\text{erf}\left(\frac{r_{jk}}{\sigma_{jk}}\right)}{r_{jk}^2} - \frac{2}{\sqrt{\pi}\sigma_{jk}} \frac{\exp\left(-\frac{r_{jk}^2}{\sigma_{jk}^2}\right)}{r_{jk}} \right) \frac{\mathbf{r}_{kj}}{|\mathbf{r}_{kj}|} \quad (3.5)$$

avec  $\mathbf{r}_{kj} = \mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k$  et  $e^2/(4\pi\epsilon_0) = 27.2205 \text{ eV} \cdot \text{bohr}$ ,  $e$  charge de l'électron.

**Remarque** Pour une distance  $r_{jk} > 3\sigma_{jk}$ , la fonction  $\text{erf}(r_{jk}/\sigma_{jk})$  tend vers 1 et le comportement en  $1/r_{jk}$  du potentiel coulombien est restitué. Il est donc possible d'optimiser le calcul en stockant dans un tableau l'ensemble des valeurs du potentiel pour des distances inter-particules inférieures à  $r_{jk} < 3\sigma_{jk}$ ; au-delà, le potentiel est supposé purement coulombien.

### 3.1.2 Implémentation numérique : algorithme de Verlet

L'équation 3.1 est intégrée à l'aide de l'algorithme de Verlet, dans sa variante «velocity verlet» [82]. Cet algorithme présente l'avantage d'être précis, stable, facile à implémenter, et de ne pas briser la symétrie par renversement du temps [81]. Il nécessite de stocker dans un tableau à  $9N$  dimensions les positions  $\mathbf{r}_j(t)$ , les impulsions  $\mathbf{p}_j(t)$  des  $j = 1..N$  particules ( $N$  nombre total de particules), ainsi que les forces qui s'exercent sur les particules  $\mathbf{F}_j(\mathbf{r}_j(t))$ . Ce tableau est actualisé au cours du temps.

La force exercée par toutes les particules sur la particule d'indice  $j$  s'écrit  $\mathbf{F}_j(\mathbf{r}_j) = \sum_{k \neq j} \mathbf{F}_{jk}(\mathbf{r}_{jk})$ . L'ensemble des  $j = 1$  à  $N$  forces à calculer à chaque pas de temps nécessite selon cette définition de calculer  $N(N-1)$  forces. Il est cependant possible de diviser par deux ce nombre d'opérations si est actualisée la force qu'exerce la particule d'indice  $j$  sur la particule d'indice  $k$ , égale et opposée — d'après le troisième principe de Newton — à celle qu'exerce la particule d'indice  $k$  sur la particule d'indice  $j$  [83]. Le nombre d'opérations nécessaires devient alors  $N(N-1)/2$  (soit le nombre de liens entre particules). Le nombre de calculs de forces nécessaire croît cependant toujours comme le carré du nombre de particules à l'intérieur du système : doubler la taille de l'agrégat reviendrait à quadrupler le temps de calcul<sup>2</sup>.

En l'absence de toute excitation extérieure, nous nous plaçons dans l'ensemble microcanonique : le nombre de particules, le volume ainsi que l'énergie totale du système (qui se décompose sous la forme de l'énergie cinétique et de l'énergie potentielle totales) doivent être conservés au cours du temps. Toutes choses égales par ailleurs, la non-conservation de l'énergie a souvent pour cause un pas de temps d'intégration trop grand, qu'il faut donc choisir avec précaution. Une précaution supplémentaire doit être prise quand au choix du pas de temps d'intégration : il doit être au moins suffisamment

<sup>2</sup>Plusieurs méthodes algorithmiques sophistiquées qui respectent le comportement à longue distance du potentiel coulombien existent [83]. L'une d'entre elles («Fast Multipole Method» méthode multipolaire rapide) repose sur l'hypothèse qu'un ensemble de particules à grande distance peut être regroupé, ce qui évite de calculer l'ensemble des interactions individuelles. Le temps de calcul de cette méthode d'agglomération croît comme le nombre de particules. Ces méthodes n'ont pas été mises en place ici.

petit pour décrire les oscillations propres du système considéré, soit au moins dix points par période d'oscillation du champ laser, ou d'oscillation d'un électron dans le puits de potentiel d'un ion par exemples. Cependant, plus le pas de temps choisi est petit, plus le temps de calcul sera grand. Pour lors, la réalisation simultanée de ces contraintes limite le choix du pas d'intégration, qui apparaît toujours comme un compromis raisonnable. Par la suite, nous utiliserons en général un pas de temps d'intégration de 0.02 fs.

Lorsque l'agrégat est soumis à l'excitation du champ laser, l'énergie totale n'est plus conservée, et l'ensemble des différentes grandeurs caractéristiques de la dynamique va varier fortement au cours du temps. Il n'est plus possible d'estimer le pas d'intégration en fonction de la conservation de l'énergie, et celui-ci sera choisi comme le minimum du pas de temps précédent et du pas de temps qui décrit avec une résolution suffisante une période optique du laser (en fonction donc de la longueur d'onde choisie).

Un évènement de dynamique moléculaire consiste à propager un système préalablement initialisé jusqu'à un temps fini donné. Ces conditions initiales correspondent à un choix possible parmi une multitude, et les observables de la dynamique peuvent être singulières. Aussi est-il nécessaire de procéder à une moyenne de ces observables sur plusieurs évènements de conditions initiales différentes, afin d'en limiter l'incertitude. Ceci constitue une moyenne d'ensemble<sup>3</sup>. Cette incertitude sera naturellement d'autant plus faible que le nombre d'évènements sera grand.

Nous nous proposons par la suite d'appliquer le schéma de dynamique moléculaire présenté précédemment, en premier lieu à la description statique d'un agrégat de sodium, puis à la description de sa dynamique sous l'effet d'une perturbation laser.

## 3.2 Cas test du sodium $Na = Na^+ + e^-$

Les agrégats de sodium sont métalliques : le dernier électron de valence de la couche 3s, d'énergie de liaison totale  $-4.5$  eV, peu lié, est délocalisé. Chaque atome fournit un électron délocalisé, et nous pouvons nous représenter leur somme comme une mer d'électrons retenue dans le potentiel électrostatique d'ions chargés positivement. En l'absence de toute excitation extérieure, un intérêt certain de la simulation de dynamique moléculaire consiste à suivre le mouvement de cette mer d'électrons en interaction avec les ions de sodium.

### 3.2.1 Largeurs de potentiel et distribution initiale

Trois interactions électrostatiques sont possibles, définissant ainsi trois largeurs de gaussiennes effectives  $\sigma_{ee}$ ,  $\sigma_{ei}$  et  $\sigma_{ii}$ , les indices  $e$  et  $i$  étant mis respectivement pour électron et ion : chaque électron délocalisé interagit soit avec les autres électrons délocalisés, soit avec les ions de sodium, et chaque ion interagit avec les autres ions. Nous choisissons d'ajuster l'énergie potentielle d'un électron libre à l'énergie d'un électron situé sur le niveau 3s du sodium. Ceci conduit aux largeurs de potentiel associées respectivement

---

<sup>3</sup>Dans le cas d'un système à l'équilibre, les hypothèses d'ergodicité permettraient d'obtenir les observables en remplaçant la moyenne sur les événements par une moyenne sur le temps. Ici, le système étudié est hors d'équilibre lorsqu'il est soumis aux effets du laser, et il n'est pas possible d'appliquer un tel procédé.

aux électrons et aux ions

$$\sigma_e = 6.5 \text{ bohr} \quad \text{et} \quad \sigma_i = 1 \text{ bohr} \quad (3.6)$$

choix précisé ultérieurement dans la section 3.3.1.1 page 69. La grande largeur décrivant l'électron permet de tenir compte de son caractère délocalisé à l'intérieur de l'agrégat. Quant-à la largeur ionique, elle prend en compte l'extension due aux électrons de coeur (les trois niveaux de coeur  $1s$ ,  $2s$  et  $2p$  portent un total de 10 électrons), qui ne sont pour l'instant pas décrits de manière explicite.

Un préalable au processus dynamique nécessite de déterminer les positions et impulsions initiales des différentes particules, soit les ions et électrons. Si la configuration géométrique ionique de l'état fondamental des agrégats constitués de quelques atomes est variable — leur détermination appelle des calculs quantiques ou semi-classiques [84, 16] — nous supposons par commodité l'agrégat sphérique pour le grand nombre d'atomes considéré ici. Le rayon  $R$  de la sphère est déterminé à partir de la densité de la phase cristalline commune du sodium  $\rho = 2.541 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$  et du nombre d'atomes  $N$  selon  $R = (N/(4/3\pi\rho))^{1/3}$ . Chaque position ionique est définie successivement à l'aide d'un tirage aléatoire dans cette sphère, avec la condition que chaque ion se situe à une distance minimale des autres ions. Ce critère d'exclusion limite l'effet d'une énergie potentielle d'interaction trop grande lorsque deux ions sont trop proches.

Les positions des électrons sont ensuite également déterminées à l'aide d'un tirage aléatoire dans la sphère de rayon  $R$ . Trois critères d'exclusion sont possibles. Les électrons sont situés soit le plus loin possible des ions et des autres électrons, soit le plus loin possible des ions, soit le plus loin possible des autres électrons. Ce dernier mode d'exclusion est retenu car, confirmant l'image d'une mer d'électrons délocalisés, il assure la meilleure cohésion ionique et donc la meilleure stabilité de l'agrégat. Notons qu'en toute rigueur le tirage aléatoire devrait être effectué dans une sphère de rayon de 0.5 à 1 bohr plus grande que le rayon ionique pour tenir compte de l'extension spatiale des électrons à l'extérieur de la sphère ionique («spill-out effect» en anglais) ; cette extension est cependant restituée dès les premiers instants de la dynamique par des électrons très mobiles.

Enfin, les impulsions initiales de toutes les particules  $\mathbf{p}_i = m_i \mathbf{v}_i$  sont mises égales à zéro. Il n'a pas été possible de restituer l'énergie de Fermi des électrons de valence (de l'ordre de 3 eV), faute de stabilité.

### 3.2.2 Stabilité temporelle

Intéressons-nous à un agrégat de  $Na_{41}^+$ , représenté sous la forme de 41 ions de sodium chargés une fois et de 40 électrons de conduction délocalisés. Vérifions que la simulation de dynamique moléculaire conserve un ensemble de grandeurs physiques caractéristiques de l'agrégat, lorsque celui-ci n'est soumis à aucune excitation spécifique. Dans un premier temps, précisons que l'énergie totale est conservée à  $5 \cdot 10^{-5}$  près, pour un pas de temps d'intégration constant de  $\Delta t = 0.02 \text{ fs}$ .

Dans un deuxième temps, regardons l'évolution au cours du temps du rayon ionique de l'agrégat, dont la moyenne pour 200 événements ainsi que l'écart-type sont représentés sur la figure 3.1. Le rayon ionique est calculé à partir du rayon carré moyen évalué dans

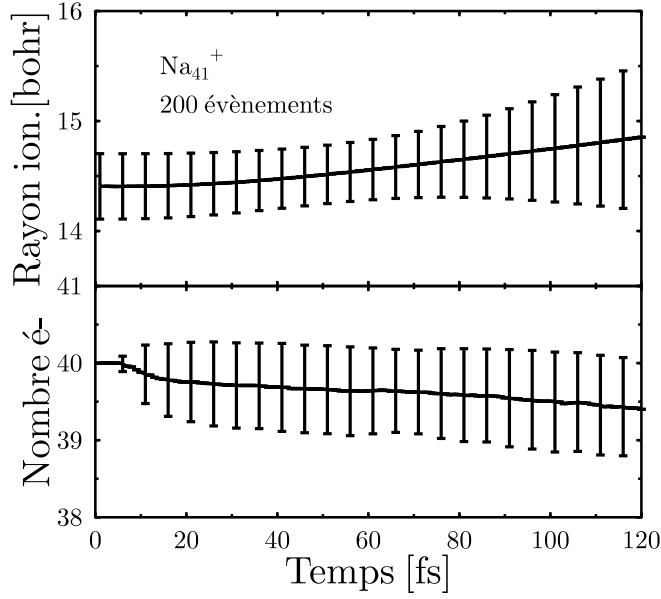


FIG. 3.1: **Partie supérieure** Évolution temporelle du rayon de l'agrégat en l'absence de toute excitation initiale. Les barres d'incertitude représentent l'écart type à la valeur moyenne sur 200 évènements. **Partie inférieure** Nombre d'électron à l'intérieur de l'agrégat. Ce nombre compte les électrons situés à l'intérieur d'une sphère de rayon 45 bohr.

le référentiel du centre de masse des positions ioniques

$$\langle R_i(t) \rangle = \sqrt{\frac{5}{3} \frac{\sum_{j=1..N_i} |\mathbf{r}_j(t) - \mathbf{r}_{cmi}(t)|^2}{N_i}} \quad (3.7)$$

avec  $N_i$  nombre d'ions,  $\mathbf{r}_{cmi}(t) = \sum_{j=1..N_i} \mathbf{r}_j(t) / N_i$  centre de masse des positions ioniques. Le facteur 5/3 provient de l'évaluation du second moment de la distribution de densité, supposée uniforme. Le rayon moyen, initialement de 14.4 bohr, atteint 14.8 bohr en 120 fs. La cause essentielle de cette augmentation réside dans les déséquilibres électrostatiques locaux que ne peut compenser le faible nombre d'électrons délocalisés. Nous pouvons donc nous attendre à ce que cet effet soit diminué pour des agrégats de tailles sensiblement plus élevées. Notons que le recours à des méthodes reposant sur des pseudo-particules permet de pallier à cet effet : ces méthodes permettent de conserver un rayon de l'agrégat constant sur plusieurs centaines de femtosecondes [84] car chaque électron se voit représenté par une très grande assemblée de pseudo-particules qui lissent les disparités de champ.

Dans un troisième temps, observons le nombre d'électrons à l'intérieur de l'agrégat, qui compte ceux situés à l'intérieur d'une sphère de rayon trois fois celui initial de l'agrégat. Ce nombre évolue également au cours du temps, comme retracé sur la figure 3.1. Il évolue très rapidement dès les premières femtosecondes, et l'agrégat perd 0.25 électron en moyenne à  $t = 20$  fs. La cause de cette perte peut être rapprochée de celle causant l'augmentation du rayon ionique, à savoir un déséquilibre local que ne peut compenser une faible statistique : tout électron de voisinage d'énergie potentielle insuffisant pour le retenir est émis. Cependant cette émission a pour effet de freiner toute émission ul-

térieure, et le nombre d'électrons délocalisés à l'intérieur de l'agrégat reste en moyenne constant autour de 39.5 électrons jusqu'à l'instant  $t = 120$  fs : seul un évènement sur deux en moyenne perd un électron à l'instant  $t = 120$  fs. Notons que l'augmentation du rayon ionique constatée précédemment n'est pas favorable à la rétention des électrons, car la distance moyenne entre les électrons et les ions augmente en moyenne et la force électrostatique des ions sur les électrons diminue par conséquent.

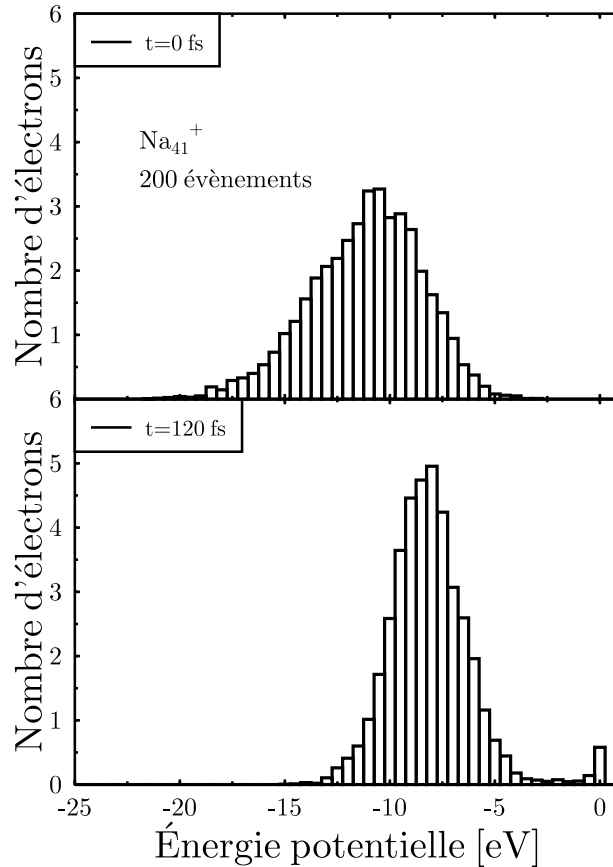


FIG. 3.2: Distribution d'énergie potentielle des électrons moyennée pour 200 évènements avant propagation par dynamique moléculaire, et à l'instant  $t = 120$  fs. La distribution centrée initialement sur  $E_p \simeq -10$  eV évolue dès les 10 premières femtosecondes vers une distribution centrée sur  $E_p \simeq -7$  eV (ici représentée à l'instant  $t = 120$  fs).

Enfin, il est également intéressant de constater que l'énergie potentielle des électrons varie peu au cours du temps, comme en témoignent les distributions de la figure 3.2. La distribution d'énergie potentielle initiale des électrons moyennée pour 200 évènements (partie supérieure de la figure 3.2) présente un maximum pour  $E_p \simeq -10$  eV, pour une largeur à mi-hauteur de  $\simeq 6$  eV. L'énergie potentielle s'équilibre cependant dès les premières femtosecondes, et sa distribution prend la forme finale mieux définie telle que présentée sur la partie inférieure de la figure 3.2 : la valeur moyenne de la distribution diminue à  $E_p \simeq -8$  eV et sa largeur à mi-hauteur à  $\simeq 4$  eV. La queue de distribution s'étend sur des valeurs d'énergie potentielle positives, présageant de l'émission d'un électron.



Nous nous sommes intéressés aux variations du rayon ionique, du nombre d'électrons de conduction et de leur énergie potentielle, qui représentent des propriétés statiques. Validons maintenant une propriété plus dynamique, à savoir la réponse optique.

### 3.2.3 Centre de masse des électrons et réponse optique

Intéressons-nous tout d'abord à l'évolution du centre de masse des positions des  $N_e$  électrons, défini par  $\mathbf{r}_{cme}(t) = \Sigma_{j=1..N_e} \mathbf{r}_j(t)/N_e$ . Si les électrons de conduction évoluent dans le paysage électrostatique des ions, ils cherchent en se déplaçant à minimiser leur énergie potentielle, et leur trajectoire suit les potentiels décroissants. Cette trajectoire va dépendre des positions et vitesses initiales, généralement aléatoires.

De par la conservation de l'énergie totale et à cause de la force de rappel électrostatique, tout déplacement collectif du nuage électronique de sa position d'équilibre par rapport aux ions entraîne son oscillation à une fréquence propre donnée, la fréquence de Mie (voir section 1.1.1 page 16).

Deux types de déplacements sont possibles. Le premier, qui consiste à déplacer la sphère électronique initiale d'une quantité  $\delta r$  dans l'espace des positions, présente l'inconvénient d'engendrer une discontinuité de potentiel, elle-même génératrice de perturbations qui pénalisent l'interprétation du signal dipolaire. Le second, qui consiste à donner une impulsion  $\delta p$  à la sphère électronique, ne présente pas cet inconvénient, et sera privilégié par la suite.

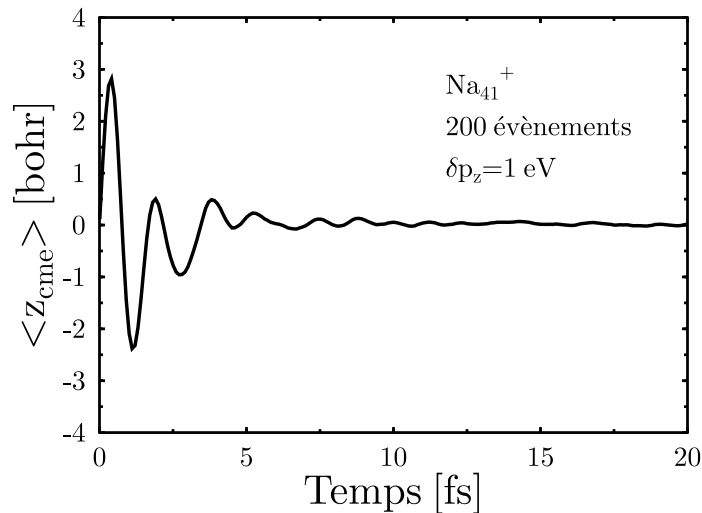


FIG. 3.3: Évolution temporelle de la réponse dipolaire  $\langle z_{cme} \rangle$  suite à une excitation initiale modérée de  $\delta p_z = 1$  eV de l'ensemble du nuage électronique. Ses oscillations correspondent à une fréquence de Mie  $\omega_{Mie} = 2.5$  eV.

La moyenne pour 200 événements différents du signal dipolaire de l'agrégat  $Na_{41}^+$ , suite à une excitation selon la direction privilégiée  $\mathbf{e}_z$ , est représentée sur la figure 3.3. Seuls sont comptés les électrons situés à l'intérieur d'une sphère de rayon trois fois le rayon carré moyen ionique. Comme attendu, le centre de masse oscille de manière amortie : l'équilibre électrostatique rompu initialement est très rapidement restitué. Le

nombre d'oscillations constaté sur les 10 premières femtosecondes indique une fréquence de  $\omega_{Mie} = 2.5$  eV. Cette fréquence diffère de la valeur normalement attendue par l'équation 1.4 (page 16), soit  $\omega_{Mie} = 3.1$  eV. La prise en compte de l'extension spatiale des particules modifie le potentiel électrostatique coulombien pour des particules ponctuelles de sorte qu'il devient le potentiel mou de l'équation 3.3 (page 58). Pour un tel potentiel, la fréquence attendue dépend de la largeur d'interaction  $\sigma_{ei}$  et du rayon initial de l'agrégat  $R$  selon (Günter ZWICKNAGEL, communication privée)

$$\omega_{Mie} = \left[ \frac{2\omega_{pe}^2}{\pi} \int_0^\infty \frac{dX}{X^4} (X \cos(X) - \sin(X))^2 \exp \left( - \left( \frac{X \sigma_{ei}}{2 R} \right)^2 \right) \right]^{1/2} \quad (3.8)$$

soit ici  $\omega_{Mie} = 2.50$  eV.

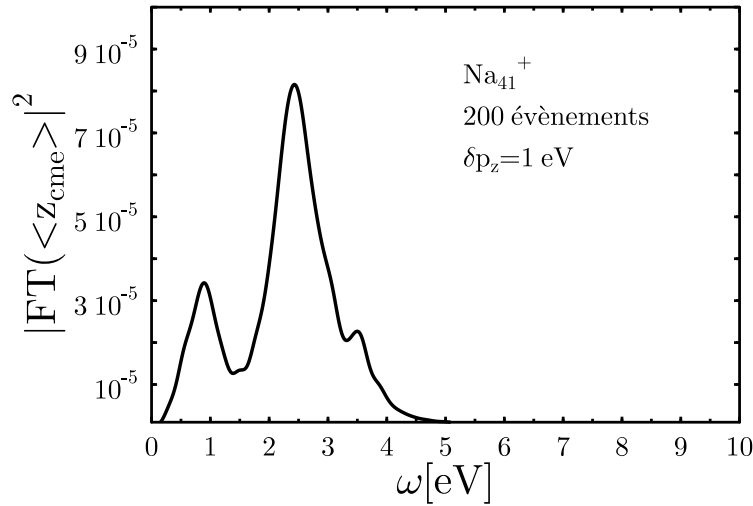


FIG. 3.4: Spectre de puissance du dipôle. L'axe des abscisses porte la fréquence exprimée en eV (1 eV équivalent à  $1.519 \text{ fs}^{-1}$ ).

Les moyens expérimentaux permettant d'accéder à l'information des fréquences propres caractéristiques de l'agrégat font appel à des méthodes de spectroscopie photonique [18]. Les fréquences propres se situent généralement dans le domaine du visible et la réponse de l'agrégat porte le nom d'usage de réponse optique. Ces fréquences correspondent à l'espace réciproque. Aussi est-il légitime de visualiser le signal précédent décomposé dans l'espace de Fourier. Le spectre de puissance, relié à la section efficace d'absorption [16], est défini comme le module carré de la transformée de Fourier (FT) de l'évolution temporelle du dipôle, soit  $P(\omega) = |\text{FT}(\mathbf{r}_{cme}(t))|^2$ .

L'intervalle de mesure de l'évolution temporelle doit être suffisamment court pour que le signal ne soit pas perturbé par le mouvement des ions dont la période propre d'oscillation vaut de l'ordre de plusieurs centaines de femtosecondes. Cette précaution est d'autant plus nécessaire que dans notre cas l'excitation initiale ( $\delta p_z = 1$  eV) a pour effet l'émission d'électrons, et donc l'expansion rapide des ions. L'émission électronique induirait une dérive du centre de masse des positions électroniques, soit une composante à basse fréquence dans le spectre de puissance, tandis que l'augmentation du rayon ionique

entraînerait une diminution de la densité électronique, soit un élargissement du pic à la fréquence de Mie attendue vers les basses fréquences.

La fréquence de Mie identifiée précédemment à  $\omega_{Mie} = 2.50$  eV apparaît clairement sur le spectre de puissance des 20 premières femtosecondes du signal dipolaire représenté sur la figure 3.4. Le pic est bien défini, et sa largeur à mi-hauteur vaut 1 eV. Aucun pic n'est présent à fréquence nulle, ce qui confirme que le signal dipolaire n'est soumis à aucune dérive. Le pic situé à 1 eV est un artefact lié à l'équilibration des niveaux énergétiques de particules pendant la période de mesure.

### 3.2.4 Excitation laser : réponse fréquentielle

Observons maintenant le comportement de l'agrégat  $\text{Na}_{41}^+$  lorsqu'il est soumis à une excitation laser.

Le champ est appliqué selon l'axe  $\mathbf{e}_z$  et suit la loi de variation au cours du temps

$$E_{ext}(t) = E_{max} \cos^4 \left( \ln(2) \frac{(t + \Delta t)}{\tau} \right) \cos(\omega(t + \Delta t)) \quad (3.9)$$

avec  $\tau$  largeur à mi-hauteur de l'enveloppe, et  $\Delta t$  l'écart entre l'instant initial et le maximum du pulse, de sorte que l'axe du temps a pour origine  $t = 0$  fs.

Nous choisissons une intensité laser crête de  $I_{max} = 6.10^{11}$  W.cm<sup>-2</sup> suffisante pour permettre l'excitation de l'état fondamental jusqu'à l'émission d'électrons de conduction, ainsi qu'une largeur à mi-hauteur  $\tau = 20$  fs (soit  $\Delta t = 40$  fs). Au-delà des 80 fs d'interaction avec le laser, une période de propagation supplémentaire de 40 fs permet de tenir compte d'une éventuelle émission thermique (liée à la thermalisation des électrons) et de l'expansion ionique (confère section 3.3.5.2). Pour la durée totale de propagation, l'étude en l'absence d'excitation de la section 3.2.2 page 61 montre que l'agrégat peut être considéré comme stable; ainsi toute variation des observables par rapport à cette référence est imputable au champ laser.

Nous allons nous intéresser spécifiquement à évaluer le nombre d'électrons émis lorsque la longueur d'onde du laser varie. Le nombre d'électrons émis variant au cours de l'interaction en fonction du couplage électronique au champ laser, nous choisissons d'observer l'état de charge lorsque celui-ci tend asymptotiquement à sa valeur finale, soit à l'instant  $t = 120$  fs. Si le spectre de puissance présenté à la section précédente est proportionnel à la section efficace d'absorption, nous nous attendons à ce que l'évolution générale du nombre d'électrons émis en fonction de la fréquence suive son évolution : un dépôt d'énergie important à résonance devrait favoriser l'émission d'électrons par rapport à un dépôt hors résonance. La partie inférieure de la figure 3.5 présente le résultat d'une telle analyse. Le nombre d'électrons émis en fonction de la fréquence laser représenté par un trait continu présente un maximum pour une fréquence laser de  $\omega_{las} \simeq 2.6$  eV. La position de ce maximum diffère de la position de la fréquence de Mie. En effet, tous paramètres égaux par ailleurs, la fréquence de Mie varie au cours du temps, en fonction essentiellement de la densité électronique. Pour une fréquence laser donnée légèrement supérieure à la fréquence de Mie, la dynamique du nuage électronique est la suivante : bien que hors résonance, l'énergie absorbée à l'intensité laser choisie est suffisante pour entraîner l'émission d'un à deux électrons. L'agrégat se charge alors, et le potentiel électrostatique total plus profond — nous pouvons nous imaginer que les électrons émis

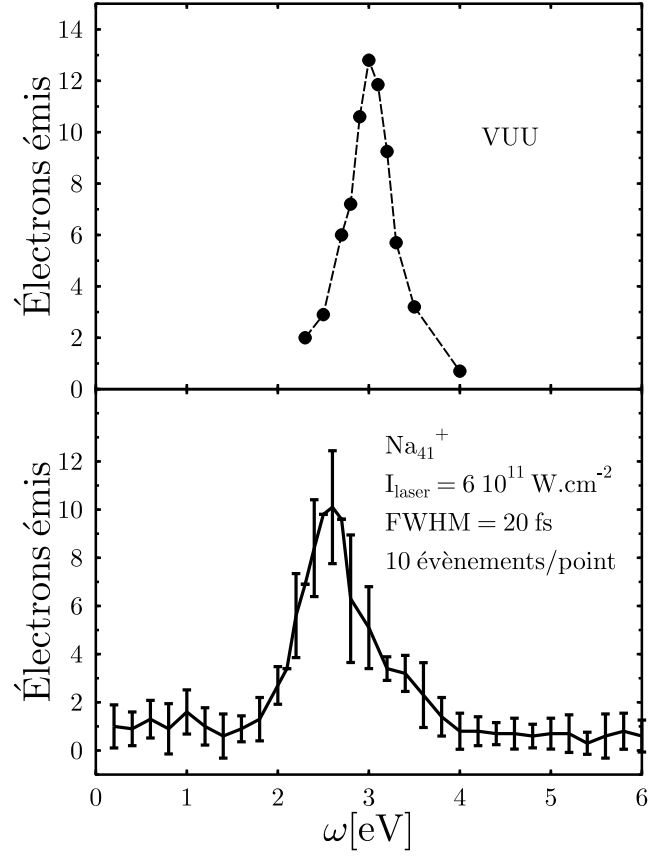


FIG. 3.5: **Partie inférieure** Comportement du nombre d'électrons émis en fonction de la fréquence laser. Le maximum de l'émission est obtenu pour la fréquence  $\omega_{las} = 2.6 \text{ eV}$  **Partie supérieure** Comportement du nombre d'électrons émis en fonction de la fréquence laser d'après des calculs semi-classiques restituant les corrélations dynamiques au-delà du champ moyen par l'ajout explicite des collisions électron-électron. Figure adaptée de E.Giglio *et al.* [85, 86].

seront en général ceux les moins liés — confine les électrons restants dans un espace plus petit [87, 16]. Il en résulte que la fréquence de Mie augmente ; la fréquence laser entre en résonance avec la fréquence de Mie, et l'absorption d'énergie dans le champ laser est maximum, conduisant à une seconde ionisation menant à l'état de charge maximum  $11+$  de l'agrégat. Il s'ensuit que le pic d'émission maximum est légèrement décalé vers le bleu par rapport à la fréquence de Mie initialement attendue.

La largeur à mi-hauteur du pic d'émission correspond à celle du pic du spectre de puissance de la figure 3.4 page 65, soit  $\simeq 1$  eV. Cela confirme l'analyse d'une émission électronique en fonction de la fréquence liée très fortement à l'excitation de modes collectifs de l'agrégat.

Il apparaît remarquable que ces résultats se comparent qualitativement et quantitativement aux résultats obtenus dans les mêmes conditions pour les approches semi-classiques de E. Giglio *et al.* (confer section 1.2 page 22). Ils résolvent numériquement à l'aide des particules test [84] l'équation semi-classique Vlasov-LDA, en prenant en compte les collisions électron-électron par un terme de collision Ühling-Uhlenbeck (VUU, confer section 1.2). Leurs résultats [85, 86] sont présentés sur la partie supérieure de la figure 3.5 page précédente. La fréquence de Mie attendue dans le cadre de leur description vaut  $\omega_{Mie} = 2.88$  eV, fréquence ajustée sur la fréquence obtenue dans un cas purement quantique (soit  $\omega_{Mie} = 2.78$  eV). L'émission électronique également piquée présente son maximum à la fréquence  $\omega = 3.05$  eV, légèrement plus élevée que la fréquence de Mie attendue, pour les mêmes raisons dynamiques que précédemment évoquées. La valeur de ce maximum, soit 13 électrons émis, entre dans l'incertitude de celle de la dynamique moléculaire.

La largeur de pic à mi-hauteur de l'émission électronique, qui traduit un amortissement, est plus élevée dans le cas de la dynamique moléculaire que dans le cas semi-classique, respectivement  $\simeq 1$  eV et  $\simeq 0.5$  eV. Une cause d'élargissement naturel consiste en l'effet des corrélations dynamiques électroniques (toujours confer 1.2). Chaque modèle prend en compte ces corrélations respectivement de manière intrinsèque (par le potentiel à deux corps coulombien) et de manière explicite (par l'ajout du terme de collision de Ühling-Uhlenbeck). L'élargissement est plus vraisemblablement imputable aux diverses configurations ioniques initiales de chaque évènement. Ces différentes configurations déplacent la réponse de Mie à une fréquence légèrement différente de celle attendue, la forme de la réponse optique globale pouvant même être sensiblement différente [88]. La superposition incohérente de ces différents spectres peut conduire à un élargissement de la réponse optique, donc de l'émission électronique<sup>4</sup>.

### 3.3 Au-delà du modèle à un électron de conduction

#### 3.3.1 Prise en compte des électrons des niveaux $2s$ et $2p$

Allons au-delà du modèle à un électron de conduction, et essayons de décrire également les niveaux  $2s$  et  $2p$  du sodium qui contiennent respectivement deux et six électrons

---

<sup>4</sup>D'autres effets de l'élargissement de la réponse optique existent [18]. Il peut s'agir de la fragmentation de Landau, d'origine quantique (confer section 2.2.2.3) ou du couplage des électrons avec les phonons du réseau.

*de coeur*. Ces niveaux sont très proches énergétiquement et nous supposons que l'ensemble des huit électrons forme un seul et même niveau d'énergie égale à  $-45$  eV. Notons  $e2$  ces derniers électrons et  $e1$  les électrons *de conduction* (du niveau  $3s$ ). Le nombre d'interactions possible entre espèces de particules s'élève maintenant à six. Les largeurs d'interaction sont désignées par  $\sigma_{e1}$  pour les électrons  $e1$  et  $\sigma_{e2}$  pour les électrons  $e2$ .

### 3.3.1.1 Choix des largeurs de potentiel

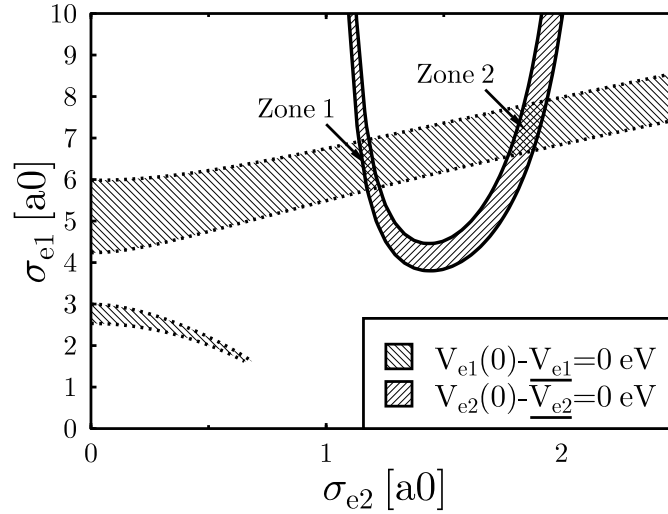


FIG. 3.6: Diagramme  $(\sigma_{e1}, \sigma_{e2})$  tel que les largeurs de potentiel  $\sigma_{e1}$  et  $\sigma_{e2}$  vérifient simultanément les équations  $V_{e1}(0) - \underline{V}_{e1} = 0$  eV et  $V_{e2}(0) - \underline{V}_{e2} = 0$  eV. Les zones hachurées 1 et 2 définissent les domaines de validité pour lesquels les paramètres  $\sigma_{e1}$  et  $\sigma_{e2}$  permettent d'obtenir les énergies de potentiel souhaitées pour les électrons  $e1$  et  $e2$ , à savoir respectivement  $\underline{V}_{e1} = -4.5$  eV et  $\underline{V}_{e2} = -45$  eV. Les zones hachurées correspondent à la projection sur le plan  $z = 0$  eV des plans de coupe compris entre  $z = [-0.5, 0.5]$  eV. La valeur constante de la largeur du potentiel ionique vaut  $\sigma_i = 1$  bohr.

L'ajustement simultané des trois largeurs de potentiel afin de décrire la structure désirée peut être un processus fastidieux. Il est cependant possible d'estimer leur valeur en calculant le potentiel des électrons appartenant à un atome isolé. Il sera ensuite nécessaire d'ajuster ces valeurs indicatives pour un atome dans le champ des autres atomes qui constituent l'agrégat, et dans le sens de la meilleure stabilité ionique et électronique.

Si nous supposons un atome constitué d'un électron de conduction  $e1$  et de huit électrons  $e2$ , situés au même endroit qu'un ion chargé  $9+$ , le potentiel vu par un électron de chaque espèce s'écrit

$$V_{e1}(0) = 9V_{e1i}(0) - 8V_{e1e2}(0) \quad (3.10)$$

$$V_{e2}(0) = 9V_{e2i}(0) - V_{e2e1}(0) - 7V_{e2e2}(0) \quad (3.11)$$

avec  $V_{jk}(0) = -e^2 / (2\pi^{3/2}\epsilon_0) * 1/\sigma_{jk}$ .

Il est possible de tracer les valeurs de ces potentiels théoriques soustraites des valeurs des potentiels respectifs désirées  $\underline{V_{e1}} = -4.5$  eV et  $\underline{V_{e2}} = -45$  eV, soit  $V_{e1}(0) - \underline{V_{e1}} = 0$  eV et  $V_{e2}(0) - \underline{V_{e2}} = 0$  eV sur le même axe  $z$  d'un diagramme à trois dimensions, en fonction des largeurs ajustables  $\sigma_{e1}$  et  $\sigma_{e2}$  portées sur les axes  $x$  et  $y$ , pour une largeur du potentiel ionique fixée  $\sigma_i$ . Un plan de coupe parallèle au plan  $(x, y)$  à l'ordonnée  $z = 0$  définit deux zones telles que grisées sur la figure 3.6, qui assurent que les conditions  $V_{e1}(0) - \underline{V_{e1}} = 0$  eV et  $V_{e2}(0) - \underline{V_{e2}} = 0$  eV sont vérifiées simultanément.

Plus la largeur de potentiel est petite, plus les électrons sont liés. Aussi, dans le souci de reproduire au mieux le comportement des électrons  $e2$  très liés, la largeur de potentiel est choisie parmi la zone 1 de la figure 3.6. La valeur de la largeur de potentiel des électrons  $e1$ , délocalisés, est choisie en comparaison la plus grande possible à l'intérieur de cette zone. Après un ajustement nécessaire de ces indications pour l'ensemble des électrons de l'agrégat aux énergies de liaison<sup>5</sup>  $\underline{V_{e1}} = -4.5$  eV et  $\underline{V_{e2}} = -45$  eV, nous arrêtons les paramètres tels que

$$\sigma_{e1} = 6.5 \text{ bohr}, \quad \sigma_{e2} = 1 \text{ bohr} \quad \text{et} \quad \sigma_i = 1 \text{ bohr} \quad (3.12)$$

### 3.3.1.2 Distribution spatiale des électrons $e2$

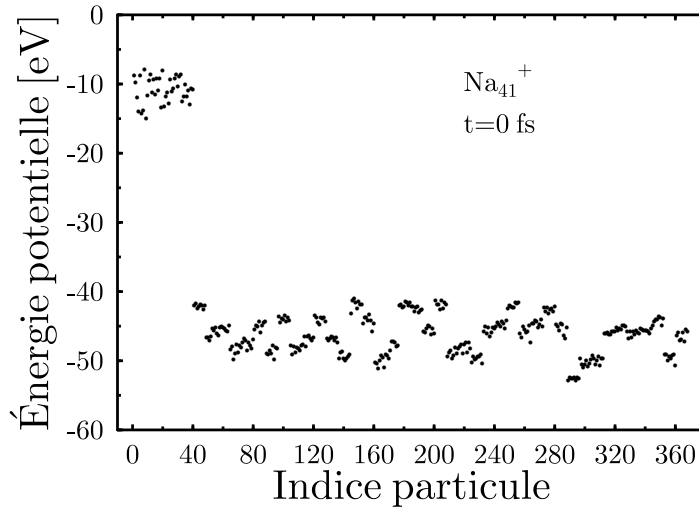


FIG. 3.7: Répartition en termes de niveaux énergétiques des électrons  $e1$  et  $e2$ . Chaque point représente un électron. L'axe des abscisses porte l'indice de la particule, l'axe des ordonnées l'énergie potentielle correspondante.

Les électrons  $e2$  sont distribués également aléatoirement sur la surface d'une sphère de rayon égal à celui d'une orbite du modèle de Bohr pour une énergie  $\underline{V_{e2}}$ . Pour le potentiel choisi  $\underline{V_{e2}} = -45$  eV, le rayon de l'orbite vaut  $r_{e2} = 0.3$  bohr. Une distance

<sup>5</sup>L'énergie des électrons  $e1$  de l'atome de sodium dans l'agrégat, si elle n'est pas fournie par l'expérience, peut être calculée dans le cadre de descriptions quantiques [16]. Sa valeur est supérieure à celle de l'atome isolé car les électrons  $e1$  se délocalisent à l'intérieur de l'agrégat. En revanche, l'énergie des électrons  $e2$ , plus liés, varie peu entre un atome isolé et un agrégat.

d'exclusion entre ces électrons conditionne le tirage aléatoire, de manière à ce qu'ils soient équi-répartis sur la surface considérée.

La figure 3.7 montre l'exemple de l'énergie potentielle individuelle initiale de chacun des  $N_{e1} = 40$  électrons  $e1$  et  $N_{e2} = 328$  électrons  $e2$ , pour un événement donné. Chaque valeur de l'axe des abscisses indice un électron. Les indices 1 à 40 correspondent aux électrons  $e1$ . Ils sont toujours distribués aléatoirement, à une distance d'exclusion minimale les uns des autres ; leurs énergies potentielles sont donc réparties aléatoirement dans une fenêtre de largeur  $\simeq 5$  eV autour de la valeur moyenne  $\simeq -10$  eV. Les indices 41 à 369 correspondent aux électrons  $e2$ . Les énergies potentielles de ces électrons sont également réparties aléatoirement dans une fenêtre de largeur  $\simeq 10$  eV autour de la valeur moyenne  $\simeq -45$  eV. Ces énergies sont regroupées par huit, confirmant ainsi les appartenances respectives des électrons  $e2$  aux ions près desquels ils ont été disposés.

### 3.3.2 Stabilité

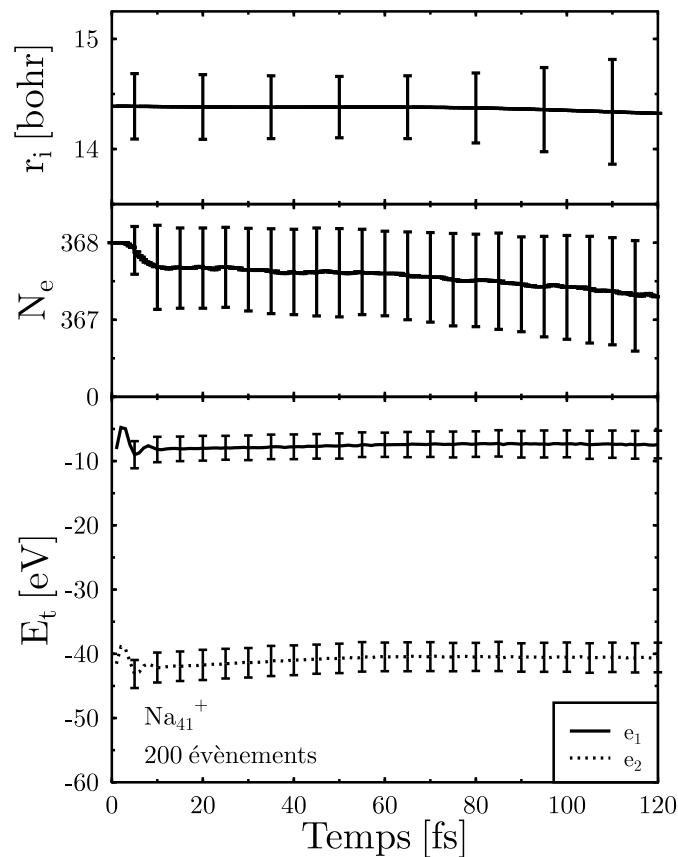


FIG. 3.8: Stabilité temporelle de l'énergie totale (**partie inférieure**), du nombre total d'électrons (**partie intermédiaire**), ainsi que du rayon ionique (**partie supérieure**), en l'absence de toute excitation collective initiale.

Évaluons la stabilité de l'état fondamental de l'agrégat  $Na_{41}^+$  ainsi initialisé, à l'aide des mêmes observables que le cas sans les huit électrons  $e2$  (voir la section 3.2.2 page 61).



La figure 3.8 représente les évolutions temporelles du rayon ionique (partie supérieure), du nombre d'électrons à l'intérieur de l'agrégat (partie intermédiaire) et de l'énergie potentielle électronique (partie inférieure), moyennées pour 200 évènements. Le rayon ionique initial reste conservé, avec un écart type à la valeur moyenne de seulement quelque 0.5 bohr. L'amélioration qualitative de cette observable a pour origine une meilleure répartition des charges électrostatiques électroniques, plus nombreuses que dans le cas à un électron de conduction. L'évolution du nombre d'électrons à l'intérieur de l'agrégat est totalement comparable qualitativement et quantitativement à celle de la figure 3.1 page 62, suggérant que les électrons de coeur  $e2$  restent liés aux ions : seuls sont perdus les électrons de valence les moins liés, avec un électron perdu en moyenne par agrégat pour deux évènements. La distribution d'énergie potentielle des électrons  $e1$  et  $e2$  évolue également peu au cours du temps. Les différentes largeurs d'interaction  $\sigma_{e1}$  et  $\sigma_{e2}$  assurent l'absence d'échange d'électron entre niveaux, et l'écart énergétique entre les deux niveaux électroniques reste constant au cours du temps.

### 3.3.3 Réponse optique

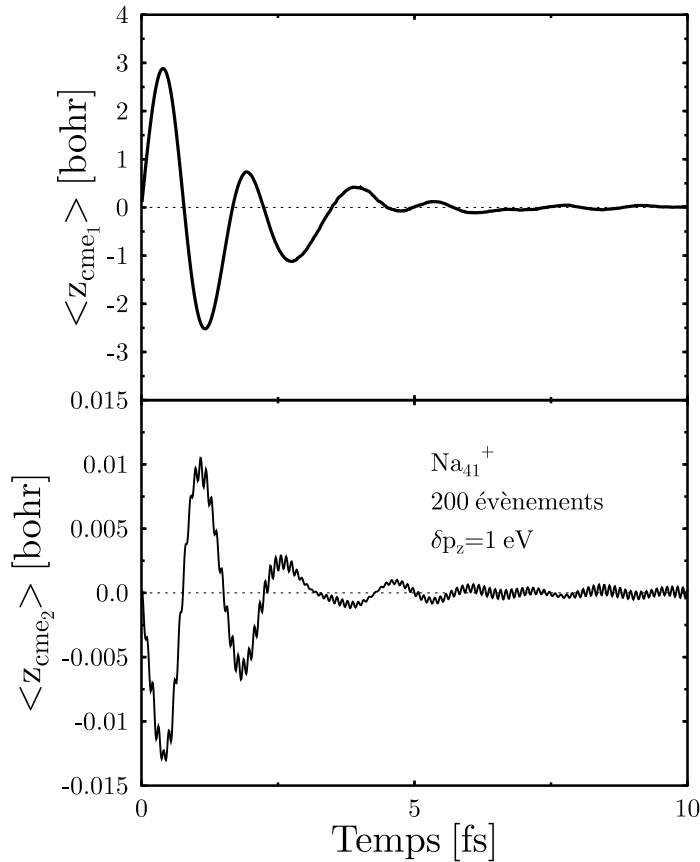


FIG. 3.9: Réponse dipolaire des électrons  $e1$  (partie supérieure) et  $e2$  (partie inférieure) à une excitation élémentaire  $\delta p_z = 1$  eV de la sphère des électrons  $e1$ . La période de l'oscillation des électrons  $e2$  superposée à l'oscillation des électrons  $e1$  vaut 0.1 fs.

Comme établi à la section 3.2.3, nous excitons l'agrégat  $\text{Na}_{41}^+$  en déplaçant la sphère des impulsions initiale des électrons  $e1$  de  $\delta p_z = 1$  eV collectivement par rapport aux ions. Le centre de masse des positions des électrons  $e1$  (partie supérieure de la figure 3.9) moyenné pour 200 évènements oscille similairement à celui de la figure 3.3 page 64, à la fréquence attendue de 2.5 eV (confer équation 3.8 page 65), ce qui indique que les électrons  $e2$  n'influencent pas la réponse optique des électrons  $e1$ . L'évolution du centre de masse des électrons  $e2$  (partie inférieure de la figure 3.9) suit quant à elle le mouvement des électrons  $e1$  en antiphase, avec une amplitude cependant 300 fois plus petite. Les oscillations qui se superposent à ce signal, d'amplitude nettement plus réduite de 0.005 bohr, correspondent aux oscillations des électrons  $e2$  retenus dans le puits de potentiel d'un ion. Nous pouvons évaluer cette fréquence propre en appliquant la première loi de Newton 3.1 à un électron  $e2$  de masse  $m_e$  soumis à la force  $\mathbf{F}_{ie2}(\delta z)$ , pour un déplacement  $\delta z \mathbf{e}_z$  donné. La projection sur l'axe  $\mathbf{e}_z$  donne  $m_e d\delta z/dt = F_{ie2}(\delta z)$ , et un développement limité pour  $\delta z$  petit de la force  $F_{ie2}(\delta z)$  (équation 3.5 page 59) conduit à la fréquence propre

$$\omega_{e2} = \left( \frac{4e^2}{3\sqrt{\pi}m_e} \frac{q_i}{\sigma_{ie2}^3} \right)^{1/2} \quad (3.13)$$

où  $\omega_{e2}$  en  $\text{fs}^{-1}$ . Avec les paramètres  $\sigma_{ie2} = 1.41$  bohr et un état de charge ionique  $q_i = 9$ , cette fréquence vaut  $\omega_{e2} = 42.7$  eV, soit une période de  $T_{e2} = 0.1$  fs.

Le spectre de puissance du signal dipolaire des électrons  $e2$ , soit la partie inférieure de la figure 3.10, met clairement en évidence les deux fréquences attendues. Le pic qui apparaît à la fréquence  $\omega_{e2} = 42.7$  eV a une amplitude de deux ordres de grandeur plus petite comparativement à celle du pic à la fréquence  $\omega_{e1} = 2.5$  eV. Ceci apparaît conforme à l'observation précédente de la figure 3.9 (partie inférieure) d'un signal dipolaire des électrons  $e2$  superposé à une faible amplitude sur celui des électrons  $e1$ .<sup>6</sup>

La partie supérieure de la figure 3.10 présente la réponse optique des électrons  $e1$ , similaire en tous points à celle obtenue sans électrons  $e2$  (confer figure 3.3). L'amplitude maximale du pic attendu à la fréquence  $\omega_{e1} = 2.5$  eV est de 5 ordres de grandeur plus grande que celle du pic attendu à la même fréquence sur le signal dipolaire des électrons  $e2$ . Le rapport d'intensité entre ces pics est conforme aux observations de la figure 3.9 d'un mouvement des électrons  $e2$  certes en antiphase, mais suffisamment bien découplé des électrons  $e1$  (confer l'énergie potentielle des électrons sur la figure 3.8 page 71, partie inférieure) : l'amplitude maximale du signal dipolaire des électrons  $e2$  est inférieure de deux ordres de grandeur à celle des électrons  $e1$ .

### 3.3.4 Systématique en fréquence

**Émission dépendante en fréquence** Étudions maintenant la réponse de l'agrégat  $\text{Na}_{41}^+$  lorsque celui-ci est soumis à un champ laser de paramètres d'intensité crête et de largeur à mi-hauteur identiques à la section 3.2.4. La partie inférieure de la figure 3.11 représente l'évolution du nombre d'électrons émis avec (trait plein, ions chargés 9+) ou sans (trait discontinu, ions chargés 1+) électrons  $e2$ , pour des paramètres de largeurs

<sup>6</sup>Les pics intermédiaires entre les fréquences  $\omega_{e1}$  et  $\omega_{e2}$ , d'intensités dans le bruit de  $10^{-12}$  bohr<sup>-2</sup>, sont liés à la distribution en orbites de Bohr des électrons  $e2$  : ces pics disparaissent lors de tests comparatifs pour lesquels les électrons sont placés sur les ions.

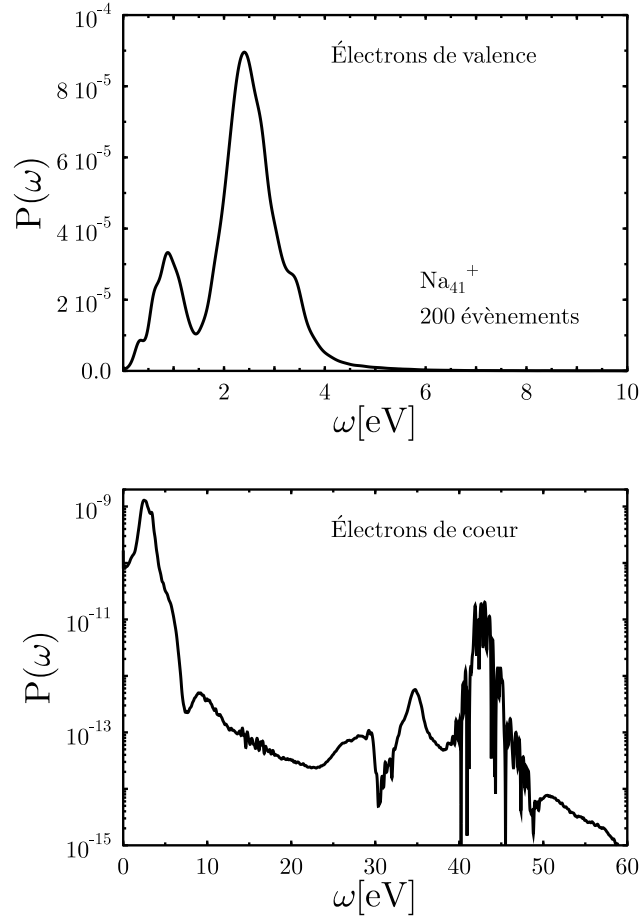


FIG. 3.10: Spectre de puissance des électrons  $e1$  (**partie supérieure**) et  $e2$  (**partie inférieure**). Le signal des électrons  $e2$  porte la trace des oscillations dans le puits de potentiel des ions à la fréquence  $\omega_{e2} = 42.7$  eV.

de potentiel identiques. Les deux courbes sont similaires : il apparaît donc que la prise en compte des électrons  $e2$  n'influence pas la réponse dynamique des électrons  $e1$  en fonction de la fréquence, ce qui reste primordial. Pour l'intensité crête choisie, l'ionisation des électrons  $e2$  beaucoup plus liés énergétiquement est impossible, et les électrons  $e2$  ne participent pas de l'ionisation finale.

**Vers une émission dépendante en intensité** Puisque nous tenons compte maintenant des électrons  $e2$ , intéressons nous à l'effet d'une augmentation de l'intensité sur l'émission électronique en fonction de la fréquence laser : la partie supérieure de la figure 3.11 présente cette évolution en trait plein pour une intensité crête de  $6.10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$ . Elle suit une courbe en cloche, de largeur à mi-hauteur évaluée à  $\sim 3.5$  eV, de maximum 34 électrons émis à la fréquence  $\omega_{las} \simeq 2$  eV. Le déplacement de la fréquence optimale d'ionisation vers les basses énergies est lié à la variation de la fréquence de résonance au cours du temps. En effet, l'intensité du champ laser est telle que plusieurs électrons sont émis bien avant que ne soit atteint le maximum de l'amplitude du champ laser.

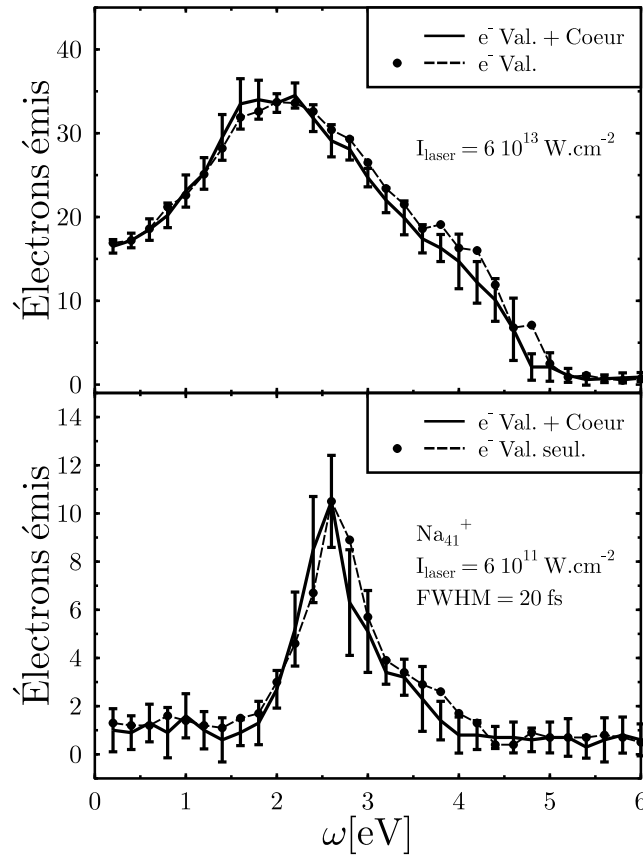


FIG. 3.11: Évolution du nombre d'électrons (en trait plein, avec les barres d'incertitude) émis en fonction de la fréquence laser pour les intensités  $6 \cdot 10^{11} \text{ W.cm}^{-2}$  (**partie inférieure**) et  $6 \cdot 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$  (**partie supérieure**). Ces évolutions sont comparées à celles qui seraient obtenues sans prise en compte des électrons  $e2$  (en trait pointillé).

Ceci abaisse la pulsation propre (confer 3.8 page 65) du nuage d'électrons libres, ce qui rend possible l'entrée en résonance bien avant la fréquence de  $\omega_{Mie} = 2.5 \text{ eV}$  attendue précédemment. Cet effet est d'autant plus efficace qu'il se produit avant le maximum du pulse. L'écart temporel entre le moment de la résonance et le maximum du pulse entraîne des variabilités de l'émission finale, et celle-ci présente donc un maximum en fonction de la fréquence d'excitation.

L'énergie déposée dans l'agrégat n'atteint pas les électrons  $e2$ , qui restent liés aux ions, et seuls les électrons  $e1$  sont émis, comme le confirme la courbe en trait pointillé de la figure, réalisée sans les électrons  $e2$ . Comme précédemment, les courbes se superposent dans les barres d'incertitude.

### 3.3.5 Différents régimes d'intensité : émission des électrons $e2$

#### 3.3.5.1 Évolution générale

Afin de pouvoir identifier le moment où la dynamique des électrons  $e2$  doit être pris en compte, réalisons une étude systématique du nombre d'électrons émis en fonction

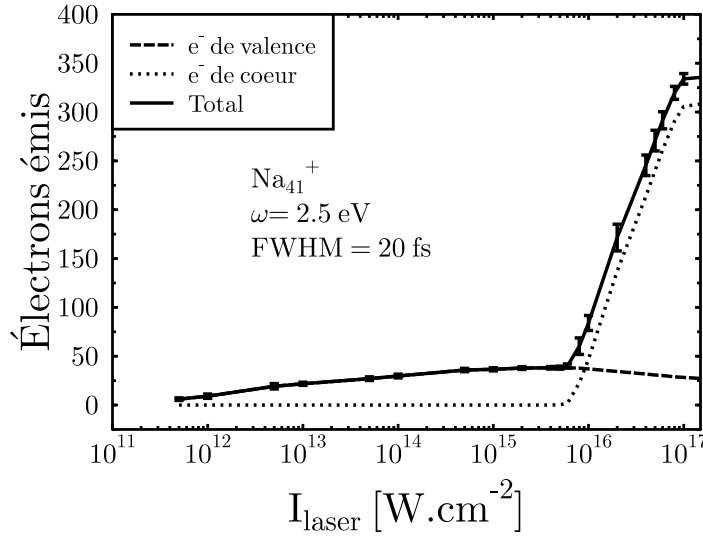


FIG. 3.12: Évolution du nombre d'électrons émis en fonction de l'intensité laser. L'ensemble des électrons  $e1$  est progressivement émis (leur contribution est décomposée en trait tireté) jusqu'à  $10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ . Les électrons  $e2$  prennent le relais au-delà (voir la décomposition en trait pointillé).

de l'intensité laser, à fréquence laser choisie ici identique à la fréquence de Mie soit  $\omega_{las} = \omega_{Mie} = 2.5 \text{ eV}$ , pour une largeur à mi-hauteur de  $\text{FWHM} = 20 \text{ fs}$ . La figure 3.12 présente le résultat d'une telle analyse. La courbe en trait plein correspond à la composition du nombre total des électrons  $e1$  et  $e2$  émis, représentés respectivement en trait tireté et en trait pointillé, en fonction de l'intensité laser. Cette courbe présente trois régimes d'intensité détaillés par la suite.

**Basses intensités** Nous retrouvons les deux cas des évolutions de la section précédente dans la gamme d'intensités  $6 \cdot 10^{11} \text{ W.cm}^{-2}$  à  $1 \cdot 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ . Le nombre des électrons  $e1$  émis croît lentement en fonction de l'intensité laser, de manière quasi-linéaire selon l'échelle semi-logarithmique choisie, pour atteindre la totalité des électrons  $e1$  émis à l'intensité  $1 \cdot 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ , tandis que le nombre d'électrons  $e2$  émis reste nul.

**Intensités intermédiaires** La gamme d'intensités  $1 \cdot 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$  à  $1 \cdot 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$  caractérise le régime de transition vers une émission progressive des électrons  $e2$ . En effet, si un plateau de stabilité dans l'émission électronique des électrons  $e1$  et  $e2$  peut être constaté entre les intensités  $1 \cdot 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$  et  $6 \cdot 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ , le nombre d'électrons  $e2$  émis augmente rapidement entre les intensités  $6 \cdot 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$  et  $1 \cdot 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ , pour atteindre la valeur d'un électron  $e2$  émis en moyenne par atome de sodium. Ceci n'est que peu surprenant car l'intensité seuil de  $1 \cdot 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$  correspond à celle requise pour ioniser directement par suppression de barrière (confer section 1.1.1 page 14) les électrons  $e2$ , situés au niveau d'énergie  $\underline{V}_{e2} = -45 \text{ eV}$ . Cependant, si l'ionisation constitue une condition nécessaire à l'émission de ces électrons, cette dernière ne sera effective que lorsqu'ils auront acquis l'énergie suffisante pour vaincre la barrière de potentiel en

surface : l'ionisation interne pourra donc avoir lieu à une intensité légèrement inférieure à celle constatée pour l'émission.

**Hautes intensités** L'ionisation externe de l'ensemble des 8 électrons  $e2$  se poursuit de manière progressive dans la gamme d'intensités  $1\ 10^{16}\ \text{W.cm}^{-2}$  à  $1\ 10^{17}\ \text{W.cm}^{-2}$ , dominant l'évolution du nombre total d'électrons émis. Le nombre des électrons  $e2$  émis augmente rapidement et de manière quasi-linéaire (toujours selon l'échelle semi-logarithmique choisie) entre les intensités  $1\ 10^{16}\ \text{W.cm}^{-2}$  à  $1\ 10^{17}\ \text{W.cm}^{-2}$  pour saturer à 7.5 électrons en moyenne par atome. À plus haute intensité, nous devrions nous attendre à ce que quelques électrons du niveau  $1s$  soient ionisés et émis. Cette ionisation serait liée essentiellement à l'effet d'un champ local puisque l'intensité d'ionisation par suppression de barrière attendue pour ce niveau, soit  $4\ 10^{17}\ \text{W.cm}^{-2}$ , n'est pas atteinte par le laser (son intensité est limitée en deçà du régime relativiste à  $1\ 10^{17}\ \text{W.cm}^{-2}$ ). Elle est cependant peu probable étant donnée que l'énergie de liaison des électrons du niveau  $1s$  est largement séparée de  $\simeq 1\ \text{keV}$  de celle des électrons  $2s$ . L'hypothèse d'un plateau d'émission totale abordé de manière asymptotique au delà de  $6\ 10^{16}\ \text{W.cm}^{-2}$  paraît ainsi raisonnable.

### 3.3.5.2 Ionisation des électrons $e2$ : explosion coulombienne

La figure 3.12 met clairement en évidence l'intensité à partir de laquelle les électrons  $e2$  sont émis. À partir de cette intensité, ceux-ci sont émis bien après l'ensemble des électrons de conduction, et chaque ion de l'agrégat est chargé au moins une fois. Nous pouvons donc nous attendre à ce que l'agrégat explose de manière coulombienne. Avant de décrire les caractéristiques énergétiques de l'une de ces explosions, décrivons quelques aspects de la dynamique de formation des ions et regardons pour cela l'évolution au cours du temps des populations électroniques et ioniques suivies respectivement sur les figures 3.13 et 3.14 pour une intensité de  $1\ 10^{16}\ \text{W.cm}^{-2}$ .

**Émission électronique** La figure 3.13 retrace l'évolution temporelle des nombres d'électrons  $e1$  (trait plein) et  $e2$  émis (trait pointillé). Le schéma d'émission, tel que constaté d'une émission des électrons  $e1$  suivie de celle des électrons  $e2$ , porte la signature en filigrane d'une ionisation préalable par suppression de barrière, mécanisme attendu pour l'intensité considérée de  $1\ 10^{16}\ \text{W.cm}^{-2}$ . En effet, l'ionisation par suppression de barrière est un processus qui dépend de l'intensité laser, de sorte qu'elle n'est possible que lorsque un certain seuil est atteint. Comme l'intensité laser croît depuis le temps  $t = 0\ \text{fs}$  jusqu'au temps  $t \simeq 40\ \text{fs}$ , les électrons  $e1$  moins liés que les électrons  $e2$  sont émis en premier : le nombre d'électrons  $e1$  émis croît rapidement à partir de l'instant  $t \simeq 10\ \text{fs}$  et atteint de manière asymptotique l'émission totale des électrons  $e1$  dès  $30\ \text{fs}$ , alors même que l'intensité maximale du laser n'est pas atteinte.

Il est intéressant de constater que la durée d'émission des électrons  $e2$  est relativement centrée autour du maximum du pulse laser : l'émission qui semble possible dès l'instant  $t \simeq 30\ \text{fs}$  atteint de manière quasi exponentielle son maximum de 44 électrons émis à l'instant  $t \simeq 50\ \text{fs}$ , moment où l'intensité qui décroît symétriquement depuis l'instant  $t \simeq 40\ \text{fs}$  atteint une valeur similaire de celle de l'instant  $t \simeq 30\ \text{fs}$ . Ceci confirme l'hypothèse d'une ionisation par suppression de barrière pour les électrons  $e2$ , écartant

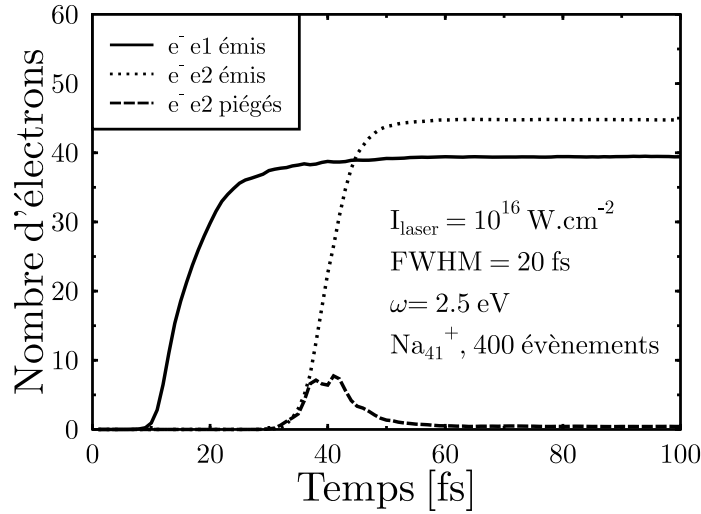


FIG. 3.13: Évolution temporelle du nombre d'électrons  $e1$  émis (courbe trait plein), du nombre d'électrons  $e2$  émis (courbe en trait pointillé) et du nombre d'électrons  $e2$  ionisés encore piégés à l'intérieur de l'agrégat (courbe en trait tireté).

ainsi l'hypothèse d'une ionisation résonante avec le mode de rappel aux ions à la fréquence  $\omega_{e2} \simeq 42.7$  eV, qui ne peut pas être excitée pour la fréquence laser choisie  $\omega_{las} = 2.5$  eV.

Les électrons  $e2$  ionisés, néanmoins encore piégés à l'intérieur de l'agrégat, sont représentés en trait tireté sur cette même figure. Leur nombre est évalué comme la différence du nombre d'électrons  $e2$  total, au nombre d'électrons  $e2$  se trouvant à proximité d'un ion, soit dans une sphère de rayon  $0.75 R_{WS}$ , avec pour rayon de Wigner-Seitz  $R_{WS} = 3.96$  bohr. Un électron ionisé pour 30 émis au maximum du pulse reste piégé : il est confiné par la barrière de potentiel en surface, qui est proportionnelle à la charge de l'agrégat (confer l'équation 2.16 page 36). Ce confinement ne dure que « l'espace d'un instant », l'expansion ionique de l'agrégat entraînant l'émission de la totalité des électrons au temps  $t \simeq 50$  fs ; l'énergie acquise par les électrons ionisés lorsqu'ils sont piégés suffit donc pour qu'ils ne soient pas de nouveau capturés par un ion lors de l'expansion (celle-ci ayant pour effet de refroidir les particules).

**Charge ionique** L'évolution temporelle de la charge ionique apparaît sur la figure 3.14. La charge de chaque ion compte le nombre des électrons  $e2$  se situant dans une sphère centrée sur l'ion et de rayon  $0.75 R_{WS}$ . Elle peut être mise en correspondance directe avec l'émission électronique précédente (figure 3.13), mais n'est significative qu'à partir du moment où tous les électrons  $e1$  sont émis. En effet, d'initialement neutre l'état de charge  $1+$  est peuplé aux dépens des électrons  $e1$ , de sorte que la totalité des atomes n'est ionisée une fois qu'à partir de l'instant  $t \simeq 30$  fs. Les électrons  $e2$  sont ensuite progressivement ionisés.

Évoluant conjointement très rapidement autour du maximum du pulse, les états de charge définitifs sont atteints dès l'instant  $t \simeq 50$  fs. Les ions sont majoritairement chargés  $2+$ . Les états de charge maximaux atteints, soit  $4+$  et  $5+$  ne représentent respectivement que 293 et 15 ions pour 400 événements réalisés, et il n'est donc pas évident que ces

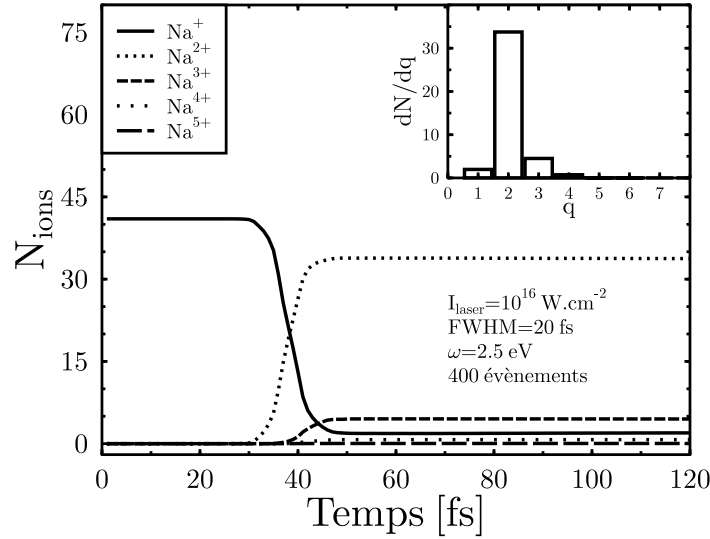


FIG. 3.14: Évolution temporelle des différentes charges ioniques comptant les électrons  $e2$ . **En encart** : distribution de charge correspondante mesurée à l'instant  $t = 120$  fs (en abscisse, état de charge ionique; en ordonnée nombre d'ions pour un état de charge donné).

états de charge soit atteints pour chaque distribution ionique initiale; en revanche, au moins un ion par évènement reste ionisé une fois. Ceci entraîne qu'une estimation de l'état de charge final en fonction de l'intensité laser crête supposant l'ionisation par suppression de barrière, légitime en première approximation, appelle prudence car elle ne peut correspondre à l'ensemble des ions. Les disparités de champ local assurent la subsistance de quelques ions dont aucun électron  $e2$  n'est ionisé, mais participent aussi probablement des états de charge plus élevés que  $2+$ .

L'encart de la figure 3.14 représente les états de charge asymptotiques précédents à l'instant  $t = 120$  fs sous une forme plus compatible avec la littérature expérimentale [7]. Cette distribution du nombre d'ions en fonction de la charge ionique est clairement piquée autour de l'état de charge  $2+$ .

**Spectres énergétiques** Intéressons nous maintenant à l'explosion de l'agrégat  $\text{Na}_{41}^+$ , qui a pour cause la rupture au-delà de l'équilibre électrostatique. La figure précédente indique que tous les électrons ionisés sont émis : chaque atome chargé au moins une fois est repoussé sous l'effet de l'interaction électrostatique avec les autres ions. La formation de petits agrégats composés de deux atomes voire plus, dont la cohésion serait assurée par des électrons délocalisés, est impossible, et l'agrégat se fragmente sous la forme d'ions indépendants. Pendant l'explosion coulombienne, l'énergie potentielle des ions diminue au profit de leur énergie cinétique.

Sur la figure 3.15, les spectres énergétiques des ions issus de l'explosion sont présentés à l'instant  $t = 120$  fs en fonction des états de charge  $q = 1+$  à  $q = 4+$ . Ils mesurent l'énergie cinétique des ions à un instant de l'explosion suffisamment grand pour que celle-ci ait presque atteint sa valeur asymptotique, soit lorsque la vitesse d'expansion de l'agrégat devient constante. Le rendement de l'état de charge  $\text{Na}^{2+}$  est plus grand



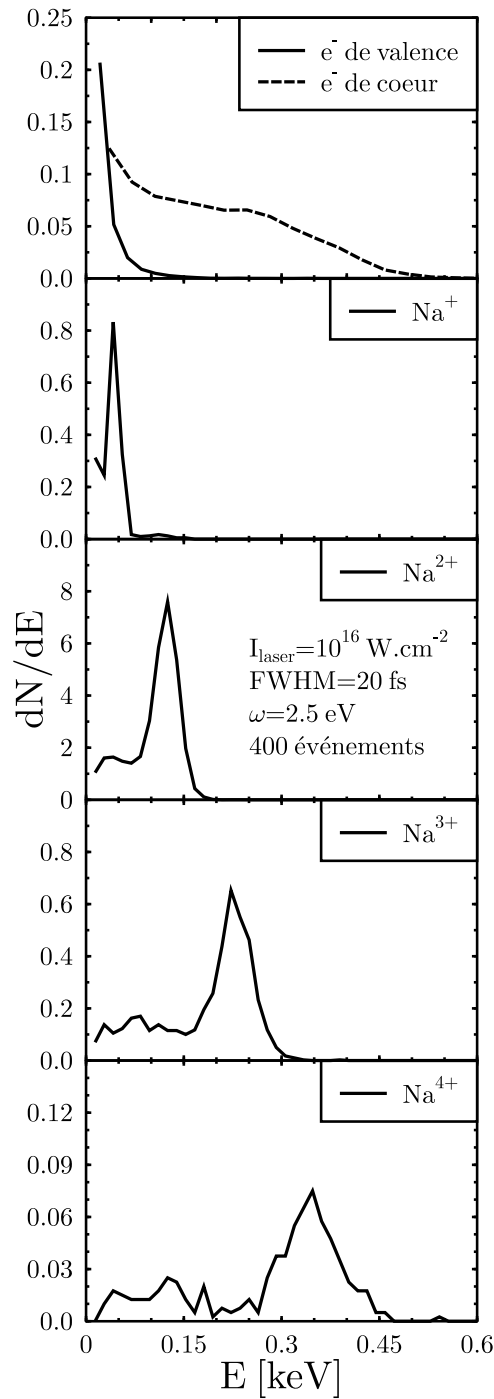


FIG. 3.15: **Cadre supérieur** : Spectres énergétiques des électrons  $e1$  (trait plein) et  $e2$  (trait tireté) mesurés à l'instant  $t = 120$  fs. **Cadres suivants** : Spectres énergétiques des ions décomposés pour chaque état de charge de  $q = 1+$  à  $q = 4+$  comptant les électrons  $e2$  et mesurés à l'instant  $t = 120$  fs.

que les autres états de charge conformément aux constatations de la figure précédente. Le spectre présente un pic de rendement maximal pour une énergie de  $E_i \simeq 0.135$  keV. Il présente cependant un plateau entre les énergies  $E_i \simeq 0 - 0.1$  keV, de sorte que la valeur moyenne du spectre  $\langle E_i \rangle = 116.37$  eV est légèrement inférieure à cette valeur. Cette énergie est très bien reproduite théoriquement en considérant que l'expansion de l'agrégat est autosimilaire. L'énergie moyenne vaut dans ce modèle [89, 90, 91]

$$\langle E_i \rangle = \frac{3}{10} m_i v_{exp}^2 \quad (3.14)$$

Pour une vitesse d'expansion radiale  $v_{exp} \simeq 0.763$  bohr.fs<sup>-1</sup> et une masse ionique  $m_i = 666.79$  eV.fs<sup>2</sup>.bohr<sup>-2</sup>, cette énergie vaut  $\langle E \rangle \simeq 116.45$  eV.

Sur la figure 3.15 sont également présentés les spectres énergétiques discernés des électrons  $e1$  et  $e2$  émis à l'instant  $t = 120$  fs. Les électrons de conduction  $e1$  sont émis dès les 30 premières femtosecondes, lorsque l'agrégat est encore froid, et leur énergie moyenne est faible, soit  $\langle E_{e1} \rangle \simeq 21$  eV. Les électrons  $e2$  ont pour origine des niveaux énergétiques plus profonds et sont émis à proximité du maximum du champ, lorsque l'agrégat est plus chaud. Quelques-uns peuvent atteindre l'énergie  $E_{e2} \simeq 0.6$  keV. Leur énergie moyenne vaut  $\langle E_{e2} \rangle \simeq 184$  eV.

## 3.4 Vers une application au xénon et à l'argon

Nous présentons ci-après une application du modèle de dynamique moléculaire précédent à des agrégats de gaz rare, soit de xénon et d'argon.

### 3.4.1 Choix des paramètres et stabilité

Les couches électroniques des gaz rares sont saturées en électrons, et la cohésion de l'agrégat est assurée par des forces de Van der Waals d'origine dipolaire. Nous nous proposons cependant de paramétrer le potentiel défini par l'équation 3.3 (page 58) ayant permis de décrire un agrégat de sodium, pour des agrégats de xénon et d'argon. Nous décrivons les 8 électrons les moins liés, soit ceux situés sur les niveaux  $5s$  et  $5p$  pour le xénon et  $3s$  et  $3p$  pour l'argon. Les 6 électrons de niveau  $p$  et les 2 électrons de niveau  $s$  sont dénommés respectivement électrons  $e1$  et  $e2$ .

| Élément | Largeurs [bohr] |               |            | Énergies [eV] |            | Rayon orbites [bohr] |            |
|---------|-----------------|---------------|------------|---------------|------------|----------------------|------------|
|         | $\sigma_{e1}$   | $\sigma_{e2}$ | $\sigma_i$ | Niveau $p$    | Niveau $s$ | Niveau $p$           | Niveau $s$ |
| Xe      | 1.8             | 1.1           | 1.7        | -12.7         | -23.3      | 1.08                 | 0.58       |
| Ar      | 1.5             | 0.9           | 1.4        | -15.8         | -29.3      | 0.86                 | 0.46       |

TAB. 3.1: Paramètres utilisés afin de reproduire la structure atomique des agrégats de xénon et d'argon.

Nous suivons la procédure de détermination des largeurs de potentiel présentée à la section 3.3.1.1 page 69, en privilégiant la gamme des petits paramètres pour respecter

la structure en couche fermée des gaz rares. Les valeurs retenues sont présentées dans le tableau 3.1 page précédente. Figurent également dans ce tableau :

- les énergies choisies pour les niveaux  $s$  et  $p$  d'après [92, 93],
- le rayon des orbites de Bohr équivalentes sur lesquelles sont distribués les électrons, et correspondant à ces énergies.

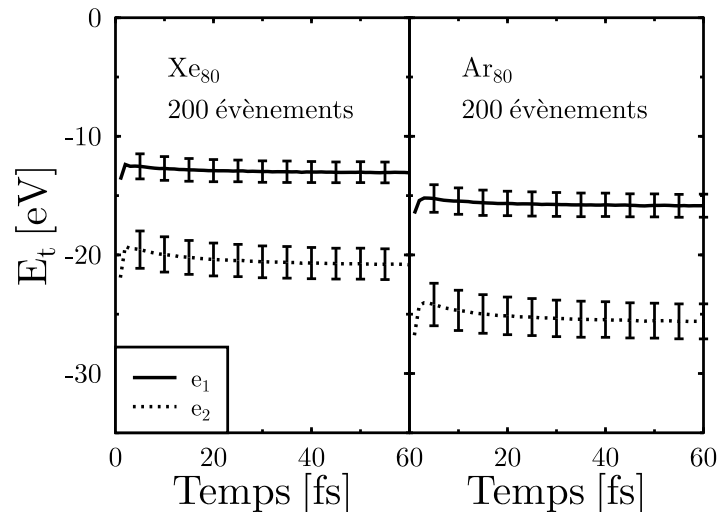


FIG. 3.16: Évolution temporelle de l'énergie totale des électrons  $e1$  et  $e2$  représentée respectivement pour le xénon et l'argon.

La figure 3.16 présente l'évolution temporelle de l'énergie totale moyenne de l'ensemble des électrons  $e1$  et  $e2$  pour les deux types d'agrégats. Les différents niveaux énergétiques fluctuent de quelques eV pendant les 20 premières femtosecondes, puis se stabilisent dans les barres d'incertitude aux énergies attendues.

Notons qu'aucun électron n'est émis, ce quel que soit le type d'agrégat ; le rayon initial diminue de 0.05 bohr pour le xénon, et de 0.2 bohr pour l'argon, pendant les 200 premières femtosecondes (avec une incertitude de 0.01 bohr pour 200 évènements dans les deux cas).

Envisageons maintenant de soumettre l'agrégat à une excitation laser.

### 3.4.2 Systématique en intensité

La figure 3.17 page suivante représente l'évolution du nombre d'électrons émis à l'instant  $t = 200$  fs pour des agrégats de 80 atomes en fonction de l'intensité de l'excitation laser dans une gamme variant de  $I = 1.10^{11}$  W.cm $^{-2}$  à  $I = 1.10^{17}$  W.cm $^{-2}$ . La contribution des électrons  $e1$  et  $e2$  à la charge totale est représentée respectivement en traits pointillé et tireté. Les évolutions sont comparables pour les deux types d'agrégats. L'intensité seuil à partir de laquelle les électrons commencent à être émis diffère légèrement : elle est inférieure pour l'agrégat de xénon à celle de l'agrégat d'argon, car les électrons  $e1$  du xénon sont moins liés que ceux de l'argon. La totalité des électrons est ensuite émise sur un ordre de grandeur en intensité. La pente d'émission semble changer légèrement à  $10^{14}$  W.cm $^{-2}$  pour le xénon, et  $4 \cdot 10^{15}$  W.cm $^{-2}$  pour l'argon.

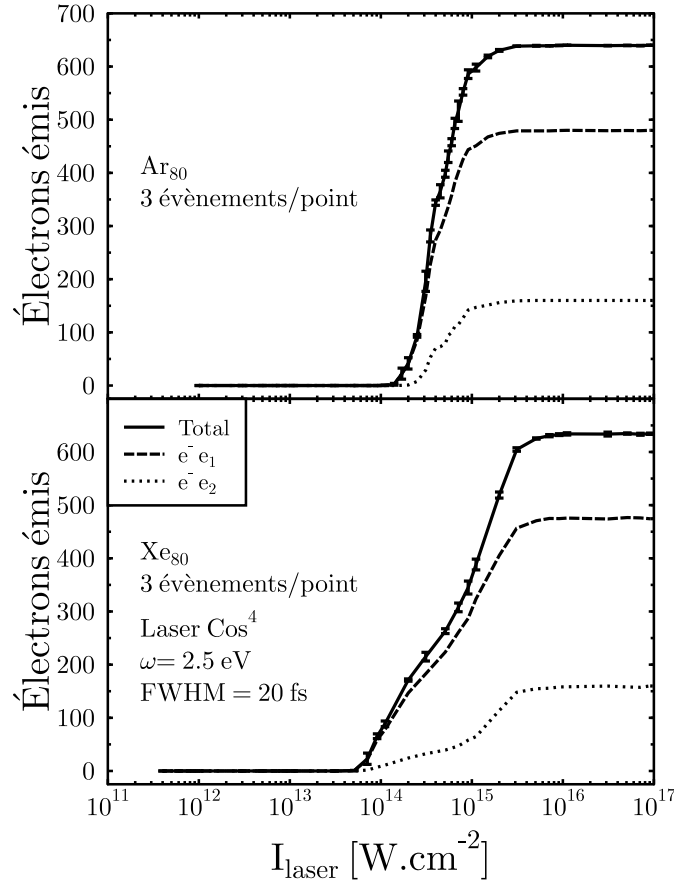


FIG. 3.17: Évolutions du nombre d'électrons émis en fonction de l'intensité laser. Les contributions des électrons  $e_1$  et  $e_2$  à l'émission totale (en trait plein) sont représentées respectivement en trait tireté et pointillé. Chaque cadre correspond à un type d'agrégat de gaz rare différent, soit le xénon (**partie inférieure**) et l'argon (**partie supérieure**).

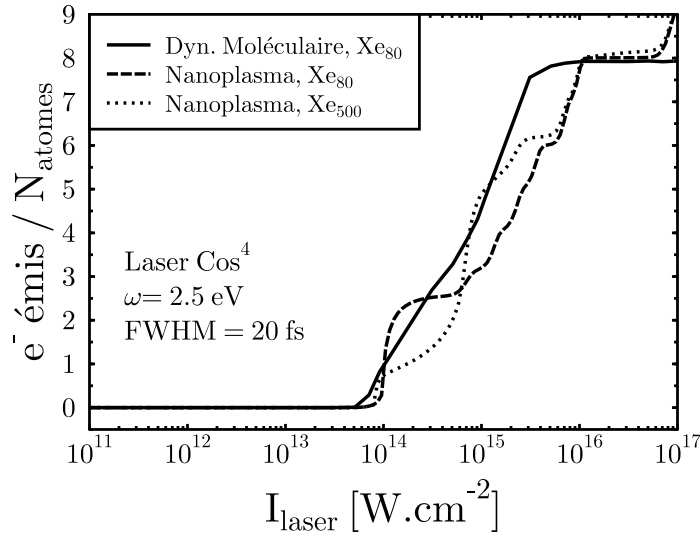


FIG. 3.18: Comparaison entre le modèle de dynamique moléculaire et la modèle nanoplasma des évolutions du nombre d'électrons émis en fonction de l'intensité laser, normalisées au nombre d'atome par agrégat. La courbe en trait plein est identique à celle de la partie inférieure de la figure précédente. Les évolutions du modèle nanoplasma sont réalisées dans les mêmes conditions d'irradiation pour un agrégat de 500 atomes (trait tireté) et 80 atomes (trait pointillé).

**Vers une comparaison avec le modèle nanoplasma** Sur la figure 3.18 est présentée une comparaison avec le modèle nanoplasma de l'évolution du nombre d'électrons émis en fonction de l'intensité laser, après normalisation du nombre d'électrons émis par le nombre d'atomes, pour un agrégat de xénon. Les évolutions du modèle nanoplasma sont réalisées dans les mêmes conditions d'irradiation que précédemment pour un agrégat de 500 atomes (trait tireté) et 80 atomes (trait pointillé). La taille d'agrégat de 500 atomes est choisie pour montrer la forme de la transition vers la taille de 80 atomes.

Il est surprenant que l'évolution présentée pour le modèle nanoplasma suive en comparaison celle du modèle de dynamique moléculaire. Rappelons que le modèle nanoplasma reste un modèle macroscopique reposant entre autres sur des hypothèses de densité uniforme, d'absence de gradient de température, et de thermalisation instantanée des électrons du nanoplasma. La comparaison est d'autant plus inattendue pour des petits agrégats que le nombre d'atomes qui se situent en surface par rapport à ceux en volume augmente lorsque la taille d'agrégat diminue, en défaveur des hypothèses du nanoplasma.

# Conclusion et perspectives

Ce travail de thèse s'est intéressé à la description de l'interaction de lasers dans un large domaine d'éclairements de  $10^{11}$  à  $10^{17}$  W.cm<sup>-2</sup> avec des agrégats de grande taille, de quelques 100 à plusieurs milliers d'atomes. Celle-ci a d'abord été abordée par l'intermédiaire du modèle nanoplasma, modèle phénoménologique unidimensionnel, puis par des simulations microscopiques de type dynamique moléculaire tri-dimensionnelles.

Le code nanoplasma décrit l'interaction à l'aide d'équations de taux concernant le rayon de l'agrégat, les différentes populations ioniques, la température électronique ainsi que le nombre d'électrons piégés, qui constituent le nanoplasma, et du nombre d'électrons qui s'échappent. Le champ électrique interne diffère du champ laser externe de par l'effet de polarisation du nanoplasma. Ce champ interne pilote l'absorption d'énergie et donc l'état d'ionisation des différents atomes de l'agrégat. Lorsque le nanoplasma entre en résonance avec le champ laser, le champ interne est largement amplifié. Nous avons constaté que cette amplification semble largement surestimée dans le modèle original de T.Ditmire *et al.* lors de la seconde résonance, particulièrement lorsque celle-ci a lieu à proximité du maximum de l'enveloppe temporelle du champ. Nous avons mis en évidence que cette forte amplification est liée à la diminution à résonance du nombre de collisions électron-ion, de manière auto-cohérente du champ interne.

Nous avons proposé une modification du code nanoplasma qui tienne compte de la limitation du libre parcours moyen électronique par l'intermédiaire de collisions avec la surface. La prise en compte de ce terme d'amortissement avec la surface limite l'amplification de la seconde résonance, et les états de charge ioniques observés semblent compatibles avec les évidences expérimentales pour des agrégats de xénon. Deux composantes émergent du spectre énergétique des électrons émis, l'une correspondant aux électrons thermiques émis avant résonance, l'autre à ceux émis pendant et après la seconde résonance. Les différentes pressions hydrodynamiques et coulombiennes évoluent au cours du temps à l'avantage de cette dernière, qui pilote l'explosion finale. Les évolutions de la charge ionique moyenne et de la charge de l'agrégat avec la taille ainsi que l'éclairement laser sont comprises en termes de position et d'amplitude de la seconde résonance.

Un code de dynamique moléculaire robuste à trois dimensions a été mis en oeuvre afin d'accéder à une description plus microscopique de l'interaction laser-agrégat. La profondeur du potentiel coulombien mou utilisé est paramétrable, et choisie afin de reproduire les niveaux d'énergie des électrons d'un atome, dans une image «à l'atomistique». Dans un premier temps, nous avons seulement modélisé les électrons de conduction ainsi que les ions d'un agrégat de sodium de 41 atomes. L'agrégat est stable par la dynamique en l'absence de toute excitation extérieure. La réponse optique est bien reproduite : dans le cas d'un déplacement collectif initial unidirectionnel par rapport aux ions, le nuage des électrons de valence retourne à sa position d'équilibre à la fréquence de Mie attendue

pour le potentiel coulombien mou choisi.

Pour un éclairage laser de  $6 \cdot 10^{11} \text{ W.cm}^{-2}$ , le nombre d'électrons émis en fonction de la pulsation laser exhibe un pic à la fréquence de Mie observée précédemment. Cette évidence se compare avantageusement en termes qualitatifs mais aussi quantitatifs aux résultats obtenus pour les mêmes conditions d'irradiation dans un traitement semi-classique par l'équation VUU. La conséquence de cette correspondance est double. Elle assure que la description de l'interaction laser-agrégat à faible éclairage par une dynamique moléculaire adaptée est légitime. A contrario elle constitue une validation du choix du noyau de collisions Ühling-Uhlenbeck pour restituer les corrélations dynamiques dans l'équation champ moyen Vlasov-LDA — la dynamique moléculaire prenant compte *par nature* de l'ensemble des corrélations à n-corps.

Dans un second temps, nous avons considéré les niveaux 2s et 2p du sodium, avec un choix de largeur de potentiel spécifiquement adapté, de sorte que soit reproduite la structure en couche de l'atome. La prise en compte de ces électrons s'est avérée ne modifier ni la réponse optique des électrons de valence, ni le comportement de l'émission électronique en fonction de la fréquence pour un éclairage de  $6 \cdot 10^{11} \text{ W.cm}^{-2}$ . Nous avons observé pour un éclairage de  $6 \cdot 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$  un comportement progressivement dépendant en intensité, sans que les électrons de coeur ne participent de l'émission finale. L'évolution du nombre d'électrons émis en fonction de l'intensité met en évidence que l'ensemble des électrons de valence est progressivement émis jusqu'à une intensité de  $5 \cdot 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ , avant que les électrons de coeur ne suivent. Pour une intensité de  $10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$ , plus aucun électron de coeur ne subsiste. Pour une intensité de l'ordre de  $10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ , la distribution de charge obtenue est dominée par un état de charge 2+, avec quelques ions pour 400 événements atteignant une charge 5+. L'explosion ionique de type coulombien est autosimilaire.

Pour conclure, les largeurs de potentiel du modèle de dynamique moléculaire sont paramétrées de sorte qu'elles puissent reproduire des agrégats de gaz rare. Les propriétés statiques de ces agrégats sont stables, et l'émission électronique en fonction de l'intensité laser comparée avec le modèle nanoplasma.

Le modèle nanoplasma présente l'inconvénient de ne pas donner accès à certaines propriétés individuelles intéressantes des ions, comme par exemple leur énergie cinétique, de par son caractère macroscopique, ou leur angle d'éjection par rapport à la direction de polarisation du laser, de par son caractère unidimensionnel. Il n'est par ailleurs pas possible de connaître la distribution spatiale des états de charge dans l'agrégat, le modèle en supposant la répartition uniforme. Renseignant sur des observables moyennes, il ne donne pas accès aux événements rares. Ces contraintes interdisent une comparaison fine avec certaines expériences (en termes quantitatifs, mais parfois aussi, qualitatifs), et le modèle de dynamique moléculaire proposé constituerait une alternative de choix au modèle nanoplasma pour des agrégats de xénon.

Une perspective d'application immédiate concerne donc la réalisation de simulations de dynamique moléculaire systématiques pour de plus grandes tailles d'agrégats, ou des durées de pulse laser différentes, pour comparaison avec les résultats expérimentaux. La nécessité de l'exécution d'un grand nombre d'événements, pour la pertinence du modèle, mais aussi un meilleur accès aux événements rares, constitue un facteur de temps limitant supplémentaire de celui lié à l'augmentation du nombre d'atomes par agrégat. Il apparaît donc indispensable de réduire le temps d'exécution d'un événement, en portant par exemple le code sur des machines parallèles.

# Annexe A

## Calcul des taux d'ionisation $W_j^{kT_e}$ et $W_j^{las}$

Nous détaillons ici les calculs menant aux expressions finales des taux d'ionisation par collision thermique  $W_j^{kT_e}$  (équation 2.11 page 35) et dans le champ laser  $W_j^{las}$  (équation 2.12 page 35), guidés dans notre démarche par les indications de T.Ditmire *et al.*[1].

### A.1 Taux d'ionisation par collision thermique $W_j^{kT_e}$

Évaluons le taux d'ionisation par collision thermique (équation 2.8)

$$W_j^{kT_e} = n_e \langle \sigma_j v_{kT_e} \rangle_{\text{distribution vitesses}} \quad (\text{A.1})$$

pour une vitesse thermique des électrons  $v_{kT_e}$ . La moyenne  $\langle \sigma_j v_{kT_e} \rangle$  correspond à la moyenne sur la distribution des vitesses maxwellienne  $h(v)$ , avec :

$$h(v) = \left( \frac{m_e}{2\pi kT_e} \right)^{\frac{3}{2}} \exp \left( -\frac{m_e v^2}{2kT_e} \right), \quad (\text{A.2})$$

soit :

$$\langle \sigma_j v_{kT_e} \rangle = \iiint_v \sigma_j v h(v) d^3v. \quad (\text{A.3})$$

Le nanoplasma étant à symétrie sphérique, le taux  $W_j^{kT_e}$  devient :

$$W_j^{kT_e} = 2\pi n_e \int_{v_{min}}^{\infty} \sigma_j v^3 h(v) dv. \quad (\text{A.4})$$

La borne inférieure  $v_{min}$  est imposée par la condition que seuls les électrons ayant une énergie cinétique supérieure ou égale au potentiel d'ionisation de l'ion ou atome, peuvent l'ioniser. On a alors  $\epsilon_{min} = I_p$ , soit :

$$\frac{1}{2} m_e v_{min}^2 = I_p. \quad (\text{A.5})$$



D'où :

$$W_j^{kT_e} = n_e \left( \frac{m_e}{2\pi kT_e} \right)^{\frac{3}{2}} a_j q_j \int_{\sqrt{\frac{2I_p}{m_e}}}^{\infty} \frac{\ln\left(\frac{\epsilon}{I_p}\right)}{\epsilon I_p} v^3 \exp\left(-\frac{m_e v^2}{2kT_e}\right) dv. \quad (\text{A.6})$$

Le changement de variable :

$$x = \frac{m_e v^2}{2kT_e}, \quad dx = \frac{m_e}{kT_e} dv \quad (\text{A.7})$$

conduit après intégration par parties au résultat final de l'équation 2.11 :

$$W_j^{kT_e} = n_e \frac{2\sqrt{2}}{\sqrt{\pi m_e kT_e}} \frac{a_j q_j}{I_p} \int_{\frac{I_p}{kT_e}}^{\infty} \frac{\exp(-x)}{x} dx \quad (\text{A.8})$$

où l'intégrale

$$\int_{\frac{I_p}{kT_e}}^{\infty} \frac{\exp(-x)}{x} dx \quad (\text{A.9})$$

s'identifie à l'intégrale exponentielle d'ordre 1.

## A.2 Taux d'ionisation dans le champ laser $W_j^{las}$

Évaluons le taux d'ionisation dans le champ laser (équation 2.9)

$$W_j^{las} = n_e \langle \sigma_j v_{osc} \rangle_{\text{période optique}} \quad (\text{A.10})$$

pour un électron oscillant à la vitesse  $v_{osc}$  dans le champ laser. La moyenne  $\langle \sigma_j v_{osc} \rangle$  consiste donc en une moyenne sur un cycle optique de période  $T$  du laser :

$$\langle \sigma_j v_{osc} \rangle = \frac{1}{T} \int \sigma_j v_{osc} dt. \quad (\text{A.11})$$

Les bornes d'intégration, classiquement  $t = [0, 2\pi]$ , seront adaptées par la suite aux conditions sur l'énergie cinétique des électrons.

La vitesse d'oscillation  $v_{osc}$  est définie à partir de la relation fondamentale de la dynamique :

$$m_e \frac{dv_{osc}(t)}{dt} = qE(t), \quad (\text{A.12})$$

avec  $E(t) = E_{int}(t) \cos(\omega t)$  le champ ressenti par les électrons à l'intérieur du nanoplasma.

Si nous considérons  $E_{int}(t)$  constant sur l'intervalle d'intégration de la valeur moyenne  $\langle \sigma_j v_{osc} \rangle$ , étant donnée l'enveloppe gaussienne lentement variable du champ externe, une primitive de l'équation A.12 donne :

$$v_{osc}(t) = \frac{eE_{int}(t)}{m_e \omega} |\sin(\omega t)|, \quad (\text{A.13})$$

la valeur absolue étant imposée par une vitesse d'oscillation toujours positive —  $E_{int}(t)$  toujours positif. La fonction  $|\sin(\omega t)|$  ayant une période deux fois plus petite que la fonction  $\sin(\omega t)$ , la moyenne devient :

$$\langle \sigma_j v_{osc} \rangle = \frac{2}{T} \int \sigma_j \frac{eE_{int}}{m_e \omega} \sin(\omega t) dt. \quad (\text{A.14})$$

Effectuons le changement de variable commode :

$$\phi = \omega t, \quad d\phi = \omega dt \quad (\text{A.15})$$

avec  $\omega = 2\pi/T$ , et  $\phi$  la phase. Le taux  $W_j^{las}$  s'écrit alors :

$$W_j^{las} = n_e \frac{a_j q_j}{\pi} \frac{e E_{int}}{m_e \omega} \int \frac{\ln\left(\frac{\epsilon}{I_p}\right)}{\epsilon I_p} \sin \phi d\phi. \quad (\text{A.16})$$

L'énergie cinétique  $\epsilon$  et la phase  $\phi$  sont reliées par  $\epsilon = m_e v_{osc}^2/2$  ce qui permet de poser le nouveau changement de variable :

$$\epsilon = 2 U_p \sin^2 \phi, \quad d\epsilon = 4 U_p \sin \phi \cos \phi d\phi \quad (\text{A.17})$$

soit :

$$\sin \phi d\phi = \frac{d\epsilon}{4 U_p \left(1 - \frac{\epsilon}{2 U_p}\right)^{\frac{1}{2}}}, \quad (\text{A.18})$$

où  $U_p = \frac{e^2 E_{int}^2}{4 m_e \omega^2}$  est appelé le potentiel pondéromoteur.

L'équation A.16 devient :

$$W_j^{las} = n_e \frac{a_j q_j}{2\pi I_p} \frac{1}{\sqrt{m_e U_p}} \int_{E_{min}}^{E_{max}} \frac{\ln\left(\frac{\epsilon}{I_p}\right)}{\epsilon} \frac{d\epsilon}{\sqrt{1 - \frac{\epsilon}{2 U_p}}}. \quad (\text{A.19})$$

$E_{min}$  correspond à l'énergie minimum que doit avoir l'électron pour ioniser l'atome ou ion de potentiel d'ionisation  $I_p$ , soit  $E_{min} = I_p$ .  $E_{max}$  correspond à l'énergie cinétique maximale que peut acquérir l'électron dans le champ laser :

$$E_{max} = \max_{\phi}(\epsilon = 2 U_p \sin^2 \phi), \quad (\text{A.20})$$

soit  $E_{max} = 2 U_p$ . D'où :

$$W_j^{las} = n_e \frac{a_j q_j}{2\pi I_p} \frac{1}{\sqrt{m_e U_p}} \int_{I_p}^{2 U_p} \frac{\ln\left(\frac{\epsilon}{I_p}\right)}{\epsilon} \frac{d\epsilon}{\sqrt{1 - \frac{\epsilon}{2 U_p}}}. \quad (\text{A.21})$$

L'intégration de l'équation A.21 conduit à une fonction hypergéométrique. T.Ditmire *et al.* préfèrent l'intégrer en remarquant que l'intégrale est maximum pour :

$$\ln\left(\frac{\epsilon}{I_p}\right) = 0, \quad (\text{A.22})$$

soit  $\epsilon = I_p$  ce qui permet d'effectuer le développement limité du logarithme au voisinage de  $1 - \frac{I_p}{\epsilon}$  à l'ordre 2, soit

$$\ln\left(\frac{\epsilon}{I_p}\right) \simeq \frac{3}{2} - 2 \frac{I_p}{\epsilon} + \frac{1}{2} \left(\frac{I_p}{\epsilon}\right)^2. \quad (\text{A.23})$$

Cette approximation est valable dans un intervalle  $[I_p; 2U_p]$ , et :

$$W_j^{las} = n_e \frac{a_j q_j}{2\pi I_p} \frac{1}{\sqrt{m_e U_p}} \int_{I_p}^{2U_p} \left( \frac{3}{2\epsilon} - 2\frac{I_p}{\epsilon^2} + \frac{1}{2} \frac{I_p^2}{\epsilon^3} \right) \frac{d\epsilon}{\sqrt{1 - \frac{\epsilon}{2U_p}}}. \quad (\text{A.24})$$

L'intégration à l'aide des formules du *Handbook of chemistry and physics* [94] donne l'expression finale de l'équation 2.12 soit :

$$W_j^{las} = n_e \frac{a_j q_j}{4\pi I_p} \frac{1}{\sqrt{m_e U_p}} \times \left\{ \left[ 3 - \frac{I_p}{U_p} + \frac{3}{32} \left( \frac{I_p}{U_p} \right)^2 \right] \ln \left( \frac{1 + \sqrt{1 - \frac{I_p}{2U_p}}}{1 - \sqrt{1 - \frac{I_p}{2U_p}}} \right) - \left( \frac{7}{2} - \frac{3I_p}{8U_p} \right) \sqrt{1 - \frac{I_p}{2U_p}} \right\}. \quad (\text{A.25})$$

## Annexe B

# Calcul de la charge de l'agrégat ou «free streaming»

Toujours guidés dans notre démarche par les indications de T.Ditmire *et al.*[1], évaluons le taux de «free streaming», soit le nombre d'électrons qui quittent l'agrégat au cours du temps (équation 2.14 page 36) :

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = W^{fs} = \int_S n_e \mathbf{v} d\mathbf{S}. \quad (\text{B.1})$$

La distribution des vitesses étant considérée comme isotrope, il existe toujours un couple de vitesses ayant des composantes vectorielles orthogonales à  $d\mathbf{S}$  égales et opposées, d'où :

$$W^{fs} = \langle n_e v \rangle \int_{\text{sphère}} dS, \quad (\text{B.2})$$

soit

$$W^{fs} = 4\pi R^2 \langle n_e v \rangle, \quad (\text{B.3})$$

avec  $n_e = N_e/V$  densité volumique telle que  $N_e$ , nombre d'électrons à même de traverser la surface et  $R$ , rayon du nanoplasma qui définit le volume<sup>1</sup>  $V = 4\pi R^3/3$ .  $\langle \rho v \rangle$  est la valeur moyenne sur la fonction de distribution statistique de Maxwell. Cette valeur moyenne s'écrit en toute généralité

$$\langle Nv \rangle = \iiint_r \iiint_v v f(r, v) d^3v d^3r, \quad (\text{B.4})$$

$f(r, v) = g(r) \times h(v)$ , fonction séparable avec  $g(r) = n_e$  et  $h(v)$  définie par l'équation A.2. L'intégrale B.4 peut donc s'écrire comme le produit de deux intégrales indépendantes  $I_1$  et  $I_2$ , l'intégrale sur les vitesses pouvant être réduite selon les hypothèses d'isotropie, soit :

$$\langle Nv \rangle = \underbrace{\int_v 4\pi v^2 v h(v) dv}_{I_1} \underbrace{\iiint_r n_e d^3r}_{I_2}. \quad (\text{B.5})$$

---

<sup>1</sup>En toute rigueur, le volume choisi devrait être celui de la couronne sphérique d'épaisseur  $\lambda_e$ , qui seule regarde le flux, soit  $V = (4/3)\pi(R^3 - (R - \lambda_e)^3)$ .

## Calcul de $I_1$

La contrainte sur l'énergie cinétique des électrons impose de borner l'intégrale  $I_1$  au domaine  $[v_{esc}; \infty[$ , où  $v_{esc}$  est mis pour vitesse d'échappement. D'où :

$$I_1 = \int_{v_{esc}}^{\infty} 4\pi v^3 \left( \frac{m_e}{2\pi k T_e} \right)^{\frac{3}{2}} \exp \left( -\frac{m_e v^2}{2k T_e} \right) dv. \quad (\text{B.6})$$

Le changement de variable :

$$X^2 = \frac{m_e v^2}{2k T_e}, \quad dX = \sqrt{\frac{m_e}{2k T_e}} dv \quad (\text{B.7})$$

conduit après intégration par parties à :

$$I_1 = 2 \left( \frac{2k T_e}{\pi m_e} \right)^{\frac{1}{2}} \left( 1 + \frac{K_{esc}}{k T_e} \right) \exp \left( -\frac{K_{esc}}{k T_e} \right), \quad (\text{B.8})$$

où  $K_{esc} = \frac{1}{2} m v_{esc}^2$  est l'énergie cinétique minimum d'échappement considérée comme égale à l'énergie potentielle de Coulomb, soit

$$K_{esc} = \frac{(Q+1)e^2}{8\pi\epsilon_0 R}, \quad (\text{B.9})$$

$Q+1$  étant le nombre de charges en surface vu par l'électron.

## Calcul de $I_2$

Exprimée en coordonnées sphériques, l'intégrale  $I_2$  donne, avec  $n_e$  supposée constante sur la sphère :

$$I_2 = n_e \int_r \int_{\Omega} r^2 dr d\Omega, \quad (\text{B.10})$$

où  $d\Omega = \sin \theta d\theta d\phi$ . Seuls peuvent s'échapper les électrons contenus dans l'angle solide  $d\Omega$ , qui restreint le volume élémentaire  $d\tau$ , comme représenté schématiquement sur la figure B.1.

L'intégrale  $I_2$  devient :

$$I_2 = n_e \int_{r_{min}}^{r_{max}} \int_{\varphi_{min}}^{\varphi_{max}} \int_{\theta_{min}}^{\theta_{max}} r^2 d\theta d\varphi dr. \quad (\text{B.11})$$

Deux cas peuvent alors se présenter, selon que  $\lambda_e$  est inférieur à  $R$ , ou non.

### Cas $\lambda_e < R$ :

Dans le cas  $\lambda_e < R$ ,  $r$  est borné à l'intervalle  $[R - \lambda_e; R]$ . Comme  $\varphi$  décrit le cône de l'angle solide,  $\varphi$  est borné à l'intervalle  $[0; 2\pi]$ . Afin d'évaluer les bornes de  $\theta$ , il est préférable d'effectuer le changement de variable :

$$\psi = \pi - \theta, \text{ soit } \sin \theta d\theta = \sin \psi d\psi, \quad (\text{B.12})$$

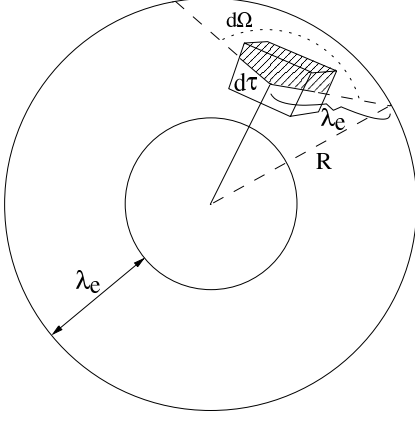


FIG. B.1: Couronne sphérique et élément de volume. Les électrons du volume élémentaire  $d\tau$  qui peuvent quitter l'agrégat se situent à l'intérieur de l'angle solide  $d\Omega$ . L'ouverture de cet angle assure qu'un électron se situe à une distance son libre parcours moyen  $\lambda_e$  de la surface de rayon  $R$ .

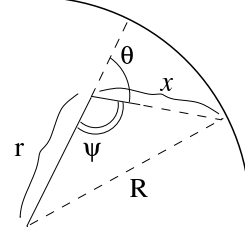


FIG. B.2: Plan de section de  $d\tau$ . L'angle de demie-ouverture  $\theta$  est exprimé en fonction de l'angle  $\psi$ , aisément défini à l'aide du théorème de Pythagore généralisé dans le triangle de cotés les rayons  $r$  et  $R$  ainsi que la distance  $x$ .

où  $\psi$  est défini sur la figure B.2.

En effet, le théorème de Pythagore généralisé exprime  $\psi$  en fonction des données connues  $R$ ,  $x$  et  $r$  :

$$R^2 = r^2 + x^2 - 2rx \cos \psi, \quad (\text{B.13})$$

soit :

$$\cos \psi = \frac{r^2 + x^2 - R^2}{2rx}. \quad (\text{B.14})$$

L'intégrale  $I_2$  devient, après le changement de variable  $X = \cos \psi$ ,  $dX = d(\cos \psi)$ ,

$$I_2 = n_e \int_{R-\lambda_e}^R \int_{\varphi=0}^{\varphi=2\pi} \int_{\cos(\psi_{max})}^{\cos(\psi_{min})} r^2 d(\cos \psi) d\varphi dr. \quad (\text{B.15})$$

Comme  $\cos(\psi_{max}) = \cos(\pi - \theta_{min})$  et  $\theta_{min} = 0^\circ$  :

$$\cos(\psi_{max}) = -1. \quad (\text{B.16})$$

$\cos(\psi_{min})$  correspond à l'angle  $\theta$  maximal, tel que  $x = \lambda_e$ , soit :

$$\cos(\psi_{min}) = \frac{r^2 + \lambda_e^2 - R^2}{2r\lambda_e}. \quad (\text{B.17})$$

L'intégration sur  $\psi$  puis  $\varphi$  donne :

$$I_2 = 2\pi n_e \int_{R-\lambda_e}^R r^2 \left( \frac{r^2 + \lambda_e^2 - R^2}{2r\lambda_e} + 1 \right) dr, \quad (\text{B.18})$$

l'intégration sur  $r$  conduisant à :

$$I_2 = 2\pi n_e \left( \frac{1}{2} R^2 \lambda_e - \frac{\lambda_e^3}{24} \right). \quad (\text{B.19})$$

**Cas  $\lambda_e \geq R$  :**

Dans le cas  $\lambda_e \geq R$ , tous les électrons qui vérifient la contrainte  $v > v_{esc}$  peuvent s'échapper. Il s'ensuit que le volume considéré par l'intégrale  $I_2$  est le volume de sphère. D'où :

$$I_2 = n_e \frac{4}{3} \pi R^3 \quad (\text{B.20})$$

## Expression finale

L'équation 2.14 se réduit finalement à l'expression attendue 2.15 :

$$W^{fs} = n_e \frac{2\sqrt{2\pi}}{\sqrt{m_e k T_e}} (K_{esc} + k T_e) \exp\left(-\frac{K_{esc}}{k T_e}\right) \begin{cases} \frac{\lambda_e}{4R} (12R^2 - \lambda_e^2) & , \text{ si } \lambda_e < 2R \\ 4R^2 & , \text{ sinon,} \end{cases} \quad (\text{B.21})$$

avec  $\lambda_e = \frac{\langle v \rangle}{\nu_{ei}}$ , soit  $\lambda_e = \sqrt{\frac{8kT_e}{\pi m_e}} \frac{1}{\nu_{ei}}$ .

# Bibliographie

- [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*, 53:3379–3402, mai 1996.
- [2] D.J. FRASER et M.H.R. HUTCHINSON : A high intensity titanium-doped sapphire laser. *J. Mod. Opt.*, 1996.
- [3] T DITMIRE, J W G TISCH, E SPRINGATE, M B MASON, N HAY, J P MARANGOS et M H R HUTCHINSON : High energy ion explosion of atomic clusters : Transition from molecular to plasma behavior. *Phys. Rev. Lett.*, 78:2732, 1997.
- [4] Tony CAILLAUD : *Étude expérimentale de l'émission x issue de l'interaction laser-agrégats*. Thèse de doctorat, Université sciences et technologies - Bordeaux I, septembre 2004.
- [5] T. CAILLAUD, F. BLASCO, F. DORCHIES, Y. GLINEC, C. STENZ et J. STEVEFELT : Étude expérimentale de l'émission X d'agrégats nanométriques d'argon irradiés par une impulsion laser intense. *Journal de Physique IV*, 108:203–206, juin 2003.
- [6] T DITMIRE, J W G TISCH, E SPRINGATE, M B MASON, N HAY, R A SMITH, J MARANGOS et M H R HUTCHINSON : High-energy ions produced in explosions of superheated atomic clusters. *Nature*, 386:54, 1997.
- [7] L. KÖLLER, M. SCHUMACHER, J. KÖHN, S. TEUBER, J. TIGGESBÄUMKER et K. H. MEIWES-BROER : Plasmon-Enhanced Multi-Ionization of Small Metal Clusters in Strong Femtosecond Laser Fields. *Physical Review Letters*, 82:3783–3786, mai 1999.
- [8] M. LEZIUS, S. DOBOSZ, D. NORMAND et M. SCHMIDT : Explosion Dynamics of Rare Gas Clusters in Strong Laser Fields. *Physical Review Letters*, 80:261–264, janvier 1998.
- [9] T. DITMIRE, J. ZWEIBACK, V.P. YANOVSKY, T. E. COWAN, G. HAYS et K. B. WHARTON : Nuclear fusion from explosions of femtosecond laser-heated deuterium clusters. *Nature*, 398:489–492, avril 1999.
- [10] I. LAST et J. JORTNER : Dynamics of the Coulomb explosion of large clusters in a strong laser field. *Phys. Rev. A*, 62(1):013201–+, juillet 2000.
- [11] N.B. DELONE et V.P. KRAINOV : Tunneling and barrier-suppression ionization of atoms and ions in a laser radiation field. *Phys. Usp.*, 41:469–485, 1998.
- [12] Joëlle VIALON : *I-Étude de la ségrégation par mesure des potentiels d'ionisation dans les agrégats de baryum et lithium oxygénés II-Explosion d'agrégats métalliques en champ laser intense*. Thèse de doctorat, Université Claude Bernard – Lyon I, juin 2000.



- [13] T. D. G. WALSH, F. A. ILKOV, J. E. DECKER et S. L. CHIN : The tunnel ionization of atoms, diatomic and triatomic molecules using intense 10.6  $\mu\text{m}$  radiation . *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 27:3767–3779, août 1994.
- [14] S. AUGST, D. STRICKLAND, D. D. MEYERHOFER, S. L. CHIN et J. H. EBERLY : Laser ionization of noble gases by coulomb-barrier suppression. *J. Opt. Soc. Am. B*, 8:858–867, avril 1991.
- [15] M.V. AMMOISOV et N.B. DELONE : Tunneling ionization and above-barrier decay of atoms under the action of pulsed laser radiation. *Laser Phys.*, 7:79–83, 1997.
- [16] Éric GIGLIO : *Dynamique moléculaire dans les agrégats métalliques violemment excités : Approche semi-classique*. Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier – Toulouse III, janvier 2002.
- [17] M. BELKACEM, M.A. BOUCHENE, P.-G. REINHARD et E. SURAUD : Photodynamics of nanoclusters. In *Encyclopedia of Nanoscience and Nanotechnology*, volume 8, pages 575–591. H.S.Nalwa, 2004.
- [18] P.-G. REINHARD et E. SURAUD : *Introduction to Cluster Dynamics*. Wiley, Berlin, 2003.
- [19] U. KREIBIG et M. VOLLMER : *Optical Properties of Metal Clusters*. Springer Series in Material Science 25, 1995.
- [20] Christophe PRIGENT : *L'émission X : un outil et une sonde pour l'interaction laser - agrégats*. Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, décembre 2004.
- [21] C. PRIGENT, L. ADOUI, S. DREUIL, J. C. GAUTHIER, O. GOBERT, E. LAMOUR, P. MEYNADIER, D. NORMAND, M. PERDRIX, J.-P. ROZET et D. VERNHET : Dynamique sub-picoseconde de l'interaction laser de puissance agrégats de gaz rare : emission intense de rayons X et production d'ions multichargés. *Journal de Physique IV*, 108:191–194, juin 2003.
- [22] Sandrine DOBOSZ : *Interaction d'agrégats de gaz rares avec un champ laser intense*. Thèse de doctorat, Université Paris 13, novembre 1998.
- [23] T. DITMIRE, E. SPRINGATE, J. W. G. TISCH, Y. L. SHAO, M. B. MASON, N. HAY, J. P. MARANGOS et M. H. R. HUTCHINSON : Explosion of atomic clusters heated by high-intensity femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. A*, 57:369–382, janvier 1998.
- [24] M.A. LEBEAULT, J. VIALON, J. CHEVALEYRE, C. ELLERT, D. NORMAND, M. SCHMIDT, O. SUBLEMONTIER, C. GUET et B. HUBER : Resonant coupling of small size-controlled lead clusters with an intense laser field. *Euro. Phys. J. D*, 20:233, 2002.
- [25] K. ISHIKAWA et T. BLENSKI : Explosion dynamics of rare-gas clusters in an intense laser field. *Phys. Rev. A*, 62(6):063204–+, décembre 2000.
- [26] E. SPRINGATE, N. HAY, J. W. TISCH, M. B. MASON, T. DITMIRE, M. H. HUTCHINSON et J. P. MARANGOS : Explosion of atomic clusters irradiated by high-intensity laser pulses : Scaling of ion energies with cluster and laser parameters. *Phys. Rev. A*, 61(6):063201–+, juin 2000.

- [27] V. KUMARAPPAN, M. KRISHNAMURTHY et D. MATHUR : Asymmetric High-Energy Ion Emission from Argon Clusters in Intense Laser Fields. *Physical Review Letters*, 87(8):085005–+, août 2001.
- [28] M. HIROKANE, S. SHIMIZU, M. HASHIDA, S. OKADA, S. OKIHARA, F. SATO, T. IIDA et S. SAKABE : Energy distributions of ions emitted from argon clusters Coulomb-exploded by intense femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. A*, 69(6):063201–+, juin 2004.
- [29] H. WABNITZ, L. BITTNER, A. R. B. DE CASTRO, R. DÖHRMANN, P. GÜRTLER, T. LAARMANN, W. LAASCH, J. SCHULZ, A. SWIDERSKI, K. VON HAEFTEN, T. MÖLLER, B. FAATZ, A. FATEEV, J. FELDHAUS, C. GERTH, U. HAHN, E. SALDIN, E. SCHNEIDMILLER, K. SYTCHEV, K. TIEDTKE, R. TREUSCH et M. YURKOV : Multiple ionization of atom clusters by intense soft X-rays from a free-electron laser. *Nature*, 420:482–485, décembre 2002.
- [30] Y. L. SHAO, T. DITMIRE, J. W. G. TISCH, E. SPRINGATE, J. P. MARANGOS et M. H. R. HUTCHINSON : Multi-keV Electron Generation in the Interaction of Intense Laser Pulses with Xe Clusters. *Physical Review Letters*, 77:3343–3346, octobre 1996.
- [31] E. SPRINGATE, S. A. ASEYEV, S. ZAMITH et M. J. VRAKING : Electron kinetic energy measurements from laser irradiation of clusters. *Phys. Rev. A*, 68(5):053201–+, novembre 2003.
- [32] V. KUMARAPPAN, M. KRISHNAMURTHY et D. MATHUR : Asymmetric emission of high-energy electrons in the two-dimensional hydrodynamic expansion of large xenon clusters irradiated by intense laser fields. *Phys. Rev. A*, 67(4):043204–+, avril 2003.
- [33] S. DOBOSZ, M. LEZIUS, M. SCHMIDT, P. MEYNADIER, M. PERDRIX, D. NORMAND, J.-P. ROZET et D. VERNHET : Absolute keV photon yields from ultrashort laser-field-induced hot nanoplasmas. *Phys. Rev. A*, 56:2526–, octobre 1997.
- [34] K. BOYER et C. K. RHODES : Superstrong coherent multi-electron intense-field interaction . *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 27:L633–L636, septembre 1994.
- [35] J. P. HANSEN et I. R. McDONALD : Microscopic simulation of a strongly coupled hydrogen plasma. *Phys. Rev. A*, 23:2041–2059, avril 1981.
- [36] A. DOMPS, P.-G. REINHARD et E. SURAUD : Time dependent thomas fermi for electron dynamics in metal clusters. *Phys. Rev. Lett.*, 80:5520, 1998.
- [37] W.G. HOOVER : *Computational Statistical Mechanics*. Amsterdam : Elsevier, 1991.
- [38] K. BOYER et C. K. RHODES : Atomic inner-shell excitation induced by coherent motion of outer-shell electrons. *Physical Review Letters*, 54:1490–1493, avril 1985.
- [39] K. BOYER, B. D. THOMPSON, A. MCPHERSON et C. K. RHODES : Evidence for coherent electron motions in multiphoton X-ray production from Kr and Xe clusters . *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 27:4373–4389, septembre 1994.
- [40] C. ROSE-PETRUCK, K. J. SCHAFER, K. R. WILSON et C. P. J. BARTY : Ultrafast electron dynamics and inner-shell ionization in laser driven clusters. *Phys. Rev. A*, 55:1182–1190, février 1997.

- [41] T. DITMIRE : Simulation of exploding clusters ionized by high-intensity femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. A*, 57:4094–+, juin 1998.
- [42] R. SANTRA et C. H. GREENE : Xenon Clusters in Intense VUV Laser Fields. *Physical Review Letters*, 91(23):233401–+, décembre 2003.
- [43] C. SIEDSCHLAG et J. M. ROST : Enhanced ionization in small rare-gas clusters. *Phys. Rev. A*, 67(1):013404–+, janvier 2003.
- [44] C. SIEDSCHLAG et J. M. ROST : Electron Release of Rare-Gas Atomic Clusters under an Intense Laser Pulse. *Physical Review Letters*, 89(17):173401–+, octobre 2002.
- [45] T. ZUO et A. D. BANDRAUK : Charge-resonance-enhanced ionization of diatomic molecular ions by intense lasers. *Phys. Rev. A*, 52:2511–+, octobre 1995.
- [46] I. LAST et J. JORTNER : Theoretical study of multielectron dissociative ionization of diatomic molecules and clusters in a strong laser field. *Phys. Rev. A*, 58:3826–3835, novembre 1998.
- [47] C. SIEDSCHLAG et J. ROST : Small Rare-Gas Clusters in Soft X-Ray Pulses. *Physical Review Letters*, 93(4):043402–+, juillet 2004.
- [48] Isidore LAST et Joshua JORTNER : Electron and nuclear dynamics of molecular clusters in ultraintense laser fields. iii. coulomb explosion of deuterium clusters. *The Journal of Chemical Physics*, 121(7):3030–3043, 2004.
- [49] J. JORTNER et I. LAST : Nuclear Fusion Driven by Coulomb Explosion of Molecular Clusters . *Chem. Phys. Chem.*, 2002.
- [50] I. LAST et J. JORTNER : Nuclear Fusion induced by Coulomb Explosion of Hetero-nuclear Clusters. *Physical Review Letters*, 87(3):033401–+, juillet 2001.
- [51] T. SEIDEMAN, M. Y. IVANOV et P. B. CORKUM : Role of Electron Localization in Intense-Field Molecular Ionization. *Physical Review Letters*, 75:2819–2822, octobre 1995.
- [52] D BAUER : Small rare gas clusters in laser fields : ionization and absorption at long and short laser wavelengths. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 37(15):3085–3101, 2004.
- [53] D. BAUER : Small rare gas clusters in XUV laser pulses. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, 78:801–806, 2004.
- [54] D. BAUER et A. MACCHI : Dynamical ionization ignition of clusters in intense short laser pulses. *Phys. Rev. A*, 68(3):033201–+, septembre 2003.
- [55] S. V. FOMICHEV, D. F. ZARETSKY, D. BAUER et W. BECKER : Classical molecular-dynamics simulations of laser-irradiated clusters : Nonlinear electron dynamics and resonance-enhanced low-order harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 71(1):013201–+, janvier 2005.
- [56] Eric CONSTANT : *Champs lasers intenses ultracourts : application à la mesure et à la création d'impulsions attosecondes et à l'imagerie de paquets d'ondes moléculaires par explosion coulombienne*. Thèse de doctorat, Université de Sherbrooke, février 1997.

- [57] Jason Stuart ZWEIBACK : *Resonance Effects in Laser Cluster Interactions*. PhD Thesis, Lawrence Livermore National Laboratory, juin 1999.
- [58] Jean-Pierre FAROUX, Jacques RENAULT et Michel BERTIN : *Electromagnétisme, Milieux diélectriques et milieux aimantés*, volume 4, pages 36–38. Paris Dunod, 1988.
- [59] C. YANNOULEAS et R.A. BROGLIA : Landau damping and wall dissipation in large metal clusters. *Annals of Physics*, 217:105–141, 1992.
- [60] Jean-Loup DELCROIX et Abraham BERS : *Physique des plasmas*, volume 1. Paris InterEditions Ed. du CNRS, 1994.
- [61] A. DJAOUI et A. A. OFFENBERGER : Heating of underdense plasmas by intense short-pulse lasers. *Phys. Rev. E*, 50:4961–4968, décembre 1994.
- [62] A.Ya. POLISHCHUK et J. MEYER-TER-VEHN : Electron-ion relaxation in a plasma interacting with an intense laser field. *Phys. Rev. E*, 49:663–666, janvier 1994.
- [63] I.P. SHKAROFSKY, T.W. JOHNSTON et M.P. BACHYNSKI : *The particle kinetics of plasmas*. Addison-Wesley publishing company, 1966.
- [64] Lyman SPITZER : *Physique des gaz complètement ionisés*, page 79 et suivantes. Dunod – Paris, 1959.
- [65] E. BÉSUELLE, R.R.E. SALOMAA et D. TEYCHENNÉ : Coulomb logarithm in femtosecond-laser-matter interaction. *Phys. Rev. E*, 60:2260–2263, août 1999.
- [66] T.W. JOHNSTON et J.M. DAWSON : Correct values for high-frequency power absorption by inverse bremsstrahlung in plasmas. *Phys. Fluids*, 16:722, mai 1973.
- [67] M.V. AMMOISOV, N.B. DELONE et V.P. KRAÏNOV : Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Sov. Phys. JETP*, 64:1191, 1986.
- [68] A. M. PERELOMOV, V. S. POPOV et M. V. TEREENT'EV : Ionization of atoms in an alternating electric field. *Sov. Phys. JETP*, 23:924, 1966.
- [69] P. B. CORKUM : Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Physical Review Letters*, 71:1994–1997, septembre 1993.
- [70] Wolfgang LOTZ : Electron-impact ionization cross-sections and ionization rate coefficients for atoms and ions from hydrogen to calcium. *Z. Phys.*, 216:241–247, juillet 1968.
- [71] John David JACKSON : *Classical electrodynamics*, pages 158–159. New York J. Wiley cop, 1975.
- [72] N.H. BURNETT et P.B. CORKUM : Cold-plasma production for recombination extreme-ultraviolet lasers by optical-field-induced ionization. *J. Opt. Soc. Am. B*, 6:1195–1199, juin 1989.
- [73] W. H. PRESS, S. A. TEUKOLSKY, W.T. VETTERLING et B.P. FLANNERY : *Numerical Recipes in Fortran 77 : the art of scientific computing*, pages 701–716. Cambridge University Press, 1986–1992.
- [74] F. MEGI, M. BELKACEM, M. A. BOUCHENE, E. SURAUD et G. ZWICKNAGEL : On the importance of damping phenomena in clusters irradiated by intense laser fields. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 36:273–282, janvier 2003.

- [75] G. SHVETS et N. J. FISCH : Electron-ion collisions in intensely illuminated plasmas. *Physics of Plasmas*, 4:428–436, février 1997.
- [76] B. MONTAG et P.-G. REINHARD : Width of the plasmon resonance in metal clusters. *Phys. Rev. B*, 51:14686–14692, mai 1995.
- [77] C. YANNOULEAS : The wall formula for nuclear dissipation as a special limit of rpa damping. *Nuclear Physics A*, 439:336–352, juin 1985.
- [78] Li SHAO-HUI, Wang CHENG, Liu JIAN-SHENG, Wang XIANG-XIN, Zhu P in PIN, Li RU-XIN, Ni GUO-QUAN et Xu ZHI-ZHAN : High-intensity femtosecond laser absorption by rare-gas clusters. *Chinese Physics*, 12(11):1229–1234, 2003.
- [79] A. S. MOORE, K. J. MENDHAM, D. R. SYMES, J. S. ROBINSON, E. SPRINGATE, M. B. MASON, R. A. SMITH, J. W. G. TISCH et J. P. MARANGOS : Control parameters for ion heating and X-ray emission from laser induced cluster explosion. *Applied Physics B – Lasers and Optics*, 80:101–107, janvier 2005.
- [80] K. J. MENDHAM, N. HAY, M. B. MASON, J. W. G. TISCH et J. P. MARANGOS : Cluster-size distribution effects in laser-cluster interaction experiments. *Phys. Rev. A*, 64(5):055201–+, novembre 2001.
- [81] Furio ERCOLESSI : A molecular dynamics primer [en ligne]. juin 1997–[réf du 2 mars 2005]. Disponible sur l’Internet : <http://www.fisica.uniud.it/~ercolessi/md/md/>.
- [82] W. C. SWOPE, H. C. ANDERSEN, P. H. BERENS et K. R. WILSON : A computer simulation method for the calculation of equilibrium constants for the formation of physical clusters of molecules : Application to small water clusters. *J. Chem. Phys.*, 76:637–649, janvier 1982.
- [83] Daan FRENKEL et Berend SMIT, éditeurs. *Understanding Molecular Simulation : From Algorithms to Applications*. Academic Press, Inc., 1996.
- [84] E. GIGLIO, E. SURAUD et P.-G. REINHARD : Semi-classical description of ionic and electronic dynamics in metal clusters. *Annalen der Physik*, 11:291–308, avril 2002.
- [85] E. GIGLIO, P.-G. REINHARD et E. SURAUD : LETTER TO THE EDITOR : Impact of two-body collisions on explosion dynamics of irradiated clusters. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 34:L253–L262, avril 2001.
- [86] E. GIGLIO, P.-G. REINHARD et E. SURAUD : Angular distribution of emitted electrons in sodium clusters : A semiclassical approach. *Phys. Rev. A*, 67(4):043202–+, avril 2003.
- [87] C A ULLRICH, P-G REINHARD et E SURAUD : Metallic clusters in strong femtosecond laser pulses. *J. Phys. B*, 30:5043, 1997.
- [88] P.-G. REINHARD et E. SURAUD : DFT studies of ionic vibrations in Na clusters. *European Physical Journal D*, 21:315–322, 2002.
- [89] Alan F. HAUGHT et Donald H. POLK : Formation and heating of laser irradiated solid particle plasmas. *Phys. Fluids*, 13:2825–2830, novembre 1970.
- [90] Heinrich HORA : *Plasmas at high temperature and density*, pages 76–92. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1991.

- [91] J. LIU, R. LI, P. ZHU, Z. XU et J. LIU : Modified hydrodynamic model and its application in the investigation of laser-cluster interactions. *Phys. Rev. A*, 64(3): 033426–+, septembre 2001.
- [92] Gwyn WILLIAMS : Electron binding energies [en ligne]. avril 1994–[réf du 2 mars 2005]. Disponible sur l'Internet : <http://xray.uu.se/hypertext/EBindEnergies.html>.
- [93] M. CARDONA et L. LEY : *Photoemission in Solids*, volume 1. Springer-Verlag, Berlin, 1978.
- [94] Robert C. WEAST, Melvin J. ASTLE et William M. BEYER : *CRC Handbook of chemistry and physics*, pages A–52. Boca Raton (Florida) : CRC Press, 61th édition, 1980–1981.