



Photoionisation simple et double à deux couleurs d'atomes de gaz rares

O. Guyetand

► To cite this version:

O. Guyetand. Photoionisation simple et double à deux couleurs d'atomes de gaz rares. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2008. Français. NNT : . tel-00305393

HAL Id: tel-00305393

<https://theses.hal.science/tel-00305393>

Submitted on 24 Jul 2008

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

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

N° d'ordre : 9030

THÈSE DE DOCTORAT

UNIVERSITÉ PARIS XI ORSAY

présentée par

Olivier GUYÉTAND

Pour obtenir le grade de

Docteur en Sciences

Spécialité : Sciences physiques

Lasers et Matière

**Photoionisation simple et double
à deux couleurs d'atomes de gaz rares**

Soutenue le 23 Mai 2008 devant le jury composé de :

D. Dowek
E. Mével
F. Penent
H. Bachau
C. Cornaggia
A. Huetz

Présidente
Rapporteur
Rapporteur
Examineur
Examineur
Directeur de thèse

Remerciements

J'exprime mes profonds remerciements à Alain Huetz qui a dirigé cette thèse dans la continuité de mon stage de D.E.A., pour m'avoir fait confiance, m'avoir guidé et encouragé. Qu'il trouve ici les marques de ma reconnaissance et de mon respect.

J'adresse ma gratitude à Alfred Maquet et Richard Taïeb sans qui cette thèse ne serait pas ce qu'elle est : aussi bien pour les discussions que j'ai eu la chance d'avoir avec eux, que pour leurs suggestions et contributions.

Mes remerciements vont également à Bertrand Carré, pour la gentillesse et la patience qu'il a manifestées à mon égard durant cette thèse, pour tous ses conseils et pour l'hospitalité dont il a fait preuve envers moi lors des expériences effectuées au CEA.

J'exprime toute ma reconnaissance à Danielle Dowek pour avoir présidé mon jury de thèse.

Je tiens également à remercier Eric Mével et Francis Penent pour avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse.

Henri Bachau et Christian Cornaggia m'ont fait l'honneur de participer au jury de soutenance ; je les en remercie chaleureusement.

Un grand merci à Pierre Agostini pour ses précieux conseils et contributions de tous ordres.

Je remercie Mathieu Gisselbrecht dont les grandes compétences ont permis l'accomplissement de ce travail.

J'adresse aussi toute ma reconnaissance aux membres du LIXAM pour tous les bons moments passés ensemble.

Je remercie chaleureusement l'équipe du Laser PLFA du CEA et celle du laser de la salle orange du LOA.

REMERCIEMENTS

Comment oublier l'ensemble des étudiants qui ont "subi" mes enseignements pendant ces trois années. J'ai une pensée émue pour l'inoubliable groupe 10 et plus particulièrement pour Candice Orthet et Marine Lagrue.

C'est plus que de la reconnaissance ou des remerciements dont je suis redevable et que j'exprime ici à mes parents, à mes sœurs Carine, Séverine et Nadège et à ma famille qui ont su m'apporter leur soutien à tout instant. J'ai également une pensée particulière pour mes grands parents, qui sont partis trop tôt, mais qui auraient certainement aimé avoir ce manuscrit entre les mains.

Table des matières

Introduction	7
1 Aspects théoriques	15
1.1 Rayonnement XUV utilisé : génération d'harmoniques d'ordre élevé	15
1.1.1 Généralités	15
1.1.2 Caractéristiques principales	16
1.1.3 Considération de durée - vers l'attophysique	17
1.2 Photoionisation simple à un photon XUV seul	19
1.3 Photoionisation simple à plusieurs photons infrarouges de même couleur	19
1.3.1 Ionisation multiphotonique	20
1.3.2 Ionisation tunnel	20
1.4 Approche théorique de la photoionisation simple à plusieurs photons de couleurs différentes	21
1.4.1 Résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps	22
1.4.1.1 Spectre - Fonction fenêtre	22
1.4.1.2 Distribution angulaire - Calcul du flux	23
1.4.2 Approche perturbative	24
1.4.2.1 Pics satellites	24
1.4.2.2 Pics harmoniques	28
1.4.3 Approximation du photon de faible énergie (soft-photon)	29
1.4.3.1 Pics satellites	31
1.4.3.2 Pics harmoniques	33
1.4.4 Calcul TDSE pour l'hélium dans le cas d'une harmonique unique	35
1.5 Double photoionisation	37
1.5.1 Différents mécanismes en compétition lors de l'absorption des photons	38
1.5.1.1 Mécanisme séquentiel	38
1.5.1.2 Mécanisme non-séquentiel	39
1.5.2 Le cas de plus simple : l'atome d'hélium	40

1.5.3	Considérations de symétrie	41
2	Dispositifs expérimentaux	45
2.1	Source XUV	
	Génération d'harmoniques d'ordre élevé	45
2.2	Optiques XUV	
	Filtrage des harmoniques par un couple de miroirs multi-couches	46
2.3	Montages optiques	48
2.3.1	Montage utilisé au LOA	48
2.3.2	Montage utilisé sur le laser PLFA	50
2.4	Détection / Imagerie des électrons et des ions	53
2.4.1	Contraintes liées aux mesures en coïncidence PePiCo et PePePiCo	53
2.4.1.1	Coïncidences PePiCo	55
2.4.1.2	Coïncidences PePePiCo	57
2.4.1.3	Coïncidences PePiCo en présence de bruit . . .	57
2.4.1.4	Du synchrotron (MHz) aux harmoniques (kHz)	59
2.4.2	Analyseur torique	60
2.4.3	Imagerie d'impulsion 3D	63
2.4.3.1	CIEL2	64
2.4.3.2	Jet supersonique	71
2.4.3.3	Détecteur Sensible en Position	73
2.4.3.4	Traitement du signal et chaîne d'acquisition . .	75
2.4.3.5	Traitement des données	79
2.4.3.6	Traitement spécifique à la double ionisation . .	82
3	Résultats - Ionisation simple	87
3.1	Résultats antérieurs	87
3.2	LOA - Analyseur torique	88
3.2.1	Spectres	89
3.2.2	Distributions angulaires	90
3.2.3	Comparaisons expérience-théorie	91
3.2.3.1	Spectres	91
3.2.3.2	Distributions angulaires	92
3.2.3.3	Conclusion	93
3.3	PLFA - Imagerie 3d	93
3.3.1	Généralités	93
3.3.2	Spectres UV et UV + IR	96
3.3.3	Distributions angulaires des pics harmoniques	100
3.3.4	Distributions angulaires des pics satellites	101
3.3.5	Calculs dans les conditions expérimentales - Comparai- son expérience-théorie	102
3.4	Modèle à deux harmoniques	106

3.5	Cas d'un peigne d'harmoniques	108
3.6	Conclusion	110
4	Résultats - Ionisation double	111
4.1	Résultats antérieurs	111
4.1.1	Ionisation double à un photon par rayonnement synchrotron	111
4.1.2	Ionisation double du xénon à un photon XUV par une lampe à hélium	112
4.1.3	Ionisation double du xénon à un photon XUV par une source harmonique	114
4.1.4	Ionisation double du xénon à deux photons $H_{17} + IR$ et $H_{21} + IR$	114
4.2	Résultats sur la double photoionisation du xénon par $H_{19} + IR$.	117
4.2.1	Signal d'ions Xe^{2+}	117
4.2.2	Spectres à un électron et deux électrons	119
4.2.3	Corrélations angulaires	121
4.3	Résultats sur la double photoionisation du xénon par H_{25} seule .	123
4.3.1	Spectre à un électron	123
4.3.2	Spectre à 2 électrons	124
4.3.3	Corrélations angulaires	127
4.4	Résultats sur la double photoionisation du xénon par $H_{25} + IR$.	129
4.4.1	Signal d'ions Xe^{2+}	129
4.4.2	Spectre à 1 électron	130
4.4.3	Spectre à 2 électrons	130
4.4.4	Corrélations angulaires	133
4.5	Conclusion	135
	Conclusions et perspectives	135
	Bibliographie	142
	Annexes	151

Introduction

L'étude des phénomènes de photoionisation des atomes a débuté dès que des sources de photons d'énergie supérieure aux différents seuils d'ionisation sont apparues. L'effet photoélectrique, découvert en 1887 par H. R. Hertz quand il mit en évidence l'ionisation des électrons d'une plaque métallique, dont le travail de sortie est faible, fut expliqué par Albert Einstein grâce au concept de quantum d'énergie, appelé photon aujourd'hui. Cette observation fondatrice allait être suivie par de nombreuses expériences qui apportaient chacune des connaissances de plus en plus fines sur la nature de la matière ainsi que sur celle du rayonnement. Des sources de photons de plus en plus énergétiques, rendant possible l'étude de l'ionisation d'atomes en phase diluée et possédant des potentiels d'ionisation plus élevés, virent le jour. Ces sources étaient alors des lampes à émission continue.

L'utilisation du rayonnement synchrotron, dans les années 70, marque le début des études systématiques de l'ionisation atomique, et a permis de réaliser des progrès rapides. D'une part, l'énergie des photons obtenus était de plus en plus grande, et d'autre part, elle devenait complètement accordable dans un grand domaine spectral. La durée des impulsions lumineuses, qui est maintenant de l'ordre de quelques dizaines de picosecondes (10^{-11} seconde) sur les synchrotrons de troisième génération, ainsi que leur taux de répétition, de l'ordre de la dizaine de MHz ou plus, ont rendu possible la réalisation d'expériences permettant des avancées spectaculaires notamment en physique atomique et moléculaire. Le rayonnement synchrotron permet par exemple de provoquer et de suivre les mouvements des ions dont les temps caractéristiques sont du même ordre de grandeur que la durée des impulsions lumineuses.

Depuis peu, les lasers femtosecondes intenses ont conduit à un nouveau type de source de photons XUV, par génération d'harmoniques d'ordre élevé. Les caractéristiques du rayonnement XUV produit par ces sources sont très différentes de celles du rayonnement synchrotron, en termes d'énergie de photon, de cadence, de durée des impulsions et de nombre de photons par impulsion. La gamme d'énergie de ces sources s'étend du visible jusqu'à quelques centaines d'eV. La cadence est la même que celle du laser générateur, et peut monter jusqu'au kHz mais difficilement au delà, si l'on met à part les nouveaux

schémas "intra-cavité" proposés très récemment ([1, 2]). La largeur temporelle de l'enveloppe des impulsions est de l'ordre de 10 femtosecondes (10^{-14} seconde), dans laquelle est inscrite une structure plus fine, composée de pics très courts ("bursts" en anglais) d'une durée de l'ordre de la centaine d'attosecondes (10^{-16} seconde). Ceci ouvre des perspectives tout à fait nouvelles : tester les méthodes théoriques pour traiter l'effet de champs complexes (éclairage élevé, éventuellement plusieurs couleurs, temps de plus en plus courts) ; atteindre la dynamique électronique "en temps réel" en descendant dans le domaine attoseconde. En effet la durée des "bursts" est approximativement la même que le temps caractéristique de la rotation de l'électron autour du noyau dans le modèle de Bohr. Mais la réussite de telles expériences repose non seulement sur la qualité des sources, mais aussi sur celle des techniques de détection.

Les techniques de détection des électrons et des ions ont progressé continuellement, en particulier auprès des sources synchrotron, depuis les premiers analyseurs électrostatiques jusqu'aux systèmes, parfois appelés "microscopes", utilisant un champ électrique auquel on associe éventuellement un champ magnétique pour collecter les particules chargées (électrons et ions) émises dans toutes les directions (4π). L'analyse de leurs trajectoires permet de déterminer leurs impulsions initiales, et d'établir entre elles ce que l'on peut appeler des "corrélations vectorielles" généralisées. Un enjeu majeur est à l'heure actuelle d'adapter ces techniques aux nouvelles sources, et le travail présenté dans ce mémoire se situe dans ce contexte. Les paramètres tels que la cadence ou le nombre de photons par impulsion sont contraignants pour les études des processus d'ionisation dans lesquels les ions et les électrons sont détectés en coïncidence. Ces paramètres étant très différents entre le rayonnement synchrotron et les sources harmoniques, il n'est a priori pas évident que les expériences de ce type, menées couramment sur synchrotron, puissent être transposées directement sur les sources harmoniques.

Le rayonnement harmonique est synchrone avec le rayonnement infrarouge du laser générateur, ce qui favorise la superposition temporelle lors des études des processus de photoionisation "à deux couleurs", c'est-à-dire combinant au moins deux photons, XUV et infrarouge. Ce sont des expériences de ce type que nous présentons dans ce travail. L'éclairement des sources harmoniques est en progrès constant et peut atteindre quelques 10^{12} W.cm $^{-2}$ dans l'XUV. A ce niveau d'éclairement, deux photons XUV de même couleur peuvent se combiner et des expériences de ce type commencent à voir le jour [3], basées sur la détection des ions. En effet les taux d'ionisation à deux photons XUV sont encore trop faibles pour envisager la détection différentielle des électrons avec une statistique acceptable.

Ionisation simple

L'ionisation simple d'atomes par plusieurs photons, XUV et infrarouge, est déjà étudiée expérimentalement et théoriquement depuis plusieurs années. Pour une très grande majorité ces études ont porté sur les spectres obtenus lorsque les rayonnements harmoniques et infrarouge sont combinés, ou, comme nous le dirons fréquemment dans la suite, lorsque l'atome est "habillé" par le champ infrarouge. Ces spectres font en effet apparaître des pics satellites ("bandes latérales", "side bands" en anglais) qui sont la signature des transitions à deux photons XUV + IR. L'intensité de ces pics oscille lorsque l'on varie le délai τ entre les impulsions XUV et infrarouge. Ces oscillations permettent de remonter aux décalages temporels qui existent, dans le processus de génération d'harmoniques, entre les harmoniques d'énergies différentes. Cette découverte [4] a eu une importance considérable, car, connaissant ces décalages - que l'on peut traduire en phases relatives [5] - il est possible de reconstruire la structure temporelle de l'impulsion XUV, dont la structure spectrale est l'ensemble des harmoniques. C'est la méthode dite "RABITT" (en anglais "Reconstruction of Attosecond Beating by Interference of Two-photon Transitions") [6] qui est maintenant utilisée par plusieurs laboratoires pour caractériser les impulsions harmoniques d'ordre élevé. Mais les signaux de photoélectrons contiennent une autre information, qui jusqu'à maintenant a été très peu exploitée. Il s'agit des distributions angulaires par rapport à la direction de polarisation. La première étude réalisée au FOM et consacrée à ces distributions angulaires [7] suggérait qu'elles pourraient être utiles dans le cas d'impulsions attosecondes uniques dont la structure spectrale ne serait plus qu'un continuum, sans pics harmoniques. Dans la première partie de ce travail, consacrée à la simple ionisation de l'hélium par les harmoniques et l'infrarouge combinés, nous montrons que les distributions angulaires ont un intérêt beaucoup plus large et fondamental. D'une part, elles constituent un test beaucoup plus sévère que les spectres en énergie pour tester les différentes approches théoriques, numériques ou analytiques, qui traitent de la réponse d'un atome à des champs XUV et infrarouge superposés. D'autre part, les distributions angulaires des pics harmoniques en présence d'infrarouge évoluent d'une manière spectaculaire, sur une échelle de temps attoseconde, par rapport au délai τ entre les impulsions XUV et infrarouge. Enfin leur forme dépend également très directement des différences de phases entre les composantes harmoniques, ce qui suggère qu'elles pourraient servir à atteindre ces quantités, et constituer ainsi une méthode alternative à la méthode RABITT.

Nous présentons dans ce travail au chapitre 1 deux méthodes théoriques analytiques : la théorie perturbative et la théorie "soft photon" [8] ainsi qu'une méthode numérique par résolution de l'équation de Schrödinger dépendant du

temps (TDSE), pour calculer ces distributions angulaires, dans le cas de la simple ionisation de l'hélium, pour les pics satellites et pour les pics harmoniques habillés par l'infrarouge. Nous avons effectué deux séries d'expériences pour mesurer ces distributions angulaires, qui sont décrites au chapitre 3. La première a été réalisée sur la source harmonique du LOA (Palaiseau) à l'aide d'un analyseur torique d'électrons. Le délai τ entre les photons XUV et infrarouge était fixe dans cette expérience, et l'éclairement infrarouge de quelques $10^{11} \text{ W.cm}^{-2}$. La deuxième série d'expériences a utilisé la source harmonique implantée sur le laser PLFA (Saclay) et un montage construit au cours de la thèse (CIEL2), du type "microscope", pour analyser les électrons et les ions. Dans ce cas le délai τ était variable, et l'éclairement infrarouge plus élevé (typiquement $10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$). Les dispositifs expérimentaux sont décrits au chapitre 2, et les résultats sont présentés et comparés aux calculs numériques basés sur la méthode TDSE au chapitre 3.

Ionisation double

La deuxième partie de ce mémoire est consacrée à la double photoionisation atomique (DPI) par plusieurs photons de deux couleurs différentes, XUV et infrarouge. Mais avant d'aborder ce sujet faisons ici quelques rappels sur le processus de photoionisation double à un seul photon XUV.

Ionisation double à un photon XUV

La photoionisation multiple, et en particulier double, d'un atome par un photon XUV d'énergie élevée, supérieure au seuil d'ionisation considéré, a été observée depuis les débuts du rayonnement synchrotron. Elle se produit très fréquemment d'une manière que nous appellerons "indirecte" dans la suite. Le photon interagit avec l'atome, éjecte un premier électron, et peut laisser l'ion simplement chargé dans un état qui n'est pas stable, mais qui est susceptible de se relaxer en émettant un ou plusieurs autres électrons. L'effet de ce type le plus connu est l'effet Auger, identifié très tôt dans les spectres atomiques par rayonnement synchrotron. Un autre effet indirect, lorsque l'ionisation primaire se produit non pas en couche interne comme dans l'effet Auger, mais dans les couches de valence, est l'effet d'autoionisation par réarrangement de ces couches de valence. Ces processus de photoionisation multiple indirects peuvent être également qualifiés de "résonnants", au sens où ils impliquent des états discrets, mais couplés au continuum, des ions intermédiaires. Les électrons

émis ont des énergies bien précises, correspondant aux différences d'énergie entre les différents états ioniques impliqués. Par contraste, le phénomène d'ionisation multiple "direct" n'implique aucun état discret intermédiaire. Dans l'exemple de la photoionisation double directe, deux électrons d'énergies E_1 et E_2 sont produits, et toutes les valeurs de ces énergies sont possibles pourvu que leur somme satisfasse à la conservation de l'énergie pour l'état final de l'ion doublement chargé considéré.

Il est intéressant de souligner que la photoionisation multiple directe est très souvent fortement masquée par la photoionisation multiple indirecte, et ceci est d'autant plus vrai que l'atome considéré est lourd. Cela explique qu'historiquement la photoionisation double directe par exemple a toujours été considérée comme pratiquement inexistante, et sans intérêt particulier. Ce n'est qu'au cours des années 1990 qu'elle a pris une importance majeure. En effet dans le cas de l'atome le plus léger sur lequel on peut étudier la DPI, l'atome d'hélium, la situation s'inverse complètement. La DPI indirecte et les états intermédiaires qu'elle implique sont dus à la présence d'électrons supplémentaires, par rapport aux deux électrons actifs qui sont ionisés. Elle est donc inexistante dans l'hélium, qui est par conséquent l'atome idéal pour étudier la DPI directe. En 1993 a été réalisée la première expérience sophistiquée de DPI de l'hélium par rayonnement synchrotron, dans laquelle les deux électrons étaient détectés en coïncidence, avec mesure de leurs angles d'émission et de leurs énergies E_1 et E_2 [9]. Elle a donné le coup d'envoi à un très grand nombre d'expériences du même type, utilisant des techniques de plus en plus performantes de multi-détection par des analyseurs électrostatiques de géométries variées (cylindrique ou torique par exemple) puis par les méthodes basées sur des "microscopes" de différents types. En effet ces expériences donnaient pour la première fois accès à un processus physique totalement distinct de la relaxation électronique, mais d'un intérêt théorique fondamental : l'interaction de trois particules chargées en interaction Coulombienne, un ion et deux électrons, dans des états du double continuum où les interactions électron-ion et électron-électron sont d'égale importance. On est alors en présence d'un problème quantique à trois corps, très difficile à traiter sur le plan théorique, et impossible à résoudre analytiquement.

Ces expériences ont relancé une activité théorique très intense sur ce problème, que nous mentionnons au chapitre 1. Des méthodes numériques très élaborées, désignées par les sigles ECS, TDCC, HRM...etc, et mettant en jeu de très grosses puissances de calcul, ont été mises au point ; elles ont permis d'obtenir un accord très satisfaisant avec les expériences de DPI de l'hélium complètement différentielles réalisées à des énergies de photon variées et avec des types de polarisation divers (linéaire, circulaire,...).

Depuis quelques années l'intérêt s'est également porté sur la DPI de la

molécule H_2 par les mêmes techniques expérimentales [10, 11] et théoriques [12, 13]. On est dans ce cas en présence d'un problème à 4 corps en interaction Coulombienne, et les électrons se déplacent dans un champ à symétrie cylindrique plutôt que sphérique comme dans le cas atomique.

Ionisation double à deux photons

La DPI atomique provoquée par deux photons, au lieu d'un seul photon, est un champ tout nouveau et totalement ouvert, en ce qui concerne les mesures complètement différentielles sur les deux électrons. Les seules expériences réalisées à ce jour ont utilisé principalement la source laser à électrons libres FLASH (Hambourg) pour provoquer des transitions à deux photons XUV dans les gaz rares, et mesurer les ions doublement chargés produits [14, 15, 16, 17]. Des expériences du même type ont été également publiées récemment, à partir de sources harmoniques, sur les gaz rares [3] et sur l'hélium [18]. Mais la compréhension des mécanismes mis en l'œuvre dans la DPI à plusieurs photons ne peut se passer de la mesure des électrons. En effet l'énergie totale de ces derniers permet de séparer les différents états finaux possibles des ions. D'autre part les corrélations en énergie et en angle entre les électrons sont très différentes d'un mécanisme à l'autre, et sont donc la signature des différents processus.

Les difficultés principales des expériences de DPI à deux photons viennent de ce qu'elles utilisent des sources laser, qui ont un taux de répétition très limité, typiquement de l'ordre de 1 kHz, par rapport aux sources synchrotron où les impulsions lumineuses se suivent à des cadences supérieures à 10 MHz. Nous discutons en détail au chapitre 2 des conséquences de cette différence majeure pour les expériences de coïncidence. Les contraintes expérimentales qui existent pour mettre en œuvre la technique de coïncidence, nécessaire à la mesure complètement différentielle des deux électrons, sont particulièrement fortes. Nous montrons néanmoins dans ce travail qu'elles peuvent être satisfaites. L'expérience présentée au chapitre 4 sur la DPI du xénon à deux couleurs, XUV et infrarouge, et avec la mesure complète des deux électrons, est la première du genre.

Sur ce premier exemple nous illustrons l'intérêt des photoélectrons pour analyser les processus en jeu. Les processus directs et indirects, déjà présents à un seul photon, existent toujours. Mais une complexité supplémentaire apparaît dans l'absorption des photons, qui peut se produire d'une manière séquentielle ou non séquentielle. Les mécanismes séquentiels d'une part, indirects d'autre part, peuvent être classés dans une même famille, celle des processus en

deux étapes (en anglais "two step") mais diffèrent par les états intermédiaires mis en jeu. Le cas de la DPI du xénon que nous présentons dans ce mémoire est le plus facile à atteindre en raison du potentiel de double ionisation du xénon, qui est le plus bas de tous les gaz rares, situé à une énergie (33 eV) où les sources harmoniques ont un éclaircissement élevé. Mais le cas du xénon est en même temps le plus complexe à analyser, en raison du grand nombre d'états ioniques qui peuvent être impliqués. Comme nous l'évoquons à la fin de ce mémoire, une perspective évidente de ce travail sur la DPI du xénon à deux couleurs, XUV et infrarouge, est son extension à des atomes plus légers, qui nécessitent des photons plus énergétiques.

D'une manière très semblable au cas à un photon, que nous avons rappelé plus haut, le mécanisme de DPI directe est le plus difficile à atteindre, car il est très facilement masqué par la DPI en deux étapes. Mais il est particulièrement intéressant en raison des lois de conservation de la symétrie. Les nombres quantiques L , S et π associés à la paire d'électrons émise imposent de sévères restrictions sur la DPI, telles que la présence de nœud ou d'anti-nœud dans l'émission en sens opposés des deux électrons pour un partage égal d'énergie. Ces nombres quantiques dépendent de l'état de l'ion résiduel ainsi que du nombre de photons absorbés. Des modifications spectaculaires sont attendues dans le cas de la DPI par deux photons par rapport au cas à un photon étudié sur synchrotron.

Les résultats présentés au chapitre 4 sur la DPI du xénon à deux couleurs, XUV et infrarouge, démontrent la faisabilité de la mesure différentielle des deux électrons et valident les systèmes de mesure tels que celui que nous avons utilisé. A partir de là de nombreuses perspectives sont ouvertes, comme nous l'évoquons à la fin de ce mémoire. Les progrès rapides des sources harmoniques et laser à électrons libres (XFEL) laissent entrevoir une extension aux transitions à deux photons XUV de même couleur, qui permettront d'accéder à des atomes plus légers et d'isoler le processus de DPI directe.

INTRODUCTION

Chapitre 1

Aspects théoriques

1.1 Rayonnement XUV utilisé : génération d'harmoniques d'ordre élevé

Nous ne donnerons ici qu'une présentation succincte du processus de génération d'harmoniques (M. Lewenstein *et al.* 1994 [19]) car ce travail, pour l'essentiel, est une application des harmoniques à la physique atomique. Pour des études plus détaillées des harmoniques nous renvoyons aux thèses de P. M. Paul [20], Y. Mairesse [21] et W. Boutu [22].

1.1.1 Généralités

Dans ce mémoire, le rayonnement XUV utilisé est produit par génération d'harmoniques d'ordre élevé. Ce rayonnement est généré quand on focalise un laser femtoseconde dans une cellule (ou un jet) de gaz rare à un éclairement de $10^{14} - 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ qui produit l'ionisation des atomes par effet tunnel. Dans le cas d'un laser polarisé linéairement, il existe une probabilité non nulle pour que l'électron se recombine avec le cœur parent de façon radiative. Cette probabilité dépend essentiellement du moment où le paquet d'onde électronique est passé de l'atome dans le continuum par effet tunnel. Dans le cas d'une recombinaison radiative, il y a émission d'un rayonnement qui à l'échelle macroscopique est émis dans la même direction que celle du laser avec une divergence typiquement trois fois plus faible que ce dernier et une polarisation colinéaire à celle du laser. L'énergie des photons harmoniques correspond à la somme du potentiel d'ionisation I_p de l'atome et de l'énergie cinétique Ec du paquet d'onde électronique acquise par l'électron lors de son accélération dans le champ laser, soit : $I_p + Ec$ lors de la recollision avec $Ec_{max} = 3.17Up$ ce qui conduit à la loi de coupure (P.B. Corkum 1993 [23]). L'énergie pondéromotrice Up (équation 1.1) dépend de l'éclairement I_L et de la pulsation ω_L du laser par la relation (en u.a.) :

$$Up = \frac{I_L}{4\omega_L^2} . \quad (1.1)$$

1.1.2 Caractéristiques principales

Un atome de gaz rare a un moment angulaire nul dans son état fondamental. Chaque photon polarisé linéairement provoque des transitions de moment angulaire $\Delta l = \pm 1$. De même, le photon harmonique émis lors de la recombinaison radiative emporte un moment angulaire de 1 laissant l'atome de gaz rare dans son état fondamental (figure 1.1). L'atome possède un moment angulaire nul après avoir émis l'harmonique et le moment angulaire de l'électron dans le continuum doit donc être 1. Par conservation de la parité le photon XUV doit nécessairement correspondre à un nombre impair de photons infrarouges absorbés. Ainsi, le rayonnement harmonique est composé d'harmoniques impaires du champ laser qui lui a donné naissance. Les harmoniques sont séparées par deux fois l'énergie d'un photon infrarouge.

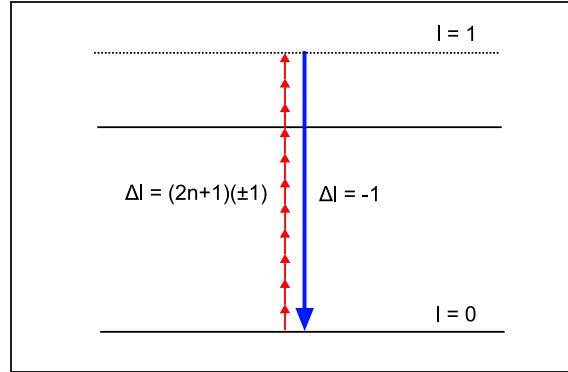


FIG. 1.1 – Conservation du moment angulaire lors de la génération d'harmoniques.

Le spectre typique des harmoniques est composé de trois parties : une première dans laquelle les harmoniques les moins énergétiques sont les plus intenses, mais leur intensité baisse rapidement ; une seconde région appelée "plateau" dans laquelle les harmoniques ont une intensité constante, et enfin la région de la "coupure" (L'Huillier *et al.* 1993 [24]) dans laquelle l'intensité des harmoniques d'énergie élevée baisse nettement avec leur ordre. La figure 1.2 montre la partie plateau et coupure d'un tel spectre pour la génération d'harmonique dans le néon (L. Le Déroff 1999 [25]).

Un modèle purement classique de la génération d'harmoniques permet d'expliquer la loi de coupure (P.B. Corkum 1993 [23]) qui définit l'ordre maximal

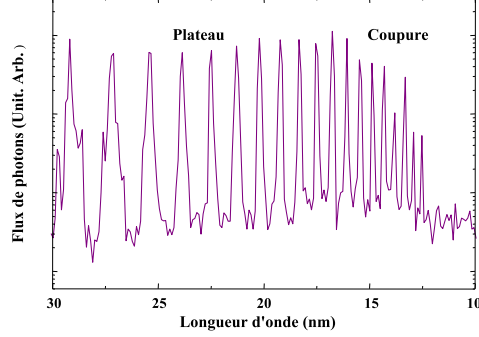


FIG. 1.2 – Spectre de génération d'harmoniques dans le néon.

N_{max} de l'harmonique du plateau que l'on peut obtenir en fonction de l'éclairement du rayonnement infrarouge, du potentiel d'ionisation de l'atome et de la fréquence du rayonnement :

$$N_{max} = \frac{Ip + 3.17Up}{h\nu_L} . \quad (1.2)$$

1.1.3 Considération de durée - vers l'attophysique

Pour que ces effets non linéaires puissent exister, il est nécessaire de se placer au dessus d'un éclairement seuil qui ne peut être atteint durant tout le temps où l'atome est soumis au rayonnement infrarouge. La première et la dernière partie de l'impulsion infrarouge possédant un éclairement trop faible pour contribuer à la génération d'harmoniques, la durée de l'impulsion harmonique est inférieure à la durée de l'impulsion infrarouge qui lui a donné naissance.

Une harmonique peut être considérée classiquement comme un champ oscillant à la fréquence $(2q + 1)\omega_{IR}$ avec une phase ϕ_{2q+1} contenue dans une enveloppe gaussienne où ω_{IR} est la pulsation du laser générateur :

$$E(t) = E_{2q+1}(t) \cos \left((2q + 1) \omega_{IR} t + \phi_{2q+1} \right) . \quad (1.3)$$

Un train d'harmoniques peut s'exprimer comme la somme de plusieurs champs de fréquences $(2q + 1)\omega_{IR}$:

$$E(t) = \sum_{q=q_0}^Q E_{2q+1}(t) \cos \left((2q + 1) \omega_{IR} t + \phi_{2q+1} \right) . \quad (1.4)$$

Dans le cas où la phase des harmoniques dépend linéairement de l'ordre de l'harmonique ($\phi_{2q+1} = (2q+1)\alpha$), plus le nombre d'harmoniques de fréquences différentes augmente, plus la figure obtenue ressemble à une succession de pics très fins dans le domaine temporel, séparés par une demie période infrarouge comme le montre la figure 1.3. La durée des impulsions XUV très courtes ("bursts") est de l'ordre de quelques centaines d'attosecondes (P. Antoine *et al.* 1996 [26]; A. Baltuska *et al.* 2003 [27]; Y. Mairesse *et al.* 2003 [5]; P. Agostini *et al.* 2004 [28]; F. Quéré *et al.* 2005 [29]; G. Samsone *et al.* 2006 [30]; E. Gustafsson *et al.* 2007 [31]). Cependant les phases relatives des harmoniques sont des paramètres influant fortement sur la durée de ces "bursts". Sur la figure 1.3, les phases des harmoniques sont considérées égales à 0.

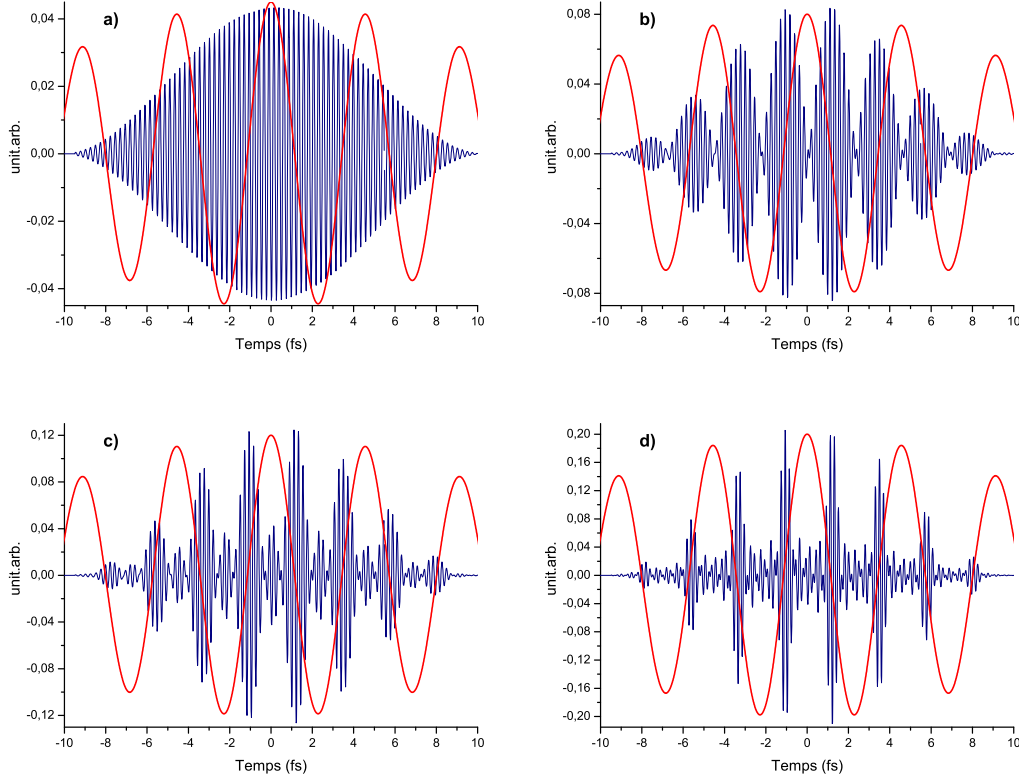


FIG. 1.3 – Oscillations du champ XUV (bleu) associées à : a) 1 harmonique, b) 2 harmoniques, c) 3 harmoniques, d) 5 harmoniques superposées aux oscillations du champ infrarouge (rouge). Les harmoniques XUV sont toutes d'intensité égale et en phase les unes par rapport aux autres. L'échelle verticale n'est pas respectée d'un cas à l'autre afin de pouvoir les comparer.

Les sources de génération d'harmoniques sont donc des sources très large bande dans l'XUV possédant des propriétés de phase remarquables. Les propriétés temporelles et l'existence des "bursts" restent la raison la plus forte

de l'attrait des sources harmoniques par rapport aux autres sources XUV. Les impulsions laser picosecondes et femtosecondes ont rendu possible l'étude de la dynamique des noyaux au sein des molécules, dont les temps caractéristiques sont du même ordre de grandeur. De même, des impulsions lumineuses d'une durée de l'ordre de quelques attosecondes pourraient mener à l'étude de la dynamique électronique au sein des atomes et des molécules.

1.2 Photoionisation simple à un photon XUV seul

Dans le cas le plus simple, un photon polarisé linéairement, d'énergie supérieure au seuil d'ionisation I_p arrache un électron à un atome de gaz rare A :

$$h\nu (1, 0) + A (0, 0) \rightarrow A^+ (L_i, M_i) + e^- (l, m) \quad (1.5)$$

où les nombres quantiques magnétiques se réfèrent à un axe de quantification parallèle à la direction de la polarisation. La section efficace différentielle s'écrit alors (J. Cooper et R. N. Zare 1969 [32]) :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\sigma}{4\pi} \left(1 + \beta P_2(\cos \theta) \right) = \frac{\sigma}{4\pi} \left(1 + \frac{\beta}{2} (3 \cos^2 \theta - 1) \right) \quad (1.6)$$

où σ est la section efficace totale de photoionisation, $P_2(\cos \theta)$ est le polynôme de Legendre d'ordre 2 et θ est l'angle entre la direction d'émission du photoélectron et la polarisation du photon. Le paramètre β dépend de l'atome considéré et varie entre -1 et $+2$. Quelle que soit la valeur de β , les distributions angulaires des photoélectrons possèdent une symétrie de révolution autour de la polarisation du photon. Dans le cas de l'hélium β vaut 2 et la distribution angulaire du photoélectron est en $\cos^2 \theta$.

1.3 Photoionisation simple à plusieurs photons infrarouges de même couleur

Individuellement, chaque photon infrarouge ne possède pas suffisamment d'énergie pour photoioniser l'atome. Par contre la densité de photons infrarouges délivrée par un laser titane-saphir permet de créer un champ électrique oscillant qui peut devenir supérieur au champ atomique que voit l'électron sur son orbite. Cet habillage infrarouge peut ioniser un atome de gaz rare selon différents mécanismes dépendant de l'éclairement du champ infrarouge oscillant.

1.3.1 Ionisation multiphotonique

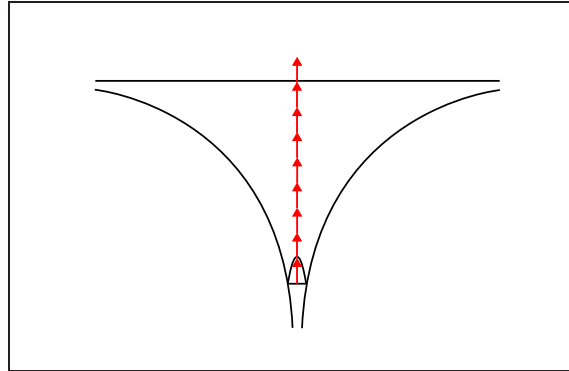


FIG. 1.4 – Ionisation multiphotonique

Lorsque l'éclairement du champ infrarouge est relativement faible devant le champ atomique (quelques $10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$), l'atome peut néanmoins absorber plusieurs photons infrarouges simultanément. Il se produira une ionisation dans le cas où l'énergie acquise est supérieure au potentiel d'ionisation de l'atome (figure 1.4).

1.3.2 Ionisation tunnel

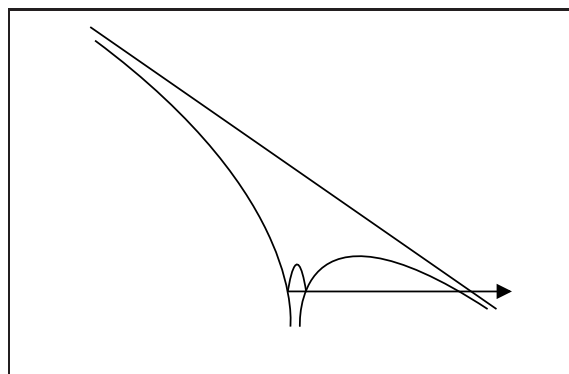


FIG. 1.5 – Ionisation tunnel

Dans le cas où le champ infrarouge est du même ordre de grandeur que le champ atomique ($10^{13} - 10^{15} \text{ W/cm}^2$), ce dernier se voit fortement perturbé par le champ infrarouge oscillant. La modification du champ atomique abaisse la barrière de potentiel que voient les électrons au sein de cet atome. Ainsi, lorsque le champ oscillant est maximum, il existe une probabilité non négligeable d'ioniser l'atome par effet tunnel (figure 1.5). L'électron se retrouve alors dans le

continuum avec une énergie faible. L'effet de l'ion parent sur l'électron peut être considéré comme négligeable devant celui du champ oscillant. La dynamique de l'électron est alors dominée par le champ laser. Le champ laser peut ensuite ramener l'électron au niveau du noyau et il existe alors une possibilité de recombinaison radiative avec l'ion parent avec génération d'harmoniques.

1.4 Approche théorique de la photoionisation simple à plusieurs photons de couleurs différentes

Lorsqu'un atome de gaz rare est exposé à un rayonnement harmonique XUV accompagné d'un rayonnement infrarouge faiblement intense ($10^{11} - 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$), des événements de photoionisation dus à l'interaction simultanée entre l'atome et les deux types de photons se produisent. Dans ce cas, des changements par rapport à l'ionisation simple à un photon XUV sont attendus tant dans le spectre en énergie et que dans les distributions angulaires.

En effet, la figure 1.6 montre l'apparition de chemins quantiques entraînant la création de photoélectrons d'énergie intermédiaire entre deux harmoniques successives qui n'étaient pas présents lorsque seuls les photons harmoniques étaient présents. Les pics nouveaux apparaissant sur les spectres sont appelés "satellites" ou "bandes latérales" (ou "side-bands" en anglais).

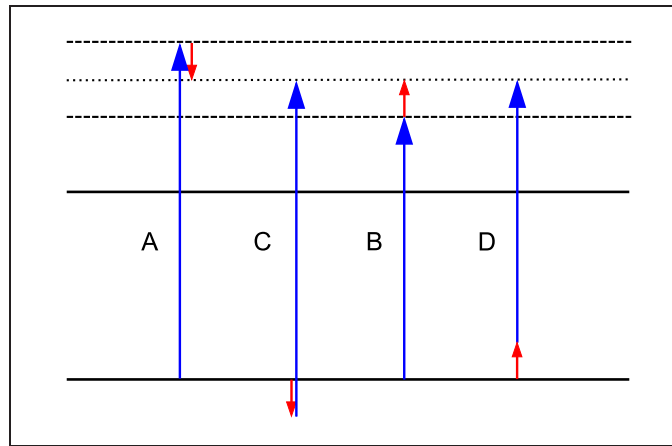


FIG. 1.6 – Les quatre différents chemins quantiques produisant un pic satellite entre les pics harmoniques.

De plus, l'existence simultanée de plusieurs chemins quantiques entre l'état initial et l'état final provoque l'apparition des phénomènes d'interférence quan-

tique qui ont des effets spectaculaires sur les distributions angulaires des pics de photoélectrons, comme nous le verrons dans la suite.

1.4.1 Résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps

Les calculs menés pour ce travail ont reposé sur deux codes semblables, l'un développé au FOM (H. G. Müller), et l'autre au LCPMR (V. Vénard *et al.* 1996 [33] ; R. Taieb *et al.* 1996 [34]). L'équation de Schrödinger dépendante du temps s'écrit (en u.a.) :

$$i \frac{\partial \psi(\vec{r}, t)}{\partial t} = \left[H_{at} + \frac{i}{c} A(t) \frac{\partial}{\partial z} \right] \psi(\vec{r}, t) \quad (1.7)$$

où H_{at} est l'hamiltonien atomique pour un modèle à un électron actif dans un atome d'hélium. Le second terme est l'interaction entre le champ et l'atome dans la jauge vitesse. $A(t)$ est le potentiel vecteur résultant de la présence des harmoniques XUV et du laser infrarouge. Dans ce calcul, les polarisations sont linéaires et colinéaires selon l'axe (oz).

La technique d'intégration est très similaire à celle utilisée par K. C. Kulander et K. J. Schafer [35]. Le calcul a été effectué sur une grille radiale de $r = 0$ à $r_{max} = 1250$ u.a. avec des pas $\delta r = 0.125$ u.a.. En fonction de l'éclairement infrarouge, les moments angulaires inclus varient de $l_{max} = 8$ à $l_{max} = 16$ dans le développement en ondes partielles. On définit ainsi une boîte assez grande pour contenir tous les électrons éjectés. La propagation dans le temps de la solution est assurée par le schéma standard Peaceman-Rachford couplé à une procédure d'itération inverse (équations 1.8 et 1.9) :

$$\psi(t + \Delta t) \approx e^{iH(t + \frac{\Delta t}{2})\Delta t} \psi(t) , \quad (1.8)$$

$$\left(1 + iH(t + \frac{\Delta t}{2})\frac{\Delta t}{2} \right) \psi(t + \Delta t) = \left(1 - iH(t + \frac{\Delta t}{2})\frac{\Delta t}{2} \right) \psi(t) . \quad (1.9)$$

1.4.1.1 Spectre - Fonction fenêtre

Une fois la fonction d'onde obtenue, on déduit les spectres grâce à l'analyse spectrale de la fonction d'onde atomique après le passage de l'impulsion lumineuse. Pour cela, on utilise la technique fondée sur l'utilisation d'un opérateur fenêtre $W(E_k, \Delta E)$ (K. J. Schafer 1991 [36]) :

$$W(E_k, \Delta E) = \frac{\Delta E^4}{(H_{at} - E_k)^4 + \Delta E^4} . \quad (1.10)$$

Le paramètre $2\Delta E$, qui fixe la largeur de la fenêtre spectrale, détermine la résolution en énergie de l'analyse. Cette résolution a été fixée à $2\Delta E = 25$ meV. Les spectres en énergie des photoélectrons sont obtenus à partir de la projection de la fonction d'onde aux temps t élevés sur la fonction d'onde stationnaire $\psi(E_k)$ (équation 1.11), conduisant à la densité de population $P(E_k)$ des photoélectrons d'énergie E_k :

$$P(E_k) = \langle \psi | W(E_k, \Delta E) | \psi \rangle = \langle \psi | \psi(E_k) \rangle . \quad (1.11)$$

1.4.1.2 Distribution angulaire - Calcul du flux

Le calcul des distributions angulaires est un peu plus ardu. En principe, en propageant la solution de l'équation de Schrödinger après l'extinction des champs, on pourrait suivre dans le temps le comportement des paquets d'ondes des photoélectrons produits. Mais une projection directe de la fonction d'onde sur les harmoniques sphériques ne donne pas une représentation correcte des sections efficaces différentielles. Ce phénomène est dû au fait que dans un domaine spatio-temporel fini, le comportement des fonctions d'onde n'est pas exclusivement radial. Pour obtenir les distributions angulaires, on calcule le flux de photoélectrons $\vec{j}(E_k)$ (équation 1.12) dans une fenêtre d'énergie donnée, et passant dans une maille à une distance R grande de l'atome émetteur (1250 u.a.) :

$$\vec{j}(E_k) = \frac{1}{2i} (\psi^*(E_k) \nabla \psi(E_k) |_{r=R} - \psi(E_k) \nabla \psi^*(E_k) |_{r=R}) . \quad (1.12)$$

La section efficace différentielle d'éjection d'un photoélectron avec l'énergie $\approx E_k$ dans un angle solide $d\Omega$ est la projection de $\vec{j}(E_k)$ sur le vecteur unitaire $\hat{n}(\Omega)$:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{E_k} = \vec{j}(E_k) \cdot \hat{n}(\Omega) . \quad (1.13)$$

Le développement sur les moments angulaires (avec $m = 0$ en raison de la polarisation linéaire) de la fonction d'onde s'écrit :

$$\langle \vec{r} | \psi(E_k) \rangle = \sum_{l=0}^{l=l_{max}} \phi_{E_k,l}(r) Y_{l,0}(\Omega) . \quad (1.14)$$

En substituant ce développement dans l'expression générale (équation 1.12), la section efficace différentielle s'écrit :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{E_k} = \frac{1}{2i} \sum_{l=0}^{l=l_{max}} \sum_{l'=0}^{l'=l_{max}} \left[\phi_{E_k,l}(R) Y_{l,0}(\Omega) Y_{l',0}^*(\Omega) \left(\frac{\partial}{\partial r} \phi_{E_k,l}(r) \right) \Big|_{r=R} - c.c. \right] . \quad (1.15)$$

Cette somme fournit une estimation acceptable du flux de photoélectrons, d'énergie cinétique $\approx E_K$, émis dans l'angle solide $d\Omega$. Ce résultat ne varie pas si l'on augmente la valeur de R prouvant ainsi que le calcul a convergé.

La méthode qui vient d'être présentée (en anglais TDSE) est à priori exacte, mais elle est purement numérique, ce qui rend difficile l'interprétation des phénomènes observés. Nous allons présenter deux autres méthodes approximées, qui ont chacune leur domaine de validité, et qui nous seront très utiles dans l'interprétation des résultats expérimentaux et des calculs TDSE.

1.4.2 Approche perturbative

Cette approche, dans laquelle le champ infrarouge est faible devant le champ de l'atome, n'est à priori valable qu'aux faibles éclaircissements infrarouge, au seuil de l'apparition des pics satellites, c'est à dire vers quelques $10^{11} \text{ W.cm}^{-2}$.

1.4.2.1 Pics satellites

L'élément déterminant l'ordre de l'approximation est le nombre de photons échangés dans le processus considéré. Par exemple l'analyse RABITT (P. M. Paul *et al.* 2001 [4] ; H. G. Muller 2002 [6]) est basée sur une approximation du second ordre associée à l'interférence entre des chemins quantiques différents dus à l'absorption d'un photon harmonique XUV et l'échange d'un photon infrarouge. Dans notre cas, quand deux harmoniques H_{2q-1} et H_{2q+1} sont présentes et qu'un photon infrarouge est échangé, le pic satellite SB_{2q} peut être accessible par quatre chemins quantiques différents (figure 1.6). Les chemins quantiques notés A et B dans la figure 1.6 sont majoritaires tandis que les chemins quantiques C et D sont très minoritaires. La raison en est que les chemins quantiques A et B contiennent des amplitudes de transition libre-libre entre des états du continuum d'énergies positives, qui sont bien plus grandes dans un champ infrarouge que les amplitudes de transition non-résonnantes contenues dans les chemins C et D, pour lesquels les états intermédiaires possèdent une énergie négative.

Les interférences quantiques qui gouvernent le comportement des distributions angulaires des pics de photoélectrons, sont liées aux phases des amplitudes des transitions complexes pour les différents chemins.

Pour discuter du comportement des distributions angulaires, nous considérons une transition à deux photons à partir du niveau fondamental $|\psi_{1s^2}\rangle$ avec la présence de deux harmoniques et de l'infrarouge polarisés linéairement et colinéairement. Dans ces conditions, l'état final $|\psi(\vec{k}_{2q})\rangle$ des photoélectrons du pic satellite SB_{2q} d'énergie $\frac{1}{2}\vec{k}_{2q}^2 = E_{1s^2} + 2q\omega_L$ peut être écrit sous la forme réduite :

$$\langle \vec{r} | \psi(\vec{k}_{2q}) \rangle = C_{k_{2q}} \sum_{l=0,2} i^l e^{-i\eta_{k_{2q},l}} Y_{l,0}^*(\hat{k}_{2q}) Y_{l,0}(\hat{r}) R_{k_{2q},l}(r) , \quad (1.16)$$

qui contient le déphasage $\eta_{k_{2q},l}$, la composante radiale $R_{k_{2q},l}(r)$ des états du continuum de l'atome d'hélium simplement ionisés considérés et la constante de normalisation $C_{k_{2q}}$. La somme sur les moments angulaires, réduite à $l = 0, 2$ avec $m = 0$ résulte de l'approximation dipolaire valable aux fréquences considérées. Lorsque l'on combine la représentation du couplage minimal de l'interaction entre le champ et l'électron avec la description semi-classique indépendante du temps des champs (J. J. Sakurai 1967 [37]), l'opérateur dipolaire pour chaque champ considéré devient en unité atomique :

$$D_{2q\pm 1} = \frac{1}{c} \vec{p} \cdot \vec{A}_{0,2q\pm 1} e^{i\phi_{2q\pm 1}} \quad (1.17)$$

pour les harmoniques XUV et :

$$D_L = \frac{1}{c} \vec{p} \cdot \vec{A}_{0,L} e^{i(\phi_L + \omega_L \tau)} \quad (1.18)$$

pour le champ infrarouge. Les quantités $\phi_{2q\pm 1}$ et ϕ_L sont les phases respectives des champs à $t = 0$, τ est le délai entre les impulsions harmonique et infrarouge. En unités atomiques le potentiel vecteur $\vec{A}_0$ s'écrit : $\vec{A}_0 = \frac{c}{\omega} \vec{F}_0$ où $\vec{F}_0$ est le champ électrique qui est relié à l'éclairement par la relation $I = \frac{c}{8\pi} |\vec{F}_0|^2$. En incluant ces données dans les expressions des quatre amplitudes (A-D), la somme de leurs contributions peut être regroupée comme :

$$\begin{aligned} T_{A+C}^{(2)} &= \frac{8\pi}{c} \frac{\sqrt{I_L I_{2q+1}}}{\omega_L \omega_{2q+1}} C_k e^{-i(\phi_{2q+1} - \phi_L - \omega_L \tau)} \\ &\quad \sum_{l=0,2} i^l e^{i\eta_{k,l}} Y_{l,0}(\hat{k}) \left[\left| M_{A,l}^{(2)}(E_{1s^2} + \omega_{2q+1}) \right| e^{i\theta_{A,l}} + M_{C,l}^{(2)}(E_{1s^2} - \omega_L) \right] \end{aligned} \quad (1.19)$$

$$\begin{aligned}
 T_{B+D}^{(2)} &= \frac{8\pi}{c} \frac{\sqrt{I_L I_{2q-1}}}{\omega_L \omega_{2q-1}} C_k e^{-i(\phi_{2q-1} + \phi_L + \omega_L \tau)} \\
 &\quad \sum_{l=0,2} i^l e^{i\eta_{k,l}} Y_{l,0}(\hat{k}) \left[\left| M_{B,l}^{(2)}(E_{1s^2} + \omega_{2q-1}) \right| e^{i\theta_{B,l}} + M_{D,l}^{(2)}(E_{1s^2} + \omega_L) \right]
 \end{aligned} \tag{1.20}$$

qui ont été calculées à $k = k_{2q}$. Ici, les amplitudes réduites $M_{J,l}^{(2)}(E)$ sont des éléments de matrices atomiques de la forme :

$$M_{J,l}^{(2)}(E_J) = \langle Y_{l,0} R_{k,l} | p_z G(E_J) p_z | \psi_{1s^2} \rangle \tag{1.21}$$

qui contiennent la composante $m = 0$ de la fonction de Green :

$$G(E) = \sum_{n',l'} \frac{|Y_{l',0} R_{n',l'}\rangle \langle Y_{l',0} R_{n',l'}|}{E - E_{n'}} . \tag{1.22}$$

Ici, la somme sur l' est réduite à un terme $l' = 1$ à cause de la règle de sélection des transitions dipolaires, tandis que la somme sur n' prend en compte le spectre complet des états liés et du continuum de l'hélium. Ceci implique que pour les chemins A et B qui sont associés à une première absorption d'un photon harmonique XUV et à une transition libre-libre, l'argument de la fonction de Green est positif, comme dans les transitions ATI. Ainsi, les amplitudes correspondantes $M_{A,l}^{(2)}(E)$ et $M_{B,l}^{(2)}(E)$ sont complexes, et contiennent les phases $\theta_{A,l}$ et $\theta_{B,l}$, comme indiqué dans les équations (1.19) et (1.20). Par contre les amplitudes associées aux chemins C et D sont réelles. Nous introduisons les amplitudes atomiques $M_{J+K,l}^{\prime(2)}$ pour chaque composante des moments angulaires ($l = 0, 2$) :

$$\begin{aligned}
 M_{A+C,l}^{\prime(2)} &= \left| M_{A,l}^{(2)}(E_{1s^2} + \omega_{2q+1}) \right| e^{i\theta_{A,l}} + M_{C,l}^{(2)}(E_{1s^2} - \omega_L) \\
 &= \left| M_{A+C,l}^{\prime(2)} \right| e^{i\theta_{A+C,l}} ,
 \end{aligned} \tag{1.23}$$

$$\begin{aligned}
 M_{B+D,l}^{\prime(2)} &= \left| M_{B,l}^{(2)}(E_{1s^2} + \omega_{2q+1}) \right| e^{i\theta_{B,l}} + M_{D,l}^{(2)}(E_{1s^2} - \omega_L) \\
 &= \left| M_{B+D,l}^{\prime(2)} \right| e^{i\theta_{B+D,l}} .
 \end{aligned} \tag{1.24}$$

Dans cette approximation, la distribution angulaire du pic satellite résulte de la combinaison d'ondes s et d . Plus précisément, la dépendance de la section efficace différentielle par rapport à l'angle $\theta = (\vec{z}, \vec{k})$ entre la direction de polarisation des champs et le vecteur d'onde du photoélectron est de la forme générale :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\theta}\right)_{E_k} = \sigma_0 |\alpha Y_{0,0}(\theta) + \beta Y_{2,0}(\theta)|^2 \quad (1.25)$$

tandis que la section efficace totale, qui est utilisée dans les techniques comme RABITT est donnée par :

$$\sigma_{E_k} = \sigma_0 (|\alpha|^2 + |\beta|^2). \quad (1.26)$$

Dans ces expressions, l'amplitude et la phase des coefficients α et β dépendent de ceux des éléments de matrice M' et des phases respectives présentes dans les équations (1.19) et (1.20). Par exemple le coefficient de l'onde s est proportionnel à :

$$\alpha \propto e^{i\eta_{k,0}} \left[\sqrt{I_{2q+1}} e^{-i(\phi_{2q+1} - \phi_L - \omega_L \tau)} \left| M'_{A+C,0}^{(2)} \right| e^{i\theta_{A+C,0}} + \sqrt{I_{2q-1}} e^{-i(\phi_{2q-1} + \phi_L + \omega_L \tau)} \left| M'_{B+D,0}^{(2)} \right| e^{i\theta_{B+D,0}} \right] \quad (1.27)$$

et son module carré contient un terme d'oscillation $\propto \cos(\Delta\phi_H + \Delta\theta - 2\phi_l + 2\omega_L \tau)$ où $\Delta\phi_H = \phi_{2q+1} - \phi_{2q-1}$ est la différence de phase entre deux harmoniques consécutives et $\Delta\theta = \theta_{A+C,0} - \theta_{B+D,0}$ est la différence de phase atomique (V. Vénard *et al.* 1995 [38], 1996 [33]).

On peut noter que β a la même structure avec l'échange $l = 0 \rightarrow 2$. Il en résulte qu'en changeant le délai τ entre les impulsions laser et harmonique, le carré de l'amplitude oscille à la fréquence $2\omega_L$. De plus, en comparant à l'oscillation du laser, on peut en principe déterminer $\Delta\phi_H + \Delta\theta$.

L'analyse de la distribution angulaire est plus complexe. On a :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\theta}\right)_{E_k} = \sigma_0 \left[\left| \alpha Y_{0,0}(\theta) \right|^2 + \left| \beta Y_{2,0}(\theta) \right|^2 + 2 \left| \alpha \beta \right| Y_{0,0}(\theta) Y_{2,0}(\theta) \cos(\theta_\alpha - \theta_\beta) \right] \quad (1.28)$$

où θ_α et θ_β sont les phases globales des amplitudes α et β . On peut noter, que les déphasages $\eta_{k,l}$ sont présents dans l'expression 1.28 alors qu'ils n'intervenaient pas dans la section efficace totale (équation 1.26). Ainsi, bien que les distributions angulaires montrent explicitement une variation périodique avec le délai τ et une dépendance à la différence de phase des harmoniques $\Delta\phi_H$, leur analyse requiert une connaissance approfondie des quantités atomiques des expressions des amplitudes des chemins quantiques considérés dans la figure (1.6). Cette analyse représente un défi pour la théorie.

1.4.2.2 Pics harmoniques

Le cas des modifications induites par l'infrarouge sur l'amplitude et la distribution angulaire des pics harmoniques H_{2q+1} est encore plus complexe. La raison en est que l'on doit inclure des corrections du troisième ordre qui impliquent l'absorption d'un photon harmonique accompagné de l'échange de deux photons infrarouges. Comme montré sur la figure (1.7), il existe douze chemins quantiques contribuant à cette perturbation du troisième ordre. Ces amplitudes viennent s'ajouter à celle associée au processus de photoionisation direct à un photon harmonique XUV.

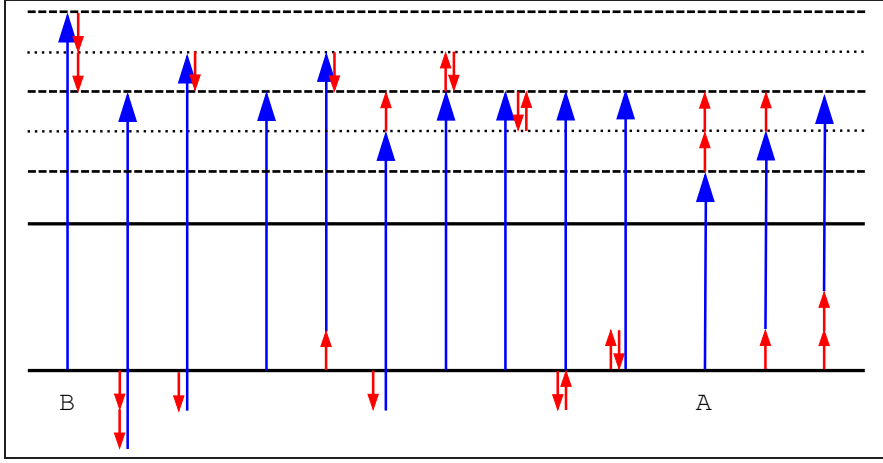


FIG. 1.7 – Les treize différents chemins quantiques produisant un pic harmonique.

Comme exemple, nous montrons la structure d'une de ces corrections du troisième ordre, associée au chemin quantique A de la figure 1.7 impliquant l'absorption d'un photon harmonique XUV H_{2q-1} et de deux photons infrarouges :

$$T_A^{(3)} = \left(\frac{8\pi}{c} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{I_L \sqrt{I_{2q-1}}}{\omega_L^2 \omega_{2q-1}} C_k e^{-i(\phi_{2q-1} + 2\phi_L + 2\omega_L \tau)} \sum_{l=1,3} i^l e^{i\eta_{k,l}} Y_{l,0}(\hat{k}) \left| M_{A,l}^{(3)} \right| e^{i\theta_{A,l}} \quad (1.29)$$

où l'énergie du photo-électron est $\frac{1}{2}k^2 = E_{1s^2} + (2q+1)\omega_L$ et où l'élément de matrice du troisième ordre $M_{A,l}^{(3)}$ s'écrit :

$$M_{A,l}^{(3)} = \left\langle Y_{l,0} R_{k,l} \left| p_z G[E_{1s^2} + (2q-1)\omega_L + \omega_L] p_z G[E_{1s^2} + (2q-1)\omega_L] p_z \right| \psi_{1s^2} \right\rangle. \quad (1.30)$$

L'amplitude de transition totale contient douze éléments de matrice de ce type qui doivent être ajoutés à la contribution en onde p du premier ordre (équation 1.31) qui est associée au processus d'ionisation à un photon par l'harmonique H_{2q+1} :

$$T^{(1)} = \sqrt{\frac{8\pi}{c}} \frac{\sqrt{I_{2q+1}}}{\omega_{2q+1}} C_k e^{-i\phi_{2q+1}} i e^{i\eta_{k,1}} Y_{1,0}(\hat{k}) \langle Y_{l,0} R_{k,l} | p_z | \psi_{1s^2} \rangle . \quad (1.31)$$

Les distributions angulaires des photoélectrons des pics harmoniques résultent d'une combinaison d'ondes p et f et la dépendance en θ de la section efficace différentielle est de la forme générale :

$$\left(\frac{d\sigma^{(3)}}{d\theta} \right)_{E_k} = \sigma_0^{(3)} \left| \gamma Y_{1,0}(\theta) + \delta Y_{3,0}(\theta) \right|^2 \quad (1.32)$$

où la contribution dominante du coefficient γ de l'onde p est celle du premier ordre : $T^{(1)}$. Le coefficient δ contient les douze contributions du troisième ordre finissant sur un état f . Son amplitude est en principe beaucoup plus faible que celle de γ . Cependant, sa contribution peut affecter de façon très significative les distributions angulaires pour un éclairage modéré autour de 10^{12}W.cm^{-2} , comme nous le verrons dans la suite.

Un autre point est intéressant : dans le carré de l'amplitude, les composantes associées aux chemins contenant les harmoniques H_{2q+1} et H_{2q-1} oscillent à la fréquence $4\omega_L$ quand τ varie. Cependant, la structure intriquée des amplitudes de transition totales rend difficile d'aller au delà de ces observations générales.

1.4.3 Approximation du photon de faible énergie (soft-photon)

Il s'agit d'une approche très différente (A. Maquet et R Taieb 2007 [8]), dont la validité n'est pas dépendante de l'éclairage infrarouge comme l'est l'approche perturbative, mais qui a une autre limitation. Elle s'applique bien dans le cas où l'énergie du photon infrarouge qui habille l'état du continuum est plus faible que l'énergie du photoélectron : $\hbar\omega_L \ll E_k$. Il peut être alors montré que la section efficace différentielle pour un processus de collision, accompagné de l'échange de n photons du champ d'habillage, se factorise comme :

$$\left(\frac{d\sigma^{(n)}}{d\theta} \right)_{E_k} = J_n^2(\vec{\alpha}_0 \cdot \vec{k}) \left(\frac{d\sigma^{(0)}}{d\theta} \right)_{E_k} \quad (1.33)$$

où $J_n(z)$ est la fonction de Bessel et $\vec{\alpha}_0 = \frac{\vec{F}_0}{\omega_L^2}$ est le vecteur d'excursion classique de l'électron libre dans le champ d'habillage. La quantité $\left(\frac{d\sigma^{(0)}}{d\theta}\right)_{E_k}$ est la section différentielle exacte pour le processus de collision considéré en absence du champ d'habillage (N. M. Kroll *et al.* 1973 [39]). La base physique pour cette approximation vient de la divergence infrarouge de l'électrodynamique quantique (F. E. Low 1958 [40]).

Pour adapter ce résultat général au cas de la photoionisation par les harmoniques, le point de départ consiste à écrire l'amplitude de transition de la matrice S pour le processus de photoionisation, partant de l'état fondamental de l'hélium et finissant dans le continuum habillé :

$$S = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt \langle \chi_{\vec{k}}(t) | \vec{A}_H(t) \cdot \vec{p} | \psi_{1s^2}(t) \rangle \quad (1.34)$$

où l'état initial dépendant du temps est :

$$\langle \vec{r} | \psi_{1s^2}(t) \rangle = e^{-iE_{1s^2}t} \psi_{1s^2}(\vec{r}) \quad (1.35)$$

et le terme d'interaction entre les harmoniques et l'atome est :

$$\vec{A}_H(t) \cdot \vec{p} = A_{0H} e^{-i(\omega_H t + \phi_H)} \hat{\epsilon}_H \cdot \vec{p} . \quad (1.36)$$

Pour simplifier la discussion, nous supposons dans la suite que l'état final peut être représenté par des fonctions d'onde de Volkov :

$$\langle \vec{r} | \chi_{\vec{k}}(t) \rangle = e^{-i(\vec{\alpha}(t) \cdot \vec{k} + \frac{1}{2}k^2 t)} \chi_{\vec{k}}(\vec{r}) \quad (1.37)$$

où

$$\vec{\alpha}(t) = \vec{\alpha}_0 \sin(\omega_L t + \phi_L) \quad ; \quad \vec{\alpha}_0 = \frac{\vec{F}_0}{\omega_L^2} \quad (1.38)$$

et

$$\chi_{\vec{k}}(\vec{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}} e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r}} . \quad (1.39)$$

Le développement en fonctions de Bessel de l'exponentielle dont l'argument est sinusoïdal permet d'écrire :

$$\chi_{\vec{k}}(\vec{r}, t) = \frac{1}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} J_n(\vec{\alpha}_0 \cdot \vec{k}) e^{-in(\omega_L t + \phi_L)} e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \frac{k^2}{2}t)} \quad (1.40)$$

où l'indice n est associé au nombre de photons infrarouges échangés au cours du processus. Cet indice peut être positif ou négatif suivant que ces photons sont absorbés ou émis. En remplaçant dans l'amplitude de transition de la matrice S (équation 1.34) et en effectuant l'intégration sur le temps qui introduit la fonction δ de la conservation de l'énergie, on obtient :

$$S = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} S^{(n)} \delta \left(\frac{k^2}{2} - (E_{1s^2} + \omega_H + n\omega_L) \right) \quad (1.41)$$

où les composants $S^{(n)}$, qui sont associés à l'échange de n photons infrarouges, sont de la forme générale :

$$S^{(n)} = -2\pi i J_{-n}(\vec{\alpha}_0 \cdot \vec{k}_n) e^{-i(\phi_H + n\phi_L)} \langle \chi_{\vec{k}_n} | \vec{\varepsilon}_H \cdot \vec{p} | \psi_{1s^2} \rangle \quad (1.42)$$

où $k_n = \sqrt{2(E_{1s^2} + \omega_H + n\omega_L)}$. Nous notons que lorsque il y a un délai τ entre les champs harmonique et infrarouge, on doit remplacer la phase du laser selon $\phi_L \rightarrow \phi_L + \omega_L \tau$.

Dans le cadre de cette approximation, les amplitudes de transition pour les pics harmoniques et satellites ont des structures différentes. Nous les présentons dans la suite.

1.4.3.1 Pics satellites

Pour les pics satellites SB_{2q} , prenons tout d'abord en compte les chemins quantiques dominants A et B de la figure (1.6). Ils sont associés à l'absorption des harmoniques H_{2q+1} et H_{2q-1} combinée avec l'échange d'un photon infrarouge. Ainsi, on doit combiner deux amplitudes : $S_{2q} = S^{(-1)} + S^{(+1)}$:

$$\begin{aligned} S_{2q} = & -2\pi i \sqrt{\frac{8\pi}{c}} \langle \chi_{\vec{k}_{2q}} | \vec{\varepsilon}_H \cdot \vec{p} | \psi_{1s^2} \rangle \\ & \left[\frac{\sqrt{I_{2q+1}}}{\omega_{2q+1}} J_1(\vec{\alpha}_0 \cdot \vec{k}_{2q}) e^{-i(\phi_{2q+1} - \phi_L)} \right. \\ & \left. + \frac{\sqrt{I_{2q-1}}}{\omega_{2q-1}} J_{-1}(\vec{\alpha}_0 \cdot \vec{k}_{2q}) e^{-i(\phi_{2q-1} + \phi_L)} \right] \end{aligned} \quad (1.43)$$

où $k_{2q} = \sqrt{2(E_{1s^2} + 2q\omega_L)}$ et $\vec{\varepsilon}_H$ est le vecteur polarisation commun aux harmoniques H_{2q+1} et H_{2q-1} . On note que $J_{-1}(z) = -J_1(z)$. La dépendance angulaire de l'amplitude est une composition d'éléments de matrice d'ionisation à un photon donnant des ondes p , proportionnelles à $\cos \theta$, associées à l'absorption d'un photon harmonique, multipliées par la fonction de Bessel $J_{\pm 1}$:

$$J_{\pm 1}(\vec{\alpha}_0 \cdot \vec{k}_{2q}) = J_{\pm 1}(\alpha_0 k_{2q} \cos(\theta)) \quad . \quad (1.44)$$

Les sections efficaces différentielles, obtenues en élevant l'amplitude au carré, sont de la forme générale :

$$\left(\frac{d\sigma_{2q}}{d\theta} \right)_{E_k} = J_1^2(\alpha_0 k_{2q} \cos \theta) \left| \frac{\sqrt{I_{2q+1}}}{\omega_{2q+1}} - \frac{\sqrt{I_{2q-1}}}{\omega_{2q-1}} e^{-i(\Delta\phi_H + 2\phi_L)} \right|^2 \left(\frac{d\sigma^{(0)}}{d\theta} \right)_{E_k} \quad (1.45)$$

où $\frac{d\sigma^{(0)}}{d\theta}$ est la section efficace différentielle d'ionisation à un photon, calculée avec le vecteur d'onde final $\vec{k}_{2q}$. Comme attendu, la section efficace montre une dépendance en $\cos(\Delta\phi_H + 2\phi_L)$ et oscille à la fréquence $2\omega_L$ lorsque l'on change la phase $\phi_L \rightarrow \phi_L + \omega_L \tau$. Cependant on peut remarquer que les phases atomiques ainsi que les déphasage $\eta_{k,l}$ des fonctions d'onde du continuum ne sont plus présents.

Pour discuter de la dépendance angulaire des pics de photoélectrons dans le cadre de cette approximation, on considère le développement en série de la fonction $J_1(z)$:

$$J_1(z) = \frac{z}{2} \left[1 - \frac{z^2}{8} + \frac{z^4}{48} + \dots \right] \quad . \quad (1.46)$$

Pour de petites valeurs de l'argument, c'est à dire à faible éclairement du champ infrarouge ($\alpha_0 \propto \sqrt{I_L}$), la section efficace varie donc, à partir des équations 1.45 et 1.46, en $\cos^4 \theta$ c'est à dire aussi comme la combinaison d'ondes s et d :

$$\frac{d\sigma_{2q}}{d\theta} \propto [Y_{0,0}(\theta) + \frac{2}{\sqrt{5}} Y_{2,0}(\theta)]^2 \quad . \quad (1.47)$$

Cette dépendance implique une distribution angulaire plus étroite que celle en $\cos^2 \theta$ de la section efficace pour l'ionisation à un photon. Nous obtenons donc ici, grâce à l'approximation "soft-photon", une information supplémentaire qui n'était pas fournie par la théorie perturbative. Cependant, à plus haut éclairement, les termes d'ordre supérieur contribuent, modifiant ainsi le comportement en $\cos^4 \theta$ en ajoutant des puissances supérieures de $\cos^2 \theta$. On note que dans le régime de haut éclairement, si plus de deux harmoniques sont présentes, on doit aussi ajouter les contributions provenant des harmoniques ... H_{2q-5} , H_{2q-3} , H_{2q+3} , H_{2q+5} ... associées à un échange d'un grand nombre de photons infrarouges.

1.4.3.2 Pics harmoniques

La structure de la matrice S associée aux pics harmoniques H_{2q+1} est plus compliquée. Ceci est dû au fait que si on se limite aux contributions d'ordre le plus bas, il faut ajouter au moins trois amplitudes :

$$S_{2q+1} = \sum_{p=-1}^{+1} S^{(2p)} \quad (1.48)$$

où les composantes $S^{(2p)}$ s'écrivent respectivement :

$$S^{(+2)} = -2\pi i \sqrt{\frac{8\pi}{c}} \frac{\sqrt{I_{2q+3}}}{\omega_{2q+3}} J_{-2}(\vec{\alpha}_0 \cdot \vec{k}_{2q+1}) e^{-i(\phi_{2q+3} - 2\phi_L)} \langle \chi_{\vec{k}_{2q+1}} | \vec{\varepsilon}_H \cdot \vec{p} | \psi_{1s^2} \rangle , \quad (1.49)$$

$$S^{(0)} = -2\pi i \sqrt{\frac{8\pi}{c}} \frac{\sqrt{I_{2q+1}}}{\omega_{2q+1}} J_0(\vec{\alpha}_0 \cdot \vec{k}_{2q+1}) e^{-i\phi_{2q+1}} \langle \chi_{\vec{k}_{2q+1}} | \vec{\varepsilon}_H \cdot \vec{p} | \psi_{1s^2} \rangle , \quad (1.50)$$

$$S^{(-2)} = -2\pi i \sqrt{\frac{8\pi}{c}} \frac{\sqrt{I_{2q-1}}}{\omega_{2q-1}} J_2(\vec{\alpha}_0 \cdot \vec{k}_{2q+1}) e^{-i(\phi_{2q-1} + 2\phi_L)} \langle \chi_{\vec{k}_{2q+1}} | \vec{\varepsilon}_H \cdot \vec{p} | \psi_{1s^2} \rangle . \quad (1.51)$$

Les composantes $S^{(\pm 2)}$ sont associées aux chemins quantiques A et B de la figure (1.7), tandis que $S^{(0)}$ rend compte de la correction induite par le champ laser sur l'absorption de l'harmonique H_{2q+1} . L'amplitude totale devient :

$$\begin{aligned} S_{2q+1} = & -2\pi i \sqrt{\frac{8\pi}{c}} \langle \chi_{\vec{k}_{2q+1}} | \vec{\varepsilon}_H \cdot \vec{p} | \psi_{1s^2} \rangle \\ & \left[\frac{\sqrt{I_{2q+3}}}{\omega_{2q+3}} J_{-2}(\vec{\alpha}_0 \cdot \vec{k}_{2q+1}) e^{-i(\phi_{2q+3} - 2\phi_L)} \right. \\ & + \frac{\sqrt{I_{2q+1}}}{\omega_{2q+1}} J_0(\vec{\alpha}_0 \cdot \vec{k}_{2q+1}) e^{-i\phi_{2q+1}} \\ & \left. + \frac{\sqrt{I_{2q-1}}}{\omega_{2q-1}} J_2(\vec{\alpha}_0 \cdot \vec{k}_{2q+1}) e^{-i(\phi_{2q-1} + 2\phi_L)} \right] . \quad (1.52) \end{aligned}$$

On observe de nouveau qu'en variant le délai τ entre les impulsions harmonique et infrarouge, c'est à dire en changeant la phase $\phi_L \rightarrow \phi_L + \omega_L \tau$, certaines contributions dans le carré de l'amplitude oscillent à la fréquence $4\omega_L$.

Pour discuter la dépendance angulaire de la section efficace différentielle, on peut utiliser les développements en série des fonctions de Bessel :

$$J_0(z) = 1 - \frac{z^2}{4} + \frac{z^4}{64} + \dots \quad (1.53)$$

et

$$J_{\pm 2}(z) = \frac{z^2}{8} \left[1 - \frac{z^2}{12} + \frac{z^4}{384} + \dots \right] . \quad (1.54)$$

Dans les conditions de ce travail, l'énergie cinétique des photoélectrons est typiquement de 5 eV, pour un éclairage de $10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$ et on obtient dans ce cas $z = 0.7$. Dans ces conditions, on peut négliger les termes d'ordre supérieur à 2 de ces développements et la distribution angulaire résultante est de la forme :

$$\frac{d\sigma_{2q+1}}{d\theta} \propto \cos^2(\theta) \left[1 - \frac{1}{4} \alpha^2 k_{2q+1}^2 \cos^2 \theta \right]^2 \quad (1.55)$$

qui correspond à une combinaison d'ondes p et f . Cela montre que l'habillage de l'état final a pour conséquence un mélange de moments angulaires plus élevés dans la fonction d'onde du photoélectron. Cette expression peut être réécrite comme une combinaison des harmoniques sphériques :

$$\frac{d\sigma_{2q+1}}{d\theta} \propto [Y_{1,0}(\theta) - \beta Y_{3,0}(\theta)]^2 \quad (1.56)$$

où le coefficient β , qui provient de l'habillage de l'état final par le champ infrarouge, est positif et proportionnel à l'éclairement du laser. Ici de nouveau nous obtenons une information qui n'était pas donnée par la théorie des perturbations. Dans le régime de faible éclairage, β est tel que $\beta \ll 1$, ce qui implique seulement un élargissement de la distribution angulaire du pic harmonique H_{2q+1} comparée à la distribution angulaire en $\cos^2 \theta$ de la photoionisation à un photon.

A plus haut éclairage, la contribution des termes $S^{(-2)}$ et $S^{(+2)}$ n'est plus négligeable, et les plus grandes puissances de $\cos^2 \theta$, associées à des moments angulaires plus grands du photoélectron rentrent en ligne de compte. On peut montrer que ces contributions créent un creux à $\theta = 0$ en plus de l'élargissement déjà discuté. Nous allons voir dans la suite que les calculs TDSE font apparaître ce creux d'une manière spectaculaire. On note que si plus de trois harmoniques sont présentes, des termes d'ordre supérieur doivent être inclus dans le développement, comme mentionné pour les pics satellites.

1.4.4 Calcul TDSE pour l'hélium dans le cas d'une harmonique unique

Nous utiliserons les approches théoriques qui viennent d'être présentées au chapitre 3, dans le cas où deux, trois ou un grand nombre d'harmoniques sont présentes. Néanmoins nous illustrons ici le cas le plus simple, celui d'une seule harmonique, car certains phénomènes concernant les éclaircissements infrarouges et les formes des distributions angulaires, sont déjà présents dans ce cas. Certains des chemins quantiques disparaissent dans les schémas montrés précédemment. Nous choisissons l'harmonique H_{19} , qui donne un photoélectron autour de 5 eV, d'une part parce que nous avons réalisé des mesures avec l'harmonique H_{19} et d'autre part, afin que les conditions de validité de l'approche du photon de faible énergie soient approximativement remplies. Cependant les figures 1.8 et 1.9 sont basées sur l'approche numérique TDSE.

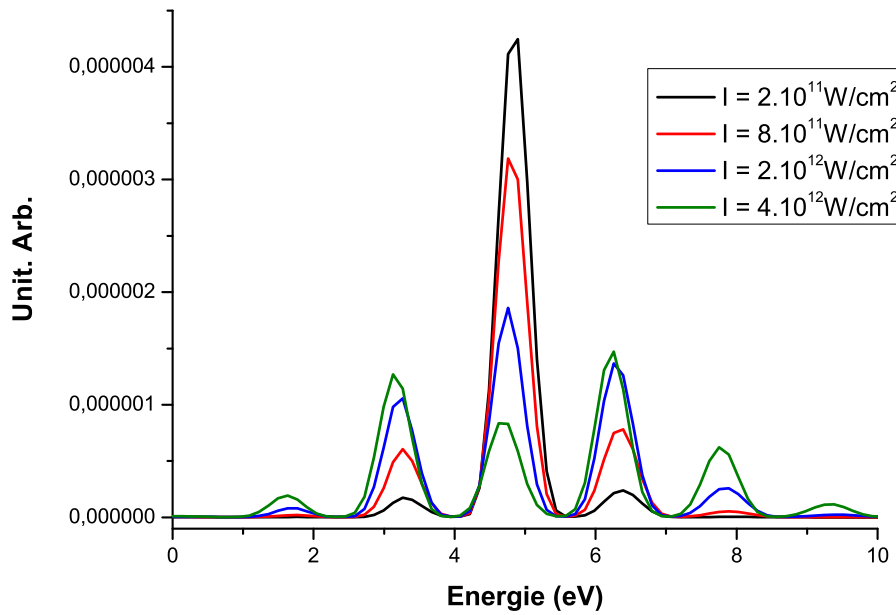


FIG. 1.8 – Spectres de photoionisation simple de l'hélium soumis à un rayonnement composé de l'harmonique H_{19} et de l'infrarouge à différents éclaircissements.

Si l'éclaircissement infrarouge est suffisant, les pics satellites SB_{+1} et SB_{-1} (figure 1.8) apparaissent de part et d'autre du pic harmonique. Plus l'éclaircissement augmente, plus les pics satellites grandissent et le pic harmonique diminue. Si l'éclaircissement est encore plus important, il sera même possible de faire apparaître les pics satellites d'ordre supérieur (SB_{+2} , SB_{-2} , SB_{+3} , SB_{-3} etc ...).

L'existence des pics satellites est liée aux pics harmoniques, et l'augmentation de l'intensité des satellites correspond exactement à la diminution du pic harmonique. Tout se passe comme si le pic harmonique était en partie transformé en pics satellites. On peut montrer à partir des calculs que le nombre total de photoélectrons reste constant, avec ou sans laser et quel que soit l'éclairement de ce dernier.

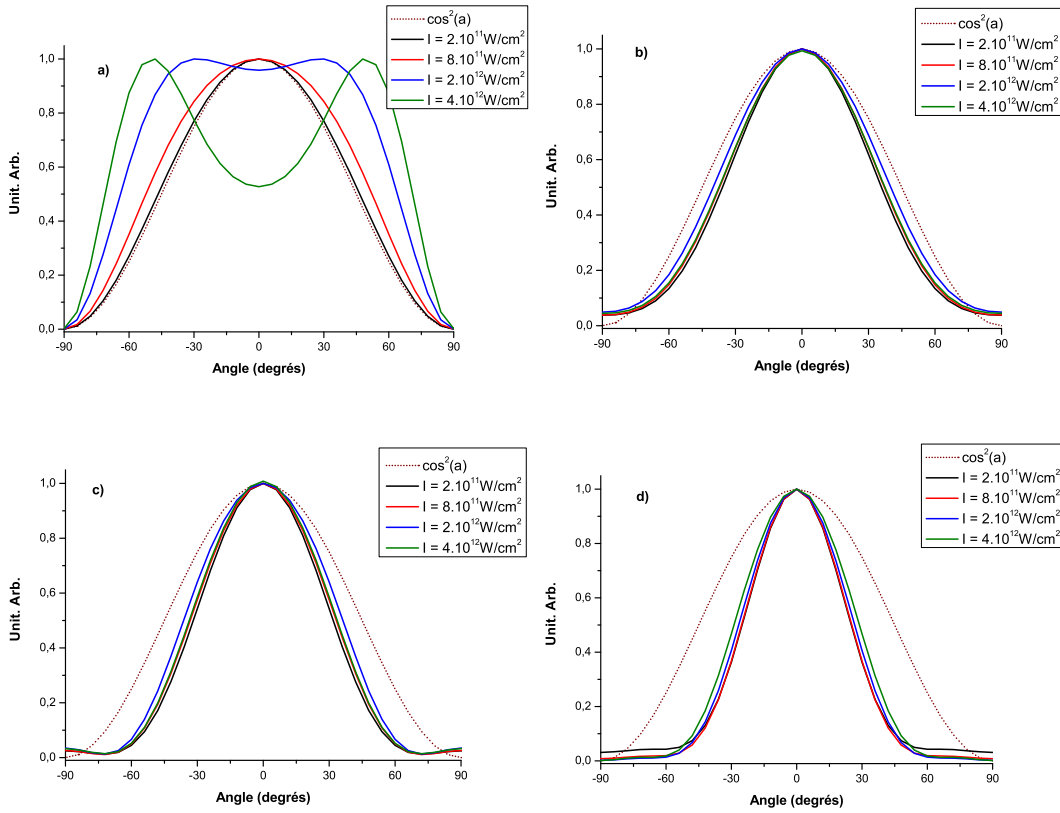


FIG. 1.9 – Distributions angulaires des pics de photoélectrons de l'hélium soumis à un rayonnement composé de l'harmonique H_{19} et de l'infrarouge à différents éclairements. Distributions angulaires : a) pic harmonique H_{19} , b) pic satellite SB_{18} , c) pic satellite SB_{20} et d) pic satellite SB_{21} .

La figure 1.9 montre les distributions angulaires du pic harmonique H_{19} et de ses pics satellites calculées à différents éclairements infrarouges. La distribution angulaire du pic harmonique est tout d'abord élargie par rapport au cas où il n'y a pas d'infrarouge et est donc plus large que $\cos^2 \theta$. Celles des satellites, quant à elles, sont plus étroites que $\cos^2 \theta$. Quand l'éclairement infrarouge augmente, les harmoniques s'élargissent de plus en plus jusqu'à présenter un creux en leur sommet. Cette variation de la distribution angulaire du pic harmonique est essentiellement due à l'interférence entre les ondes p et

f. Pour les satellites, la variation des distributions angulaires en fonction de l'éclairement infrarouge est très peu perceptible (figure 1.9), conformément à ce que prédit l'approche du photon de faible énergie.

La figure 1.9 montre que l'éclairement est un paramètre déterminant dans la forme des distributions angulaires. Par contre dans ce cas précis où une unique harmonique XUV est présente, le délai τ entre l'impulsion harmonique et l'impulsion infrarouge n'a aucune influence, pourvu qu'il y ait recouvrement entre les deux impulsions lumineuses comme sur la figure 1.3.a. Nous verrons au chapitre 3 que d'autres paramètres sont déterminants vis-à-vis de la forme des distributions angulaires des harmoniques habillées par l'infrarouge, lorsqu'au moins deux harmoniques sont présentes, comme sur les figures 1.3.b, c, d.

1.5 Double photoionisation

La double photoionisation (DPI) à un photon XUV est un processus beaucoup plus complexe que la simple ionisation à un photon XUV présentée au paragraphe 1.2. En effet l'état final comporte un ion doublement chargé et deux électrons, c'est à dire dans le mécanisme direct trois corps en interaction coulombienne. Sur le plan théorique ce problème est très difficile et donne lieu à des calculs numériques très lourds. Sur le plan expérimental il faut utiliser la technique des coïncidences pour mesurer les deux électrons et leurs vecteurs impulsions $\vec{k}_1$ et $\vec{k}_2$. Depuis la première mesure de ce type sur la double photoionisation de l'hélium par le rayonnement synchrotron par O. Schwarzkopf *et al.* en 1993 [9], de très nombreux travaux expérimentaux et théoriques ont été consacrés à la double photoionisation des atomes, et plus récemment des molécules, par un photon XUV généralement produit par le rayonnement synchrotron. Pour toutes ces études nous renvoyons aux revues de J. S. Briggs et V. Schmidt de 2000 [41] et de L. Avadi et A. Huetz de 2005 [42].

La double photoionisation à plusieurs photons commence à être à la portée des expériences, comme nous le montrerons au chapitre 4 dans le cas XUV + IR. C'est un processus particulièrement complexe, car plusieurs mécanismes très différents peuvent exister en même temps, aussi bien du côté de l'absorption des photons XUV et IR, que du côté de l'émission des deux électrons, en particulier lorsqu'il s'agit d'un atome de gaz rare plus lourd que l'hélium. Nous allons les présenter successivement.

1.5.1 Différents mécanismes en compétition lors de l'absorption des photons

1.5.1.1 Mécanisme séquentiel

Le mécanisme séquentiel de double photoionisation, que nous noterons en abrégé "s" par la suite, correspond en fait à deux ionisations simples successives (figure 1.10).

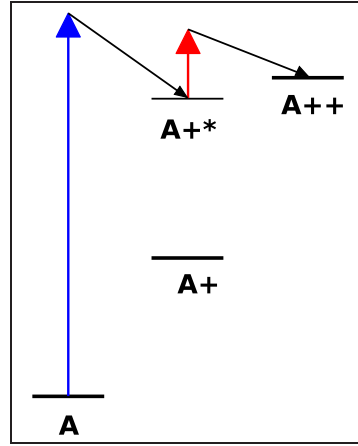


FIG. 1.10 – Schéma de double photoionisation séquentielle. La flèche rouge symbolise l'absorption d'un ou plusieurs photons infrarouges.

Aux éclaircissements infrarouges où nous nous plaçons dans ce travail, la première ionisation ne peut être provoquée que par le photon harmonique, qui produit un premier photoélectron d'énergie E_1 et laisse l'ion positif simplement chargé A^+ dans son état fondamental ou bien dans un état excité A^{+*} . Cet ion a une durée de vie infinie s'il s'agit du fondamental, dans le domaine ns ou ps s'il s'agit d'un état excité qui peut se désexciter radiativement, et encore beaucoup plus longue s'il s'agit d'un état métastable. Lorsque l'impulsion infrarouge arrive simultanément ou après l'impulsion harmonique, l'ion peut être lui même ionisé par l'infrarouge avec émission d'un deuxième photoélectron d'énergie E_2 (figure 1.10) et l'on obtient ainsi une double ionisation séquentielle. Il faut noter que si l'énergie du photon harmonique est proche (inférieure ou supérieure) du seuil de double ionisation Ip^{2+} , l'ionisation séquentielle peut se produire par l'intermédiaire de nombreux états de l'ion A^{+*} présents sous le seuil de double ionisation, vers lequel ils convergent. Notons que la conservation de l'énergie implique pour la première ionisation :

$$E_1 = h\nu_{XUV} - E_{A^{+*}} \quad (1.57)$$

et pour la deuxième :

$$E_2 = E_{A^{+*}} + n h\nu_{IR} - Ip^{2+} . \quad (1.58)$$

Les deux énergies sont donc discrétisées et leur somme est donnée par :

$$E_1 + E_2 = h\nu_{XUV} + n h\nu_{IR} - Ip^{2+} . \quad (1.59)$$

Sur le plan expérimental la double ionisation séquentielle exige un bon recouvrement spatial des faisceaux harmonique et infrarouge, mais pas nécessairement de recouvrement temporel, la seule condition étant que l'impulsion harmonique arrive la première.

1.5.1.2 Mécanisme non-séquentiel

Le mécanisme non-séquentiel correspond au cas où l'absorption des deux photons se produit simultanément. Contrairement au mécanisme séquentiel, il ne met pas en jeu un état relai. Il est similaire à la photoionisation simple à plusieurs photons étudiée au paragraphe précédent, bien que beaucoup plus complexe. Il est possible lorsque la somme des énergies du photon harmonique et des photons infrarouges est supérieure au seuil Ip^{2+} (figure 1.11). Il produit deux électrons qui satisfont la conservation de l'énergie totale (équation 1.59) comme pour le mécanisme séquentiel.

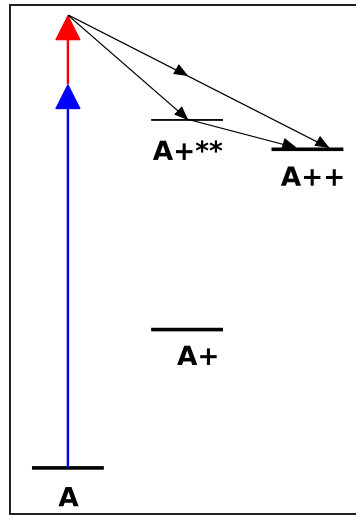


FIG. 1.11 – Schéma de double photoionisation non-séquentielle directe et indirecte.

Sur le plan expérimental il faut par contre réaliser, en plus du recouvrement spatial, le recouvrement temporel des impulsions harmonique et infrarouge, à

un éclaircissement suffisant pour qu'un photon harmonique et un photon infra-rouge puissent être absorbés simultanément par l'atome.

Lorsqu'il s'agit d'un atome plus lourd que l'hélium une autre complexité de la double ionisation apparaît. L'atome peut émettre les deux électrons directement (figure 1.11), et dans ce cas les énergies E_1 et E_2 doivent satisfaire la relation 1.59 mais sont quelconques. Ce mécanisme non-séquentiel direct (en abrégé "nsd") donne donc lieu à un continuum pour les énergies E_1 et E_2 . Mais l'émission peut aussi se faire indirectement, si un état que nous noterons A^{+**} dans la suite se trouve au dessus de l'état fondamental de l'ion doublement chargé (c'est alors un état autoionisant). Pour ce mécanisme non-séquentiel indirect ("nsi") les énergies E_1 et E_2 sont discrétisées et doivent satisfaire à :

$$E_1 = h\nu_{XUV} + n h\nu_{IR} - E_{A^{+**}} \quad (1.60)$$

et :

$$E_2 = E_{A^{+**}} - Ip^{2+} . \quad (1.61)$$

Dans la terminologie que nous emploierons dans la suite, aussi bien le mécanisme séquentiel que le mécanisme non-séquentiel indirect sont des mécanismes "à deux étapes". Pour les atomes lourds comme le xénon que nous étudierons au chapitre 4, une dernière complexité supplémentaire est liée au fait que les états excités A^{2+*} de l'ion doublement chargé sont proches de l'état fondamental. Il y aura donc plusieurs états finaux A^{2+*} d'énergies Ip^{2+*} possibles pour les différents mécanismes de double photoionisation.

1.5.2 Le cas de plus simple : l'atome d'hélium

L'atome d'hélium est le système à deux électrons le plus simple, et pourtant les calculs concernant sa double photoionisation par un photon XUV sont loin d'être faciles. Des méthodes numériques récentes, HRM-SOW (L. Malegat *et al.* 1999 et 2000 [43, 44] ; P. Selles *et al.* 2002 et 2004 [45, 46] ; A. K. Kazansky *et al.* 2003 [47] ; C. Bouri *et al.* 2006 [48]), ECS (C. W. McCurdy *et al.* 2004 [49, 50, 51], TDCC (M. S. Pindzola *et al.* 1998 [52]) sont néanmoins parvenues au cours des dernières années à décrire correctement les sections efficaces complètement différentielles, par rapport aux moments $\vec{k}_1$ et $\vec{k}_2$ des deux électrons émis. En particulier la méthode TDCC, qui repose sur la résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps, est semblable dans son principe à la méthode numérique TDSE que nous avons présentée au paragraphe 1.4.1 pour la simple ionisation, mais la nécessité de traiter un état final à trois particules la rend beaucoup plus lourde à appliquer.

A l'heure actuelle il n'existe pas encore de traitement théorique de la double photoionisation de l'hélium par des rayonnements combinés XUV et infrarouge. Par contre la double photoionisation à deux photons XUV de même couleur a donné lieu récemment à plusieurs travaux théoriques (J. Colgan et M. Pindzola 2002 [53]; S. Laulan et H. Bachau 2003 [54]; S. X. Hu *et al.* 2005 [55]; D. A. Horner *et al.* 2007 [56]; E. Fomouo *et al.* 2008 [57]). Pour l'hélium le seuil de simple ionisation est à 24.6 eV, et celui de double ionisation à 79 eV. Si l'on choisit une énergie comprise entre $\frac{79}{2} = 39.5$ eV et $79 - 24.6 = 54.4$ eV pour les photons XUV, la double photoionisation à deux photons XUV ne peut être que non-séquentielle. De plus elle ne peut être que directe puisque l'ion He^{2+} n'a aucun électron, et qu'il n'existe donc aucun état de He^+ au dessus de 79 eV. Par conséquent dans ces conditions seul le mécanisme "nsd" est possible. L'ionisation double de l'hélium par deux photons XUV autour de 45 eV est donc le cas le plus simple possible, ce qui explique que de nombreux travaux théoriques lui soient consacrés à l'heure actuelle.

Un autre aspect particulièrement intéressant, mis en évidence par ces études théoriques (S. Laulan et H. Bachau, 2003 [54]; T. Morishita *et al.* 2007 [58]) est lié à la durée des impulsions XUV. Lorsque celle ci devient très courte, de l'ordre de quelques cycles optiques vers 45 eV, c'est à dire dans le domaine attoseconde, ces travaux montrent que la répartition de l'énergie entre les électrons et sans doute les corrélations angulaires dépendent très fortement de la durée de l'impulsion lumineuse. Intuitivement ce phénomène peut s'expliquer de la manière suivante. L'énergie de corrélation entre les deux électrons de l'hélium dans l'état initial est donnée par la différence entre l'énergie réelle de cet état et celle que l'on obtient dans un modèle à électrons indépendants. Elle vaut 1.1 a.u. (≈ 29.9 eV). A partir de cette énergie de corrélation on peut introduire un "temps de corrélation", qui vaut 0.9 a.u. (≈ 22 as). Il est donc prévisible que suivant que la durée de l'impulsion lumineuse est inférieure, comparable ou supérieure à ce temps, les corrélations entre les deux électrons émis soient très différentes. La vérification expérimentale de ces prévisions théoriques est encore hors de portée, car des impulsions XUV aussi courtes ne sont pas encore disponibles sur les sources de type harmonique, laser X ou XFEL.

1.5.3 Considérations de symétrie

Un effet prévisible, et que nous rencontrerons au chapitre 4 dans la double ionisation à plusieurs photons, est lié à des considérations de symétrie et de conservation du spin, du moment angulaire total et de la parité dans tout processus de photoionisation. Cet effet a été prédit pour la double photoionisation à un photon des atomes de gaz rare en 1991 (A. Huetz *et al.* 1991 [59]) puis observé sur l'hélium (O. Schwarzkopf *et al.* 1993 [9]) et sur d'autres gaz rares (J.

Mazeau *et al.* 1997 [60]). Considérons le cas le plus simple, celui de la double ionisation de l'hélium à un photon :

$$h\nu + He \rightarrow He^{2+} + e_1 + e_2 \quad . \quad (1.62)$$

Le spin de l'état initial est nul ($S = 0$), le moment angulaire total est donné par le photon ($L = 1$) et la parité π dans l'inversion I (changement de tout vecteur en son opposé) est impaire. Ces nombres quantiques sont transférés à la paire d'électrons. Introduisons l'opérateur d'échange E qui permute les indices 1 et 2 de deux électrons. L'état final des deux électrons peut se décomposer en un produit d'une fonction de spin $\chi(1, 2)$ et d'une fonction orbitale $\psi(\vec{k}_1, \vec{k}_2)$, et pour un état $S = 0$, $\chi(1, 2)$ est impaire dans l'échange E. Les électrons étant des fermions l'état total $\chi(1, 2)\psi(\vec{k}_1, \vec{k}_2)$ doit être impair dans l'échange E. Il en résulte que la partie orbitale $\psi(\vec{k}_1, \vec{k}_2)$ doit être paire dans E :

$$\psi(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = \psi(\vec{k}_2, \vec{k}_1) \quad (1.63)$$

et impaire dans I :

$$\psi(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = -\psi(-\vec{k}_1, -\vec{k}_2) \quad . \quad (1.64)$$

Considérons le cas particulier de l'émission anti-parallèle ($\vec{k}_1 = -\vec{k}_2$) figurée sur la figure 1.12. On a alors :

$$(-\vec{k}_1, -\vec{k}_2) = (\vec{k}_2, \vec{k}_1) \quad (1.65)$$

et par suite conflit de parité entre les opérateurs I et E. Par suite la fonction $\psi(\vec{k}_1, \vec{k}_2)$ doit être nulle dans cette configuration anti-parallèle, ce qui provoque un nœud angulaire. Ceci explique les formes en "papillon" des diagrammes de corrélations angulaires à un photon bien connus dans la double photoionisation à un photon de l'hélium (figure 1.12.a). Cette forme résulte à la fois de la répulsion coulombienne entre les deux électrons, qui les pousse dans des directions opposées, et de l'interdiction de l'émission anti-parallèle pour des raisons de symétrie. Dans la double photoionisation à un photon il est possible d'autoriser l'émission anti-parallèle en utilisant un autre atome et en sélectionnant un état final de parité impaire de l'ion doublement chargé. Cela a été réalisé sur l'argon (J. Mazeau *et al.* 1997 [60]) pour lequel un diagramme de corrélation angulaire tel que celui montré sur la figure 1.12.b a été observé. Mais cela est également possible pour l'hélium, si la double ionisation est produite par deux photons :

$$h\nu + h\nu' + He \rightarrow He^{2+} + e_1 + e_2 \quad (1.66)$$

car dans ce cas le spin est toujours $S = 0$ mais la parité devient paire et le conflit entre les opérateurs I et E est levé. On s'attend donc à observer des diagrammes de corrélation angulaire du type 1.12.b. Nous verrons au chapitre

4, qui concerne la double photoionisation du xénon, une confirmation partielle de cette prédiction théorique qui résulte de simples considérations de symétrie.

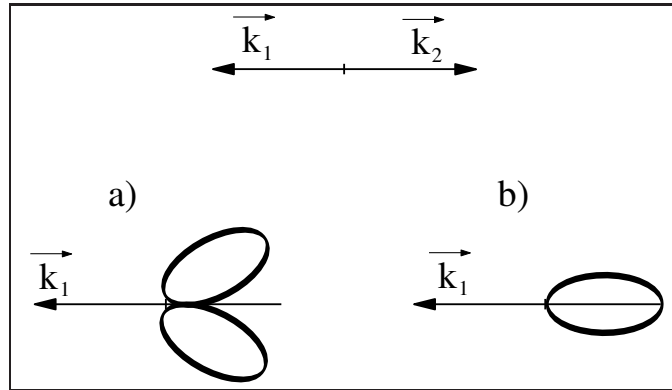


FIG. 1.12 – Schéma des diagrammes de corrélations entre les deux électrons pour la DPI non-séquentielle (voir texte). a) b) émission antiparallèle interdite (autorisée) par la symétrie.

Chapitre 2

Dispositifs expérimentaux

2.1 Source XUV

Génération d'harmoniques d'ordre élevé

Nous avons déjà présenté au chapitre 1 quelques aspects théoriques très succincts concernant le rayonnement harmonique. Au cours de ce travail deux sources de caractéristiques très voisines ont été utilisées : au LOA, le laser de la salle orange (8 mJ, 30 fs, 1 kHz) et au SPAM le laser PLFA (13 mJ, 35 fs, 1 kHz). Ces lasers reposent sur la technologie des lasers à cristal de saphir dopé au titane permettant de produire, après amplification sur plusieurs étages, des impulsions de haute énergie. Ils utilisent la méthode "CPA" consistant à étirer temporellement les impulsions produites par un oscillateur laser par un réseau dispersif, pour les amplifier sans détériorer le milieu amplificateur et les recomprimer grâce à un second réseau dispersif. Ils sont tout deux focalisés dans une cellule de gaz pour produire le rayonnement harmonique.

L'optimisation de la génération d'harmoniques consiste à trouver le meilleur compromis entre trois conditions : maximiser le dipole atomique sans ioniser complètement le milieu, établir l'accord de phase dépendant de l'ionisation et de l'éclairement infrarouge et enfin, n'être limité que par la réabsorption de l'XUV.

La qualité des mesures effectuées dépend essentiellement du nombre d'événements accumulés. Ceci est particulièrement vrai pour les mesures en coïncidence sur la double ionisation que nous présenterons au chapitre 4. Plus ce nombre est élevé, meilleure est la statistique obtenue. Ce point est particulièrement critique pour les quantités différentielles, qui sont nécessaires pour analyser les corrélations vectorielles entre les énergies et les angles des deux électrons émis. Pour obtenir un taux de comptage suffisant, il est particulièrement important d'augmenter et de maximiser le flux de photons XUV (E.

Constant *et al.* 1999 [61], S. Kazamias *et al.* 2002 [62], 2003 [63, 64]). Pour ce faire, nous pouvons jouer sur plusieurs paramètres dans la source d'harmonique : la pression de gaz dans la cellule, l'énergie de l'impulsion infrarouge, le diamètre du faisceau et la géométrie de la focalisation.

L'un des premiers paramètres à régler est la pression du gaz dans la cellule de génération d'harmoniques. Si la pression est trop faible, il y aura trop peu de photons XUV générés. A l'inverse, si cette pression est trop importante, les photons générés auront une très grande probabilité d'être réabsorbés par un autre atome de gaz. Il faut donc régler ce paramètre de telle sorte que l'émission d'harmonique soit favorisée tout en minimisant la réabsorption.

L'éclairement auquel sont soumis les atomes de gaz dans la cellule de génération d'harmonique est un paramètre fondamental. Cet éclairement est défini par la géométrie du faisceau infrarouge ainsi que par l'énergie présente dans chacune des impulsions infrarouges. Si l'éclairement est trop faible, on ne pourra produire que peu d'harmoniques. A l'inverse, si on éclaire trop le milieu générateur, tous les atomes de gaz seront ionisés et la génération d'harmonique sera faible. Il faut donc régler le diamètre du diaphragme ainsi que l'énergie dans le faisceau de telle sorte que la compétition entre génération d'harmoniques et ionisation soit favorable à la génération d'harmoniques. Généralement, l'énergie est fixée au maximum, puis le diaphragme est réglé dans le but de maximiser le signal harmonique, qui est contrôlé par une photodiode sensible dans l'XUV. Au cours de ce travail, nous avons utilisé des longueurs focales comprises entre 1 et 3.5 m, compatibles avec l'installation de nos expériences au LOA et au SPAM. Le point de focalisation était réglé légèrement "en avant" de la cellule de gaz afin de sélectionner la contribution des trajectoires courtes. Enfin, une itération sur tous les paramètres permet d'optimiser le flux de photons XUV.

2.2 Optiques XUV

Filtrage des harmoniques par un couple de miroirs multi-couches

Le spectre harmonique s'étend du visible jusqu'à l'XUV. Au cours de ce travail nous avons utilisé deux spectromètres d'électrons très différents, qui seront présentés dans la suite de ce chapitre.

Le premier, l'analyseur torique, est capable d'analyser les photoélectrons avec une bonne résolution en énergie, constante depuis le seuil jusqu'à plu-

sieurs dizaines d'eV si nécessaire. Pour les expériences réalisées au LOA avec cet analyseur, nous disposions d'un monochromateur classique, muni d'un miroir torique et d'un réseau. Le réseau aurait pu être utilisé à l'ordre 1, pour sélectionner une harmonique, mais avec l'inconvénient de faire passer la durée des impulsions XUV de typiquement 15 fs à plus d'une picoseconde. De fait nous n'avons pas utilisé le réseau, sélectionnant ainsi un peigne d'harmoniques, les plus basses étant seulement coupées par un filtre en aluminium dont la transmission est typiquement de 25% pour les harmoniques plus élevées.

Lors de la série d'expériences de simple et de double ionisation sur le laser PLFA, nous avons utilisé le nouveau montage CIEL2 pour la première fois. Dans ce type d'expérience, tous les électrons, quelles que soient leur énergies, peuvent arriver sur le détecteur. La résolution dépend des champs électrique et magnétique utilisés pour guider les électrons. Afin de simplifier le spectre de photoélectrons, nous avons utilisé des miroirs multi-couches. L'utilisation d'un couple de miroirs multi-couches plan-sphérique permet d'assurer simultanément la sélection d'une harmonique quasi-unique et la focalisation des photons XUV au centre du spectromètre, tout en gardant les caractéristiques temporelles de l'impulsion incidente. En effet, contrairement aux réseaux dispersifs, les miroirs multi-couches ont un effet d'étirement temporel des impulsions lumineuses négligeable.

Ces miroirs multi-couches sont constitués d'un empilement périodique de deux matériaux d'indices différents. Le rayonnement incident est réfléchi à chaque interface entre les deux matériaux. Les épaisseurs de chaque couche permettent d'additionner en phase les différentes réflexions tout en contrôlant la bande passante. Les matériaux utilisés dépendent du domaine de longueur d'onde désiré. Pour sélectionner l'harmonique H_{19} (42.7 nm), le couple de matériaux utilisé est le scandium et le silicium (Sc/Si), tandis que pour sélectionner l'harmonique H_{25} (32.5 nm), le couple de matériaux utilisé est le carbure de bore et le silicium (B_4C/Si). La fabrication de ce type de miroir multi-couche à faible bande passante relève d'un compromis entre pouvoir réfléchissant d'une part et réjection des harmoniques voisines d'autre part.

Pour nos expériences ces miroirs ont été optimisés et réalisés sur la centrale CEMOX du LCFIO et du LIXAM, par F. Delmotte et M. Roullia. Nous avons pu constater leurs très bonnes performances, et en particulier des taux de réflectivité (figure 2.1) d'environ 40% et 20% pour les harmoniques H_{19} et H_{25} respectivement. La sélectivité du côté des hautes énergies était quasi-parfaite, les harmoniques d'ordre supérieur étant complètement supprimées. Par contre, du côté des harmoniques plus basses, la coupure n'était pas totale comme nous le verrons au chapitre 3 dans les résultats sur la simple ionisation de l'hélium. D'autre part, la sélectivité dépendait d'une manière critique de la propreté des

miroirs et donc de la qualité du vide dans l'enceinte où ils étaient placés. Enfin nous avons constaté que leurs performances se dégradaient très vite à la suite d'une exposition aux rayonnements infrarouges et XUV trop intenses. Pour les réglages d'alignement nous avons donc été conduits à définir des procédures permettant de limiter au maximum cette exposition.

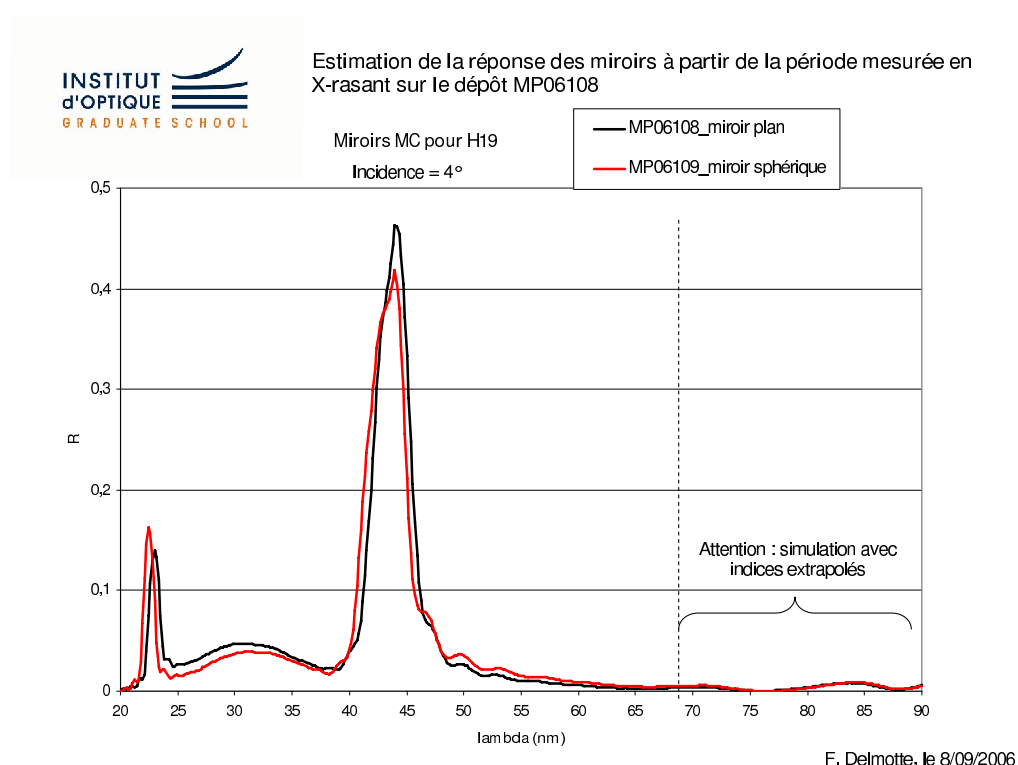


FIG. 2.1 — Réponse calculée des miroirs multi-couches plan et sphérique, conçus pour l'harmonique H_{19} , à partir de l'épaisseur des couches mesurée en rayons X rasants.

2.3 Montages optiques

2.3.1 Montage utilisé au LOA

Schématiquement, nous présentons, sur la figure 2.2, le dispositif utilisé. La chaîne laser du LOA employée délivre des impulsions infrarouges de l'ordre de 30 fs, centrées sur 800 nm, avec un taux de répétition de 1 kHz. La polarisation du laser est linéaire, l'axe de polarisation est horizontal. Ce laser infrarouge intense est focalisé dans une cellule de gaz de 4 mm de long située dans une chambre sous vide. Une pression de 20 millibars d'argon est utilisée dans la cellule afin que l'interaction de la lumière infrarouge avec le gaz génère des

harmoniques.

Un filtre en aluminium transmettant entre 17 eV et 72 eV peut être inséré sur le trajet optique pour arrêter toute la lumière infrarouge et les harmoniques basses. Sans filtre, les harmoniques ainsi que le faisceau infrarouge sont refocalisés dans l'enceinte expérimentale à l'aide d'un miroir torique (dépôt de platine, distance focale 1 m, angle d'incidence 4°). Les faisceaux XUV et infrarouge suivent le même trajet optique sans jamais être séparés. Dans cette géométrie, les harmoniques et l'infrarouge sont superposés spatialement et temporellement dans la zone d'interaction. Le délai entre les impulsions lumineuses XUV et infrarouge est constant et il n'existe pas de fluctuation temporelle (en anglais "jitter") entre les deux impulsions.

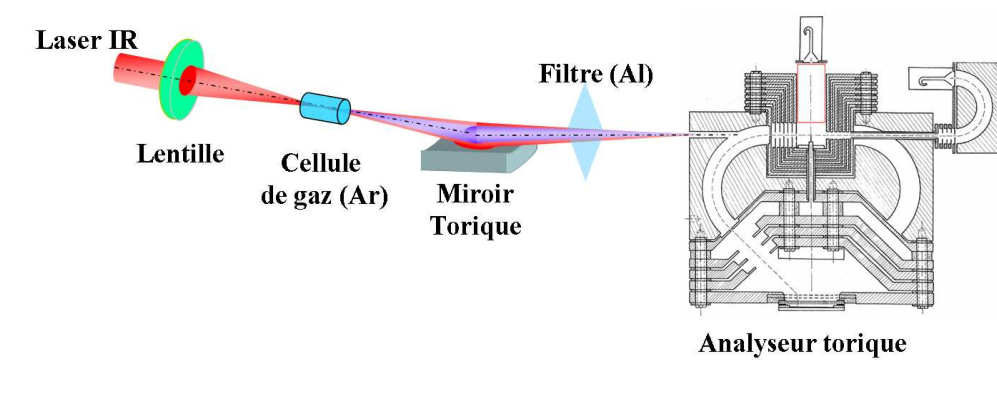


FIG. 2.2 – Schéma de l'expérience menée au LOA (Palaiseau).

La zone d'interaction définie par le point focal dans l'enceinte expérimentale est typiquement de $\approx 200 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$. Des éclairagements infrarouges de 10^{11} à $10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$ nécessaires à l'observation de processus multi-photoniques sont ainsi facilement accessibles. Mais la taille au foyer et donc les éclairagements infrarouges sont difficiles à déterminer avec précision pour deux raisons. D'une part, le miroir torique image le centre de la cellule d'argon servant à générer les harmoniques et pour optimiser le "phase matching" des harmoniques, on est amené à focaliser le laser juste devant la cellule de gaz. D'autre part, la qualité de focalisation du miroir torique dépend de manière critique de sa position qui est difficile à contrôler une fois sous vide. De plus, bien qu'il soit facile de mesurer l'énergie infrarouge avant l'entrée du faisceau dans l'enceinte de génération d'harmoniques ou en sortie du spectromètre, les pertes dues au fait qu'une partie du faisceau n'est pas réfléchi sur le miroir torique pour des raisons géométriques ainsi qu'aux multiples diaphragmes placés le long du spectromètre, rendent très ardue la détermination de l'énergie lumineuse utile

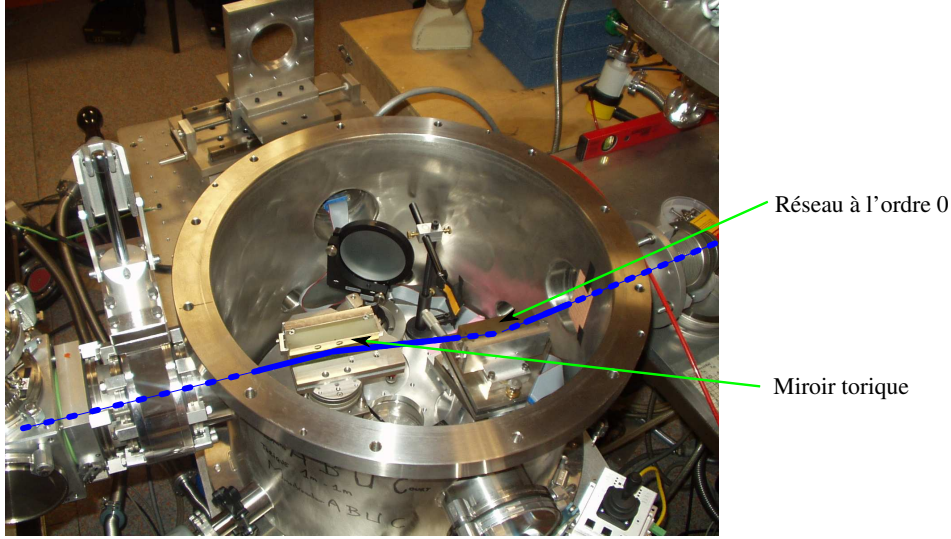


FIG. 2.3 – Photographie du montage optique de refocalisation des deux faisceaux au LOA.

pour la photoionisation. Il est donc difficile de connaître avec précision l'éclairement lumineux infrarouge effective dans le volume source du spectromètre. La détermination de l'éclairement d'habillage se fait donc à partir des propriétés du déplacement pondéromoteur des pics de photoélectrons. En effet, le champ électrique infrarouge déplace les niveaux d'énergie de l'atome en fonction de son éclairement. L'énergie du niveau fondamental est très légèrement abaissée et surtout l'énergie des états de Rydberg est augmentée d'une valeur U_p (équation 1.1). Le déplacement du niveau fondamental étant négligeable devant celui des états de Rydberg, les pics de photoélectrons sont légèrement déplacés vers les basses énergies d'une quantité U_p , ce qui nous permet de remonter à l'éclairement infrarouge d'habillage.

Le défaut de ce montage est que l'on ne peut pas faire varier le délai entre les deux impulsions lumineuses. Un autre inconvénient vient de ce que l'on utilise le même faisceau infrarouge pour créer les harmoniques et pour habiller les atomes. Il n'est donc pas possible de faire varier l'éclairement de l'infrarouge indépendamment des harmoniques.

2.3.2 Montage utilisé sur le laser PLFA

Dans le montage utilisé sur le laser PLFA (CEA - Saclay), contrairement au montage précédent, les impulsions XUV et infrarouge ne suivent pas le même trajet optique (figure 2.4). Cette séparation se révèle avantageuse car, dans ce cas, il est possible de faire varier le retard entre les deux impulsions. Il est aussi

possible de régler les éclairagements de chacun des deux bras séparément. La séparation des deux bras permet donc la réalisation de l'étude d'un phénomène de photoionisation, par exemple de DPI, en fonction du retard entre les deux impulsions lumineuses d'une part, et en fonction de l'éclairement infrarouge d'autre part.

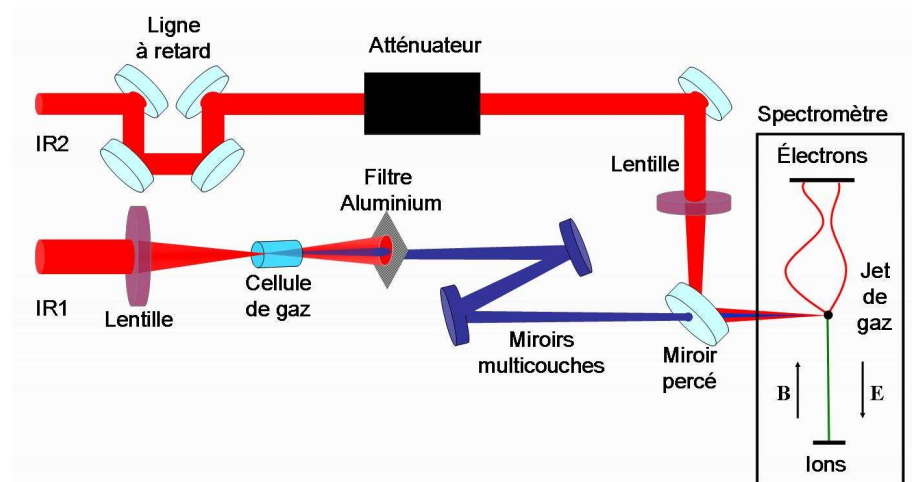


FIG. 2.4 – Montage sur le laser PLFA du SPAM (Saclay).

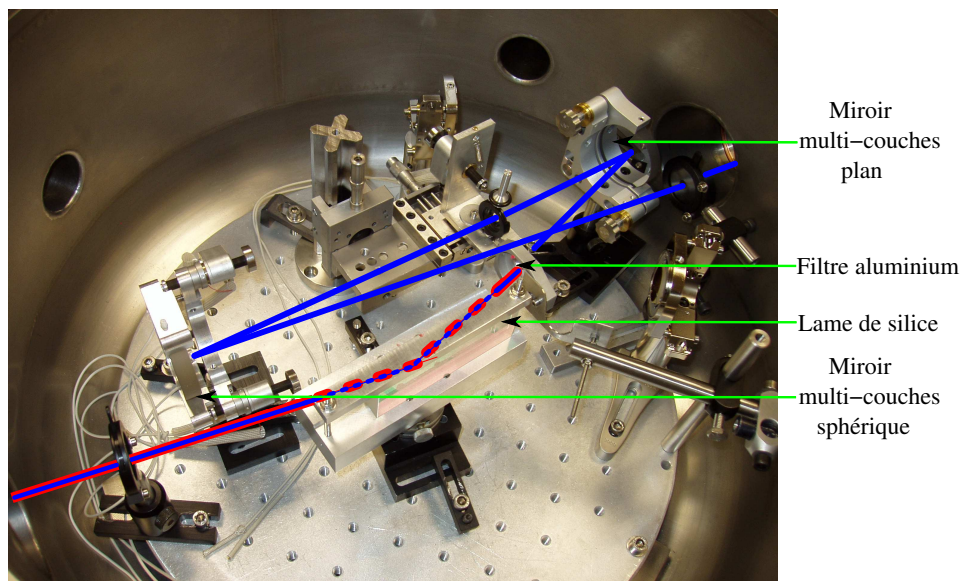


FIG. 2.5 – Couple de miroirs multi-couches associés à une lame de silice et un filtre en aluminium.

Comme nous l'avons déjà mentionné, l'intérêt des miroirs multi-couches est de simplifier le spectre des photoélectrons produits. Ceci est particulièrement important dans les expériences de double photoionisation, car, en raison de la complexité de l'atome de xénon, il serait très difficile de séparer les processus produisant les électrons détectés en présence d'un peigne d'harmoniques. La sélection de l'harmonique est réalisée grâce à un couple de miroirs multi-couches plan-sphérique placés sur le trajet optique de la voie XUV en aval de la cellule de génération d'harmoniques. Un filtre en aluminium escamotable est placé juste devant le premier des deux miroirs multi-couches, afin de les protéger du rayonnement infrarouge. Une lame de silice en incidence rasante, réfléchissant 50% du rayonnement XUV ainsi que 10% de l'infrarouge et en transmettant 90% peut être placée devant le fragile filtre en aluminium pour le protéger. L'ensemble lame de silice-filtre aluminium-miroirs multicouches possède une transmission de l'ordre de quelques 10^{-3} pour les harmoniques H_{19} et H_{25} .

Les deux faisceaux, harmoniques et infrarouge d'habillage, ne suivant pas le même chemin optique (figure 2.4), il est nécessaire de les recombiner pour pouvoir superposer les deux faisceaux correctement au niveau du spectromètre. Pour ce faire, nous utilisons un miroir percé. Le faisceau harmonique passe par le trou de ce miroir tandis que le faisceau infrarouge est réfléchi sur le miroir.

Pour que les atomes de gaz issus du jet supersonique du spectromètre CIEL2, que nous avons utilisé sur le laser PLFA, soient ionisés par un photon harmonique et un photon infrarouge simultanément, il faut un recouvrement spatial et temporel suffisant entre le jet de gaz, le faisceau infrarouge et le faisceau harmonique. Pour cela, une caméra associée à une lentille réglée en 2f-2f placée derrière l'enceinte permet d'imager la zone d'interaction.

La méthode est de laisser passer l'infrarouge IR1 de la voie harmonique (en enlevant le filtre en aluminium) et de superposer spatialement les deux faisceaux infrarouges IR1 et IR2 en les plaçant exactement au même endroit sur la caméra. Ensuite, une platine motorisée permet d'ajuster la ligne à retard sur un des deux faisceaux (dans notre cas IR2) afin d'obtenir des franges d'interférences sur la caméra (figure 2.6). La présence de ces franges prouve que les impulsions infrarouges de chaque voie sont superposés spatialement et temporellement au centre du spectromètre. Le recouvrement est optimisé à partir de ces franges d'interférence. Il faut souligner que la lumière parcourt 3×10^8 m.s⁻¹, soit 0.3 m.ns⁻¹, soit 0.3 μ m.fs⁻¹. Une impulsion de 10 fs correspond donc à une propagation de 3 μ m. Les vibrations mécaniques liées à l'environnement, en particulier aux pompes turbo-moléculaires, provoquent très facilement des déplacements de cet ordre de grandeur. Ceci s'observe car les franges d'interférences qui apparaissent sur la figure 2.6 dérivent sur une échelle de temps de quelques secondes, un maximum remplaçant un minimum. Les expériences

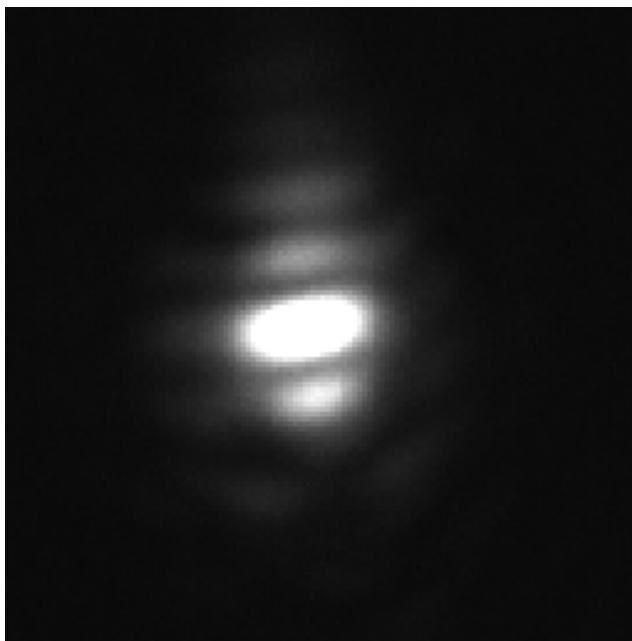


FIG. 2.6 – Franges d’interférences entre les faisceaux IR1 et IR2. La largeur de la frange d’interférence centrale est de l’ordre de $100\ \mu\text{m}$.

seront donc affectées par un jitter de quelques femtosecondes sur le délai entre les impulsions XUV et infrarouge. Il est très difficile de contrôler et de stabiliser parfaitement le recouvrement temporel, comme nous le verrons au chapitre 3.

2.4 Détection / Imagerie des électrons et des ions

2.4.1 Contraintes liées aux mesures en coïncidence Pe-PiCo et PePePiCo

Pour être correctes, les mesures en coïncidence nécessitent que le ou les électrons et l’ion analysés proviennent du même atome. On parle alors de coïncidences vraies (figure 2.7). Dans le cas où les électrons et l’ion proviennent d’atomes différents, on parle de coïncidences fortuites liées au signal. Si d’autres sources d’électrons et d’ions sont présentes, elles pourront être responsables de coïncidences fortuites, liées au bruit.

La technique de détection de plusieurs particules en coïncidence impose

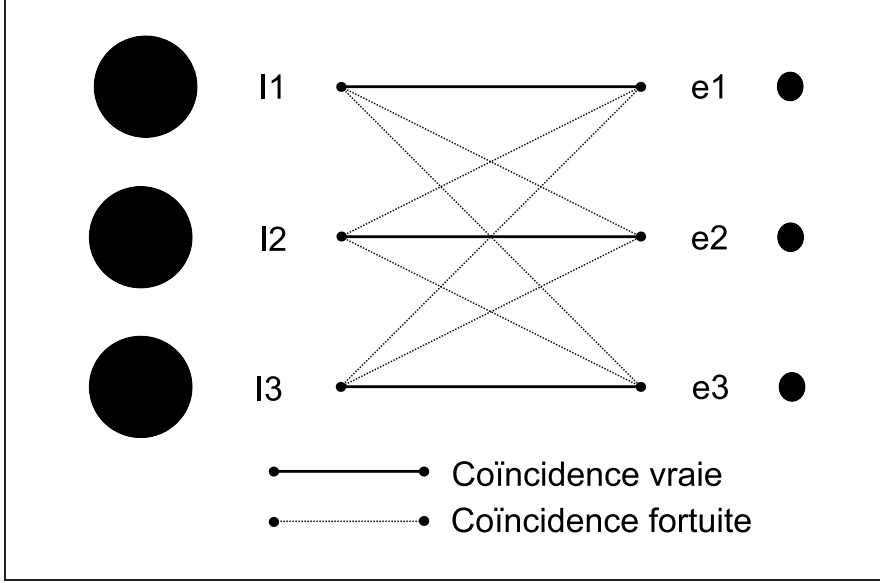


FIG. 2.7 – Exemple de toutes les coïncidences possibles liées au signal, vraies et fortuites, pour un ensemble de $n = 3$ événements d’ionisation lors du passage d’une impulsion lumineuse. Le nombre de coïncidences vraies est : $n_V = n = 3$ et le nombre de coïncidences fortuites est $n_F = n^2 - n = 6$.

que le rapport R_{VF} entre les nombres d’événements mesurés moyens de coïncidences vraies et de coïncidences fortuites lors du passage d’une impulsion lumineuse, soit grand. Cela implique des contraintes sur la fréquence de répétition des impulsions de photons, sur le nombre de photons par impulsion, sur la densité dans le jet de gaz et sur le vide résiduel dans l’enceinte d’interaction. Dans la suite, les mesures de coïncidence électron-ion sont notées PePiCo (pour Photoélectron Photoion en Coïncidence). Ce sont les seules possibles pour l’ionisation simple. Pour l’ionisation double, des mesures PePiCo et PePePiCo (Photoélectron Photoélectron Photoion en Coïncidence) sont possibles.

Dans un premier temps, considérons une impulsion de n_p photons créant n événements d’ionisation simple par interaction avec un jet d’atomes, avec $n \gg 1$. Il y a donc n électrons et n ions créés. Il existe n couples (I_j, e_j) . Le nombre de coïncidences vraies détectables est donc n . Mais il existe $n^2 - n$ couples (I_j, e_k) avec $j \neq k$, et le nombre de coïncidences fortuites détectables est donc $n^2 - n$ (figure 2.7).

Si $n \gg 1$, il y a beaucoup plus d’événements de coïncidences fortuites que d’événements de coïncidences vraies et le rapport entre le nombre d’événements de coïncidences vraies et le nombre d’événements de coïncidence fortuites est donc $\frac{1}{n-1} \ll 1$. Ce régime est inadapté aux mesures en coïncidence. Il est donc impératif de se placer dans des conditions telles qu’il se produise en

moyenne moins d'un événement d'ionisation par impulsion lumineuse. Dans la suite on montrera que la probabilité pour qu'une impulsion lumineuse produise un événement d'ionisation doit être maintenue inférieure ou égale à 0.1. Cela permet d'éviter d'ioniser plusieurs atomes lors du passage d'une impulsion lumineuse, afin de minimiser les coïncidences fortuites.

2.4.1.1 Coïncidences PePiCo

Étudions le processus de simple ionisation à un photon par une source de photons pulsée de fréquence f . La mesure du processus de simple ionisation en coïncidence consiste à détecter l'électron et l'ion. On considère dans un premier temps que seul ce processus se produit et qu'il n'y a pas de processus parasite produisant des ions A^+ et des électrons e^- :

$$h\nu + A \rightarrow A^+ + e^- . \quad (2.1)$$

Si on considère l'interaction entre le faisceau de photons de flux N_p , nombre moyen de photons par seconde et par unité de surface, et N_A le nombre d'atomes contenus dans le volume d'interaction V de densité ρ , on peut écrire le nombre N d'événements d'ionisation par seconde :

$$N = N_p N_A \sigma = N_p V \rho \sigma \quad (2.2)$$

où σ est la section efficace totale du processus de simple ionisation considéré.

Nous allons étudier l'effet de la structure temporelle de la source, c'est à dire de la fréquence f , pour un nombre N fixé. En effet, comme nous ne discuterons plus loin dans ce chapitre, les sources de type synchrotron ont un nombre de photons par impulsion faible, mais une fréquence f très élevée, alors que pour les sources harmoniques c'est l'inverse. Néanmoins le produit de ces deux quantités peut être comparable sur ces deux types de sources, et pour un système de mesure donné le nombre d'événements physiques N par seconde sera donc sensiblement le même. Par contre nous allons démontrer que la fréquence (ou cadence) f joue un rôle fondamental, car R_{VF} en dépend directement.

Pour une impulsion unique il se produit en moyenne n événements de photoionisation :

$$n = \frac{N}{f} . \quad (2.3)$$

Les nombres n_e et n_i d'électrons et d'ions détectés lors du passage d'une impulsion unique sont donnés par :

$$n_e = \frac{N}{f} \epsilon_e \frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma}{d\Omega} \Delta\Omega \quad , \quad (2.4)$$

$$n_i = \frac{N}{f} \epsilon_i \quad , \quad (2.5)$$

où ϵ_e est l'efficacité de détection du détecteur électron, $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ est la section efficace simplement différentielle et $\Delta\Omega$ est l'angle solide de détection des électrons. On considère que tous les ions sont collectés sur le détecteur ion et y sont détectés avec l'efficacité ϵ_i .

On peut alors écrire le nombre n_V de coïncidences vraies lors du passage de cette impulsion lumineuse :

$$n_V = \frac{N}{f} \epsilon_i \epsilon_e \frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma}{d\Omega} \Delta\Omega \quad (2.6)$$

ainsi que le nombre n_F de coïncidences fortuites lors du passage de l'impulsion lumineuse, qui est le produit des nombres d'électrons et d'ions détectés :

$$n_F = n_e n_i = \left(\frac{N}{f} \right)^2 \epsilon_i \epsilon_e \frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma}{d\Omega} \Delta\Omega \quad . \quad (2.7)$$

Le rapport R_{VF} entre les coïncidences vraies et les coïncidences fortuites est donc :

$$R_{VF} = \frac{n_V}{n_F} = \frac{f}{N} \quad . \quad (2.8)$$

La première conclusion est que, d'une part, R_{VF} dépend linéairement de la fréquence, et s'améliore en augmentant la fréquence de répétition des impulsions lumineuses, pour N donné. D'autre part, R_{VF} est inversement proportionnel au nombre N d'événements de photoionisation par seconde. D'après l'équation (2.2) R_{VF} peut être régulé en jouant sur la densité du gaz ρ . Pour avoir un rapport R_{VF} acceptable, la solution est de diminuer la densité dans le jet pour diminuer N . En pratique il est nécessaire de disposer d'un jet supersonique, et de réguler la densité par la taille de la buse et par sa distance au centre de collision avec les photons. Mais cette dernière contrainte est très pénalisante, car elle amène à diminuer le nombre moyen N , et donc pour une durée d'expérience donnée à diminuer la qualité statistique des mesures. Nous donnons dans la suite des ordres de grandeur concernant les sources synchrotron et harmonique.

2.4.1.2 Coïncidences PePePiCo

Dans la mesure du processus de double ionisation et pour atteindre les sections efficaces complètement différentielles, il faut détecter les deux électrons et l'ion en coïncidence. On parle alors de mesures PePePiCo (Photoélectron Photoion en Coïncidence), et N devient le nombre d'événements de double ionisation moyen par seconde. On peut alors obtenir à partir des sections efficaces doublement différentielles les nombres par impulsion lumineuse n_{e_1} pour le premier électron, n_{e_2} pour le deuxième électron et n_i pour les ions doublement chargés :

$$n_{e_1} = \frac{N}{f} \epsilon_e \frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma}{dE_1 d\Omega_1} \Delta E_1 \Delta \Omega_1 , \quad (2.9)$$

$$n_{e_2} = \frac{N}{f} \epsilon_e \frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma}{dE_2 d\Omega_2} \Delta E_2 \Delta \Omega_2 , \quad (2.10)$$

$$n_i = \frac{N}{f} \epsilon_i . \quad (2.11)$$

Le nombre de coïncidences vraies s'écrit à partir de la section triplement différentielle comme :

$$n_V = \frac{N}{f} \epsilon_i \epsilon_e^2 \frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma}{dE_1 d\Omega_1 d\Omega_2} \Delta E_1 \Delta \Omega_1 \Delta \Omega_2 . \quad (2.12)$$

et celui des coïncidences fortuites comme :

$$n_F = n_{e_1} n_{e_2} n_i = \left(\frac{N}{f} \right)^3 \epsilon_i \epsilon_e^2 \frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma}{dE_1 d\Omega_1} \frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma}{dE_2 d\Omega_2} \Delta E_1 \Delta \Omega_1 \Delta E_2 \Delta \Omega_2 . \quad (2.13)$$

Le rapport R_{VF} devient donc dans ce cas :

$$R_{VF} = \frac{n_V}{n_F} \propto \left(\frac{f}{N} \right)^2 . \quad (2.14)$$

R_{VF} est cette fois proportionnel au carré du rapport $\frac{f}{N}$. On peut donc conclure que pour maximiser R_{VF} , il faut impérativement disposer d'une source de photons de cadence la plus élevée possible, et d'un jet de gaz de faible densité. Ces contraintes sont encore plus critiques que pour les expériences PePiCo.

2.4.1.3 Coïncidences PePiCo en présence de bruit

Si on prend en compte la possibilité de créer des électrons et des ions lors de l'interaction entre les photons et le gaz résiduel d'une part et les parties métalliques d'autre part, les nombres de détection par impulsion sont donnés par :

$$n_e = \frac{1}{f} \left(N \frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma}{d\Omega} \Delta\Omega + B_e \right) \epsilon_e \quad (2.15)$$

$$n_i = \frac{1}{f} (N + B_i) \epsilon_i \quad (2.16)$$

où B_e et B_i sont respectivement les nombres d'électrons et d'ions de bruit créés par seconde.

Les coïncidences fortuites s'écrivent alors :

$$n_F = n_e n_i = \frac{1}{f^2} \left(N \frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma}{d\Omega} \Delta\Omega + B_e \right) \epsilon_e (N + B_i) \epsilon_i \quad (2.17)$$

Le rapport entre les coïncidences vraies et fortuites devient :

$$R_{VF} = \frac{N f \frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma}{d\Omega} \Delta\Omega}{\left(N \frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma}{d\Omega} \Delta\Omega + B_e \right) (N + B_i)} \quad (2.18)$$

Dans le cas où l'expérience est affectée par un bruit important :

$$B_e \gg N \frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma}{d\Omega} \Delta\Omega \quad (2.19)$$

et

$$B_i \gg N \quad (2.20)$$

R_{VF} devient :

$$R_{VF} = \frac{N f \frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma}{d\Omega} \Delta\Omega}{B_e B_i} \quad (2.21)$$

De cette dernière expression, on déduit que les électrons et les ions de bruit abaissent fortement le rapport R_{VF} . Il faut donc impérativement minimiser le bruit créé par les impulsions lumineuses aussi bien sur les parois métalliques que sur le gaz résiduel dans l'enceinte. Pour minimiser le nombre d'électrons créés sur les parois, il "suffit" de bien aligner le faisceau de photons et le "piéger" après interaction avec le jet de gaz. Pour minimiser le bruit créé par les photons sur le gaz résiduel, il faut travailler dans une enceinte atteignant un vide poussé, c'est à dire l'ultra-vide. En effet, l'abaissement de la pression résiduelle permet de minimiser B_e et B_i sans diminuer N ce qui améliore R_{VF} . De plus, N , B_e et B_i sont proportionnels au flux de photons. Si cela est nécessaire, il est possible de diminuer ce flux, ce qui diminue le produit $B_e B_i$ plus vite

que N et permet d'augmenter R_{VF} .

Nous n'écrirons pas ici le détail de l'effet du bruit dans le mode PePePiCo, mais il est facile de le faire, et les conclusions sont identiques bien qu'encore plus critiques.

2.4.1.4 Du synchrotron (MHz) aux harmoniques (kHz)

Prenons le cas le plus simple du mode PePiCo et fixons arbitrairement $R_{VF} > 10$ dans l'équation 2.8 pour se placer dans de bonnes conditions de mesure des coïncidences. Comparons une source synchrotron et une source harmonique typiques et recherchons le taux d'ionisation par seconde N permettant de faire des mesures en coïncidence sur ces deux sources.

La source synchrotron et la source harmonique choisies émettent toutes deux un même nombre de photons par seconde. Par contre la fréquence de répétition de la source laser est plus faible de quatre ordres de grandeur par rapport à la source synchrotron. Le taux d'ionisation maximum permettant de réaliser des mesures en coïncidence sur une source synchrotron est très élevé (10^6 Hz) mais il ne sera jamais atteint en raison des valeurs de la section efficace dans l'équation (2.2). Par contre sur la source laser considérée, il est nécessaire de limiter N à 100 Hz, en limitant ρ , et ainsi le temps nécessaire pour atteindre le même nombre de coïncidences vraies sera donc plus long de plusieurs ordres de grandeur.

Il en résulte qu'il est impératif d'utiliser une source de photons à la plus haute cadence possible (1 kHz est un minimum) pour maintenir un taux de comptage permettant l'accumulation d'un nombre d'événements conséquent pendant un temps relativement court, de l'ordre de quelques heures ou de la journée.

D'autre part les jets effusifs, qui donnent des valeurs de ρ autour de 10^{13} atomes.cm⁻³, sont parfaitement compatibles avec les sources synchrotron, mais incompatibles avec les sources harmoniques. C'est la raison pour laquelle l'analyseur torique (paragraphe 2.2.2), équipé d'un jet effusif, et qui donnait de très bons résultats sur synchrotron ne pouvait pas répondre aux exigences des mesures en coïncidence sur les sources harmoniques du LOA et du SPAM. Ceci nous a amené à utiliser un autre système de détection, CIEL2 (paragraphe 2.4.3), équipé d'un jet supersonique (ρ autour de 10^{10} atomes.cm⁻³ typiquement). Dans les mesures PePiCo sur l'hélium présentées au chapitre 3 le taux de comptage fn_i dans l'équation (2.5) était typiquement de 50 Hz, correspondant à $N \approx 100$ Hz, c'est à dire à un événement d'ionisation simple tous les dix tirs laser. De la même façon la discussion qui précède sur le bruit montre

que l’ultra-vide est nécessaire. Le vide résiduel obtenu dans l’enceinte CIEL2 pour les expériences présentées aux chapitres 3 et 4 était de 2×10^{-10} mbar environ.

	f (Hz)	n_p (ph.impulsion $^{-1}$)	N_p (ph.s $^{-1}$)	N (Hz)
Synchrotron	10^7	10^4	10^{11}	$< 10^6$
Harmonique	10^3	10^8	10^{11}	$< 10^2$

TAB. 2.1 – Tableau comparatif entre source laser et source synchrotron des grandeurs importantes pour les mesures en coïncidence.

2.4.2 Analyseur torique

L’enceinte expérimentale (figure 2.8) est munie de trois analyseurs de particules de type électrostatique nous fournissant soit des spectres soit des distributions angulaires : deux analyseurs d’électrons et un analyseur d’ion. Le premier analyseur d’électrons, dit analyseur torique, recueille des électrons, sélectionnés en énergie, éjectés dans le plan défini par l’axe de propagation du faisceau, et l’axe de polarisation, horizontal dans nos expériences au LOA. Il est principalement utilisé au cours de nos expériences car il permet de faire des mesures de la distribution angulaire des photoélectrons. Le second, un analyseur sphérique, recueille les électrons d’une énergie donnée, éjectés dans une direction fixe : l’axe de polarisation de la lumière. Il ne donne pas accès à la distribution angulaire mais seulement à la quantité d’électrons émis dans cette direction avec une énergie donnée. Enfin, nous disposons d’un analyseur de temps de vol qui est dédié aux ions et permet de recueillir la quasi totalité des ions provenant du volume source. Le jet de gaz est de type effusif, donnant une densité élevée d’atomes (typiquement 10^{13} atomes.cm $^{-3}$) et l’enceinte est conçue pour un vide résiduel secondaire classique d’environ 10^{-6} à 10^{-7} mbar.

Les énergies pour lesquelles les électrons passent dans les analyseurs et atteignent les détecteurs dépendent des potentiels des différentes électrodes. En polarisant toutes les électrodes de l’analyseur par rapport à la fente d’entrée et en faisant varier la tension d’accélération entre le point source et la fente d’entrée de l’analyseur, on obtient le spectre de photoélectrons.

Le détecteur de l’analyseur torique est composé de trois galettes de microcanaux de 40 mm de diamètre et d’une anode résistive. La gerbe d’électrons produite par les galettes termine sa course sur l’anode résistive. La charge qui se forme sur cette anode se divise aux quatre coins en fonction de sa position. Grâce aux valeurs de ces quatre charges, on peut retrouver la position de l’impact électronique sur l’anode. C’est grâce à ce détecteur que nous avons accès

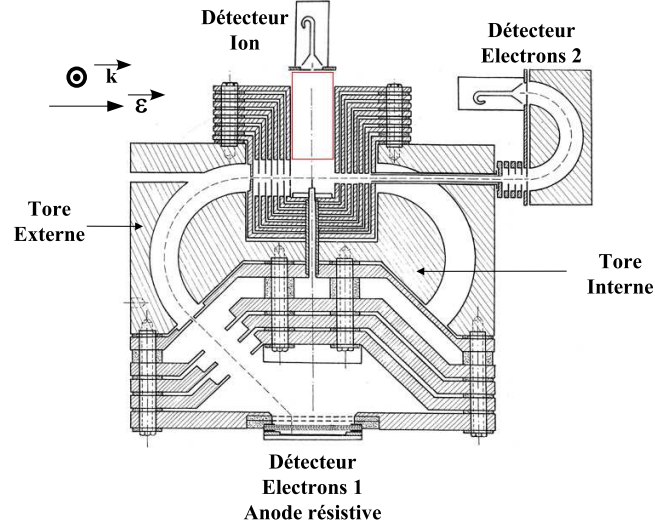


FIG. 2.8 – Analyseur torique.

à la distribution angulaire électronique.

Après acquisition des données sur un PC, on obtient une couronne plus ou moins foncée en fonction de la probabilité d'émission dans la direction donnée, sur une image de 256×256 pixels (figure 2.9) c'est à dire avec une résolution de $150 \mu\text{m}$.

Comme nous pouvons le voir, sur la figure 2.9, il existe trois angles morts dans lesquels on ne peut avoir accès à la répartition angulaire, ceci étant dû au fait que l'analyseur n'est pas exactement à symétrie cylindrique. La répartition devant être symétrique par rapport au faisceau et par rapport à sa polarisation, nous pouvons oublier la moitié contenant l'angle mort principal ($\theta \approx 180^\circ$) et les angles aux alentours de l'entrée ($\theta \approx 90^\circ$) et de la sortie ($\theta \approx -90^\circ$) de l'analyseur. Le premier correspond au bras portant le tore interne, tandis que les deux autres sont dus aux tubes d'entrée et de sortie qui impliquent une inhomogénéité du potentiel entre les deux tores. Ceci a pour effet de dévier légèrement les électrons passant au voisinage de ces tubes. Pour minimiser ces effets, on applique à ces tubes un potentiel proche de ceux appliqués aux deux parties interne et externe du tore. Au total, il faut éliminer dans ces trois directions, un angle d'environ 100° et deux angles d'environ 30° .

Finalement, on utilise seulement les données entre -75° et 75° . Seule la partie centrale de cette plage est à retenir pour mettre en évidence les effets attendus.

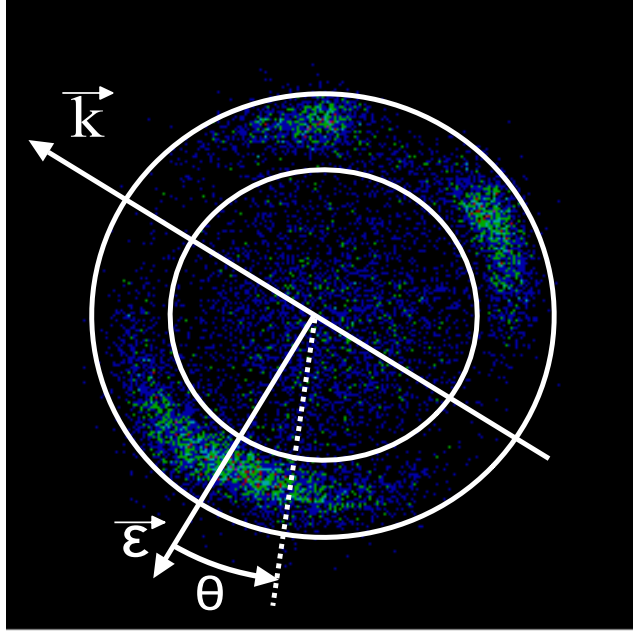


FIG. 2.9 – Impacts des photoélectrons issus de la photoionisation de l'hélium par les rayonnements XUV et infrarouge, sur le détecteur de l'analyseur torique.

Par ailleurs, nous pouvons observer sur la figure 2.9 une tache centrale qui est due aux électrons qui arrivent à des temps très proches. En effet, l'un des problèmes du détecteur à anode résistive est qu'il lui est impossible de compter deux événements successifs très rapprochés dans le temps. Dans le cas où deux électrons sont séparés de moins de $1 \mu s$, il résulte que la charge qui se répartit aux quatre coins de la plaque n'est rien d'autre que la somme des deux. Dans ce cas, le détecteur enregistre un impact dont la position est le barycentre des deux points d'impact réels. On obtient alors une image composée d'une couronne à laquelle il faut rajouter un disque central qui est le résultat de la pollution par les événements multiples. Notons que le barycentre de deux impacts successifs proches l'un de l'autre peut être lui même situé exceptionnellement dans la couronne, ce qui fausse légèrement les résultats obtenus. Afin de minimiser cet effet, il est nécessaire d'une part de travailler à des faibles taux de comptage, autour de 100 Hz, ce qui implique que la probabilité d'ionisation par impulsion laser est de 0.1 en moyenne, et d'autre part de ne sélectionner que les points de la couronne.

La distribution angulaire s'obtient en intégrant le nombre d'impacts dans

un secteur angulaire fixé de 5° , ce qui revient à faire un histogramme. Afin de minimiser l'effet du bruit, on restreint le domaine d'intégration en encerclant la couronne par deux cercles de rayon r_{min} et r_{max} . Pour analyser la distribution, il faut ensuite soustraire le bruit et appliquer la fonction de correction afin de tenir compte de la fonction instrumentale. Il s'agit de la réponse intrinsèque de l'analyseur à un événement donné. Ainsi, la distribution angulaire brute diffère de la distribution théorique. Pour pallier cette erreur systématique, on multiplie les résultats obtenus par une fonction de correction. Cette dernière se détermine à partir d'un processus physique dont la distribution angulaire est connue, par exemple, la photoionisation simple à 1 photon de l'hélium.

2.4.3 Imagerie d'impulsion 3D

Au cours de la dernière décennie, de nombreux instruments utilisant simultanément la détection en position et en temps ont vu le jour. Cela a permis de sonder en détail les dynamiques atomiques et moléculaires en phase gazeuse. Ces instruments sont généralement constitués d'un spectromètre de masse par temps de vol et d'un détecteur sensible en position. Les particules chargées sont extraites de la zone d'interaction par un champ électrique, et le plus souvent collectées sur 4π sr. L'utilisation d'un détecteur sensible en position donne accès à leur position d'impact sur le détecteur (x,y), ce qui permet de déterminer les trois composantes initiales de leur impulsion si le temps de vol t est aussi mesuré.

Deux types de spectromètre sont à ce jour employés : l'un utilisant uniquement des champs électriques et des lentilles électrostatiques, solution adoptée par exemple par le groupe de D. Dowek (LCAM), l'autre combinant un champ électrique et un champ magnétique uniformes et colinéaires selon l'axe de détection z , comme dans notre groupe. Ce deuxième type de spectromètre permet en principe d'analyser des électrons sur une plage d'énergie cinétique plus grande qu'un spectromètre utilisant des champs électriques purs. En effet, le champ magnétique applique une force sur les électrons qui s'oppose à leur expansion due à leur impulsion transverse initiale. Le confinement magnétique des électrons permet alors de collecter des électrons plus énergétiques tout en baissant le champ électrique d'extraction, ce qui permet d'optimiser la résolution expérimentale. La contrepartie de cet analyseur est d'avoir des contraintes expérimentales plus grandes : bobines de compensation du champ magnétique terrestre, analyse mathématique plus complexe... Nous exposons dans la suite les principes généraux de tels analyseurs.

2.4.3.1 CIEL2

L'expérience CIEL (Coïncidences Ions-Electrons Localisés) a été développée initialement dans les années 90 par M. Lavollée pour étudier la photo-fragmentation de molécules ionisées en couche interne (M. Lavollée *et al.* 1999 [65]) avec des sources lumineuses XUV comme le rayonnement synchrotron. L'originalité du dispositif résidait dans l'utilisation d'un détecteur sensible en position qui avait un temps mort entre particules très faible, de l'ordre de 1-2 ns, par rapport aux détecteurs concurrents dont le temps mort était de l'ordre de 10 - 15 ns. Le dispositif a été adapté dans notre groupe pour l'étude de la double photoionisation de l'hélium (A. Huetz *et al.* 2000 [66]), prototype du problème à 3 corps, puis optimisé pour l'étude de l'explosion de la molécule d'hydrogène (M. Gisselbrecht *et al.* 2006 [11]), prototype du problème à 4 corps. Ces développements ont permis d'analyser les électrons et les ions émis dans toutes les directions de l'espace simultanément.

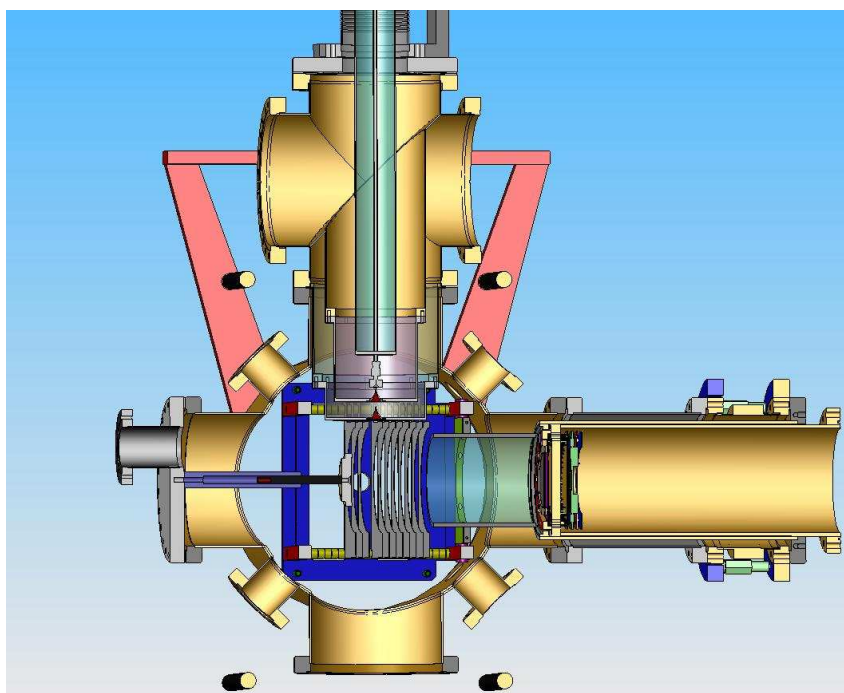


FIG. 2.10 – Coupe de l'enceinte expérimentale CIEL2. Sur cette figure, l'axe de détection est horizontal et le jet supersonique vertical, mais toute l'enceinte peut tourner autour de l'axe du faisceau de photons.

CIEL 2 (figure 2.10) est la seconde expérience du même type, mais qui vise cette fois d'une part à étendre le domaine d'application à d'autres sources XUV comme les sources harmoniques, et d'autre part à améliorer la résolution pour l'analyse des particules. Cet objectif a été atteint en augmentant

la taille du détecteur électron, de 40 mm à 80 mm, et en contrôlant la taille et la densité du volume d'interaction par un jet supersonique à double étage. Précisons que pour fonctionner en régime de coïncidence sur des sources XUV de faible cadence (kHz), comme nous l'avons expliqué au paragraphe 2.4.1, il a été nécessaire d'utiliser les techniques ultra-vide pour limiter le taux de fausses coïncidences. Sur la figure 2.10, nous présentons une vue d'ensemble du dispositif : spectromètre et jet supersonique. Les bobines de Helmholtz de grand diamètre (1.2 m) qui entourent tout ce système et fournissent un champ magnétique quasiment constant et parallèle au champ électrique dans la région de propagation des électrons, ne sont pas visibles sur le schéma.

Equations des trajectoires des électrons

Le spectromètre (figure 2.11) est de géométrie cylindrique et est composé de douze électrodes parallèles, d'un tube de temps de vol, de deux bobines de Helmholtz, de bobines de compensation du champ magnétique, d'un détecteur d'ion et d'un détecteur d'électron. Dans la zone 1, les électrodes parallèles assurent un champ électrique constant orienté vers le détecteur ion selon l'axe de détection z . Ce champ électrique permet d'amener les électrons vers le détecteur d'électrons et les ions vers le détecteur d'ions pour y être détectés. Dans la zone 2, le tube de temps de vol définit une zone où le champ électrique est nul. Les deux bobines de Helmholtz fournissent un champ magnétique qui confine les électrons. L'effet de ce champ magnétique sur les trajectoires des ions est tout à fait négligeable et nous nous intéresserons uniquement aux électrons dans la suite.

L'axe x est l'axe de propagation des photons, l'axe y est l'axe de propagation des atomes issus du jet supersonique et l'axe z est l'axe de détection parallèle aux champs électrique et magnétique. Dans l'approximation d'une source ponctuelle, la région d'interaction peut être considérée comme un point source situé à l'origine du repère $(x, y, z) = (0, 0, 0)$. Les électrons sont accélérés sur une distance d par un champ électrique $\vec{E}$, puis traversent une région de longueur l dépourvue de champ électrique avant d'être collectés sur le détecteur de rayon R . Le centre du détecteur est situé à $(x, y) = (0, 0)$. Les équations du mouvement peuvent s'écrire :

$$\ddot{x} = \frac{|q|B}{m}\dot{y} = \omega\dot{y} \quad (2.22)$$

$$\ddot{y} = -\frac{|q|B}{m}\dot{x} = -\omega\dot{x} \quad (2.23)$$

$$\ddot{z} = \frac{|q|E}{m} \quad \text{dans la zone 1} \quad (2.24)$$

$$\ddot{z} = 0 \quad \text{dans la zone 2} \quad (2.25)$$

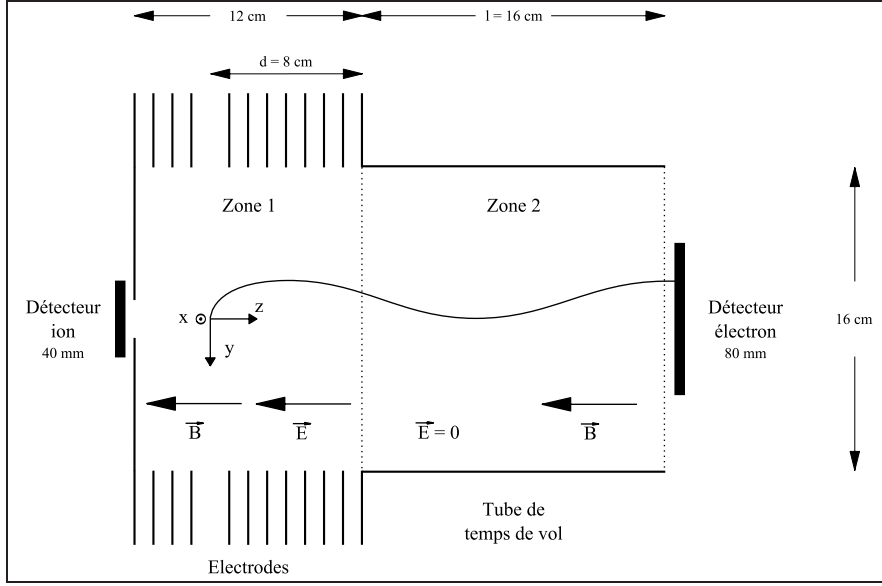


FIG. 2.11 – Schéma du spectromètre CIEL 2. Les traits en pointillé sont des grilles, l'une sépare la zone 1 où règne un champ électrique de la zone 2 où le champ électrique est nul ; la seconde sépare la zone 2 de la zone d'extraction où les électrons sont fortement accélérés en direction des galettes. L'axe x est superposé au faisceau de photons, l'axe y au jet de gaz et à la direction de polarisation, et l'axe z est l'axe de détection. Dans la suite l'angle θ est l'angle entre l'impulsion initiale de l'électron et l'axe y .

où $\omega = \frac{|q|B}{m_e}$ est la fréquence de Larmor. La résolution de ces équations montre que les trajectoires des électrons sont des hélices accélérées dans la zone 1, où règne le champ électrique. Dans la zone 2, sans champ électrique, les trajectoires des électrons sont des hélices non accélérées. Il faut bien noter que les axes de rotation de ces hélices sont parallèles à l'axe de symétrie de l'analyseur mais ne sont pas confondus avec lui, et que par contre toutes les hélices repassent à chaque tour par l'axe de détection z .

On obtient les expressions de x et y :

$$x = \frac{P_{x0}}{|q|B} \sin \omega t + \frac{P_{y0}}{|q|B} (1 - \cos \omega t) \quad (2.26)$$

$$y = \frac{P_{x0}}{|q|B} (\cos \omega t - 1) + \frac{P_{y0}}{|q|B} \sin \omega t \quad (2.27)$$

En inversant ces deux relations, ce qui est possible sauf dans le cas $\omega t = 0$ $[2\pi]$ que nous discuterons plus loin, on retrouve les impulsions initiales P_{x0} et P_{y0} selon les axes x et y en fonction des positions x et y :

$$P_{x_0} = \frac{|q|B}{2} \frac{\sin \omega t}{1 - \cos \omega t} x - \frac{|q|B}{2} y \quad (2.28)$$

$$P_{y_0} = \frac{|q|B}{2} x + \frac{|q|B}{2} \frac{\sin \omega t}{1 - \cos \omega t} y \quad (2.29)$$

Lorsque l'énergie communiquée par le champ électrique est très supérieure à l'énergie cinétique de la particule, c'est-à-dire : $qEd \gg \varepsilon$, on peut montrer que l'impulsion longitudinale initiale (M. Gisselbrecht *et al.* 2005 [67]), est donnée par une relation linéaire approchée :

$$P_{z0} = |q|E(t_0 - t) \quad (2.30)$$

où t_0 est le temps de vol d'un électron d'énergie nulle. Mais dans ce travail les champs électriques sont faibles, et nous avons utilisé la méthode exacte.

L'impulsion longitudinale initiale P_{z0} selon l'axe z satisfait à :

$$\frac{|q|E}{2m} t_1^2 + \frac{P_{z0}}{m} t_1 - d = 0 \quad (2.31)$$

et par suite :

$$P_{z0} = \frac{md}{t_1} - \frac{|q|E}{2} t_1 \quad (2.32)$$

où t_1 est le temps de vol dans la région 1 où règne le champ électrique. La donnée physique mesurée est le temps de vol total t . On n'a donc pas directement accès à la valeur du temps de vol t_1 . Étant donné que le champ électrique est nul dans la zone 2, l'impulsion selon l'axe z n'est pas modifiée à l'intérieur de celle-ci. L'électron possède une vitesse constante v_d , égale à celle qu'il avait en $z = d$. Le temps de vol de l'électron dans cette zone est t_2 , et par suite :

$$l = v_d t_2 = \left(\frac{|q|E}{m} t_1 + \frac{P_{z0}}{m} \right) t_2 \quad (2.33)$$

On peut réécrire P_{z0} en fonction de t_1 et t_2 :

$$P_{z0} = \frac{ml}{t_2} - |q|E t_1 \quad (2.34)$$

En égalisant les expressions 2.32 et 2.34, et en tenant compte de $t = t_1 + t_2$ on obtient une équation du troisième degré dont la solution est le temps de vol t_1 dans la zone où règne le champ électrique :

$$t_1^3 - t t_1^2 - \frac{2m(l+d)}{|q|E} t_1 + \frac{2md}{|q|E} t = 0 \quad (2.35)$$

Il est possible de montrer que cette équation n'a qu'une seule racine acceptable en t_1 . Cette racine permet de déterminer P_{z0} d'après l'équation 2.32.

Lorsque les trois composantes P_{x0} , P_{y0} et P_{z0} sont connues on peut alors calculer l'énergie ε de l'électron émis ainsi que les angles d'émission θ et ϕ . Nous obtenons :

$$\varepsilon = \frac{P_{x0}^2 + P_{y0}^2 + P_{z0}^2}{2m} = \frac{q^2 B^2 (x^2 + y^2)}{4m(1 - \cos \omega t)} + \frac{q^2 E^2}{8m} t_1^2 + \frac{md^2}{2t_1^2} - \frac{|q|Ed}{2} . \quad (2.36)$$

Le premier terme de cette expression concerne exclusivement l'énergie perpendiculaire qui est calculée grâce au champ magnétique et à la position (x, y) de l'électron sur le détecteur ($x^2 + y^2$ est le rayon d'impact). Le reste de l'expression concerne l'énergie parallèle dirigée selon l'axe z . Le champ magnétique n'intervient pas dans la détermination de l'énergie parallèle.

Pour nos expériences présentées aux chapitres 3 et 4 le système de détection est placé perpendiculairement à l'axe de polarisation. Dans la figure 2.11 cet axe est selon y , et c'est par rapport à lui que nous définissons les angles sphériques θ et ϕ ci-dessous. L'angle θ entre la polarisation dirigée selon l'axe y et le vecteur impulsion initial $\vec{P}_0$ de l'électron est donné par :

$$\tan \theta = \frac{\sqrt{P_{x0}^2 + P_{z0}^2}}{P_{y0}} . \quad (2.37)$$

L'angle ϕ entre l'axe z et la projection du vecteur impulsion initial $\vec{P}_0$ sur le plan xz est donné par :

$$\tan \phi = \frac{P_{x0}}{P_{z0}} . \quad (2.38)$$

Lorsqu'un électron est détecté, les trois quantités (x, y, t) , c'est à dire la position sur le détecteur et le temps de vol, permettent de caractériser complètement et sans approximation l'impulsion initiale au moment de l'ionisation, par ses trois composantes. On peut utiliser aussi bien (P_{x0}, P_{y0}, P_{z0}) que $(\varepsilon, \theta, \phi)$.

Traitement des nœuds magnétiques

Remarquons que dans les équations 2.26 et 2.27 lorsque $\omega t = 0 [2\pi]$, on obtient $(x, y) = (0, 0)$. Après avoir parcouru un tour sur son hélice, l'électron revient sur l'axe de symétrie de l'analyseur. Ces points particuliers sont appelés nœuds magnétiques. Ils rendent impossible le calcul des impulsions initiales

P_{x0} et P_{y0} .

Les photoélectrons d'énergie ε possèdent des temps de vol variables en fonction de leur direction d'émission. L'électron émis en avant, vers le détecteur électron, a un temps de vol inférieur à celui qui est émis vers l'arrière, dans le sens opposé. On détecte donc une gamme de temps de vol $\Delta t = t_{ar} - t_{av}$. Il est possible de travailler dans des conditions pour lesquelles un ou plusieurs nœuds magnétiques sont présents dans la gamme Δt . Cette façon de procéder permet même d'abaisser le champ électrique et d'obtenir ainsi de meilleures résolutions en temps de vol. Mais dans ce cas, certaines combinaisons $(\varepsilon, \theta, \phi)$ ne pourront pas être extraites du jeu de données. De plus, si la capacité du détecteur à détecter plusieurs particules simultanément est bonne, il vaut mieux éviter les nœuds magnétiques pour ne pas perdre d'informations et réaliser ainsi une expérience complète pour laquelle toutes les combinaisons possibles $(\varepsilon, \theta, \phi)$ peuvent être extraites.

Nous avons choisi d'éviter les nœuds magnétiques pour pouvoir mesurer les trois composantes initiales de l'impulsion dans tous les cas possibles, ce qui revient à éviter qu'une valeur de temps de vol de la gamme Δt ne vérifie la condition $\omega t = 0 \ [2\pi]$. Ce choix conditionne la géométrie du spectromètre à utiliser.

Géométrie du spectromètre

Pour qu'il n'y ait pas de nœud magnétique dans la gamme Δt , t_{av} et t_{ar} doivent respecter :

$$\omega t_{av} > 2k\pi \quad (2.39)$$

et

$$\omega t_{ar} < (2k + 2)\pi \quad (2.40)$$

où k est le nombre de demi-tours effectués par l'électron sur son hélice. D'où :

$$t_{av} > \frac{2k\pi m}{|q|B} \quad (2.41)$$

et

$$t_{ar} < \frac{(2k + 2)\pi m}{|q|B} . \quad (2.42)$$

On a donc :

$$\Delta t < \frac{2\pi m}{|q|B} . \quad (2.43)$$

L'extension des temps de vols Δt pour un électron d'énergie ε peut être évaluée en utilisant l'approximation linéaire mentionnée plus haut (équation 2.30) :

$$\Delta t = \frac{2\sqrt{2m\varepsilon}}{|q|E} . \quad (2.44)$$

En combinant les deux équations 2.43 et 2.44 on obtient l'énergie maximale qui peut être contenue entre deux nœuds magnétiques :

$$\varepsilon < \frac{\pi^2 m E^2}{2B^2} . \quad (2.45)$$

Considérons un électron émis perpendiculairement à l'axe de symétrie de l'analyseur. Son temps de vol noté t_0 , identique à celui d'un électron d'énergie nulle, est donné par :

$$t_0 = \sqrt{\frac{m}{2|q|Ed}}(2d + l) . \quad (2.46)$$

Le champ électrique sera choisi de telle sorte que ce temps se trouve au milieu des nœuds magnétiques, soit $\omega t_0 = (2k + 1)\pi$. D'autre part, cet électron est celui qui est détecté à un rayon d'impact r le plus grand. Son énergie est purement radiale :

$$\varepsilon = \frac{P_{x0}^2 + P_{y0}^2}{2m} = \frac{q^2 B^2 r^2}{8m} \quad (2.47)$$

et $r = \sqrt{x^2 + y^2}$, qui est la distance au centre du point d'impact sur le détecteur, doit être inférieure au rayon R de ce dernier. On en déduit donc la contrainte sur l'énergie :

$$\varepsilon < \frac{q^2 B^2 R^2}{8m} . \quad (2.48)$$

Le spectromètre est optimisé lorsque les deux contraintes sur l'énergie (équations 2.45 et 2.48) que nous venons d'obtenir sont identiques. On peut alors écrire, en utilisant également le centrage du temps de vol entre deux nœuds magnétiques et l'équation 2.46 :

$$R = \frac{2\pi m E}{|q|B^2} = \frac{2|q|Et_0^2}{(2k + 1)^2 \pi m} = \frac{1}{(2k + 1)^2 \pi} \frac{(2d + l)^2}{d} . \quad (2.49)$$

On en déduit :

$$l = \sqrt{(2k + 1)^2 \pi d R} - 2d . \quad (2.50)$$

Pour des valeurs de k , R et d données, il existe une valeur unique de l pour laquelle les deux contraintes sur l'énergie coïncident. On note que cette valeur

est indépendante des champs $\vec{E}$ et $\vec{B}$ et de l'énergie de l'électron.

D'autre part la région d'interaction ayant une dimension finie, une focalisation dans l'espace est nécessaire pour minimiser la variation du temps de vol de l'électron en fonction de sa position initiale le long de l'axe z . La variation selon le plan (x, y) doit simplement être plus faible que la résolution spatiale du détecteur $(\Delta x_{min}, \Delta y_{min})$.

Au premier ordre, on peut s'affranchir de l'étalement des temps de vol lié à la taille du jet en respectant la condition de Wiley - Mc Laren (1955 [68]) qui impose la relation entre l et d :

$$l = 2d \quad . \quad (2.51)$$

Si les équations 2.50 et 2.51 sont vérifiées simultanément, alors la longueur de la région d'extraction contenant le champ électrique est :

$$d = \frac{(2k+1)^2 \pi R}{16} \quad . \quad (2.52)$$

Ainsi, pour des valeurs de k et R données, les valeurs de d et l sont complètement déterminées. L'équation 2.52 garantit qu'une combinaison correcte entre le champ électrique et le champ magnétique peut être trouvée, permettant l'analyse complète de tous les électrons détectés en tirant pleinement avantage de la taille du détecteur. $(2k+1)$ est le nombre de demi-tours que les électrons émis radialement effectuent sur leur hélice. En pratique ce nombre doit être le plus faible possible, pour ne pas avoir à établir un champ magnétique homogène sur une trop grande distance. Les expériences présentées dans ce travail ont été réalisées avec $k = 1$, soit une rotation de 1.5 tour.

2.4.3.2 Jet supersonique

Pour pouvoir calculer les trajectoires correctement, il est impératif que la zone d'interaction soit la plus ponctuelle possible. Il faut donc utiliser un jet de gaz de petite taille. D'autre part, la densité dans le jet de gaz doit être faible pour éviter des coïncidences fortuites lors du passage d'une impulsion lumineuse (paragraphe 2.4.1) ainsi que pour préserver le vide résiduel ce qui a aussi pour effet de minimiser les coïncidences fortuites. La solution du jet supersonique à double écorceur (R. Campargue 1970 et 1984 [69, 70] ; David R. Miller 1988 [71]) nous permet de réaliser toutes ces conditions.

Le jet supersonique (figure 2.12) est constitué d'une buse de diamètre égal à 20, 30 ou 50 microns mobile montée sur un manipulateur (x, y, z) et de deux écorceurs fixes de 200 et de 300 microns distants de 27 mm (figures 2.10 et 2.12). Lorsque la pression P_0 dans la première chambre située en amont de

la buse est de l'ordre de 1 à 5 bars, il se produit alors une détente adiabatique dans la deuxième chambre située entre la buse et le premier écorceur. Cette chambre est pompée par une pompe turbo-moléculaire de 1000 l.s^{-1} pour maintenir un vide secondaire dont dépend la qualité de la détente adiabatique. L'expansion du gaz à la sortie de la buse donne lieu à une zone, où les collisions sont peu fréquentes et où la vitesse des atomes est supersonique, appelée zone de silence. Cette zone est délimitée vers l'avant par le disque de Mach situé à une distance x_M de la buse :

$$x_M = 0.67 d_b \sqrt{\frac{P_0}{P_1}} \quad (2.53)$$

où P_0 et P_1 sont les pressions dans la première et la deuxième chambre et d_b le diamètre de la buse.

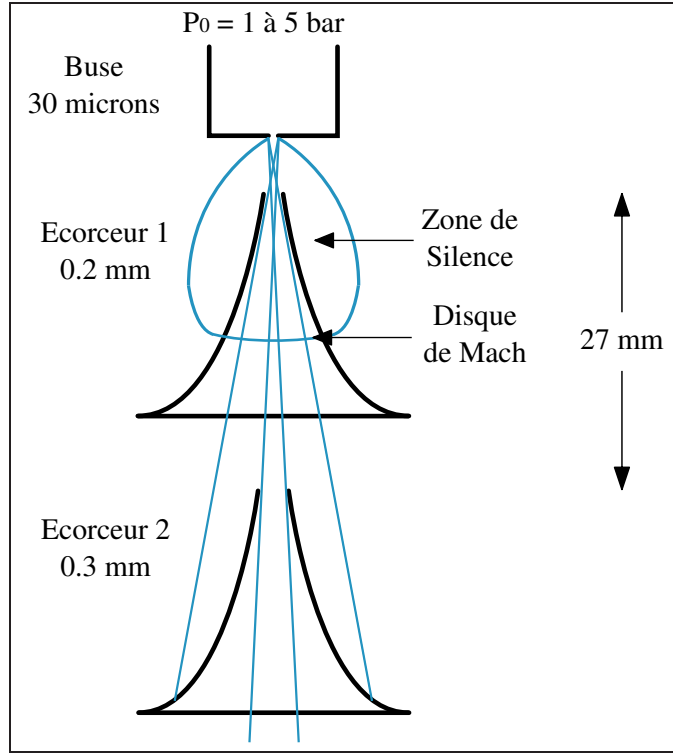


FIG. 2.12 – Schéma simplifié du jet supersonique composé d'une buse mobile et de deux écorceurs distants de 27 mm permettant d'obtenir un jet de gaz de largeur à mi-hauteur d'environ 1 mm et une densité de gaz de l'ordre de $10^{10} \text{ atomes.cm}^{-3}$ dans la zone d'interaction (calculée à partir de la modélisation proposée par David R. Miller [71]).

Le premier écorceur doit être placé dans la zone de silence de la détente adiabatique afin de sélectionner les atomes de gaz possédant des trajectoires

presque parallèles. Ainsi les atomes passant dans la troisième chambre, entre les deux écorceurs, possèdent une vitesse perpendiculaire à l'écoulement du gaz proche de zéro. La partie du gaz qui passe par l'orifice du premier écorceur entre dans la troisième chambre pompée par une pompe de 500 l.s^{-1} . Le deuxième écorceur permet de collimater encore mieux le jet de gaz et de garder un très bon vide résiduel dans l'enceinte principale. Grâce à ce montage, nous obtenons un jet de gaz de largeur à mi-hauteur de l'ordre du millimètre et une densité de l'ordre de $10^{10} \text{ atomes.cm}^{-3}$ au niveau de la zone d'interaction située à environ 12 cm du deuxième écorceur.

2.4.3.3 Détecteur Sensible en Position

Dans le domaine de la détection de particules faiblement énergétiques, les systèmes résolus en temps et en position reposent essentiellement sur la technologie des galettes micro-canaux (micro channel plate - MCP). Les trois MCP agissent comme un milieu amplificateur, qui transforme typiquement un électron en 10^7 électrons, avec des temps de réponse de l'ordre de quelques centaines de picosecondes et avec une résolution spatiale $< 100 \mu\text{m}$. Trois grandes approches sont actuellement utilisées pour la localisation rapide des particules. Elles sont présentées avec leurs caractéristiques dans le tableau 2.2.

Technologie	Résolution Spatiale	Résolution temporelle	Détection simultanée	Nombre de voies électroniques
Ligne à retard	$< 200 \mu\text{m}$	$< 200 \text{ ps}$	Au plus 2-3 particules	4-6
Anode matricielle	$600 \mu\text{m}$	1-2 ns	Une particule toutes les 1-2 ns	64-128
Anode à pixels indépendants	1 mm	$< 500 \text{ ps}$	$\leq$ nombre de pixel	256

TAB. 2.2 – Tableau récapitulatif des caractéristiques des systèmes de détection sensibles en position et en temps à fort taux de répétition.

Les systèmes à ligne à retard se rapprochent aujourd'hui des limites technologiques, et sont communément utilisées en physique atomique et moléculaire. Ces détecteurs sont essentiellement développés par la société allemande Roentdek GmbH. A l'origine, dans les années 90, ils étaient constitués de deux fils enroulés dans deux dimensions perpendiculaires et placées derrière les MCP. En traitant les signaux collectés aux quatre extrémités des deux fils, on peut déterminer la position ainsi que le temps de vol de la particule. Malheureusement, le temps mort suivant la détection d'une particule, supérieur à 10 ns,

est très pénalisant lorsqu'il s'agit de deux électrons, provenant de la double ionisation, et donc très proches temporellement. La nouvelle génération de détecteur à lignes à retard, de forme hexagonale, est plus adaptée aux études de l'ionisation multiple, mais elle ne permet de mesurer qu'un faible nombre de particules simultanément.

Le nombre de particules à détecter augmentant très vite auprès des nouvelles sources lumineuses XUV, d'éclairement croissant, les technologies basées sur des anodes segmentées matricielles ou à pixels indépendants se sont aussi développées. Ce type d'anodes segmentées a été traditionnellement développé en France dans les laboratoires de l'IPN (S. Bouneau *et al.* 2003 [72]) et du LURE-LIXAM (M. Lavollée *et al.* 1999 [65]).

Au cours de cette thèse nous avons développé une nouvelle anode matricielle (figure 2.13). Cette anode utilisée pour récolter les gerbes d'électrons sortant des MCP est constituée d'un double maillage de pixels. Les pixels sur la même ligne sont reliés entre eux et les pixels sur la même colonne sont aussi reliés entre eux. On collecte en sortie de cette anode 128 signaux, 64 lignes et 64 colonnes de pixels. Chacun des 128 canaux est traité séparément par le convertisseur TDC qui retourne pour chaque événement une valeur de la position (ligne,colonne) et du temps de vol t . Chaque ligne et colonne de l'anode est traitée séparément jusqu'au TDC, et ce type de montage possède une grande capacité à mesurer plusieurs événements presque simultanément. En effet, le temps mort après la détection d'un événement est uniquement relié à la résolution temporelle du système, qui est de l'ordre de 1 à 2 ns. Nous revenons plus en détail sur ce point dans la suite de ce chapitre.

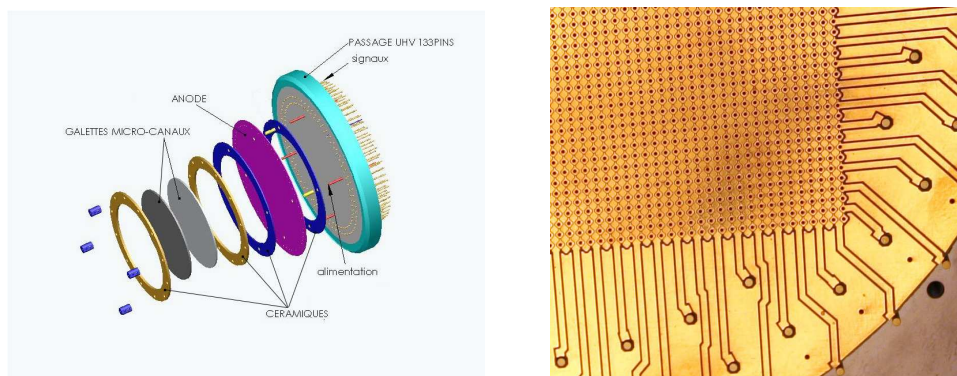


FIG. 2.13 – Représentation éclatée du détecteur électronique (gauche). Vue agrandie de l'anode matricielle (droite).

2.4.3.4 Traitement du signal et chaîne d'acquisition

Nous présentons dans ce paragraphe le principe de fonctionnement du traitement du signal et de la chaîne d'acquisition utilisée pour les expériences de coïncidence électron-ion, qui sont présentées dans les chapitres 3 et 4. Notons que le choix du degré de coïncidence se fait simplement par le logiciel de visualisation et d'analyse. La description qui suit s'applique tout aussi bien aux coïncidences doubles (PePiCo), cas de la simple ionisation de l'hélium (chapitre 3), qu'aux coïncidences triples (PePePiCo), cas de la double ionisation du xénon (chapitre 4).

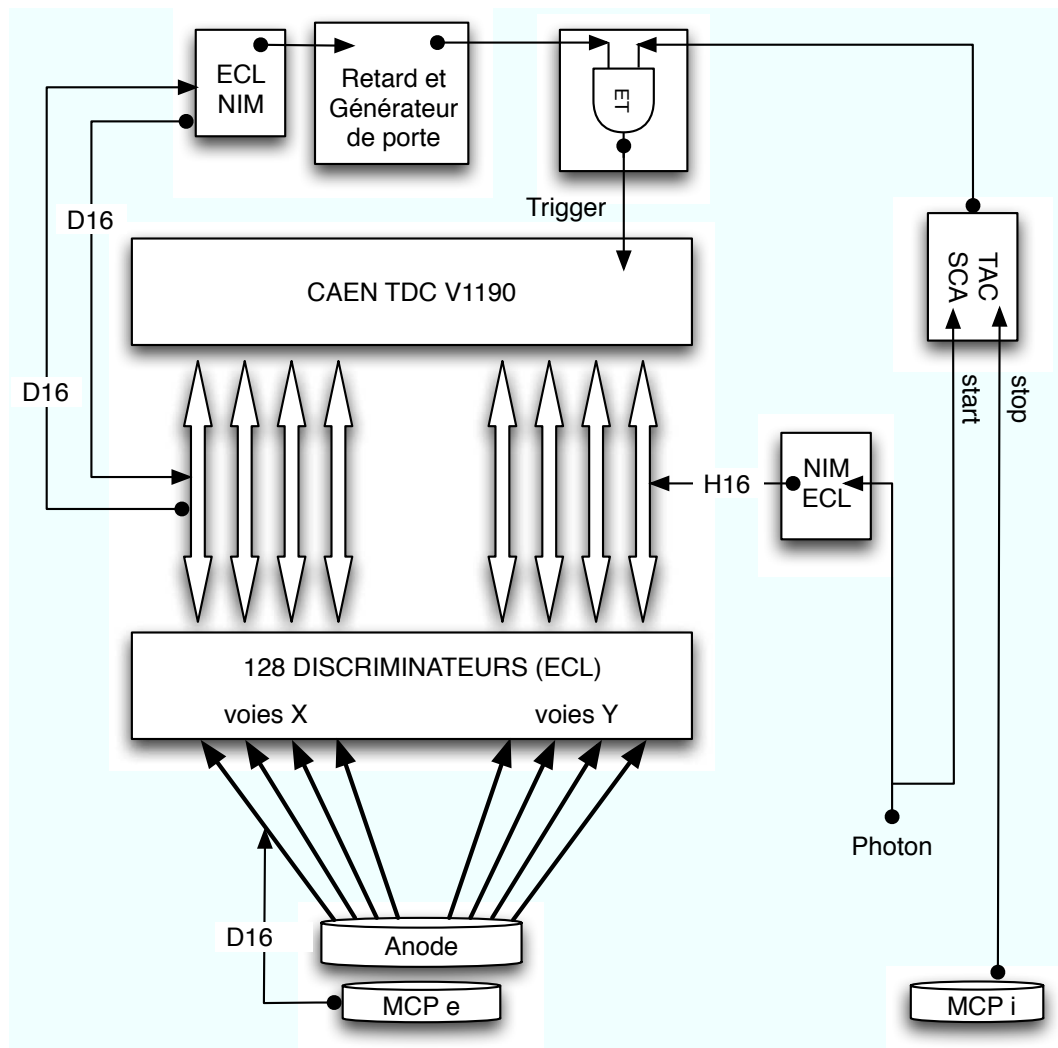


FIG. 2.14 – Schéma représentant l'électronique d'acquisition du détecteur électron en mode de coïncidence électron-ion.

Nous illustrons sur la figure 2.14 la chaîne de traitement du signal du détecteur électron à anode matricielle (x,y). Les signaux issus de l'anode sont discriminés, puis remis en forme, au standard ECL, par une électronique rapide réalisée par l'IPN d'Orsay. Ces signaux sont ensuite analysés par un convertisseur TDC de 128 voies (modèle V1190 de la CAEN) avec un pas d'échantillonnage de 100 ps. Le "trigger" du TDC disposant d'une horloge interne de 25 ns, il est nécessaire pour faire des mesures précises de temps de vol d'utiliser une voie d'entrée du TDC comme une référence en temps. Cette référence en temps est donné par un signal issu d'une photo-diode, dit signal "Photon" du laser infrarouge (noté H16). Par ailleurs, le signal (noté D16) des galettes micro-canaux (MCPe) est utilisé comme référence propre du détecteur pour contrôler ou étalonner la dispersion en temps entre les différentes voies x et y.

Au moyen d'un convertisseur TAC-SCA (Time to Amplitude Converter-Single Channel Analyzer) et de la photo-diode, le signal issu du détecteur ion (MCP i), est converti en temps de vol par rapport à une impulsion lumineuse. Le spectre présenté sur la figure 2.15 dans le cas du xénon montre deux pics Xe^+ et Xe^{2+} , dont on remarque la structure isotopique (figure 2.16). Les deux pics se trouvent respectivement à $22 \mu\text{s}$ et $16 \mu\text{s}$ qui sont les temps de vol mis par ces deux ions pour atteindre le détecteur ion (figure 2.15) dans un champ de 4 V.cm^{-1} . On observe sur la figure 2.17, des pics aux faibles temps de vol révélant la présence d'impuretés dans la zone d'interaction.

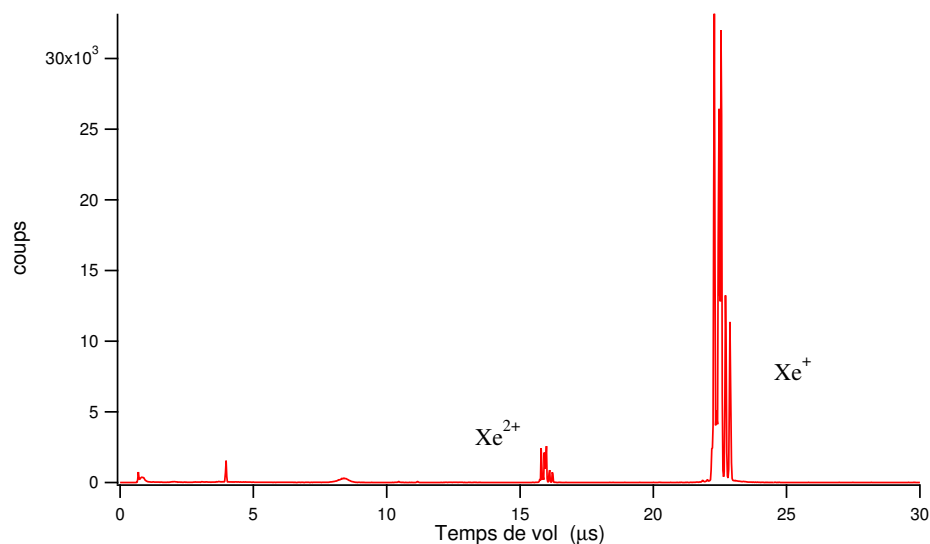


FIG. 2.15 – Spectre de temps de vol des ions.

Nous pouvons alors sélectionner l'ion qui nous intéresse (He^+ , Xe^+ , Xe^{2+} ...)

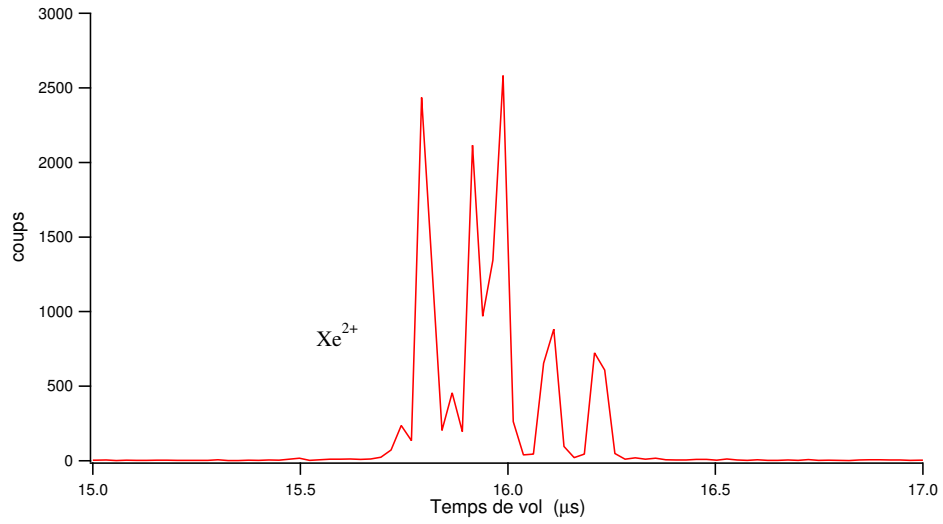


FIG. 2.16 – Spectre de temps de vol des ions dans la région du pic de Xe^{2+} .

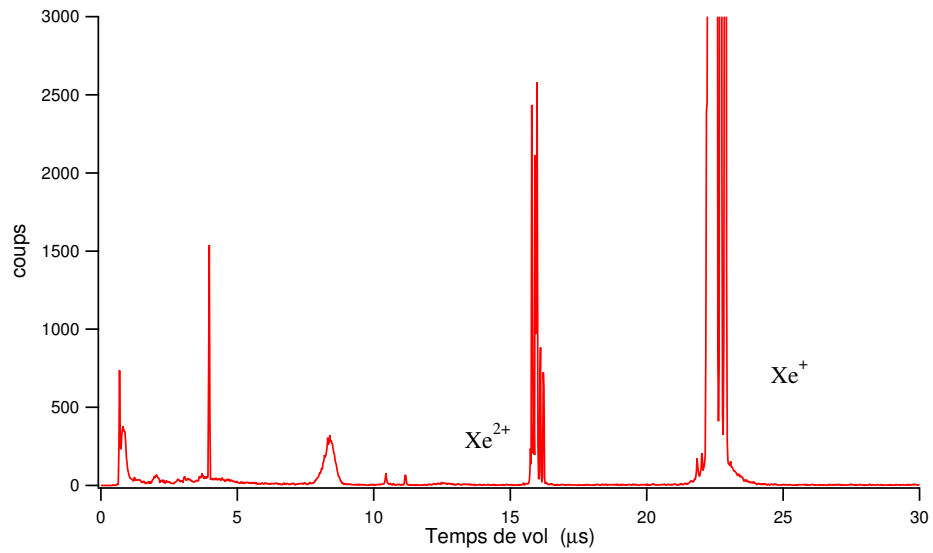


FIG. 2.17 – Spectre de temps de vol des ions amplifié verticalement.

par son temps de vol. Afin de pouvoir certifier que l'événement en cours d'analyse est bien issu d'un processus physique dans lequel on a détecté au moins un électron et un ion, il est nécessaire d'utiliser le signal (D16) des galettes MCPe. Ce signal est envoyé dans une porte logique dont le délai et la durée sont contrôlables. On déclenche alors un signal "trigger" au moyen de la porte logique ET pour confirmer la mesure d'une coïncidence électron-ion. Nous reportons sur la figure 2.18 le chronogramme des signaux électroniques principaux au niveau des différents modules. On note que le signal de photon issu de la photodiode arrive tardivement, après les signaux électrons. En effet la photodiode est placée auprès du laser PLFA, à plusieurs mètres de l'expérience, ce qui retarde le signal photon H16.

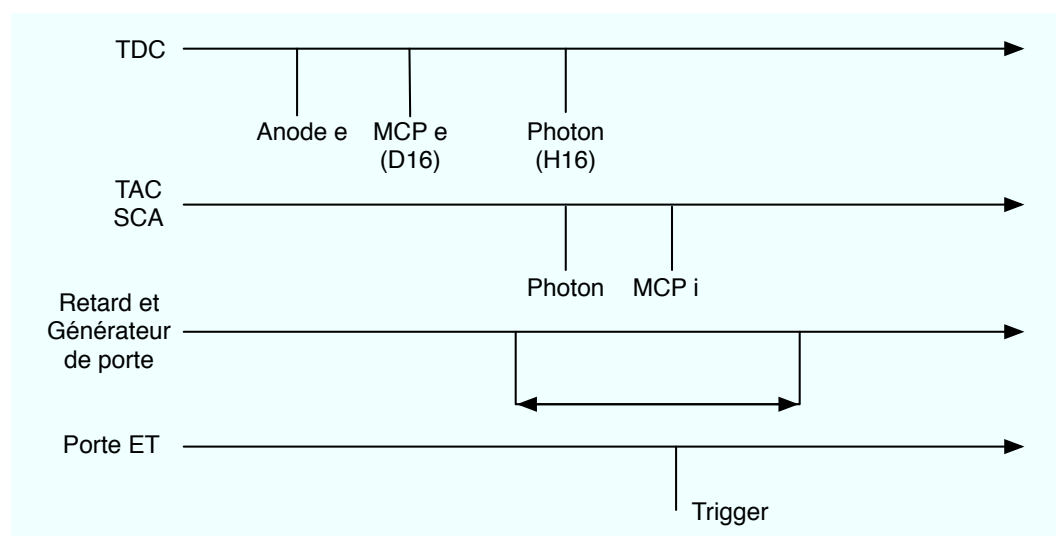


FIG. 2.18 – Chronogramme des signaux électroniques principaux au niveau des différents modules.

Les données d'un événement certifié sont stockées temporairement dans une pile, de type FIFO, au sein du TDC. Cette pile est régulièrement vidée par un ordinateur embarqué sur bus VME dont le système d'exploitation fonctionne en temps réel. Ces données sont alors pré-traitées, compressées, et enregistrées sur le disque dur de cet ordinateur. Cette chaîne d'acquisition fonctionnant de manière asynchrone permet d'atteindre des taux d'acquisition de l'ordre de 100 kHz, sans nécessiter une machine performante (horloge CPU < 300 Mhz). Le schéma de principe est illustré figure 2.19. La visualisation et le traitement se font alors sur un ou plusieurs poste(s) déporté(s) à travers le réseau ethernet au moyen d'un serveur FTP.

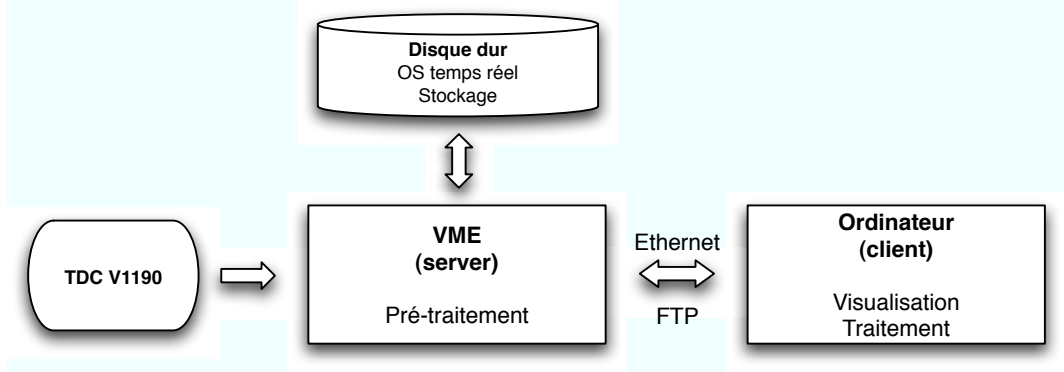


FIG. 2.19 – Schéma illustrant le système informatique d'acquisition.

2.4.3.5 Traitement des données

L'ensemble des événements acquis lors d'une expérience est regroupé afin de fournir toutes les informations nécessaires sur la dynamique électronique lors du processus d'ionisation. La figure 2.20 montre le diagramme à deux dimension (r, t) donnant le rayon de l'impact du photoélectron sur le détecteur en fonction du temps de vol. Ce diagramme représente une courbe proche d'une cycloïde (nous utiliserons ce terme dans la suite bien qu'il ne soit pas mathématiquement exact), et montre que tous les temps de vol sont bien regroupés entre deux nœuds magnétiques, comme nous l'avons discuté plus haut (paragraphe 2.4.3.1). La figure 2.20 représente la cycloïde obtenue lors de l'ionisation de l'hélium par les harmoniques H_{17} et H_{19} . En effet, comme nous l'avons signalé au paragraphe 2.2, le filtrage de l'harmonique H_{19} n'est pas parfait et les miroirs multi-couches laissent passer en partie l'harmonique H_{17} .

La plus petite cycloïde contient les électrons produits par l'interaction entre les atomes d'hélium et l'harmonique H_{17} tandis que la cycloïde externe contient les électrons résultant de l'ionisation par l'harmonique H_{19} . Les électrons d'énergies différentes ne se recouvrent pas dans le diagramme (r, t) . D'autre part, l'angle d'émission initial d'un électron détermine la position dans le diagramme (r, t) . Un électron émis vers le détecteur appartient à la partie de la cycloïde correspondant aux temps de vol les plus courts.

Les impulsions des photoélectrons sont déterminées en calculant leurs trajectoires dans les champs électrique et magnétique (ici $E = 4 \text{ V.cm}^{-1}$ et $B = 5 \text{ Gauss}$). La composante P_{z0} le long de l'axe de détection est directement obtenue grâce au temps de vol du photoélectron, tandis que les composantes P_{x0} et P_{y0} sont obtenues à partir du temps de vol et des positions de l'impact du photoélectron sur le détecteur comme nous l'avons vu précédemment. La figure 2.21 montre des coupes de l'analyse des impulsions initiales des photoélectrons

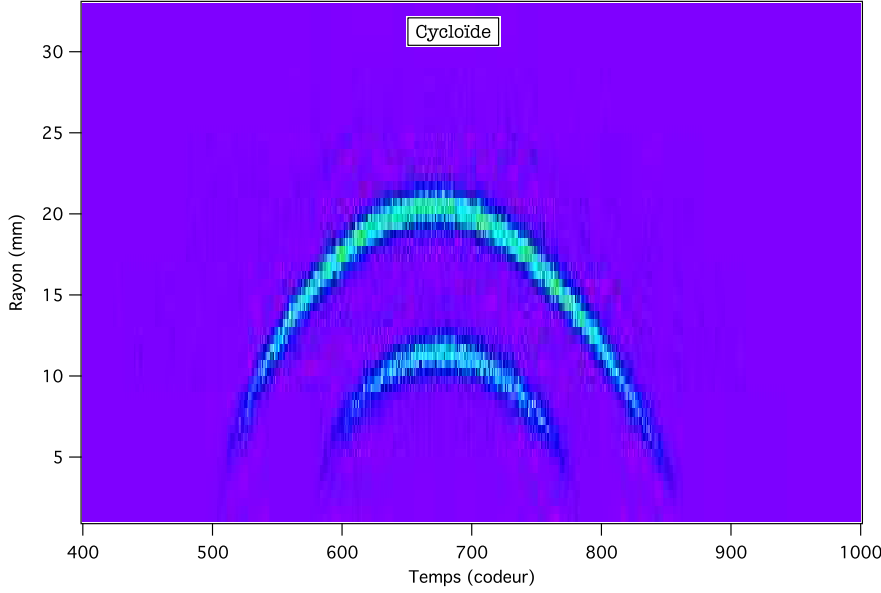


FIG. 2.20 – Exemple d’une cycloïde correspondant à l’ionisation simple de l’hélium par les harmoniques H_{17} et H_{19} .

issus de la simple ionisation de l’hélium par les harmoniques H_{17} et H_{19} selon les plans (yz) , (yx) et (zx) . Ces coupes sont obtenues en sélectionnant les événements dont le module des composantes P_{x0} , P_{z0} et P_{y0} respectivement est inférieur à 0.17 u.a. . Les deux premières coupes doivent être identiques en raison de la symétrie de révolution des distributions angulaires autour de l’axe de polarisation. La vérification très satisfaisante de cette propriété sur la figure 2.21 est un test très sévère du bon fonctionnement de l’expérience et de l’analyse des électrons.

Le spectre (figure 2.22) se déduit aisément des impulsions initiales grâce à la formule donnant l’énergie :

$$E = \frac{P_{x0}^2 + P_{y0}^2 + P_{z0}^2}{2m} . \quad (2.54)$$

Les distributions angulaires ont été obtenues grâce à l’histogramme de l’angle polaire θ entre le moment initial total et l’axe y, pondéré par le facteur $\frac{1}{\sin \theta}$ pour éliminer l’effet dû à l’angle solide qui défavorise fortement les photoélectrons émis selon la direction de la polarisation. Sans infrarouge, les distributions angulaires des harmoniques sont en accord avec la distribution en $\cos^2 \theta$ attendue pour un photoélectron éjecté d’une orbitale s par un photon XUV (figure 2.23). On note la taille importante des barres d’erreur aux faibles angles résultant de l’effet d’angle solide.

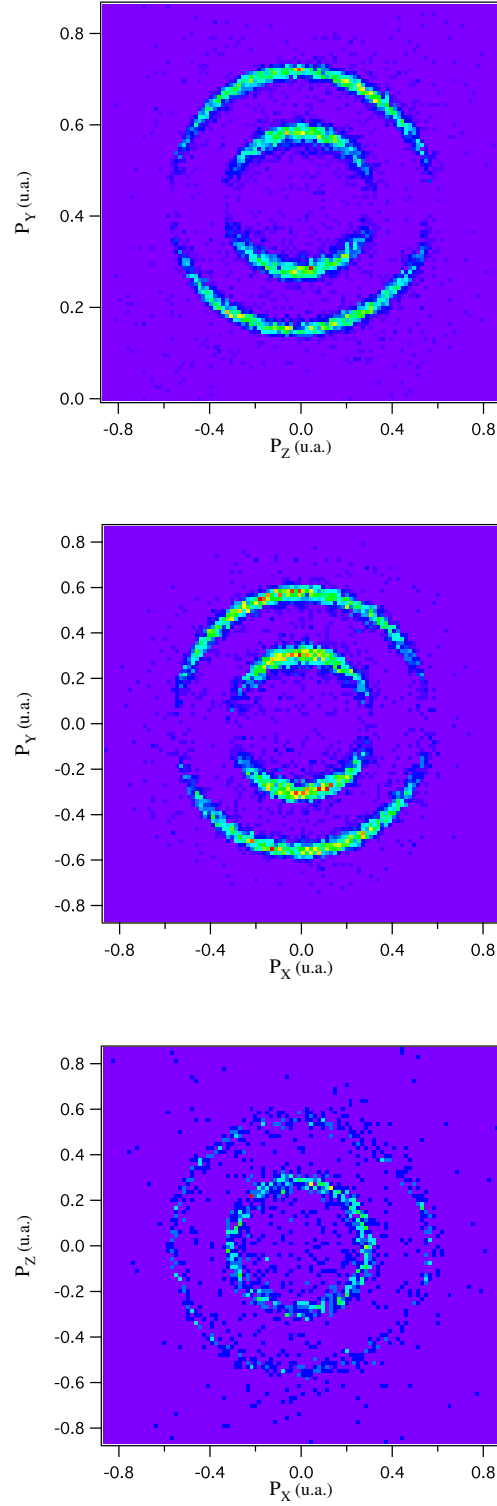


FIG. 2.21 – Coupes dans l'espace des moments correspondant à l'ionisation simple de l'hélium par les harmoniques H_{17} et H_{19} .

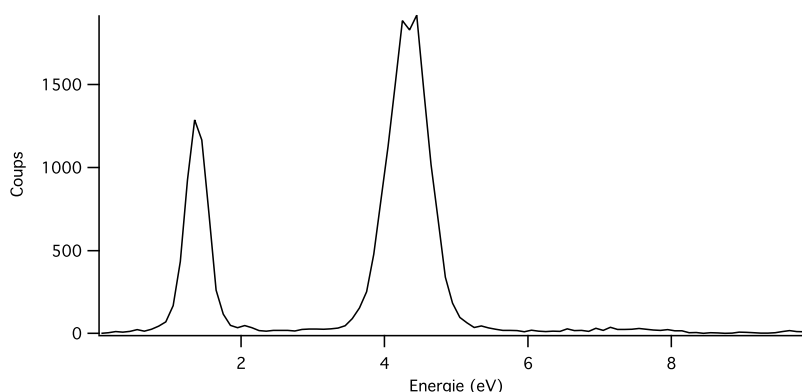


FIG. 2.22 – Exemple d'un spectre correspondant à l'ionisation simple de l'hélium par les harmoniques H_{17} et H_{19} .

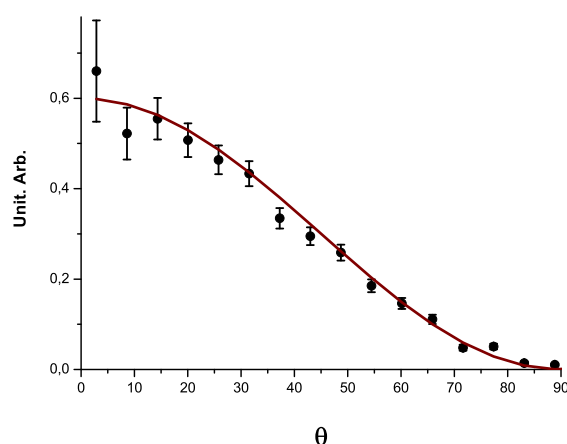


FIG. 2.23 – Distribution angulaire typique d'un pic de photoélectron harmonique sans infrarouge. La courbe en trait plein est la fonction $\cos^2 \theta$.

2.4.3.6 Traitement spécifique à la double ionisation

Pour sélectionner le processus de double ionisation la fenêtre SCA du TAC (figure 2.14) est, comme nous l'avons mentionné plus haut, positionnée sur le pic d'ions doublement chargés. Les événements de double ionisation sont validés lorsque deux électrons ont été identifiés sur le détecteur d'électrons. Cette validation est illustrée sur le schéma 2.24, montrant l'anode à pixels reliés que nous utilisons. Dans l'exemple choisi un nuage d'électrons venant des MCP a

été détecté sur les colonnes de pixels i_1 et $i_1 + 1$, à des temps très proches dont la moyenne est t_{x1} . Il a également été enregistré sur les lignes j_1 et $j_1 + 1$, à des temps très proches dont la moyenne est t_{y1} . Le traitement des données lues sur le convertisseur TDC V1190 connecté, par les 128 discriminateurs, aux 64 lignes et 64 colonnes de l'anode conclura à la détection d'un électron si $|t_{x1} - t_{y1}| < \Delta t$ où Δt est typiquement de l'ordre de 1 ns. Dans le cas figurant sur le schéma la position x_1 est intermédiaire entre les colonnes i_1 et $i_1 + 1$, et il en est de même pour y_1 par rapport aux colonnes j_1 et $j_1 + 1$. On voit que, les lignes de pixels reliés étant distantes de 1.2 mm, la résolution spatiale de cette anode est de 600 μm . Le temps t_1 sera calculé comme la moyenne de t_{x1} et t_{y1} .

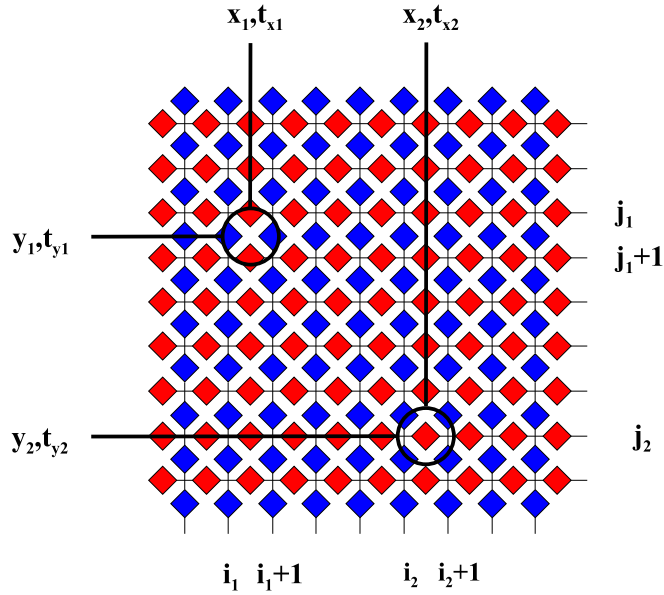


FIG. 2.24 – Représentation de l'anode à pixels reliés. Les lignes horizontales et verticales reliant les pixels entre eux sont respectivement sur les faces avant et arrière de l'anode et ne sont pas en contact électrique.

Dans la très grande majorité des cas, et dans la mesure où l'étalement des temps de vol des électrons est typiquement de 40-50 ns, le deuxième électron est validé à une position (x_2, y_2) , et à un temps t_2 , déterminés de la même manière. Dans le cas illustré sur le schéma 2.14, un seul signal a été détecté sur la ligne j_2 , et l'ordonnée y_2 est donc prise exactement sur cette ligne. Les positions et temps de vol des deux électrons étant parfaitement connus, leurs

impulsions respectives peuvent être calculées comme nous l'avons exposé précédemment.

Il faut néanmoins noter que ce traitement des données est en échec lorsque les temps t_{x1} , t_{y1} , t_{x2} , t_{y2} sont trop rapprochés. En effet si ces temps sont regroupés dans un intervalle de l'ordre de la nanoseconde, on est en présence d'une indétermination. Les deux électrons peuvent se trouver à deux sommets opposés quelconques du rectangle formé par les colonnes x_1 , x_2 et les lignes y_1 , y_2 . Il en résulte un temps mort, en pratique d'environ 2 ns, entre la détection du premier et celle du deuxième électron. Ce temps mort n'est pas gênant pour les expériences présentées au chapitre 4, en raison du grand étalement des temps de vol d'une part, et d'autre part du fait que la statistique des mesures ne permet pas de fixer dans l'espace la position de l'un des deux électrons. Par contre ce temps mort constitue une limitation des anodes à pixels reliés, qui peut devenir contraignante en champ électrique fort (d'où un faible étalement des temps de vol). Dans les expériences menées sur synchrotron avec le montage CIEL1, les mesures complètement différentielles présentaient des secteurs angulaires manquants, en raison de ce temps mort (M. Gisselbrecht *et al.* 2006 [11]).

Signalons enfin une deuxième limitation dans la mesure des paires d'électrons, qui est cette fois liée aux propriétés des MCP elles mêmes, et non plus au type d'anode utilisée. Les paires d'électrons associées aux ions doublement chargés ne sont pas toutes détectées sur l'anode, en raison de l'efficacité d'environ 40% seulement des MCP. Plus de la moitié des événements de double ionisation ne conduisent qu'à la détection d'un seul électron au lieu de deux. Ces événements sont impossibles à distinguer de ceux où deux électrons, d'impulsions très voisines ($\vec{k}_1 \approx \vec{k}_2$), ont franchi les MCP à des positions et à des temps très proches. Dans l'analyse des données, et quel que soit le type d'anode, ce cas très particulier n'est donc pas accessible.

Dans le cas général où les deux impulsions $\vec{k}_1$ et $\vec{k}_2$ ont été obtenues, plusieurs représentations des résultats peuvent être utilisées. Nous utiliserons beaucoup au chapitre 4 le diagramme à deux dimensions de corrélation des deux énergies E_1 et E_2 , comme celui reporté sur la figure 2.25 pour le cas de la DPI du xénon par l'harmonique H_{25} seule. Les événements très proches de la diagonale $E_1 = E_2$ ont été supprimés volontairement de ce diagramme, pour les raisons indiquées plus haut : les événements comptés à $E_1 = E_2$ sont contaminés par les événements pour lesquels seul l'un des deux électrons a été détecté. Notons que les diagrammes à deux dimensions comme celui de la figure 2.25 doivent être, par raison de symétrie dans l'échange des indices des deux électrons, symétriques par rapport à la diagonale. Cette propriété est un bon test du fonctionnement de l'expérience et de l'analyse des électrons.

Nous utiliserons également les histogrammes de l'angle mutuel entre les deux électrons, θ_{12} , où les faibles valeurs de cet angle sont supprimées, pour la même raison.

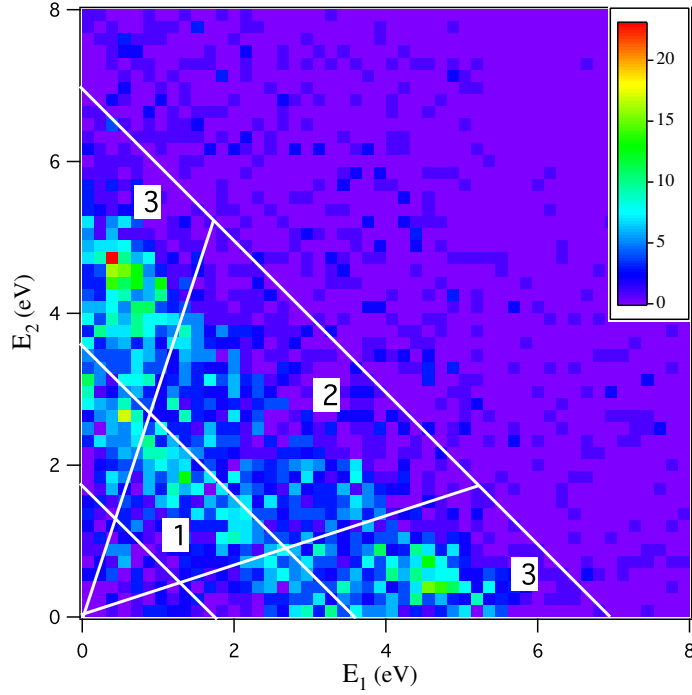


FIG. 2.25 – Diagramme en deux dimensions représentant l'historgramme des événements en fonction des énergies E_1 et E_2 des électrons.

Comme nous l'avons déjà mentionné les expériences de DPI présentées dans ce travail, avec analyse des deux électrons, sont exploratoires, et l'un des enjeux principaux est la qualité statistique des résultats obtenus. Les taux de comptage des ions dans nos expériences étaient typiquement de 100 Hz pour He^+ , 25 Hz pour Xe^+ et 2 Hz pour Xe^{2+} . En raison d'une efficacité d'environ 0.4 pour la détection d'un électron, l'efficacité de détection et d'analyse des paires d'électrons était de l'ordre de 0.1. Le taux de comptage sur les événements de triple coïncidence Xe^{2+} -e-e complètement analysés était donc typiquement de 0.2 Hz. Les résultats présentés sur la DPI au chapitre 4 portent chacun sur plusieurs heures de fonctionnement stabilisé du laser PLFA et de l'expérience, conduisant à des nombres d'événements de 4000 à 6000. Le nombre de coïncidences fortuites peut être évalué au centre du diagramme en deux dimensions de la figure 2.25 ($E_1 = E_2 = 4$ eV), et apparaît comme négligeable par rapport au nombre de coïncidences vraies. Les taux de comptage donnés ci-dessus pourraient donc être augmentés, tout en gardant un bon rapport entre les

coïncidences vraies et fortuites. Dans nos expériences ces taux de comptage étaient néanmoins limités, essentiellement par le flux de photons XUV, malgré l'optimisation de la source harmonique.

Chapitre 3

Résultats - Ionisation simple

3.1 Résultats antérieurs

L'ionisation simple des atomes par des photons XUV et infrarouges a été étudiée depuis seulement quelques années, et principalement par deux méthodes différentes de détection des électrons. La première est la bouteille magnétique, inventée par P. Kruit et F. H. Read (1983 [73]) et utilisée dans de nombreuses expériences (P. M. Paul *et al.* 2001 [4]). La collection des électrons se fait sur 2π stéradians, grâce aux deux pôles d'un électro-aimant qui crée un fort champ magnétique et qui les confine sur des trajectoires menant à un simple détecteur. On peut montrer que les électrons de même énergie ont le même temps de vol, et cette méthode peut donner des spectres en énergie de très bonne qualité, grâce à l'efficacité de collection, et à la résolution qui dépend essentiellement de la longueur de la bouteille. Par contre les distributions angulaires ne sont pas accessibles par cette méthode.

Une deuxième technique très utilisée est le simple tube de temps de vol (M. Drescher *et al.* 2002 [74]) qui permet également d'obtenir, mais cette fois à angle fixe, le spectre en énergie. A priori cette technique donne également les distributions angulaires en tournant le tube de temps de vol par rapport à la polarisation des photons, ou bien l'inverse. Mais en pratique cette procédure est longue, et peu précise si tous les paramètres de l'expérience ne sont pas parfaitement stables.

Les premières mesures de distributions angulaires ont été réalisées en 2000 par P.M. Paul *et al.* à l'aide de l'analyseur torique que nous avons décrit au chapitre 2. La cible utilisée était l'argon, et les résultats étaient du même type que ceux que nous avons obtenus pour l'hélium dans les expériences réalisées au LOA, que nous présentons dans la suite.

Plus récemment une autre technique expérimentale, dite "VMI" (en anglais

"Velocity Map Imaging") a été utilisée pour chercher à atteindre les distributions angulaires. Cette méthode a des similitudes avec celle que nous avons décrite au chapitre 2 (Imagerie d'impulsion 3D) dans la mesure où les électrons sont également projetés sur un détecteur sensible en position par un champ électrique uniforme. Néanmoins le temps de vol n'est pas mesuré, ce qui impose de placer le détecteur parallèlement à la polarisation, pour bénéficier de la symétrie de révolution autour de celle-ci, et reconstruire alors, par des procédures mathématiques, la distribution 3D des impulsions (M. Vrakking 2001 [75]). Cette technique a été utilisée pour mesurer la distribution angulaire des pics satellites dans l'ionisation simple par le rayonnement harmonique combiné à l'infrarouge (S. A. Aseyev *et al.* 2003 [7]). La cible étudiée était de nouveau l'argon, mais les pics harmoniques n'ont pas été analysés angulairement.

Enfin Varju *et al.* (2005 [76]), T. Remetter *et al.* (2006 [77]) et J. Mauritsson *et al.* (2008 [78]) ont également mis en œuvre la méthode VMI et montré les images d'interférences produites sur le détecteur par les différents "bursts" du rayonnement harmonique, pour différents décalages temporels avec l'infrarouge.

Les mesures que nous présentons dans la suite de ce chapitre constituent une étude plus généralisée, par deux méthodes expérimentales différentes. Les distributions angulaires des pics satellites, mais également des harmoniques habillées par l'infrarouge, ont été étudiées. Plusieurs éclairissements infrarouges ont été explorés. Enfin le choix de l'hélium comme cible nous permet une confrontation directe avec les prédictions des différentes méthodes théoriques présentées au chapitre 1, et en particulier avec les calculs numériques du type TDSE.

3.2 LOA - Analyseur torique

Nous avons utilisé la chaîne laser infrarouge intense à 810 nm de cadence 1 kHz du LOA, qui permet de générer des harmoniques d'ordre élevé dans le domaine XUV. Nous avons réalisé des expériences combinant des photons harmoniques XUV et des photons infrarouges issus du même laser, sur la photoionisation simple de l'hélium. Le système de détection des photoélectrons est l'analyseur torique présenté au chapitre 2. Il nous permet de mesurer des spectres de photoélectrons ainsi que les distributions angulaires de chacun des pics.

3.2.1 Spectres

Lorsque seul le laser IR est présent, aucun signal de photoélectrons n'est détecté, sauf peut être quelques électrons arrachés aux parois métalliques par les photons IR, ce qui signifie que l'éclairement n'est pas suffisant pour observer de l'ATI sur le gaz d'hélium. Nous pouvons donc réaliser nos mesures sans craindre que la présence de pics liés à l'infrarouge uniquement, qui seraient situés aux mêmes énergies que les pics harmoniques, ne puisse influencer les résultats.

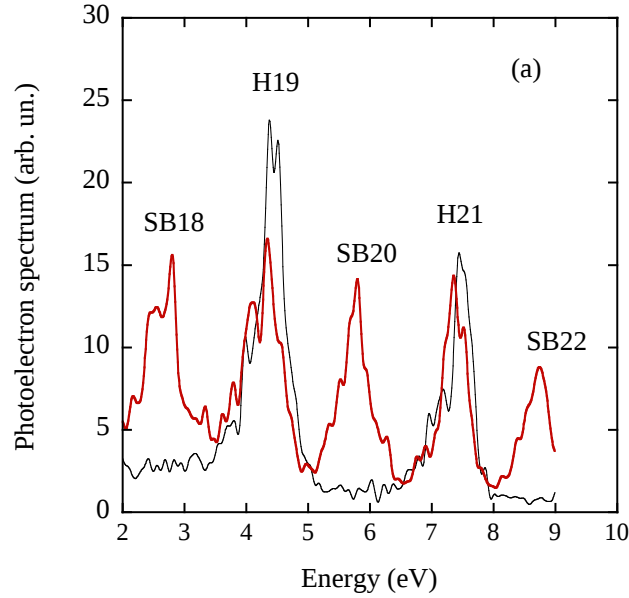


FIG. 3.1 – Spectres entre 2 to 9 eV sans infra-rouge (noir) montrant les harmoniques H_{17} et H_{19} , et avec infra-rouge (rouge) avec un éclairement $\approx 8 \times 10^{11} \text{ W cm}^{-2}$ montrant les harmoniques avec les pics satellites. Le déplacement pondéromoteur décale légèrement les pics vers les basses énergies.

Lorsque seuls les photons XUV sont présents, les harmoniques H_{19} (29.1 eV) et H_{21} (32.1 eV) produisent des pics de photoélectrons à 4.4 et 7.5 eV (figure 3.1). Lorsque l'on rajoute l'infrarouge, on observe l'apparition du pic satellite SB_{20} entre les deux pics harmoniques H_{19} et H_{21} (figure 3.1). Nous pouvons déterminer l'ordre de grandeur de l'éclairement lumineux présent au cœur du spectromètre grâce aux propriétés du décalage pondéromoteur. La différence des énergies des pics de photoélectrons, en présence du faisceau XUV seul ou bien des deux faisceaux XUV et IR, est de l'ordre de quelques dizaines de meV, ce qui est visible malgré une résolution en énergie de l'ordre de 200 meV. D'après les propriétés du déplacement pondéromoteur (équation 1.1), le déplacement en énergie sur la figure 3.1 correspond à un éclairement infrarouge

de l'ordre de $\approx 8 \times 10^{11} \text{ W.cm}^{-2}$. Lors de cette expérience, nous nous sommes particulièrement concentrés sur l'étude du comportement de l'harmonique H_{19} et du pic satellite SB_{20} .

3.2.2 Distributions angulaires

XUV seul

Les photoélectrons produits par l'interaction avec un photon XUV unique et un atome d'hélium possèdent une distribution angulaire en $\cos^2 \theta$, comme nous l'avons vu au paragraphe 1.2. Nous nous servons de cette propriété pour calibrer la réponse angulaire de l'analyseur torique. En appliquant cette correction aux mesures de distributions angulaires d'harmoniques différentes, nous retrouvons bien des distributions angulaires en $\cos^2 \theta$, correspondant à $\beta = 2$ (figure 3.2). Cela prouve l'auto-cohérence de notre méthode globale d'analyse et de traitement des résultats. Dans la suite toutes les distributions angulaires effectuées sur l'analyseur torique sont corrigées par cette méthode.

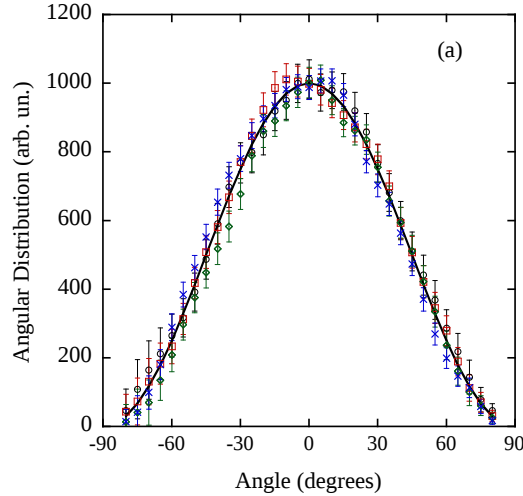


FIG. 3.2 – Distributions angulaires des pics harmoniques H_{19} de différentes expériences. La courbe en trait plein montre une distribution angulaire en $\cos^2 \theta$.

XUV + infra-rouge

Les distributions angulaires des pics satellites (figure 3.3.a) sont plus étroites que le $\cos^2 \theta$ correspondant à l'ionisation de l'hélium par un photon XUV ($\beta = 2$). Ces pics correspondent à des transitions à deux photons, un photon harmonique et un photon infrarouge. Ces mesures ont été réalisées à une intensité infrarouge relativement faible ($3.10^{11} \text{ W.cm}^{-2}$) afin de réduire le taux

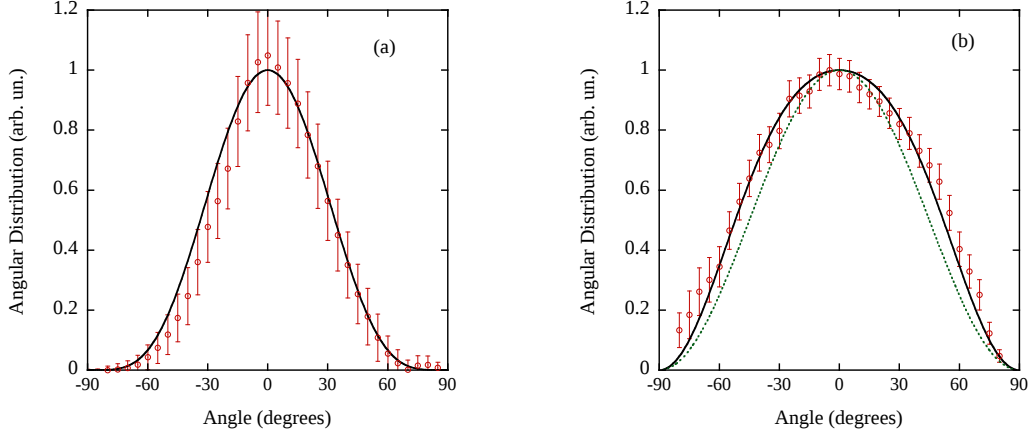


FIG. 3.3 – Distribution angulaire (a) du pic satellite SB_{20} et (b) du pic harmonique H_{19} , pour un éclairage infrarouge $\approx 3 \times 10^{11} \text{ W cm}^{-2}$. Les points représentent les distributions angulaires expérimentales et les courbes en trait plein représentent les distributions angulaires calculées dans les conditions expérimentales. La courbe en pointillé montre une distribution en $\cos^2 \theta$.

de comptage et donc de diminuer les effets de distortion des distributions angulaires mentionnées au chapitre 2. On constate une ionisation encore plus marquée selon l'axe de polarisation, ce qui correspond à l'intuition puisque les polarisations XUV et infrarouge sont alignées et tirent le photoélectron dans la même direction.

En présence du champ infrarouge, les harmoniques deviennent par contre plus larges que $\cos^2 \theta$ (figure 3.3.b). Cet effet est nécessairement dû à des transitions à trois photons, un photon harmonique et deux photons infrarouges, conformément aux chemins montrés au chapitre 1. L'élargissement observé est contraire à l'intuition, mais comme nous l'avons annoncé au chapitre 1, il est dû à des effets d'interférences quantiques entre les différents chemins.

3.2.3 Comparaisons expérience-théorie

3.2.3.1 Spectres

Les calculs TDSE figurant sur la figure 3.4 ont été produits en se rapprochant le plus possible des conditions expérimentales. Les éclaircissements relatifs des harmoniques ont été déterminés à partir des spectres expérimentaux obtenus avec le rayonnement XUV seul.

Il a été montré au paragraphe 1.4.2.1 que l'intensité des pics satellites contient un terme oscillant proportionnel à $\cos(\Delta\theta + \Delta\phi_H + 2\omega_L\tau)$ où $\Delta\theta = \theta_{2q+1} - \theta_{2q-1}$ est la différence de phase atomique, $\Delta\phi_H = \phi_{2q+1} - \phi_{2q-1}$ est la différence de phase entre deux harmoniques adjacentes, ω_L est la pulsation du

laser et τ est le délai entre les impulsions XUV et infrarouge. Dans nos calculs, $\Delta\theta$ est intrinsèque, l'éclairement I est choisi à partir de l'estimation expérimentale résultant du décalage pondéromoteur. Le paramètre $\Delta\phi_H + 2\omega_L\tau$ a été fixé pour reproduire le spectre expérimental (figure 3.1). La comparaison avec le spectre calculé (figure 3.4) montre un bon accord. Il se trouve que la valeur du paramètre $\Delta\theta + 2\omega_L\tau$ rend le paramètre oscillant voisin de son maximum. Nous reviendrons sur les oscillations par rapport à $\Delta\phi_H$ et $2\omega_L\tau$ dans la suite, à propos des expériences réalisées sur PLFA.

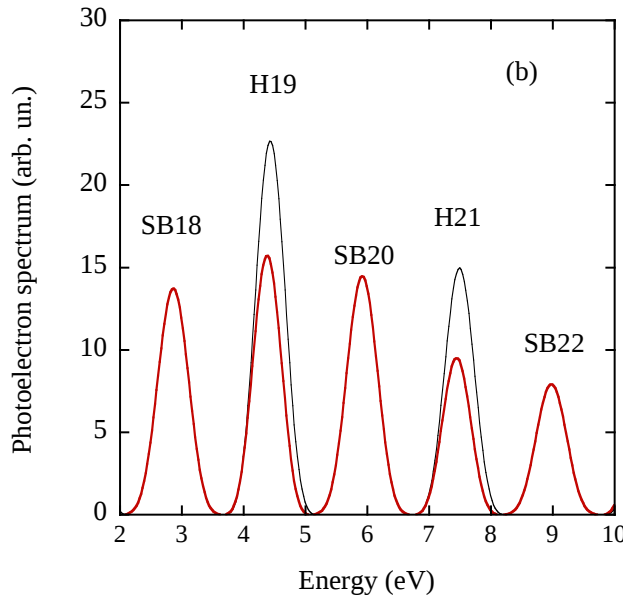


FIG. 3.4 – Spectres calculés numériquement entre 2 et 10 eV sans infrarouge (noir) montrant les harmoniques H_{17} et H_{19} , et avec infrarouge (rouge) avec un éclairement $\approx 8 \times 10^{11} \text{ W cm}^{-2}$ montrant les harmoniques avec les pics satellites. Un faible shift pondéromoteur est visible entre les deux spectres.

3.2.3.2 Distributions angulaires

La résolution en énergie pour calculer les distributions angulaires a été choisie telle que $2\Delta E = 300 \text{ meV}$, ce qui correspond approximativement à la résolution expérimentale. La figure 3.3 montre que les résultats de ces calculs sont en très bon accord avec l'expérience, aussi bien pour les pics satellites que pour les pics harmoniques.

Les calculs confirment que la distribution angulaire est plus piquée selon l'axe de polarisation pour les pics satellites, et plus large pour les pics harmoniques (figure 3.3). Ils indiquent de plus que la distribution angulaire des pics

satellites dépend peu de l'éclairement infrarouge sur l'échelle d'éclairement de quelques $10^{11} \text{ W.cm}^{-2}$.

Comme nous l'avons déjà remarqué les distributions angulaires des harmoniques devraient, intuitivement, être également plus piquées le long de l'axe de polarisation du laser lorsqu'un champ infrarouge est superposé au champ XUV. C'est d'ailleurs ce qui a été observé dans des expériences d'ATI en champ fort en absence de rayonnement XUV (S. L. Chin et P. Lambropoulos 1984 [79]). Cette vision est fondée sur le comportement classique d'un électron accéléré dans un champ ainsi que sur le fait que quantiquement des moments angulaires plus élevés sont accessibles lors de l'absorption de plusieurs photons. L'effet d'élargissement constaté aussi bien dans les mesures que dans les calculs est opposé à l'intuition, et ne peut se comprendre qu'en terme d'interférences quantiques. Il est tout à fait cohérent avec l'équation 1.56 obtenue dans le cadre de l'approximation du photon de faible énergie "soft photon" au chapitre 1. Dans l'approche perturbative (équation 1.32), il peut être interprété en terme d'interférence entre les ondes partielles p et f .

3.2.3.3 Conclusion

Ces expériences au LOA ont permis d'étudier le régime des éclairagements de la gamme 3 à $8 \times 10^{11} \text{ W.cm}^{-2}$. Les phénomènes observés dans les distributions angulaires des pics satellites et des pics harmoniques sont très nets et bien reproduits par les calculs TDSE. Ce régime est celui pour lequel on s'attend à une bonne validité de l'approche perturbative. Dans les schémas présentés au chapitre 1, les transitions à deux photons (XUV + IR) pour les pics satellites et trois photons (XUV + 2 IR) pour les pics harmoniques suffisent à décrire les observations. Nous allons voir dans la suite que les effets déjà présents à un éclairage infrarouge de quelques $10^{11} \text{ W.cm}^{-2}$ deviennent plus spectaculaires vers $10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$, dans les expériences sur PLFA.

3.3 PLFA - Imagerie 3d

3.3.1 Généralités

Nous avons déjà présenté au chapitre 2 les principes du montage utilisé sur le laser PLFA. Celui-ci délivre des impulsions infrarouges d'une durée de 35 fs centrés sur 812 nm à une fréquence de 1 kHz. L'énergie maximale contenue dans chacune des impulsions est de 13 mJ. Dans cette expérience le faisceau infrarouge est séparé en deux branches (IR_1 et IR_2). La branche IR_1 contenant 8 mJ est focalisée dans la cellule d'argon pour générer les harmoniques, un filtre

en aluminium est placé sur le chemin optique en aval de la cellule de génération d'harmoniques pour supprimer les harmoniques d'ordre faible ainsi que l'infrarouge. Les impulsions XUV sont ensuite réfléchies et filtrées par une paire de miroirs multi-couches plan-sphérique conçus pour l'harmonique H_{19} (29.01 eV). Le miroir sphérique focalise le faisceau XUV au coeur du spectromètre en le faisant passer par le trou d'un miroir percé. La branche IR_2 contenant 3 mJ constitue l'infrarouge d'habillage, et cette branche contient une ligne à retard de précision sub-femtoseconde. Le faisceau d'habillage IR_2 est réfléchi sur le miroir percé, ce qui nous permet ainsi de superposer les deux branches au centre de notre spectromètre et d'obtenir un éclaircissement d'habillage infrarouge de l'ordre de $10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$.

La difficulté majeure de cette expérience est d'optimiser le recouvrement spatial et temporel entre les deux faisceaux au centre de notre spectromètre. Comme nous l'avons décrit au chapitre 2, les franges d'interférences entre les deux faisceaux sont optimisées à l'aide de la ligne à retard pour obtenir un bon recouvrement temporel. Le "jitter" entre les deux faisceaux, dû principalement aux vibrations mécaniques, peut être estimé à quelques femtosecondes par les fluctuations des franges d'interférences.

La réflectivité des miroirs multi-couches pour l'harmonique H_{19} est théoriquement de 40%, et les harmoniques d'ordre supérieur sont complètement absentes, tandis que les harmoniques d'ordre inférieur adjacentes telles que H_{17} et H_{15} sont observables, mais avec un éclaircissement plus faible que l'harmonique H_{19} . Ces éclaircissements relatifs ont pu être mesurés en utilisant le néon comme cible (figure 3.5), dont le potentiel d'ionisation (21.56 eV) est inférieur à l'énergie de l'harmonique H_{15} . Les éclaircissements des harmoniques H_{15} (22.9 eV), H_{17} (26.0 eV) et H_{19} (29.0 eV), calculés à partir des sections efficaces d'ionisation du néon (J. A. R. Samson and W. C. Stolte 2002 [80]), sont environ dans les proportions 2, 3 et 9. La sélectivité des miroirs multi-couches pour l'harmonique H_{19} est moins grande que celle attendue d'après la figure 2.1, ce qui est la manifestation d'une dégradation des miroirs après exposition aux rayonnements comme nous l'avons discuté au chapitre 2.

La figure 3.6 rappelle le repère utilisé pour l'analyse des électrons. L'axe x est choisi parallèle aux faisceaux harmonique et laser, l'axe y parallèle à la polarisation et au jet de gaz et l'axe z parallèle à l'axe de détection, qui est colinéaire aux champs électrique et magnétique. L'angle θ est mesuré par rapport à la polarisation, donc par rapport à l'axe y .

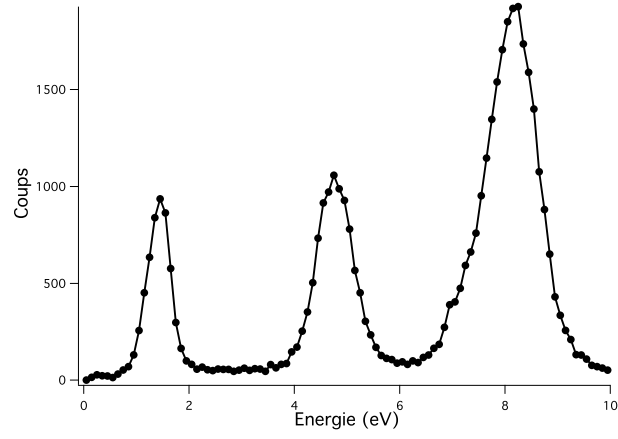


FIG. 3.5 – Spectre de photoélectrons du néon ionisé par les harmoniques H_{15} , H_{17} et H_{19} sans infrarouge.

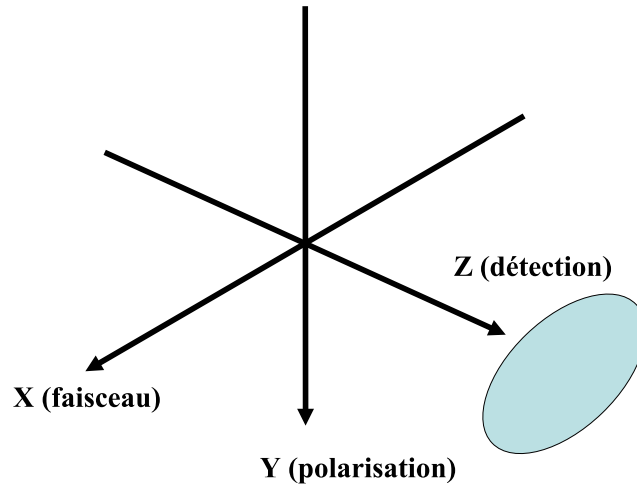


FIG. 3.6 – Repère utilisé pour l'analyse des électrons.

3.3.2 Spectres UV et UV + IR

Les figures 3.7 et 3.8 montrent les cycloïdes et l'analyse dans l'espace des moments, similaires à celles présentées au chapitre 2, mais en présence d'infrarouge.

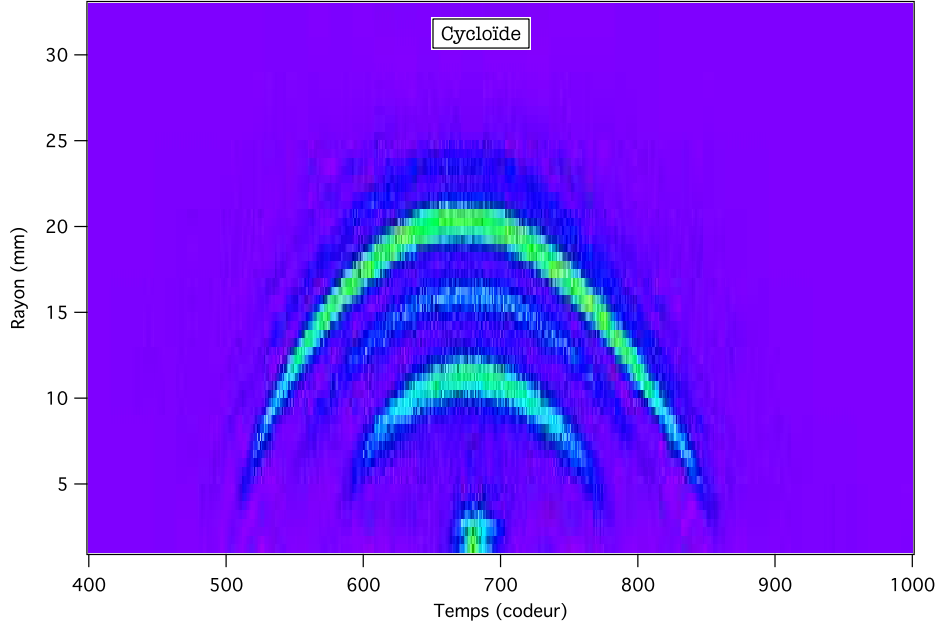


FIG. 3.7 – Cycloïdes obtenues lors de l'ionisation simple de l'hélium par les harmoniques H_{15} , H_{17} et H_{19} en présence d'infrarouge à l'éclairement $I = 1.2 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$.

Le spectre de l'hélium avec infrarouge déduit de cette analyse des électrons est reporté en trait plein sur la figure 3.9 où la courbe en pointillé représente le spectre obtenu sans infrarouge. Lorsque seule l'impulsion XUV ionise l'hélium, les pics harmoniques H_{19} et H_{17} sont localisés à leur énergie nominale (4.43 et 1.37 eV respectivement). Les pics H_{19} et H_{17} obtenus en présence d'infrarouge sont légèrement déplacés vers les basses énergies d'environ 0.08 eV, et un tel déplacement pondéromoteur nous permet d'estimer l'éclairement infrarouge aux alentours de $1.2 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$ dans la région du recouvrement.

Lorsque l'hélium est habillé par l'infrarouge, trois pics satellites nommés SB_{16} , SB_{18} and SB_{20} apparaissent à environ 0 eV, 2.8 eV et 5.85 eV respectivement. Les électrons du pic SB_{20} sont majoritairement détectés sur la couronne la plus externe du détecteur électron, et malheureusement la réponse de ce dernier est plus faible à cet endroit. Ce pic est certainement atténué et sa distribution angulaire déformée. Nous n'analyserons donc pas ce pic dans la suite.

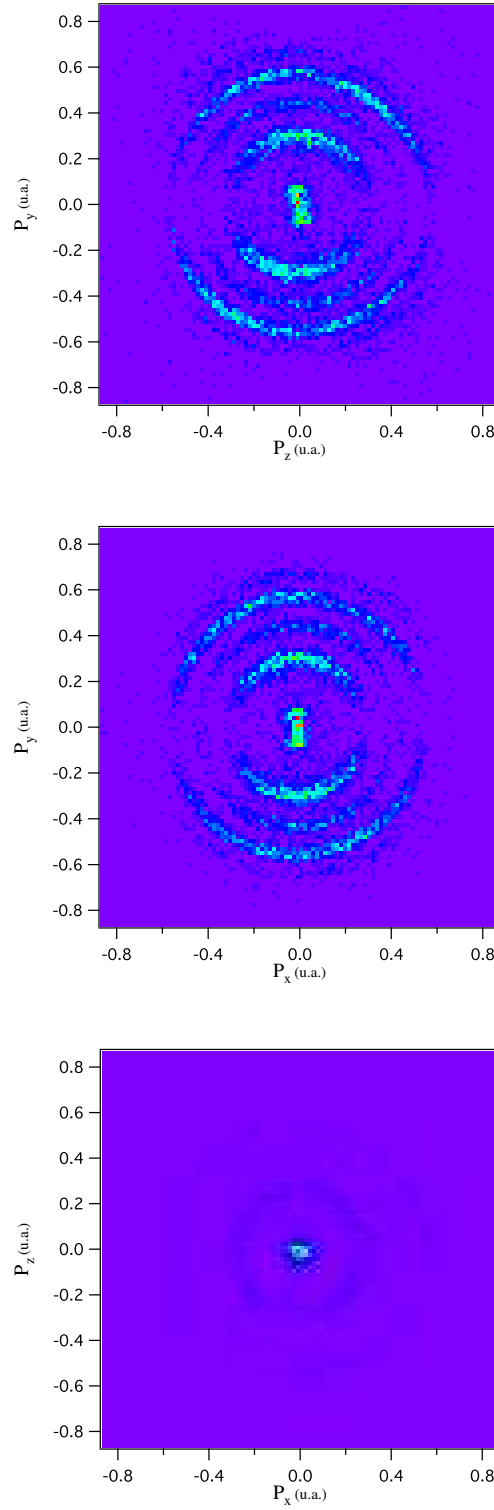


FIG. 3.8 – Coupes dans l'espace des moments des photoélectrons issus de l'ionisation simple de l'hélium par les harmoniques H_{15} , H_{17} et H_{19} en présence d'infrarouge à l'éclairement $I = 1.2 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$.

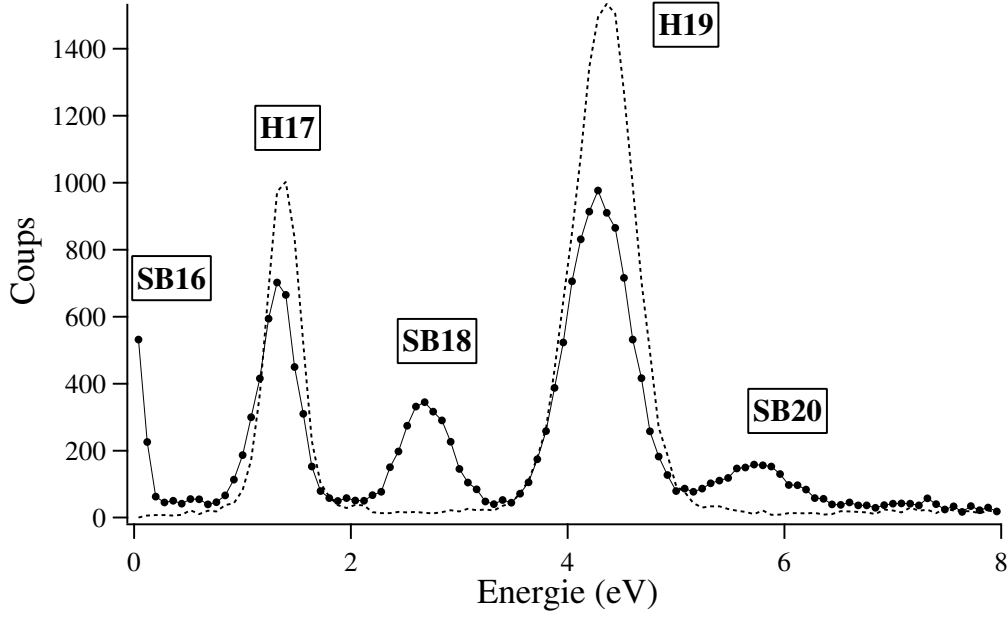


FIG. 3.9 – Spectre de photoélectrons de l'hélium ionisé par les harmoniques H_{15} , H_{17} et H_{19} sans infrarouge (pointillé) et en présence d'infrarouge (trait plein).

Sur la figure 3.9, on remarque particulièrement le pic satellite SB_{16} qui est dû d'une part à l'absorption par les atomes d'hélium de l'harmonique H_{15} et d'un photon infrarouge et d'autre part à l'absorption d'un photon H_{17} et l'émission stimulée d'un photon infrarouge. Notons que l'harmonique H_{15} est quasi-résonnante avec l'état excité $1s3p\ ^1P^o$ de l'hélium situé à 23.09 eV, qui peut alors être ionisé par un photon infrarouge, produisant ainsi des électrons de faible énergie constituant une partie du pic SB_{16} . Le pic SB_{16} est toujours présent lorsque l'infrarouge est décalé 3 ps après le rayonnement XUV grâce à la ligne à retard. Cela constitue bien la signature d'un processus à deux étapes. Une expérience spécifique avec des champs plus faibles ($E = 1.7\text{ V.cm}^{-1}$ et $B = 1.2\text{ Gauss}$) a été réalisée pour analyser les électrons de faible énergie cinétique du pic SB_{16} et obtenir leur impulsion initiale (figure 3.10) ainsi que leur énergie (figure 3.11) avec une bonne résolution.

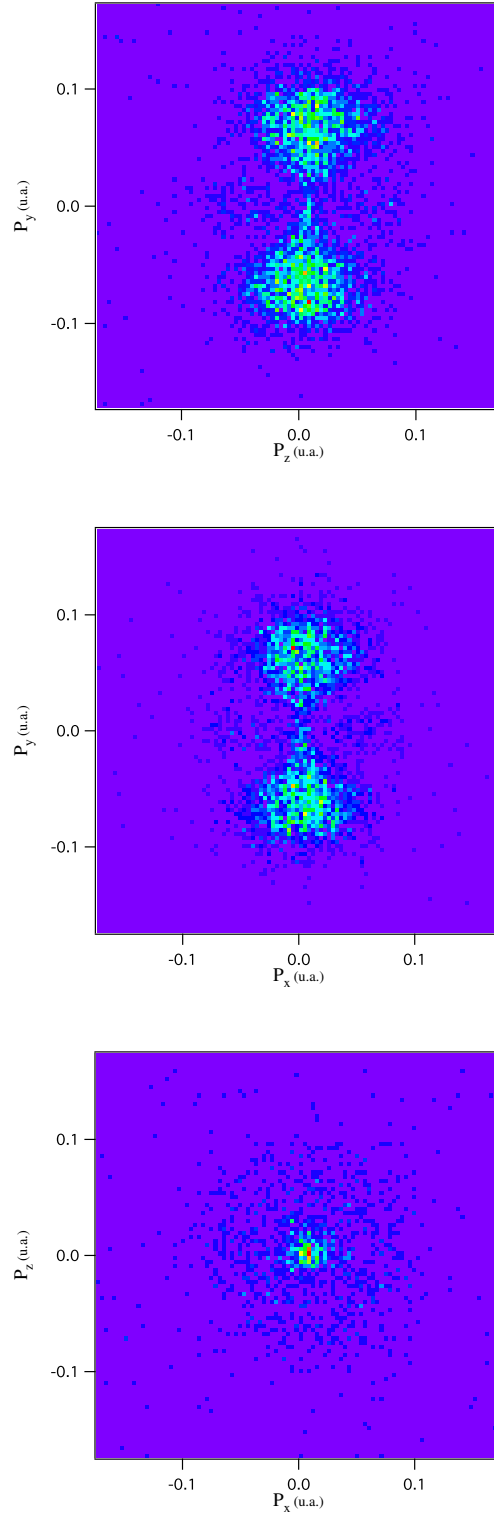


FIG. 3.10 – Coupes dans l'espace des moments des photoélectrons de faible énergie cinétique du pic SB_{16} . Elles correspondent à des modules des composantes P_{x_0} , P_{z_0} et P_{y_0} inférieurs à 0.03 u.a.

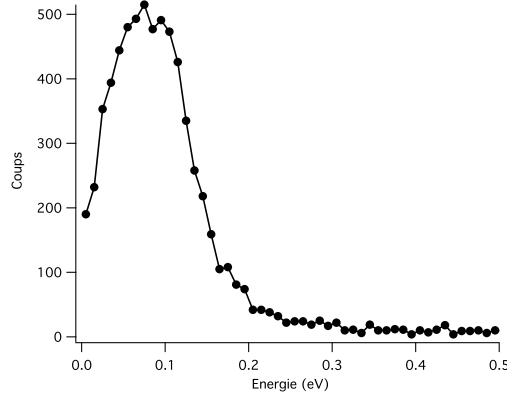


FIG. 3.11 – Spectre des photoélectrons de faible énergie du pic SB_{16} .

3.3.3 Distributions angulaires des pics harmoniques

Sans infrarouge, les distributions angulaires des pics harmoniques sont en accord avec le comportement en $\cos^2 \theta$ attendu pour un photoélectron éjecté depuis une orbitale "s" (figure 3.12).

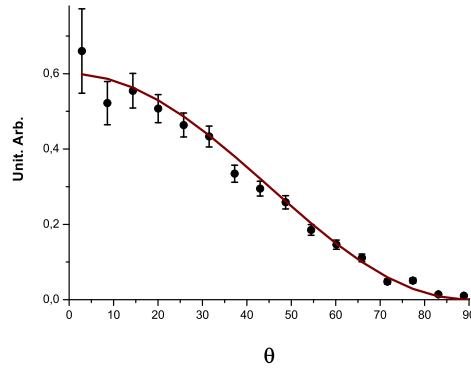


FIG. 3.12 – Distribution angulaire typique d'un pic de photoélectron harmonique en absence d'infrarouge. La courbe trait plein est la fonction $\cos^2 \theta$.

Lorsque l'on ajoute l'infrarouge, la distribution angulaire du pic H_{17} (figure 3.13.a) est très peu modifiée et semble garder un comportement en $\cos^2 \theta$. Ce résultat est inattendu, par rapport à l'élargissement des harmoniques habillées par le champ infrarouge observé au LOA. Notons que le pic harmonique H_{17} peut être influencé par un chemin séquentiel à trois photons, un photon harmonique H_{15} , quasi résonnant avec l'état $1s3p \ ^1P^o$ et deux photons infrarouges. La distribution angulaire pour l'harmonique H_{19} habillée devient par contre

très élargie et présente même un plateau remarquable entre 0° et environ 40° , puis retombe rapidement à zéro au voisinage de 90° (figure 3.13.b).

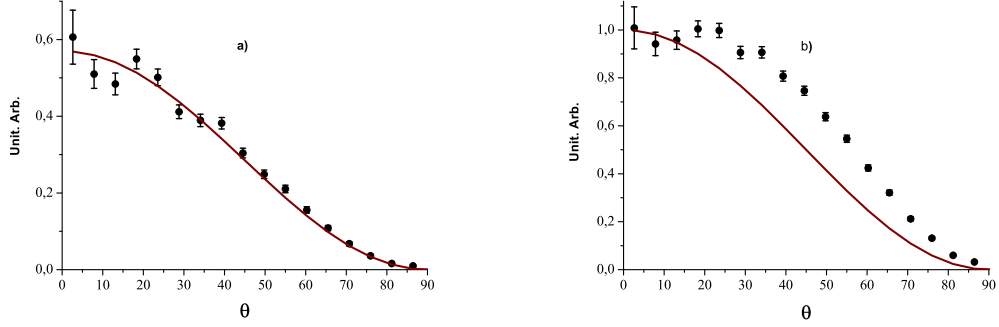


FIG. 3.13 – Distributions angulaires des pics H_{17} (a) et H_{19} (b) en présence d’infrarouge à un éclairement de $1.2 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$. La courbe en trait plein est la fonction $\cos^2 \theta$.

3.3.4 Distributions angulaires des pics satellites

Les pics satellites présentent une distribution angulaire plus étroite que le $\cos^2 \theta$. Les comportements des distributions angulaires des pics satellites SB_{16} et SB_{18} diffèrent. En effet le pic SB_{16} est plus piqué le long de la polarisation du laser et présente un minimum vers 60° (figure 3.14).

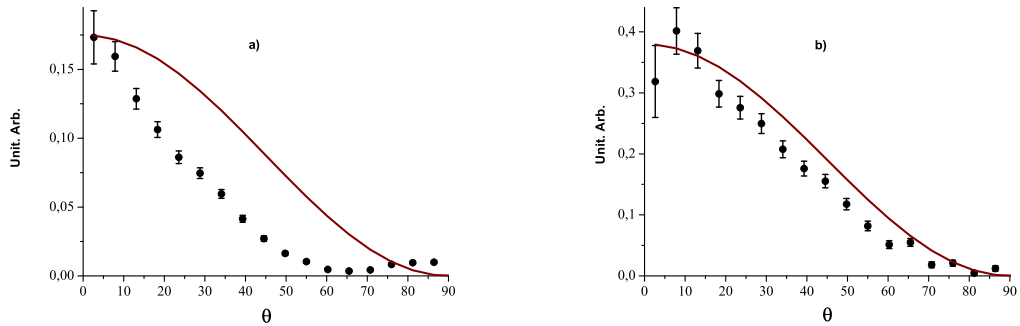


FIG. 3.14 – Distributions angulaires des pics SB_{16} (a) et SB_{18} (b) en présence d’infrarouge à un éclairement de $1.2 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$. La courbe en trait plein est la fonction $\cos^2 \theta$.

3.3.5 Calculs dans les conditions expérimentales - Comparaison expérience-théorie

Ces résultats sont plus spécifiques et spectaculaires que ceux obtenus au LOA à un éclairage infrarouge plus faible et en présence d'un peigne plus large d'harmoniques, que nous avons présentés au paragraphe 3.2. Pour les interpréter, nous avons réalisé des calculs numériques en résolvant la TDSE, comme pour les expériences du paragraphe 3.2, mais avec des paramètres correspondants à ces nouvelles expériences. Les rapports d'éclairements des harmoniques H_{15} , H_{17} , et H_{19} mesurés dans le néon ont été incorporés dans ces calculs. Nous avons vu au chapitre 1, à partir de l'approche perturbative au deuxième ordre, que l'intensité des pics satellites contient un terme oscillant proportionnel à $\cos(\Delta\theta + \Delta\phi_H + 2\omega_L\tau)$ où $\Delta\theta = \theta_{2q+1} - \theta_{2q-1}$ est la différence des phases atomiques, $\Delta\phi_H = \phi_{2q+1} - \phi_{2q-1}$ est la différence de phase entre deux harmoniques adjacentes, ω_L est la pulsation du laser et τ est le délai entre les impulsions XUV et infrarouge. Les phases relatives des harmoniques sont choisies à partir des travaux de thèse de Y. Mairesse [21] à un éclairage de $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ dans la cellule de génération d'harmoniques ($\phi_{17} - \phi_{15} = 0.22 \text{ rad}$ et $\phi_{19} - \phi_{17} = 1.15 \text{ rad}$). Les phases atomiques sont prises en compte intrinsèquement par le calcul. Le fait totalement nouveau par rapport au paragraphe 3.2 vient du fait que le délai τ entre les harmoniques et l'infrarouge n'est plus fixe, en raison du montage à deux faisceaux. Il doit donc être traité comme un paramètre variable dans les calculs. Les résultats des calculs sont reportés sur les figures 3.16 et 3.17 avec les schémas représentant les principaux chemins quantiques correspondant à chacun des pics du spectre. La quasi-résonance de l'harmonique H_{15} avec l'état $1s3p \ ^1P^o$ à été figurée par un trait plus épais.

Le fait que le spectre XUV est ici constitué de seulement trois harmoniques, de poids respectifs 2, 3, 9 implique, comme nous l'avons exposé au paragraphe 1.1, que l'impulsion XUV n'est pas composée de "bursts" attosecondes parfaits et très courts. La structure temporelle a été calculée sur la figure 3.15 où l'on observe que le signal XUV n'est pas nul entre les "bursts" successifs. Néanmoins on peut considérer qu'une structure attoseconde est présente et s'attendre donc à des effets attosecondes dans les calculs, par rapport au délai τ .

Par contre, il faut tenir compte du "jitter" de plusieurs femtosecondes entre l'XUV et l'infrarouge qui affecte les expériences, ce qui implique dans les calculs une intégration sur les délais entre l'XUV et l'infrarouge. Les spectres et des distributions angulaires sont ainsi calculés pour tous les délais τ possibles entre les impulsions XUV et infrarouge, puis sont moyennés afin de les comparer avec les points expérimentaux. Ceci s'applique aussi bien pour le spectre 3.16 que pour les distributions angulaires dont les moyennes sur τ sont repré-

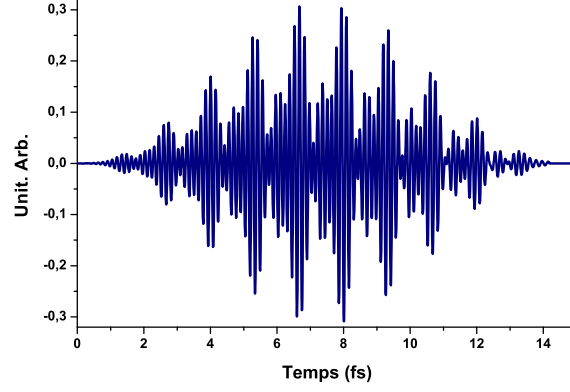


FIG. 3.15 – Structure temporelle de l’impulsion XUV composée des harmoniques H_{15} , H_{17} et H_{19} dans des proportions respectives 2, 3 et 9 avec les phases relatives $\phi_{17} - \phi_{15} = 0.22$ rad et $\phi_{19} - \phi_{17} = 1.15$ rad.

sentées en trait plus épais sur la figure 3.17.

Le spectre théorique moyenné est présenté sur la figure 3.16. Il reproduit relativement bien le spectre expérimental observé sur la figure 3.9. Précisons que l’état $1s3p\ ^1P^o$ de l’hélium est automatiquement pris en compte dans le calcul TDSE, ce qui explique un bon accord sur l’amplitude du pic SB_{16} .

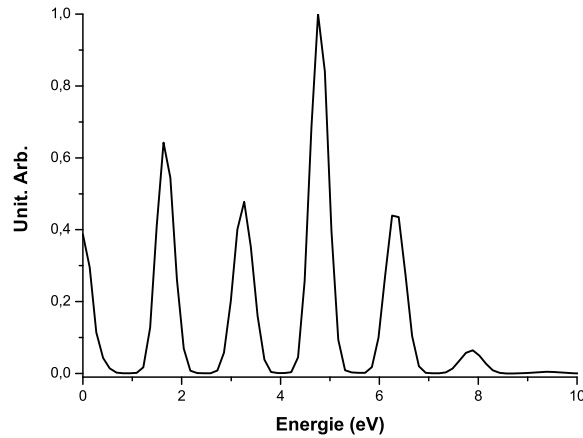


FIG. 3.16 – Spectre théorique de photoélectrons moyenné sur le délai τ correspondant aux harmoniques XUV H_{15} , H_{17} et H_{19} avec des poids 2, 3 et 9 et des phases relatives $\phi_{17} - \phi_{15} = 0.22$ rad et $\phi_{19} - \phi_{17} = 1.15$ rad. L’éclairement infrarouge est de 1.2×10^{12} $W.cm^{-2}$.

Les distributions angulaires moyennées sont présentées sur la figure 3.17. Il apparaît que les distributions angulaires expérimentales sont très bien reproduites par les calculs moyennés. La distribution angulaire de l'harmonique H_{17} est très semblable au $\cos^2 \theta$, et la distribution angulaire de l'harmonique H_{19} est bien élargie par rapport au $\cos^2 \theta$ et présente bien le plateau observé expérimentalement. La distribution angulaire du pic satellite SB_{18} est également bien reproduite ainsi que celle de SB_{16} pour laquelle on retrouve le minimum vers 60° .

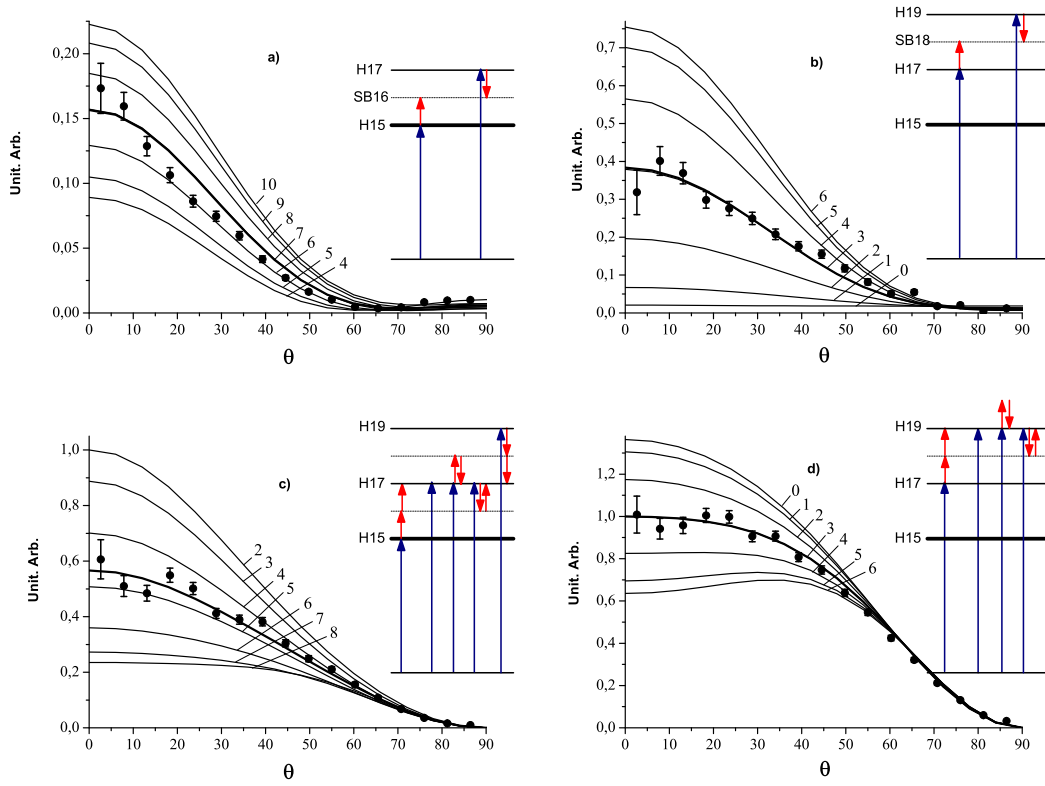


FIG. 3.17 – Distributions angulaires des pics de photoélectrons SB_{16} (a), SB_{18} (b), H_{17} (c) et H_{19} (d) en présence d'infrarouge à l'éclairement $1.2 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$. Les principaux chemins quantiques correspondant à chacun des pics sont indiqués. Les calculs moyennés sur τ sont en trait épais (moyennes des courbes en trait fin). Les calculs pour différentes valeurs de τ allant de 0 à 10 unités de temps, sont indiqués en traits plus fins, et la valeur de τ est attachée à chaque courbe. Une unité de temps vaut 96.756 as, soit 4 en unités atomiques (1 u.a. = 24.189 as).

L'accord remarquable des courbes moyennes calculées avec les points expérimentaux pour les quatre pics (figure 3.17), qui ont chacun des formes différentes, démontre que les calculs TDSE que nous avons réalisés sont fiables. A partir de là nous allons voir que ces calculs prédisent des effets particulièrement intéressants, qui ne sont pas encore accessibles à nos expériences en

raison du "jitter" de quelques femtosecondes entre les faisceaux harmoniques et infrarouge, mais qui pourraient le devenir dans un proche avenir en utilisant des technologies qui réduisent ce "jitter".

Les calculs de distributions angulaires pour chaque valeur de τ sont présentés sur la figure 3.17, par des courbes en traits plus fins. L'évolution attoseconde des distributions angulaires de tous les pics s'inscrit dans une plage $(\Delta\tau)_1 = 6$ unités de temps (≈ 580 as). On remarque que les distributions angulaires du pic satellite SB_{18} et du pic harmonique H_{19} varient entre leur limite supérieure et leur limite inférieure sur exactement la même plage, tandis que les variations du pic satellite SB_{16} et du pic harmonique H_{17} se produisent sur une plage légèrement décalée par rapport à cette dernière. Mais dans tous les cas on constate une évolution très spectaculaire des distributions angulaires, à une échelle de temps très rapide puisque le pas temporel adopté sur la figure 3.17 est de 4 unités atomiques soit 96.7 as. Les distributions angulaires des deux harmoniques H_{17} et H_{19} évoluent d'une forme qui possède un maximum dans la direction de polarisation, à une forme très plate ou présentant même un faible minimum à cet endroit. L'évolution des distributions angulaires des deux pics satellites SB_{16} et SB_{18} en fonction du temps est en sens inverse par rapport aux harmoniques, puisqu'elles évoluent de leur limites inférieures à leur limites supérieures dans la même plage de temps.

La plage $(\Delta\tau)_1 = 6$ unités de temps ou 580 as qui a été choisie est un peu plus faible que le quart de la période laser ($T_L \approx 2.7$ fs). Les distributions angulaires de la figure 3.17 ayant une échelle commune, il est facile d'en déduire que les spectres, résultant de leur intégration sur l'angle θ , présentent des oscillations d'intensité, où les pics harmoniques sont maximaux lorsque les pics satellites sont minimaux, et vice-versa. Ces oscillations sont celles que nous avons déjà mentionnées plus haut pour les pics satellites et qui sont régies par le facteur $\cos(\Delta\theta + \Delta\phi_H + 2\omega_L\tau)$, issu de l'approche perturbative au deuxième ordre. Ce facteur doit être élevé au carré pour obtenir l'intensité, et implique que l'oscillation entre un maximum et un minimum se produit en exactement un quart de la période laser. Le calcul TDSE présenté sur la figure 3.17 donne cependant une valeur légèrement inférieure. Par contre si l'on continue l'étude des variations angulaires de chacun des pics en augmentant τ , on observe exactement les mêmes courbes que celles de la figure 3.17 mais avec une évolution en sens inverse et sur une plage de délai $(\Delta\tau)_2$ légèrement supérieure à $(\Delta\tau)_1$, et qui vérifie exactement $(\Delta\tau)_1 + (\Delta\tau)_2 = T_L/2$.

Cette différence entre les oscillations données par le calcul TDSE, et le facteur oscillant en $\cos(\Delta\theta + \Delta\phi_H + 2\omega_L\tau)$, qui est issu de la théorie des perturbations au deuxième ordre, est la manifestation des oscillations en $4\omega_L$ dues aux interférences entre les chemins quantiques mettant en jeu les harmoniques

H_{2q-1} et H_{2q+3} et arrivant aux mêmes états finaux SB_{2q} grâce à l'échange de plusieurs photons infrarouges (chapitre 1.4.2.2). Ces oscillations additionnelles en $4\omega_L$ contenant notamment des différences de phases en $\phi_{2q+3} - \phi_{2q-1}$ et $\theta_{2q+3} - \theta_{2q-1}$ entraînent une dissymétrie de la courbe d'oscillation des pics satellites et harmoniques intégrés en fonction du délai (figure 3.18). Dans le cadre de l'approche perturbative, cette dissymétrie n'est accessible qu'en prenant en compte les termes d'ordres supérieurs au deuxième ordre.

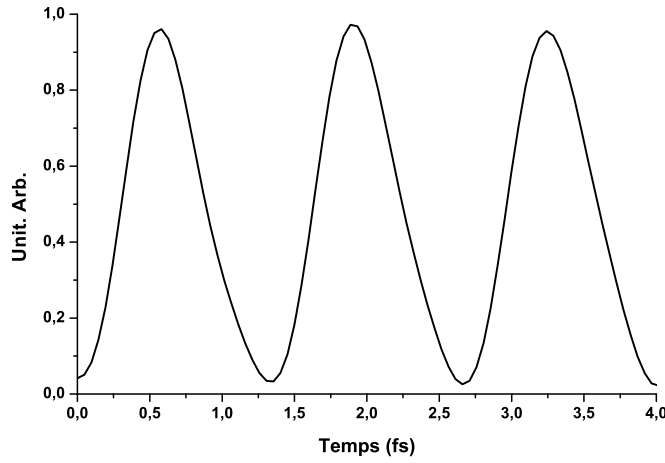


FIG. 3.18 – Oscillations calculées du signal intégré du pic satellite SB_{18} en fonction du délai τ .

3.4 Modèle à deux harmoniques

Le calcul montre aussi que la différence de phases $\Delta\phi_{2q} = \phi_{2q+1} - \phi_{2q-1}$ entre les harmoniques adjacentes est un paramètre critique pour les distributions angulaires. Afin d'illustrer cette propriété dans un cas très simple, nous avons étudié un modèle à deux harmoniques à un éclairage infrarouge de $1.5 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$ (figure 3.19).

Dans ce modèle, nous considérons les harmoniques H_{19} et H_{21} avec des amplitudes égales ce qui permet de se trouver dans une région qui vérifie un peu mieux l'approximation "soft photon". Dans ce cas on peut montrer par la théorie des perturbations que non seulement le pic satellite SB_{2q} mais aussi les pics harmoniques H_{2q-1} et H_{2q+1} oscillent en $\Delta\phi_H + 2\omega_L\tau$ où $\Delta\phi_H = \phi_{21} - \phi_{19}$. Dans le cas de la théorie "soft-photon", les expressions 1.47 et 1.56 que nous avons obtenues au chapitre 1 deviennent :

$$\left(\frac{d\sigma_{SB_{2q}}}{d\theta}\right) \propto \left[1 - 2\frac{\xi}{1+\xi^2} \cos(\phi_{2q+1} - \phi_{2q-1} + 2\omega_L\tau)\right] \cos^4 \theta \quad (3.1)$$

et :

$$\left(\frac{d\sigma_{H_{2q-1}}}{d\theta}\right) \propto \left[1 - (\alpha_0 k_0 \cos \theta)^2 \left(1 - \frac{\xi}{2} \cos(\phi_{2q+1} - \phi_{2q-1} + 2\omega_L\tau)\right)\right] \cos^2 \theta \quad (3.2)$$

où $\xi = \frac{(2q-1)F_{2q+1}}{(2q+1)F_{2q-1}}$. Les amplitudes des deux harmoniques étant égales on a de plus $F_{2q-1} = F_{2q+1}$.

Dans la figure 3.19 nous avons fixé le délai à $\tau = 0$ et varié $\Delta\phi_H$. Les spectres de la figure 3.19 ont tous la même surface mais les pics harmoniques et satellites sont alternativement favorisés en fonction de la valeur de la différence de phase $\Delta\phi_H$. Les distributions angulaires des pics harmoniques H_{19} et H_{21} présentent un creux spectaculaire à $\Delta\phi_H = \pi$ le long de la polarisation à $\theta = 0$ alors que le pic satellite est maximum sur le spectre. A $\Delta\phi_H = 0$ les distributions angulaires des pics harmoniques présentent un maximum alors que le pic satellite est minimum, voire nul sur le spectre. Ces propriétés des spectres et des distributions angulaires données par le calcul TDSE sont en parfait accord qualitatif avec les expressions 3.1 et 3.2 données par l'approximation "soft-photon". On note que pour toutes les valeurs de $\Delta\phi_H$, les harmoniques H_{19} et H_{21} ont des intensités non nulles. Les distributions angulaires de ces harmoniques sont donc mesurables pour toutes les valeurs de $\Delta\phi_H$, dont elles dépendent d'une manière critique.

Cette observation amène à suggérer une application possible de ce travail. Les nombreuses études expérimentales et théoriques déjà menées sur le processus de génération d'harmoniques montrent que les phases relatives de celles-ci sont très sensibles à de nombreux paramètres expérimentaux, comme l'éclairement, la position du point focal, la géométrie de la cellule... etc. D'autre part ces phases relatives ont une importance majeure, puisqu'elles conditionnent la durée des "bursts" attoseconde dans l'émission XUV. Il n'existe à ce jour qu'une seule méthode (RABITT) permettant de déterminer ces phases, qui est basée sur la mesure des oscillations des intensités des pics satellites en fonction du délai τ . Celle ci impose donc de balayer τ sur une plage temporelle suffisante pour observer plusieurs oscillations des pics satellites. Au contraire la mesure de la distribution angulaire des harmoniques habillées par l'infrarouge peut se faire à une valeur de τ fixe, et donne en principe directement accès à la phase relative $\Delta\phi_H$, puisque sa forme évolue très vite avec ce paramètre.

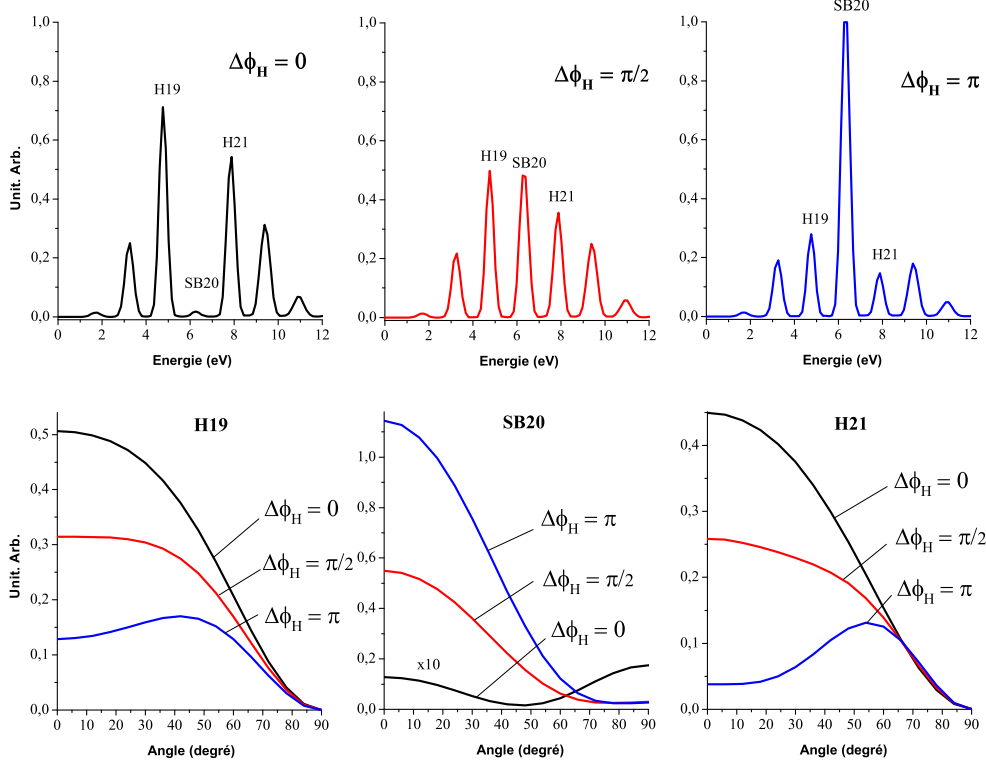


FIG. 3.19 – Modèle à deux harmoniques étudiant les spectres et les distributions angulaires en fonction de la différence de phase $\Delta\phi_H = \phi_{21} - \phi_{19}$ des harmoniques H₁₉ et H₂₁ d'intensité égale. Les courbes noires correspondent à $\Delta\phi_H = 0$, les courbes rouges à $\Delta\phi_H = \pi/2$ et les bleues à $\Delta\phi_H = \pi$.

3.5 Cas d'un peigne d'harmoniques

Les résultats que nous venons de présenter tout d'abord pour trois harmoniques de poids inégaux, dans les conditions de l'expérience réalisée sur PLFA, puis pour deux harmoniques de poids égaux, se généralisent au cas d'un peigne d'harmoniques. Ce cas est particulièrement intéressant, car comme nous l'avons vu au paragraphe 1.1, les "bursts" attosecondes, séparés de la moitié de la période du laser, deviennent très courts. Ils peuvent être superposés temporellement soit aux maxima du champ laser (figure 3.20), soit aux zéros du champ laser (figure 3.21), ou encore se trouver dans toutes les positions intermédiaires. Ces figures résultent d'un calcul TDSE typique. Lorsque les "bursts" correspondent aux maxima du champ laser, le spectre de photoélectrons ne montre pas de pics satellites (figure 3.20). A l'inverse, lorsque les "bursts" sont super-

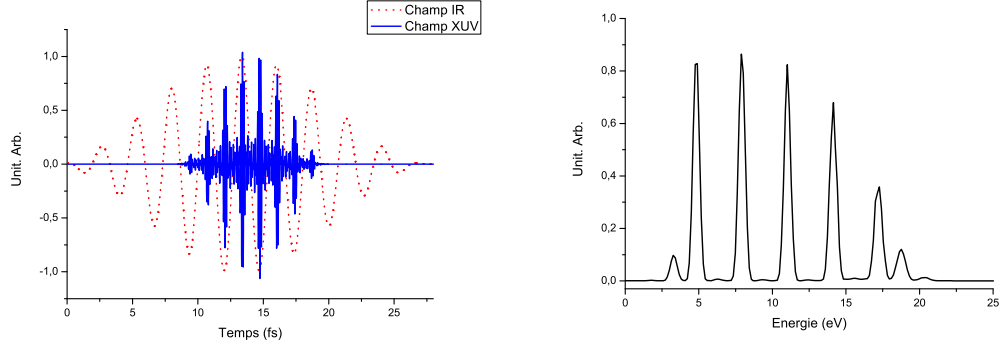


FIG. 3.20 – Structure temporelle du champ XUV composé d'un train de cinq harmoniques d'intensités égales superposé au champ infrarouge. Cas de l'interférence destructive dans lequel les "bursts" XUV sont situés au niveau des maxima du champ infrarouge (figure de gauche). Spectre de photoélectrons correspondant au cas de l'interférence destructive (figure de droite).

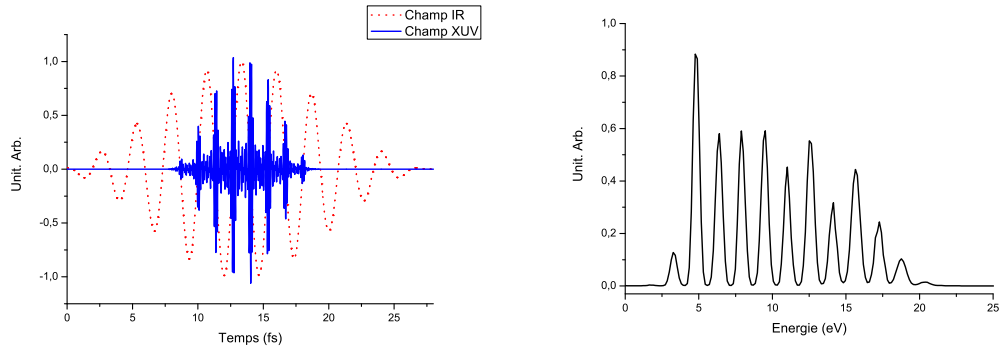


FIG. 3.21 – Structure temporelle du champ XUV composé d'un train de cinq harmoniques d'intensités égales superposé au champ infrarouge. Cas de l'interférence constructive dans lequel les "bursts" XUV sont situés au niveau des minima du champ infrarouge (figure de gauche). Spectre de photoélectrons correspondant au cas de l'interférence constructive (figure de droite).

posés aux zéros du champ laser (figure 3.21), les pics satellites sont maximaux et les harmoniques minimales.

La seule différence notable tient au fait que les pics satellites apparaissent à plus bas éclairement infrarouge que dans le cas d'un très petit nombre d'harmoniques. Ceci est dû au fait qu'il existe de nombreuses manières de produire un photoélectron ayant l'énergie d'un pic satellite. En effet les harmoniques H_{2q-1} , H_{2q+1} et aussi, dans une moindre mesure, ... H_{2q-3} , H_{2q+3} ... contribuent à l'apparition du pic satellite SB_{2q} .

Le comportement des distributions angulaires des harmoniques est très similaire à celui que nous avons présenté dans les cas précédents, avec une alternance spectaculaire de maxima et de minima dans la direction de la polarisation lorsque l'on fait varier soit le délai τ , soit les différences de phase entre les harmoniques. L'idée d'utiliser les propriétés de ces distributions angulaires, à une valeur fixe de τ , pour en extraire des informations sur les phases relatives des harmoniques est donc généralisable au cas d'un peigne d'harmoniques.

3.6 Conclusion

Les résultats obtenus sur PLFA confirment ceux obtenus au LOA. Ces nouveaux résultats à des éclairements de l'ordre de $10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$ montrent un bon accord avec les calculs TDSE. Ils peuvent être interprétés tant par la théorie des perturbations avec des ordres supérieurs que par l'approximation du "soft photon". L'évolution prévue par les calculs TDSE des distributions angulaires des pics harmoniques, sur une échelle attoseconde, appelle à de nouvelles mesures affranchies du "jitter" sur le délai τ . Ceci est possible à condition de raccourcir les parcours des deux faisceaux, et de diminuer les vibrations dues aux pompes turbomoléculaires. L'évolution de ces mêmes distributions angulaires, à τ fixé avec les différences de phase entre les harmoniques suggère de les utiliser pour développer un nouveau type de diagnostic sur les phases temporelles des harmoniques.

Chapitre 4

Résultats - Ionisation double

4.1 Résultats antérieurs

4.1.1 Ionisation double à un photon par rayonnement synchrotron

La double photoionisation (DPI) d'atomes et de molécules a été beaucoup étudiée, au cours des dernières années, grâce au rayonnement produit par les sources synchrotron, qui est caractérisé par des impulsions lumineuses de durée relativement longue, de l'ordre de quelques dizaines de picosecondes et un éclairage relativement faible (voir les revues de J. Briggs et V. Schmidt 2000 [41] et de L. Avaldi et A. Huetz 2005 [42]).

Dans ces conditions, un unique photon XUV d'énergie supérieure au potentiel de double ionisation est absorbé et arrache deux électrons à un atome (ou une molécule). Les deux électrons se partagent l'excès d'énergie selon :

$$E_1 + E_2 = h\nu - I_p^{2+} \quad (4.1)$$

où E_1 et E_2 sont les énergies cinétiques des deux photoélectrons, $h\nu$ l'énergie du photon et I_p^{2+} le potentiel de double ionisation de l'atome considéré. Ils sont émis dans les directions Ω_1 et Ω_2 . Nous avons vu au chapitre 1 que plusieurs mécanismes sont possibles pour l'émission des deux électrons. Le processus direct serait nul en l'absence d'interaction entre les deux électrons (modèle des électrons indépendants) et est donc la signature des corrélations électroniques dans l'état initial ainsi que dans l'état final. L'étude de la DPI directe est donc idéale pour l'étude des corrélations électroniques.

De très nombreuses expériences ont été faites sur l'hélium, dans des conditions très variées de polarisation (linéaire et circulaire) et d'énergie des photons, et dans différentes géométries pour l'émission des deux électrons. Parallèlement

de très nombreux travaux théoriques, et la mise au point de nouvelles méthodes numériques, ont accompagné ces mesures. On peut résumer la situation actuelle en disant que la DPI de l'atome d'hélium à un photon est actuellement bien comprise.

De très nombreuses mesures ont également été faites sur les gaz rares autres que l'hélium. Elles ont permis d'observer de nouveaux effets physiques qui n'existent pas dans l'hélium. Nous avons déjà mentionné au chapitre 1 les effets de la symétrie de deux électrons émis qui provoque des nœuds ou anti-nœuds à 180° dans les diagrammes de corrélation angulaire entre ces deux électrons. Un autre effet très étudié est le processus que nous avons nommé "indirect" au chapitre 1. Il est dû aux états excités intermédiaires notés A^{+**} qui sont produits dans une première étape, et qui s'autoionisent dans une deuxième étape vers un état de A^{2+} situé à plus basse énergie. Si la première étape d'ionisation a eu lieu dans une couche interne de l'atome, ce mécanisme est très fréquent et très intense : c'est l'effet Auger, qui conduit à l'ionisation double ou multiple de l'atome. Le développement récent des sources synchrotron et des techniques de détection des électrons a permis un grand nombre d'expériences où le photoélectron et un électron Auger sont mesurés en coïncidence, et où leur corrélation angulaire est étudiée (V. Schmidt 1997 [81]).

Dans ce chapitre nous nous intéressons à la DPI du xénon, dont le potentiel de double ionisation est le plus bas (33.1 eV) des gaz rares et est donc accessible par les sources harmoniques qui ont un bon éclairage dans ce domaine d'énergie. Mais avant de présenter nos résultats nous rappelons dans les paragraphes suivant ceux de plusieurs études antérieures qui nous seront très utiles dans la suite.

4.1.2 Ionisation double du xénon à un photon XUV par une lampe à hélium

Le rayonnement synchrotron étant complètement accordable, un très grand nombre d'études à des énergies de photon variées existent sur la DPI du xénon. Néanmoins celle dont l'énergie de photon se rapproche le plus des résultats que nous présentons dans ce travail est une étude originale faite avec une lampe à hélium (J. H. D. Eland *et al.* 2003 [82]). Celle ci produit des photons d'énergie 40.8 eV, voisine de l'énergie de l'harmonique H_{25} (38.3 eV). Les auteurs ont utilisé pour la détection des électrons une bouteille magnétique, qui a l'inconvénient d'intégrer sur tous les angles d'émission, mais qui a l'avantage d'avoir une très bonne résolution en énergie et qui permet d'obtenir toutes les énergies des électrons simultanément avec une transmission constante. Dans cette étude les processus de DPI indirecte :

$$h\nu(40.8\text{eV}) + \text{Xe} \rightarrow \text{Xe}^{+**} + e_1(E_1) \rightarrow \text{Xe}^{2+} ({}^3\text{P}_2) + e_1(E_1) + e_2(E_2) \quad (4.2)$$

ont été identifiés comme le montre la figure 4.1. Sur cette figure les deux électrons sont détectés en coïncidence et la bonne résolution en énergie permet de séparer tous les états finaux possibles de Xe^{2+} dans la configuration $5p^4$, à savoir ${}^3\text{P}_0$, ${}^3\text{P}_1$, ${}^3\text{P}_2$, ${}^1\text{D}_2$ et ${}^1\text{S}_0$. Les plus intenses des états Xe^{+**} responsables de la DPI indirecte sont construits par attachement d'un électron externe nd à un cœur ionique $\text{Xe}^{2+} {}^1\text{D}$ ou ${}^1\text{S}$, avec $n = 8, 9$ et $n = 7$ respectivement. Ils sont situés au dessus de l'état fondamental $\text{Xe}^{2+} {}^3\text{P}_2$ vers lequel ils peuvent donc s'autoioniser, ce qui produit des pics intenses aux très faibles énergies $E_2 \approx 0.6$ eV et 0.9 eV environ.

Cette étude montre également qu'à cette énergie de photon on observe de la DPI directe (fonds continus sur la figure 4.1). Pour ce qui concerne les états finaux de l'ion Xe^{2+} , et toujours à l'énergie 40.8 eV pour le photon, les états $\text{Xe}^{2+} {}^3\text{P}_2$ et ${}^1\text{D}_2$ sont dominants, et l'état $\text{Xe}^{2+} {}^1\text{S}_0$ est très faible.

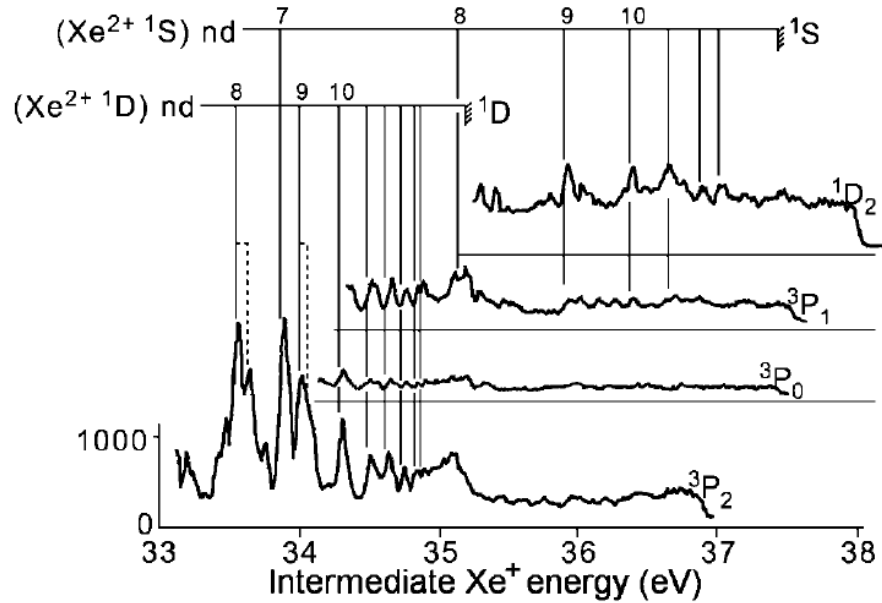


FIG. 4.1 — Spectres des électrons de DPI en fonction de l'état final de l'ion Xe^{2+} (J. H. D. Eland *et al.* 2003 [82]).

Cette expérience à un photon, réalisée à l'aide d'une lampe à hélium, possède une très bonne statistique et elle nous a servi de référence dans la suite de ce travail.

4.1.3 Ionisation double du xénon à un photon XUV par une source harmonique

La toute première mesure de DPI dans le xénon utilisant une source harmonique a été effectuée à Berlin en 2005 (M. Böttcher *et al.* 2005 [83]). Dans cette expérience le rayonnement XUV utilisé est l'harmonique H₂₅ (à 38.3 eV) produite à l'aide d'un laser titane-saphir à 810 nm. La cadence du laser est de 1 kHz, et le train d'harmoniques est dispersé par un réseau afin de sélectionner l'harmonique H₂₅. L'utilisation de ce réseau a aussi pour conséquence de faire passer la durée de l'impulsion lumineuse de 15 ± 5 fs à 3.0 ± 0.5 ps.

La technique utilisée repose sur la mesure de l'ion et d'un des deux photo-électrons avec un système de détection (de type "COLTRIMS") pourvu d'une anode "carrée" à ligne à retard pour la détection des électrons. Le gros inconvénient de ce type d'anode est qu'il y est affecté d'un temps mort important après la détection du premier électron. Le système est donc aveugle pour le second électron. Ce deuxième électron n'est pas détecté, mais son impulsion est calculée grâce à la mesure du recul de l'ion. En effet, la somme des impulsions des trois particules doit être la même que la somme de l'impulsion initiale de l'atome et de celle du photon. Celles ci sont toutes les deux négligeables, et la somme des trois vecteurs $\vec{k}_1$, $\vec{k}_2$ et $\vec{K}_i$ doit donc être nulle. Dans la technique COLTRIMS, $\vec{k}_1$ et $\vec{K}_i$ sont mesurés, ce qui donne en principe accès à l'impulsion du deuxième électron $\vec{k}_2$. Ceci est vrai pour des atomes légers comme l'hélium, mais pour les atomes lourds comme le xénon la résolution sur l'impulsion $\vec{K}_i$ devient très mauvaise. Dans les expériences menées à Berlin (M. Böttcher *et al.* 2005 [83]) seul l'un des deux électrons produits par la DPI a donc pu être mesuré et analysé, en coïncidence avec l'ion doublement chargé Xe²⁺. C'est le mode que nous avons désigné par PePiCo au chapitre 2. Il ne permet pas de séparer les différents états finaux de l'ion doublement chargé.

La figure 4.2 montre un spectre de l'électron détecté. Il correspond à la somme des spectres sur tous les états finaux de l'expérience de J. H. D. Eland *et al.* (figure 4.1). La présence de pics aux énergies 0.6 et 0.9 eV est aussi visible dans ce spectre, ainsi que le fond de DPI directe qui s'étend entre 0 et 5.2 eV, qui est la différence entre l'énergie de l'harmonique 25 (38.3 eV) et celle de l'état fondamental Xe²⁺ ³P₂ (33.1 eV).

4.1.4 Ionisation double du xénon à deux photons H₁₇ + IR et H₂₁ + IR

Une autre expérience a également été réalisée à Berlin en 2006 (M. Böttcher *et al.* 2007 [84]) sur la source d'harmoniques avec le même système de détection, et qui constitue la toute première expérience de DPI à deux photons où

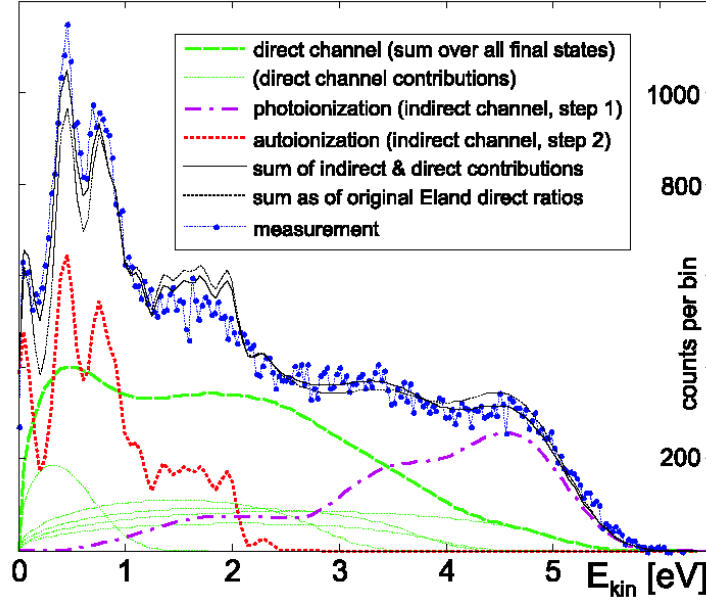


FIG. 4.2 – Distribution de l'énergie cinétique des électrons détectés en coïncidence avec les ions Xe^{2+} (M. Böttcher *et al.* 2005 [83]).

au moins un électron est analysé. En effet dans toutes les expériences à deux photons XUV menées jusqu'à maintenant sur les sources harmoniques (E. P. Benis *et al.* 2006 [3]; Y. Nabekawa *et al.* 2005 [18]) et XFEL (T. Laarmann *et al.* 2005 [14]; H. Wabnitz *et al.* 2005 [15]; A. A. Sorokin *et al.* 2007 [16]; R. Moshhammer *et al.* 2007 [17]) seul les ions ont été mesurés. Les harmoniques H_{17} ou H_{21} sont sélectionnées grâce à un réseau. L'impulsion harmonique a une durée de 2.5 ± 0.5 ps. L'impulsion infrarouge est elle aussi élargie en temps à l'aide d'un cristal SF-10 de 65 mm pour recouvrir l'impulsion XUV sur toute sa durée. Les deux faisceaux sont superposés spatialement avec un petit angle.

Les harmoniques H_{17} (26.02 eV) et H_{21} (32.14 eV) ont une énergie inférieure au potentiel de double ionisation du xénon. Le premier état de Xe^{2+} 3P_2 se situe à 33.1 eV au dessus du niveau fondamental du xénon. Par suite si l'on obtient des ions Xe^{2+} lorsque l'on superpose l'infrarouge à l'une de ces harmoniques, on observe nécessairement des processus mettant en jeu plusieurs photons : un photon harmonique et un ou plusieurs photons infrarouges.

Dans le cas de l'harmonique H_{21} , le xénon doit au moins absorber un photon infrarouge en plus du photon harmonique pour atteindre le premier état de double ionisation. Sur la figure 4.3 est tracé le rapport entre les taux d'ionisation double et simple en fonction du délai τ entre l'impulsion infrarouge et l'impulsion harmonique. Cette figure montre bien qu'il n'existe pas d'évène-

ment de double ionisation lorsque l'impulsion infrarouge arrive avant l'impulsion XUV. Remarquons que cela signifie que l'éclairement infrarouge utilisé est insuffisant pour provoquer la double ionisation multi-photonique (MPI) dans l'infrarouge pur. La courbe monte ensuite lorsque les deux impulsions sont de mieux en mieux superposées jusqu'à atteindre un plateau. Le taux de double ionisation reste alors constant lorsque l'impulsion infrarouge arrive après l'impulsion harmonique, jusqu'à plusieurs ps de retard. Cette courbe démontre que l'ionisation double se produit majoritairement de manière séquentielle : une première ionisation simple est produite par le photon harmonique, laissant l'ion Xe^+ dans un état intermédiaire de longue durée de vie à l'échelle ps, qui est ensuite lui même ionisé par l'infrarouge pour donner Xe^{2+} . En effet si le processus de double ionisation du xénon était exclusivement non-séquentiel, le taux de double ionisation présenterait un pic lorsque les deux impulsions sont superposées ($\tau=0$) et serait nul partout ailleurs.

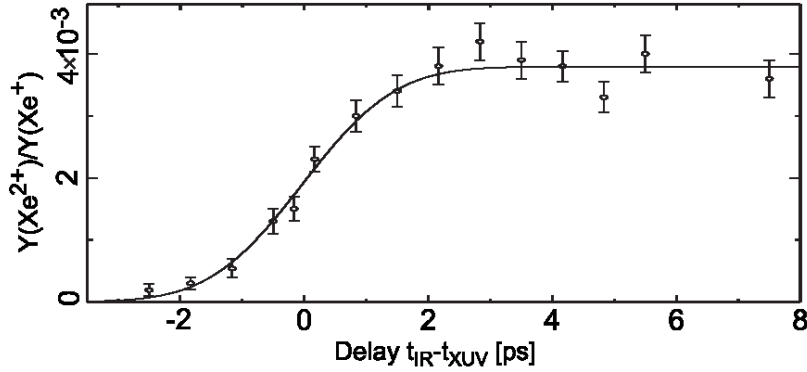


FIG. 4.3 – Dépendance du rapport des signaux d'ions Xe^{2+} et Xe^+ en fonction du retard entre les deux impulsions XUV (harmonique H_{21}) et infrarouge (M. Bottcher *et al.* 2007 [84]).

Il faut néanmoins remarquer que ce travail ne démontre pas vraiment l'absence ou la faiblesse du processus non-séquentiel par rapport au processus séquentiel. En effet pour que le premier se produise il faut non seulement que les impulsions harmonique et infrarouge arrivent simultanément mais aussi que l'éclairement infrarouge soit suffisant. Le signe que cette condition est remplie est l'apparition des pics satellites (side-bands) dans l'ionisation simple étudiée au chapitre 3 pour l'hélium. Or ces pics étaient absents dans les spectres d'ionisation simple du xénon, dans cette expérience menée à Berlin. Ceci n'est pas surprenant, en raison de la durée des impulsions utilisées, supérieure à 2 ps.

Dans les résultats de DPI que nous allons maintenant présenter, les impulsions utilisées sont beaucoup plus courtes, grâce à l'usage de miroirs multi-

couches pour sélectionner les harmoniques, et non pas d'un réseau. L'impulsion harmonique, typiquement de 15 fs, conserve cette durée après réflexion sur les deux miroirs multi-couches, et il n'est donc pas nécessaire d'élargir temporellement l'impulsion infrarouge, donc la durée est typiquement 30 fs. Il en résulte un éclairage infrarouge beaucoup plus élevé, comme en témoigne la présence des pics satellites, comme nous l'avons vu au chapitre 3. Par conséquent les mécanismes de DPI séquentielle ou non-séquentielle sont tous les deux à priori observables, ce qui représente un pas supplémentaire par rapport à l'expérience réalisée à Berlin en 2006.

4.2 Résultats sur la double photoionisation du xénon par $H_{19} + \text{IR}$

Nous présentons successivement dans la suite, nos résultats pour toutes les observables mesurables dans la DPI, telles qu'elles ont été introduites précédemment : signal d'ions Xe^{2+} , spectres à un électron, diagrammes en deux dimensions (E_1, E_2) , spectres à deux électrons par rapport à l'énergie totale $E_1 + E_2$, et histogrammes de corrélation angulaire.

4.2.1 Signal d'ions Xe^{2+}

Le schéma 4.4 montre les différents chemins possibles menant à la DPI du xénon. De même que les harmoniques H_{17} et H_{21} , l'harmonique H_{19} (29 eV) ne possède pas l'énergie suffisante pour provoquer la DPI. Par contre si l'atome de xénon absorbe un photon harmonique H_{19} et au moins trois photons infrarouges, la somme des énergies des photons étant au dessus du seuil de double ionisation, il est possible d'obtenir des événements de double ionisation. L'éclairage du champ infrarouge étant maintenu en dessous du seuil d'ionisation multi-photonique purement infrarouge (MPI) du xénon, aucun ion Xe^+ n'est détecté lorsque seul l'infrarouge est présent. Les routes séquentielles commençant par la MPI du xénon suivie de l'ionisation de l'ion Xe^+ par l'XUV ne peuvent donc pas exister, et elles ne figurent pas sur le schéma 4.4

La figure 4.5 montre la dépendance du taux d'ions Xe^{2+} produits en fonction du délai entre les impulsions XUV et infrarouge, dans un domaine allant de -500 fs à +500 fs. Lorsque l'impulsion infrarouge arrive avant l'impulsion XUV, aucun signal n'est observé. Lorsque ce délai est nul ($\tau \approx 0$), le signal est de l'ordre de 1.3 Hz. Le taux de détection de Xe^{2+} reste stable comme le montre le plateau qui s'étend jusqu'à 500 fs. Ce plateau démontre l'existence de routes séquentielles notées "s" sur le schéma 4.4.b. Elles commencent par

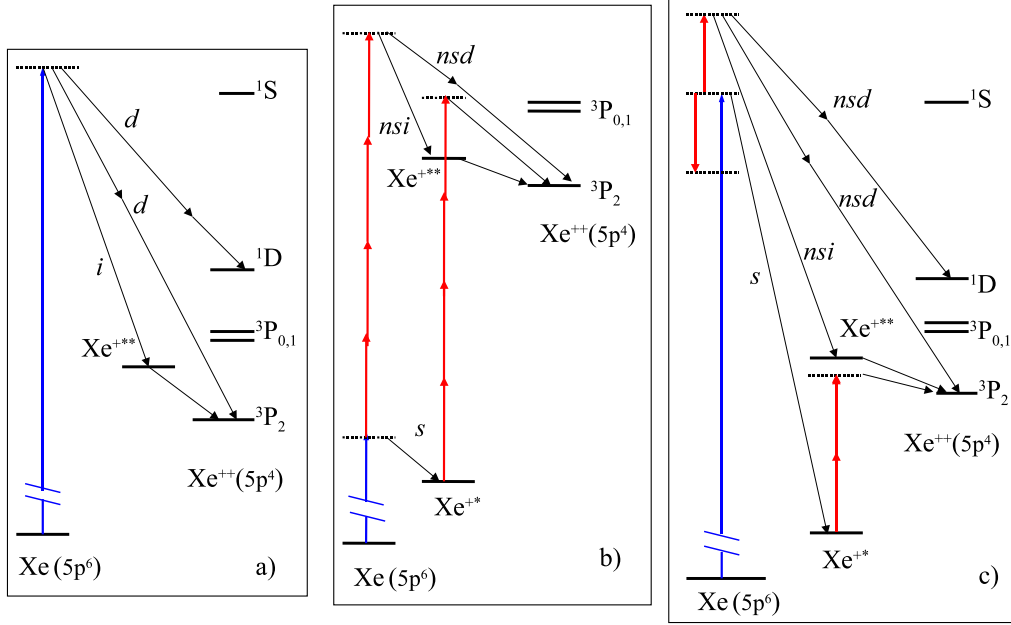


FIG. 4.4 – Chemins quantiques amenant à la DPI du xénon par l'harmonique H_{25} (a), par l'harmonique H_{19} combinée avec une impulsion infrarouge (b), et par l'harmonique H_{25} combinée avec une impulsion infrarouge (c). Les flèches verticales bleues et rouges représentent les photons harmoniques et infrarouges respectivement. Les flèches non verticales représentent l'émission d'un électron. Les chemins différents sont nommés par les abréviations "s" pour séquentielle, "ns" pour non-séquentielle, "d" pour directe et "i" pour indirecte. Les traits horizontaux représentent les niveaux d'énergies de Xe, de Xe^+ et de Xe^{2+} . Xe^{+*} et Xe^{+**} indiquent les états excités situés respectivement en dessous et au dessus du niveau fondamental de l'ion $Xe^{2+} \ 3P_2$. Les traits horizontaux en pointillé représentent les états non-résonnants.

l'ionisation-excitation de l'atome de xénon par l'harmonique H_{19} produisant ainsi des ions excités Xe^{+*} possédant une longue durée de vie. Ces ions sont ensuite ionisés en absorbant au moins trois photons infrarouges. La courbe portée sur la figure 4.5 est une fonction en forme de marche, obtenue par simulation d'un processus séquentiel dont l'état relais a une durée de vie de plusieurs ps ou plus, c'est à dire grande devant le domaine temporel considéré. Elle est obtenue par convolution en supposant que la durée de l'impulsion harmonique est de 25 fs (FWHM) et de 40 fs pour l'infrarouge. Ces durées sont légèrement plus grandes que les valeurs nominales, pour tenir compte du passage à travers un hublot pour l'infrarouge, et aussi de la fluctuation relative ("jitter") de plusieurs fs liées aux vibrations mécaniques, comme mentionné au chapitre 2. La montée du signal d'ions est bien reproduite par la marche

ainsi calculée.

Le contrôle du recouvrement spatio-temporel est réalisé en vérifiant l'existence de pics satellites dans la simple ionisation de l'hélium. Lorsque le délai est nul ($\tau \approx 0$), on pourrait s'attendre à observer un pic dû à des processus non séquentiels directs ou indirects de DPI, notés "nsd" et "nsi" sur le schéma 4.4b. En regardant la figure 4.5, un petit pic vers $\tau \approx 0$ n'est pas exclu mais la statistique n'est pas suffisante pour en être certain. Nous concluons donc que les routes séquentielles dominent largement le processus de DPI par $H_{19} + IR$. Cette conclusion est identique à celle de l'expérience de 2006 à Berlin pour les harmoniques H_{17} et H_{21} , mais ici elle porte sur les processus physiques eux mêmes et n'est pas liée aux conditions de l'expérience.

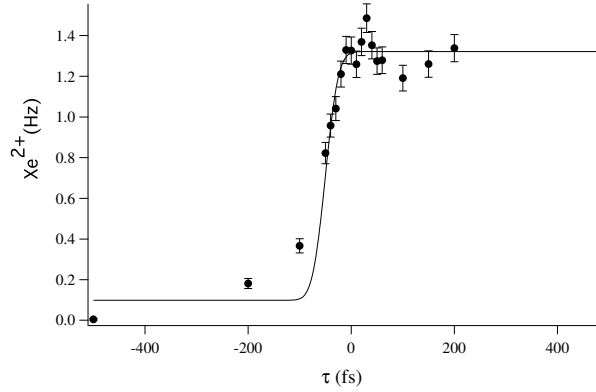


FIG. 4.5 – Taux de comptage des ions Xe^{2+} en fonction du délai entre l'impulsion XUV H_{19} et l'impulsion infrarouge.

4.2.2 Spectres à un électron et deux électrons

Comme nous l'avons mentionné au chapitre 2 nous utilisons pour analyser les électrons les événements de triple coïncidence Xe^{2+} -e-e (mode PePePiCo). L'analyse des impulsions des deux photoélectrons montre que la plupart des photoélectrons possèdent une énergie cinétique faible, inférieure à 3 eV avec un pic vers 0.4 eV (figure 4.6). Le schéma 4.4b et les données spectroscopiques (A. Kikas *et al.* 1996 [85]) montrent que de nombreuses routes séquentielles mettant en jeu 3 ou 4 photons et des états excités Xe^{+*} d'énergie inférieure à 29 eV sont possibles. Ces routes de DPI produisent des électrons de faible énergie cinétique, aussi bien dans la première ionisation que dans la deuxième. En regardant les énergies des états Xe^{+*} et les indications sur leurs intensités, bien que celles ci proviennent de mesures à énergie de photon plus élevée, il semble

qu'un bon candidat pour les structures observées dans la figure 4.6 pourrait être l'état $\text{Xe}^+ (5p)^4 {}^1D 5d ({}^2S_{\frac{1}{2}})$ à 28.88 eV. Il peut être ionisé en absorbant trois photons infrarouges. La première étape produit un photoélectron de 0.12 eV et la seconde, un photoélectron de 0.45 eV. Mais la densité des états $(5p)^4$ nl de l'ion Xe^+ est si élevée dans cette zone d'énergie qu'il est impossible d'être plus précis.

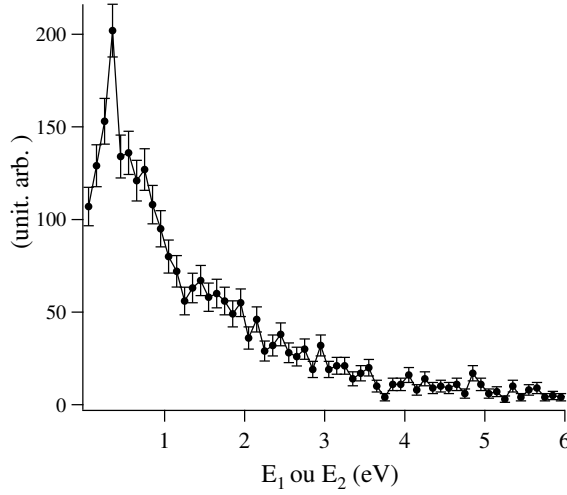


FIG. 4.6 – Énergie cinétique des photoélectrons de DPI par l'harmonique H_{19} et l'infrarouge.

Le diagramme de corrélation des énergies cinétiques des deux électrons en deux dimensions (figure 4.7) confirme que les photoélectrons possèdent majoritairement une énergie faible et aucune structure n'est clairement visible. Ce diagramme est bien symétrique par rapport à la diagonale, comme nous l'avons annoncé au chapitre 2.

Le spectre de l'énergie totale $E_{Tot} = E_1 + E_2$ (figure 4.8) est obtenu par intégration de la distribution d'énergie $f(E_1, E_2)$ des photoélectrons sur le diagramme en deux dimensions (figure 4.7), avec la condition $E_1 + E_2 = E_{Tot}$:

$$f_{Tot}(E_{Tot}) = \int_0^{E_{Tot}} dE_1 f(E_1, E_{Tot} - E_1) . \quad (4.3)$$

On remarque que malgré la faible statistique ce spectre semble montrer plusieurs pics. Les lignes pointillées indiquées aux énergies totales 0.6, 2.1, et 3.6 eV correspondent à l'absorption de l'harmonique H_{19} et de 3, 4 ou 5 photons infrarouges respectivement, et à l'état final ${}^3P_2^e$ (voir schéma 4.4.b). Les deux

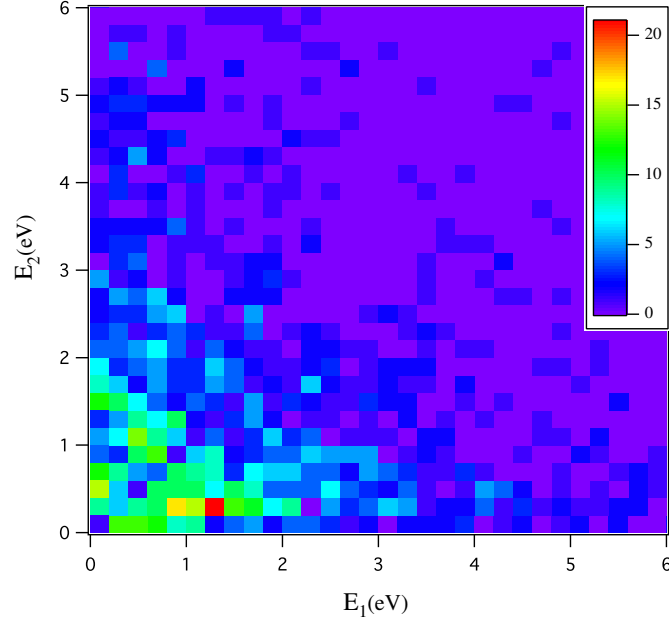


FIG. 4.7 – Diagramme de corrélation des énergies cinétiques des deux électrons produits par la DPI du xénon par l'harmonique H_{19} associée à l'infrarouge.

pics principaux observés sur le spectre sont légèrement en dessous de 2.1 et 3.6 eV, mais ce décalage peut s'expliquer par l'effet pondéromoteur (chapitre 3) aux éclairagements infrarouges utilisés. On peut donc dire que le spectre par rapport à l'énergie totale $E_1 + E_2$ de la figure 4.8 généralise pour la DPI à deux électrons les spectres d'ionisation au dessus du seuil (ATI) bien connus pour la simple ionisation. Il faut enfin remarquer que les routes séquentielles avec absorption de H_{19} et de 4 ou 5 photons infrarouges conduisant aux états excités $^3P_{0,1}^e$ et $^1D^e$ du Xe^{2+} peuvent aussi ajouter des structures au spectre, spécialement vers les énergies faibles.

4.2.3 Corrélations angulaires

Après l'analyse des diagrammes en énergie, nous pouvons étudier les corrélations angulaires des deux électrons émis. Soulignons que cette information est atteinte dans notre expérience grâce au système CIEL2, mais qu'elle ne l'était pas dans les mesures utilisant une bouteille magnétique comme celles qui ont été présentées plus haut (J. H. D. Eland *et al.* 2003 [82]). La statistique obtenue lors de nos expériences sur la source PLFA, dont la durée totale était typiquement de quelques heures, ne permet pas encore d'obtenir les sections efficaces complètement différentielles comme celles réalisées sur synchrotron (L. Avaldi

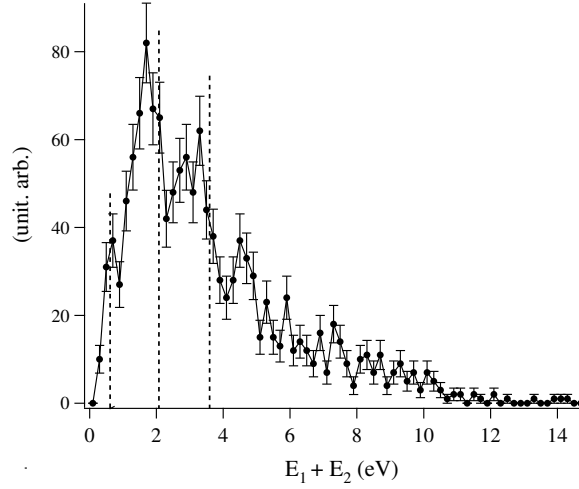


FIG. 4.8 – Distribution en énergie totale des photoélectrons de DPI par l’harmonique H_{19} et l’infrarouge.

et A. Huetz 2005 [42]) en fixant l’énergie et l’angle d’émission d’un des électrons et en traçant la distribution angulaire du second électron dans différents plans de l’espace. Néanmoins, pour chaque événement de DPI, l’angle mutuel θ_{12} entre les vecteurs impulsions des deux électrons peut être calculé. Comme nous l’avons décrit au chapitre 2 les histogrammes de cet angle mutuel, pondérés par le facteur $\frac{1}{\sin \theta_{12}}$ afin de supprimer l’effet d’angle solide, représentent les corrélations angulaires moyennées sur le partage de l’énergie entre les deux électrons et sur leur orientation dans l’espace à angle θ_{12} donné.

Les résultats sont montrés sur la figure 4.9 entre 0.5 et 3 radians. Les valeurs proches de 0 sont masquées par les événements où seul l’un des deux électrons a été détecté, comme nous l’avons indiqué au chapitre 2. D’autre part à l’approche de $\theta_{12} = \pi$ l’angle solide devient très petit et la statistique se dégrade beaucoup, comme le montrent les barres d’erreur portées sur la figure 4.9.

La distribution plutôt plate observée sur la figure 4.9 corrobore notre conclusion précédente, à savoir que la DPI séquentielle domine car dans ce processus les deux électrons ne sont pas corrélés par l’interaction coulombienne. Leur corrélation angulaire est dans ce cas la conséquence de la conservation du moment angulaire et est symétrique par rapport à $\theta_{12} = \frac{\pi}{2}$. Dans certains cas, cette corrélation angulaire est même complètement inexistante et la distribution est totalement plate.

Sur la figure 4.9, une faible contribution du chemin non séquentiel direct

"nsd", ne doit pas être complètement exclue car on observe que la distribution de θ_{12} augmente légèrement pour les plus grandes valeurs de θ_{12} , comme on peut s'y attendre dans le mécanisme "nsd" en raison de la répulsion coulombienne entre les deux électrons.

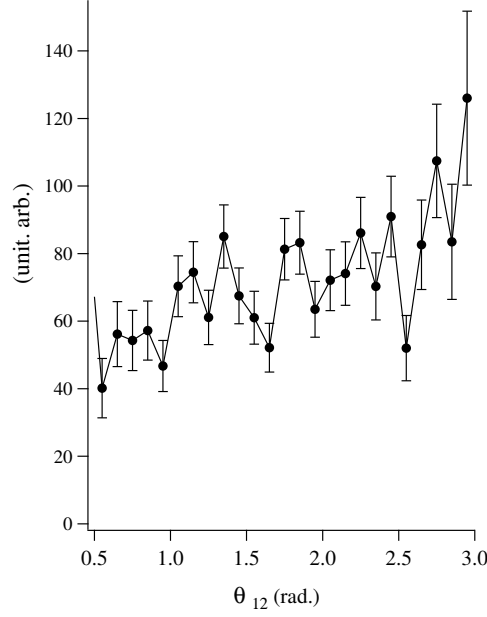


FIG. 4.9 – Corrélations angulaires entre les électrons lors de la DPI du xénon par l'harmonique H_{19} et l'infrarouge.

4.3 Résultats sur la double photoionisation du xénon par H_{25} seule

4.3.1 Spectre à un électron

L'harmonique H_{25} (38.17 eV) possède une énergie supérieure aux états $Xe^{2+}(5p)^4\ ^3P_2$, $^3P_{0,1}$, 1D , et 1S . Dès lors, toutes les routes de DPI directe vers tous ces états sont possibles. De plus, les routes de DPI indirecte via les états excités Xe^{+**} situés au dessus du seuil de double ionisation 3P_2 sont également possibles, comme dans l'expérience que nous avons présentée plus haut à une énergie de photon légèrement supérieure (J. H. D. Eland *et al.* 2003 [82]). Les chemins caractéristiques de type direct "d" ou indirect "i" sont présentés sur le schéma 4.4.a. La distribution des énergies cinétiques des photoélectrons est montrée sur la figure 4.10. Les pics situés dans la région en dessous de 1 eV peuvent être attribués aux états $Xe^+(5p)^4\ ^1D$ nd ($n = 8, 9$) et $Xe^+(5p)^4\ ^1S$ 7d

identifiés dans l'expérience utilisant une lampe à hélium. On remarque sur la figure 4.10 que la statistique et la résolution sont insuffisantes pour résoudre ces deux états. Il serait sans doute possible de les séparer en utilisant des champs électrique et magnétique plus faibles, ceux utilisés dans cette expérience étant adaptés à des énergies allant jusqu'à environ 10 eV. Le plateau s'étendant plus haut en énergie peut être attribué aux événements de DPI directe, et correspond à la somme des spectres présentés sur la figure 4.1.

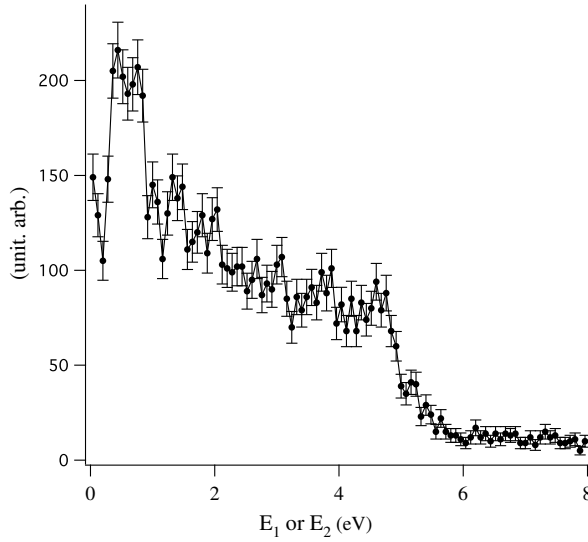


FIG. 4.10 – Énergie cinétique des photoélectrons de DPI par l'harmonique H₂₅ seule.

4.3.2 Spectre à 2 électrons

Le diagramme en deux dimensions par rapport aux énergies des deux électrons E_1 et E_2 est présenté sur la figure 4.11. La somme des énergies des deux électrons dépend de l'énergie du photon ainsi que de celle de l'état final de l'ion Xe^{2+} , selon :

$$E_{Tot} = E_1 + E_2 = h\nu - I_p^{2+} . \quad (4.4)$$

Ainsi, l'énergie totale est une constante pour chaque état final de l'ion Xe^{2+} ce qui correspond à une droite sur le diagramme en deux dimensions, que nous nommerons diagonale dans la suite car c'est une deuxième diagonale, perpendiculaire à la première diagonale (ou bissectrice) des axes x et y. Les diagonales situées aux énergies $E_{Tot} = 1.7, 3.5$, et 7.1 eV sont indiquées pour séparer l'état ^1D à $E_{Tot} = 2.98$ eV des états $^3\text{P}_{0,1,2}$ à $3.89, 4.09$ et 5.15 eV respectivement.

Pour un état final donné, la contribution provenant des routes directes engendre une densité continue le long de la diagonale. Les discontinuités dans la densité le long des diagonales proviennent des contributions indirectes via des états excités Xe^{+**} .

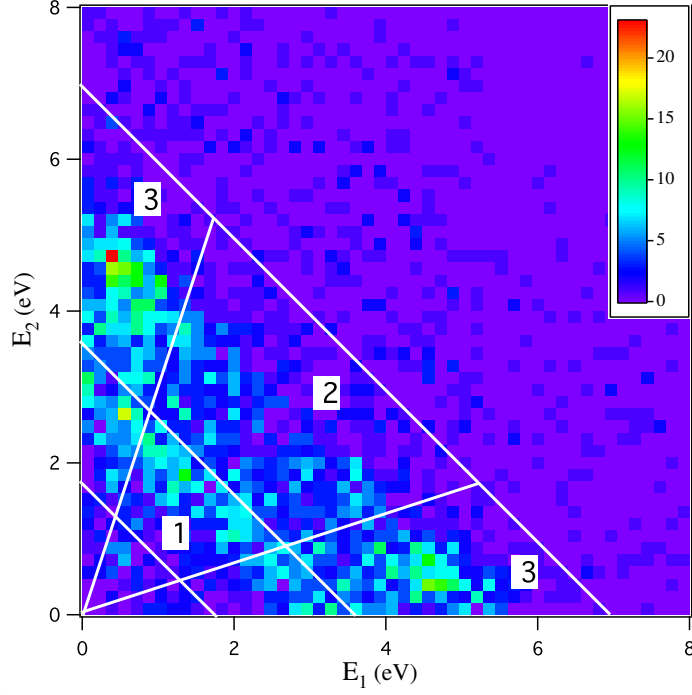


FIG. 4.11 – Diagramme de corrélation des énergies cinétiques des deux électrons produits par la DPI du xénon par l'harmonique H_{25} seule.

Le spectre d'énergie totale des deux électrons obtenu par intégration le long des diagonales montre clairement trois pics indiqués par trois flèches sur la figure 4.12. Ces trois pics correspondent bien aux principaux états finaux, qui sont partiellement résolus. Les lignes noires à $E_{Tot} = 1.7, 3.5$ et 7.1 eV délimitent les états D et P. L'état final S qui devrait apparaître à 0.65 eV n'est pas clairement observé, ce qui n'est pas surprenant puisque cet état est connu pour être moins peuplé par la DPI, ce que confirme l'expérience utilisant une lampe à hélium présentée plus haut (J. H. D. Eland *et al.* 2003 [82]). Un petit pic supplémentaire est observé vers 8.15 eV, c'est à dire environ 3 eV au dessus du pic 3P_2 . Il est très vraisemblable que ce pic soit créé par des traces de l'harmonique H_{27} , qui est très fortement atténuée par les miroirs multi-couches mais pas totalement supprimée.

Sur la figure 4.11, deux lignes supplémentaires, $E_2 = 0.3E_1$ et $E_1 = 0.3E_2$

ont été tracées. Elles nous permettent de diviser le diagramme en deux dimensions en trois zones principales. Des spots intenses apparaissent clairement et symétriquement dans la région 3. Ces spots sont créés par la DPI indirecte via les états excités $\text{Xe}^+(5p)^4 \ ^1D \text{ nd}$ ($n = 8, 9$) et $\text{Xe}^+(5p)^4 \ ^1S \ 7d$ conduisant à l'état final 3P_2 du Xe^{2+} que nous avons déjà identifiés dans le spectre à un électron (figure 4.10). Dans les régions 1 et 2 du diagramme en deux dimensions (figure 4.11) la densité le long des diagonales est plus continue ce qui est compatible avec un processus de DPI direct. Il est important de noter qu'entre la zone 3 et une région de même surface mais placée au centre ($E_1 = E_2 = 4$ eV) le rapport signal sur bruit S/B est évalué à 20. En effet cette expérience avec l'harmonique H_{25} est la toute première expérience utilisant une source XUV (harmonique ou XFEL-FLASH) autre que le rayonnement synchrotron, et où deux électrons sont mesurés en coïncidence et complètement analysés dans leur corrélation en énergie et en angle. Le bruit au centre du diagramme est très sensible à la pression résiduelle dans l'enceinte ultra-vide, qui était ici de 2×10^{-10} mbar. Les expériences sur XFEL-FLASH qui commencent à l'heure actuelle, et qui sont encore restreintes à la mesure des ions, nécessitent des vides encore plus poussés, dans le domaine 10^{-11} - 10^{-13} mbar.

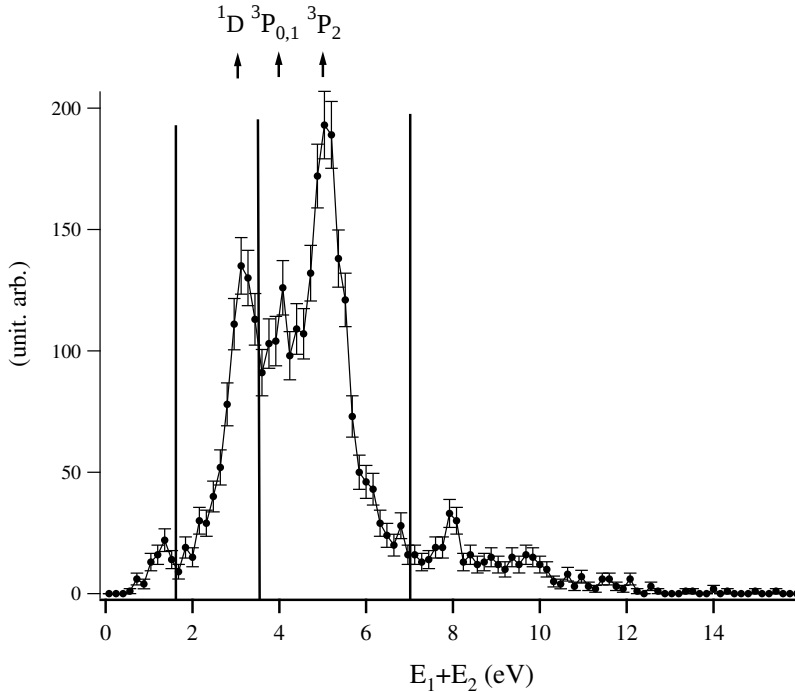


FIG. 4.12 – Energie totale des deux électrons pour la DPI par l'harmonique H_{25} seule. Les lignes verticales sont situées aux énergies 1.7, 3.5 et 7.1 eV, et les énergies totales des différents états finaux sont indiquées par des flèches.

4.3.3 Corrélations angulaires

Les résultats sont montrés sur la figure 4.13 entre 0.5 et 3 radians. Cette figure montre ainsi les distributions de probabilité de l'angle mutuel θ_{12} en unités arbitraires pour les différentes régions de la figure 4.11 correspondant aux différents processus de DPI.

Pour les régions 1 et 2, les faibles valeurs de θ_{12} semblent défavorisées, mais la probabilité augmente pour les grandes valeurs de θ_{12} . Cela peut être interprété comme étant le résultat de la répulsion coulombienne entre les électrons lors du mécanisme de DPI direct. En approchant la région $\theta_{12} = \pi$ qui correspond à une émission en directions opposées des deux photoélectrons, les régions 1 et 2 montrent un comportement différent. Pour l'état final D (région 1), la probabilité diminue rapidement vers zéro tandis qu'elle augmente pour l'état final P (région 2). Ces propriétés peuvent être interprétées grâce aux considérations de symétrie que nous avons introduites au chapitre 1, et qui sont détaillées dans la référence (A. Huetz *et al.* 1991 [59]).

Dans le processus de DPI directe :

$$h\nu_{XUV} + Xe \rightarrow Xe^{2+}(5p^4)^3P_{0,1,2}^e + e + e , \quad (4.5)$$

la parité de la paire d'électrons doit être impaire ($\pi = -1$) et son spin doit être $S = 1$. En notation spectroscopique et en tenant compte des règles de sommation des moments angulaires les électrons doivent se trouver dans des états $^3P^o$ et $^3D^o$. La règle générale pour l'émission anti-parallèle des deux électrons d'énergies égales est la suivante : lorsque $(-1)^S$, $(-1)^L$ et π ont le même signe (+ ou -) cette émission est autorisée, et l'on parle d'état "favorisé". Dans le cas contraire l'émission anti-parallèle est interdite, et l'on parle d'état "défavorisé". Dans le premier cas on s'attend à observer un maximum à $\theta_{12} = \pi$, et dans le deuxième cas un nœud. D'après ces règles l'état $^3P^o$ est favorisé, et l'état $^3D^o$ est défavorisé. Le premier dominant a priori le second, nous en déduisons que pour les états finaux $Xe^{2+}(5p^4)^3P_{0,1,2}^e$ un maximum devrait être observé. La région 2 du diagramme à deux dimensions s'étend au delà du partage égal de l'énergie, au voisinage de la bissectrice, et contient des partages inégaux limités par les droites $E_2 = 0.3E_1$ et $E_1 = 0.3E_2$. Mais il est connu que dans le processus de DPI directe, les amplitudes sont lentement variables avec le partage d'énergie, et par suite que les propriétés nodales s'étendent bien au delà du partage strictement égal. C'est bien ce que l'on constate sur la figure 4.13.b, qui indique un maximum au voisinage de $\theta_{12} = \pi$.

Dans le processus de DPI directe :

$$h\nu_{XUV} + Xe \rightarrow Xe^{2+}(5p^4)^1D_2^o + e + e \quad (4.6)$$

les mêmes règles conduisent aux états $^1P^o$, $^1D^o$ et $^1F^o$ pour la paire d'électrons, qui sont tous les trois défavorisés. Sur la figure 4.13.a qui correspond à la région 1 et à cet état final, on observe bien une forte décroissance au voisinage de $\theta_{12} = \pi$.

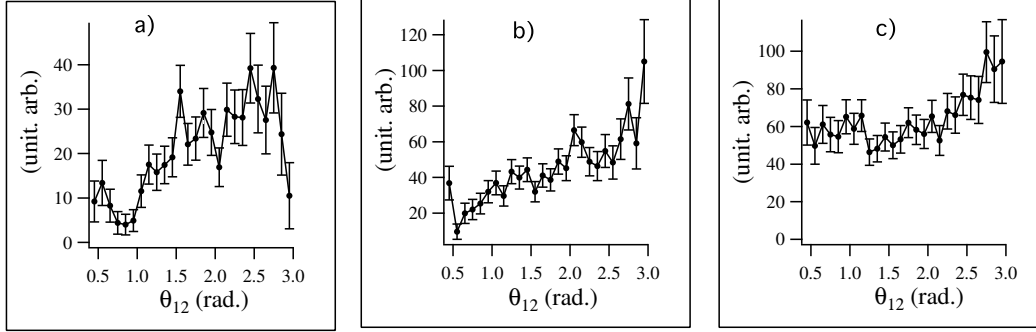


FIG. 4.13 – Corrélations angulaires par rapport à l'angle mutuel θ_{12} pour différents processus de DPI. a) région 1 : processus direct, état final 1D ; b) région 2 : processus direct, état final 3P ; c) région 3 : processus indirects, état final 3P .

La région 3 résulte principalement de la contribution de la DPI indirecte. Les deux photoélectrons issus de ce processus à deux étapes successives ne sont pas affectés par la répulsion coulombienne. Les propriétés nodales liées à la symétrie de l'état final peuvent être observées dans certaines conditions très spécifiques (P. Selles *et al.* 1998 [86]) et en particulier avec une très bonne résolution et un partage strictement égal de l'énergie, ce qui n'est pas réalisé ici. On peut donc s'attendre à ce que les électrons produits par la DPI indirecte ne soient pas corrélés et que l'histogramme en θ_{12} soit plat. Ceci est bien vérifié par la figure 4.13.c qui montre une grande probabilité pour les angles θ_{12} faibles. On note tout de même un léger maximum pour $\theta_{12} = \pi$ qui peut être expliqué par le fait que la région 3 contient aussi, sous la DPI indirecte, une contribution des événements de DPI directe dans laquelle la répulsion coulombienne favorise les valeurs élevées de θ_{12} .

Ces résultats sur la DPI du xénon par absorption d'un unique photon XUV apparaissent en bon accord avec les travaux précédents ainsi qu'avec les propriétés des différents mécanismes. Ils montrent que malgré le faible taux de répétition du laser (1 kHz), il est possible d'extraire les sections efficaces différentielles des données, et ainsi d'obtenir des informations sur les corrélations électroniques. Nous pouvons maintenant procéder à l'analyse des mesures de DPI du xénon par l'absorption combinée d'un photon H_{25} et d'un ou plusieurs photons infrarouges.

4.4 Résultats sur la double photoionisation du xénon par $H_{25} + IR$

4.4.1 Signal d'ions Xe^{2+}

Combiner l'harmonique H_{25} avec une impulsion infrarouge rend possible, d'une part toutes les contributions de DPI directe et indirecte à un photon XUV mises en évidence dans le paragraphe précédent, et d'autre part des chemins quantiques multi-photoniques (schéma 4.4.c). L'absorption de l'harmonique H_{25} et l'absorption ou l'émission simultanée d'un ou de plusieurs photons infrarouges peut conduire à des processus de DPI directe peuplant les états finaux de l'ion $Xe^{2+}(5p^4)$ (chemins "nsd"). Ce même processus peut aussi conduire à des chemins de DPI indirects ("nsi") via les états de Xe^+ notés Xe^{+**} et situés au dessus de l'état $(5p)^4\ ^3P_2$ du Xe^{2+} . Enfin les routes séquentielles passant par des états Xe^{+*} ("s") sont aussi possibles.

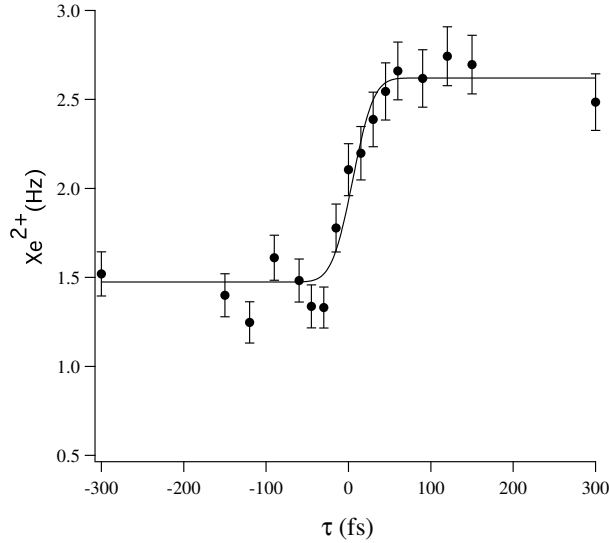


FIG. 4.14 – Taux de comptage des ions Xe^{2+} en fonction du délai entre l'impulsion XUV H_{25} et l'impulsion infrarouge.

La figure 4.14 montre la dépendance du taux de production d'ions Xe^{2+} en fonction du délai τ entre les impulsions XUV et infrarouge. Pour des délais négatifs, c'est à dire quand l'impulsion infrarouge arrive avant l'impulsion XUV, seules les routes mettant en jeu le photon XUV (schéma 4.4.a) contribuent au signal. Le taux de comptage des ions Xe^{2+} est alors de 1.5 Hz. A $\tau = 0$, le signal augmente et se stabilise à une valeur d'environ 2.5 Hz jusqu'à un délai d'au moins 300 fs. Comme sur la figure 4.5, on n'observe pas la présence de

pic significatif à $\tau = 0$, mais la situation est maintenant différente. En effet, la DPI à un photon H_{25} contribue au signal quelque soit le délai. Il est bien connu que pour la simple ionisation, lorsque l'éclairement infrarouge augmente l'intensité des pics satellites augmente, alors que celle des pics harmoniques diminue. En d'autres termes, le taux d'ionisation total reste constant, comme nous l'avons montré au chapitre 3. On peut généraliser cette idée au cas de la DPI, et conclure que les routes non séquentielles ne devraient pas donner naissance à une augmentation du taux de Xe^{2+} à $\tau = 0$. Seules les propriétés des deux électrons émis peuvent apporter des informations plus détaillées, et permettre d'identifier les mécanismes séquentiels et non séquentiels.

4.4.2 Spectre à 1 électron

La figure 4.15 montre la distribution de l'énergie cinétique des photoélectrons. Elle s'étend jusqu'à 10 eV. Une structure est visible à faible énergie, en dessous de 2 eV. Elle semble relativement similaire à celle visible sur la figure 4.10. La présence de ce pic est attendue puisque dans le cas présent, la DPI par l'harmonique H_{25} seule est toujours possible.

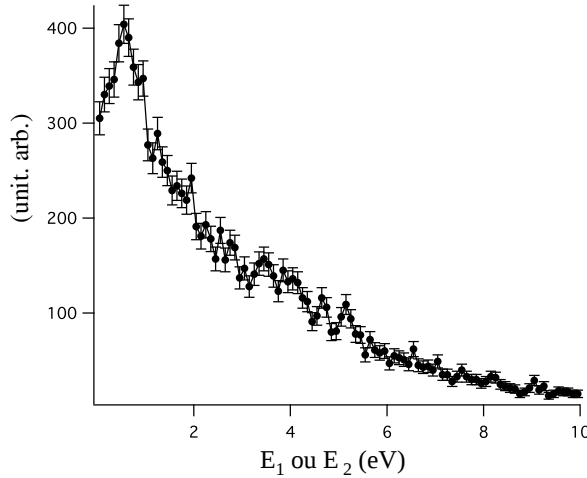


FIG. 4.15 – Energie cinétique des photoélectrons de DPI par l'harmonique H_{25} et l'infrarouge.

4.4.3 Spectre à 2 électrons

Des informations plus détaillées sur les mécanismes de DPI peuvent être obtenues en regardant le diagramme en deux dimensions de la distribution des énergies cinétiques des deux photoélectrons (figure 4.16) et la distribution

$f_{Tot}(E_{Tot})$ de l'énergie totale des deux électrons (figure 4.17). Les lignes aux énergies $E_{Tot} = 1.7, 3.5, 7.1$ et 10.1 eV ont été tracées sur les deux figures, ainsi que celles d'équations $E_2 = 0.3E_1$ et $E_1 = 0.3E_2$ sur le diagramme en deux dimensions. La figure 4.17 montre que des énergies supérieures à 7.1 eV deviennent accessibles pour les paires de photoélectrons, contrairement au cas où la DPI est produite uniquement par un photon XUV harmonique H_{25} (figure 4.12). On en déduit que des routes purement multi-photoniques, comme celles montrées sur le schéma 4.4.c, contribuent au signal entre 7.1 et 10.1 eV. Pour la clarté du schéma, seuls des exemples de routes non séquentielles avec un photon infrarouge et de routes séquentielles avec l'absorption de deux photons infrarouges ont été figurées. Des routes similaires avec l'implication d'un plus grand nombre de photons infrarouges sont possibles dans les deux cas.

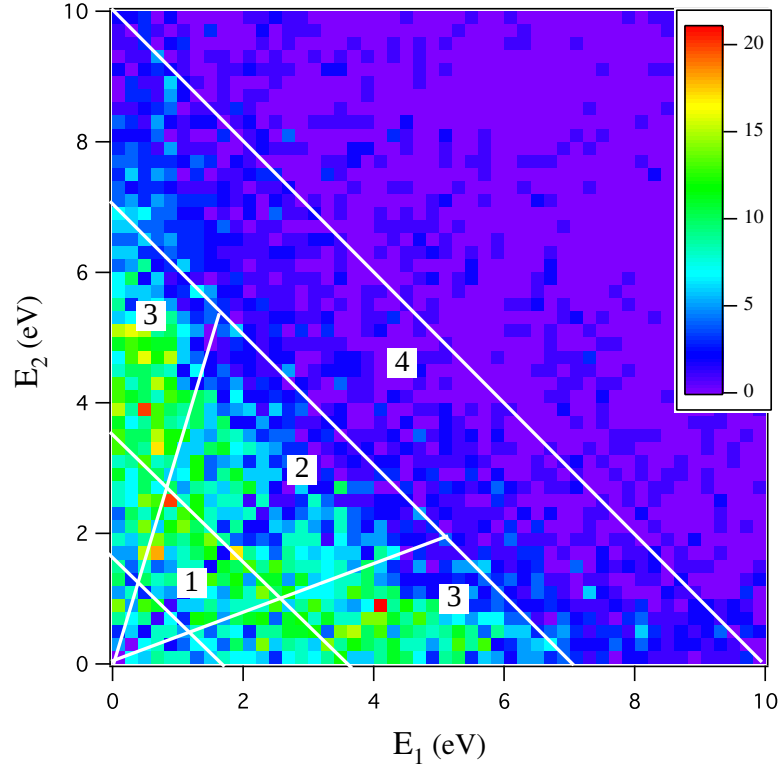


FIG. 4.16 – Diagramme de corrélation des énergies cinétiques des deux électrons produits par la DPI du xénon par l'harmonique H_{25} associée à l'infrarouge.

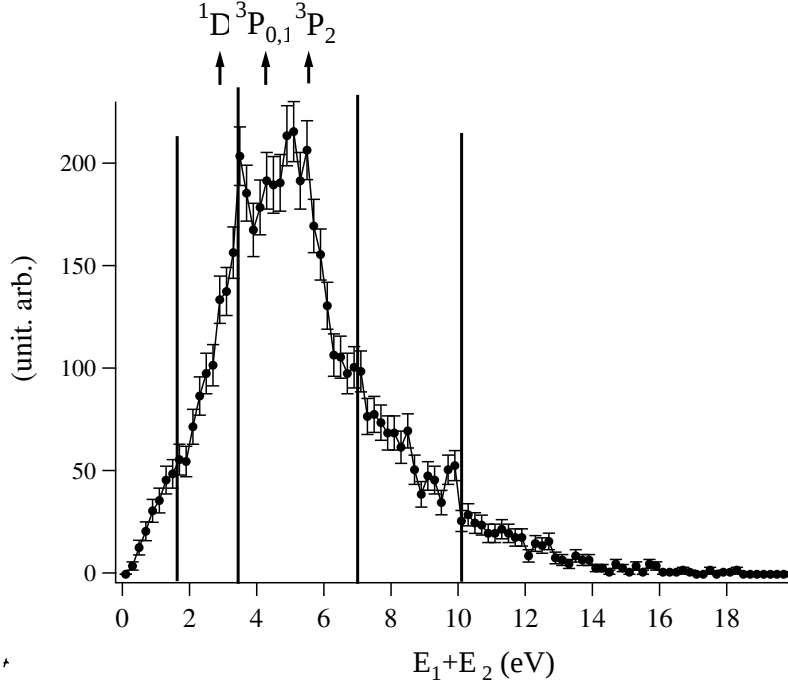


FIG. 4.17 – Énergie totale des deux électrons pour la DPI par l'harmonique H_{25} et l'infrarouge. Les lignes verticales sont situées aux énergies 1.7, 3.5, 7.1 et 10.1 eV. Les énergies correspondant aux processus de DPI par l'harmonique H_{25} seule et menant aux différents états finaux sont indiquées par des flèches.

En considérant tout d'abord la région d'énergie inférieure à 7.1 eV, les différentes contributions possibles à la DPI sont difficiles à identifier. Dans la région $3.1 < E_{Tot} < 7.1$ eV, les transitions vers l'état final P, liées à un photon XUV unique sont mélangées avec celles mettant en jeu l'absorption d'un photon XUV ainsi que d'un ou deux photons infrarouges produisant ensuite l'état D du Xe^{2+} . En regardant le diagramme en deux dimensions (figure 4.16), et comme pour le cas où seule l'impulsion XUV est présente (figure 4.11), le signal est toujours plus intense dans la région 3 que dans la région 2. Dans la région $1.7 < E_{Tot} < 3.5$ eV, les transitions vers l'état final D, liées à un photon XUV unique, sont mélangées avec celles mettant en jeu l'absorption d'un photon XUV ainsi que l'émission stimulée d'un ou deux photons infrarouges produisant ensuite l'état P du Xe^{2+} . Par conséquent, les régions 1, 2 et 3 ne peuvent plus être considérées comme "pures" (au sens d'un seul état final). Elles contiennent toujours les routes liées à l'impulsion XUV seule (schéma 4.4.a), pour une intensité totale de l'ordre de 1.5 Hz en taux de Xe^{2+} . Les routes introduites par les processus multi-photoniques (schéma 4.4.c) contribuent pour une intensité supplémentaire de 1 Hz dans le taux de Xe^{2+} .

La région 4 (figure 4.16), qui correspond aux valeurs $7.1 < E_{Tot} < 10.1$ eV est par contre "pure", au sens où elle n'est accessible que par l'absorption de l'harmonique H_{25} et d'au moins un photon infrarouge, avec DPI vers l'état final P. Dans cette région 4 la DPI à deux couleurs se trouve isolée. En dépit de la faible statistique elle semble être peuplée principalement dans les zones proches des axes E_1 et E_2 . Cela signifie que le partage asymétrique de l'énergie entre les deux électrons est fortement favorisé.

4.4.4 Corrélations angulaires

Les diagrammes de corrélation en θ_{12} correspondant aux régions 1 à 4 sont présentés sur la figure 4.18. Pour les régions 1 et 2, la probabilité de trouver des paires d'électrons avec un angle mutuel θ_{12} faible est légèrement plus forte que dans le cas où seule l'impulsion XUV est présente (figure 4.13). L'effet de répulsion coulombienne est toujours clairement observable puisque les deux diagrammes voient la probabilité augmenter lorsque θ_{12} augmente. Par contre pour des valeurs de $\theta_{12} \approx \pi$, les propriétés nodales semblent être effacées. Les comportements vers $\theta_{12} \approx \pi$ des paires d'électrons sont très similaires (figure 4.18.a et 4.18.b). Ces observations sont cohérentes avec la discussion précédente. Les régions 1 et 2 peuvent maintenant englober des routes de DPI séquentielles, produisant des électrons non corrélés angulairement. De plus, les propriétés de symétrie discutées dans le cas où seule l'impulsion XUV est présente ne sont plus valables lorsque un ou plusieurs photons infrarouges sont introduits dans le processus. En effet, l'addition d'un photon infrarouge à l'harmonique H_{25} dans les processus évoqués au paragraphe 1.5.3 :

$$h\nu_{XUV} + h\nu_{IR} + Xe \rightarrow Xe^{2+}(5p^4)^3P_{0,1,2}^e + e + e \quad (4.7)$$

$$h\nu_{XUV} + h\nu_{IR} + Xe \rightarrow Xe^{2+}(5p^4)^1D_2^e + e + e \quad (4.8)$$

change la parité de la paire d'électrons de impaire à paire ou de paire à impaire et change donc un nœud en anti-nœud, et vice versa. Le mélange de processus avec des propriétés nodales opposées détruit la dépendance typique en $\theta_{12} \approx \pi$.

Pour la région 3, la corrélation angulaire observée est presque identique à celle obtenue dans le cas où seul l'impulsion XUV est présent. De la même façon le diagramme en θ_{12} est plutôt plat et augmente légèrement lorsque θ_{12} devient grand (figure 4.18.c).

Pour la région 4, le diagramme de corrélation angulaire en θ_{12} semble complètement plat (figure 4.18.d), malgré la mauvaise statistique. Ceci est caractéristique d'un processus en deux étapes dans lequel les deux électrons sont complètement décorrélés. Concentrons nous maintenant sur cette région 4,

dans laquelle les photoélectrons de DPI proviennent uniquement de processus multi-photoniques mettant en jeu l'harmonique H_{25} et l'infrarouge. Le marquage de la distribution de l'énergie pour des partages très asymétriques (figure 4.16) et la distribution en θ_{12} (figure 4.18.d) très plate montrent que la DPI en deux étapes est le processus dominant.

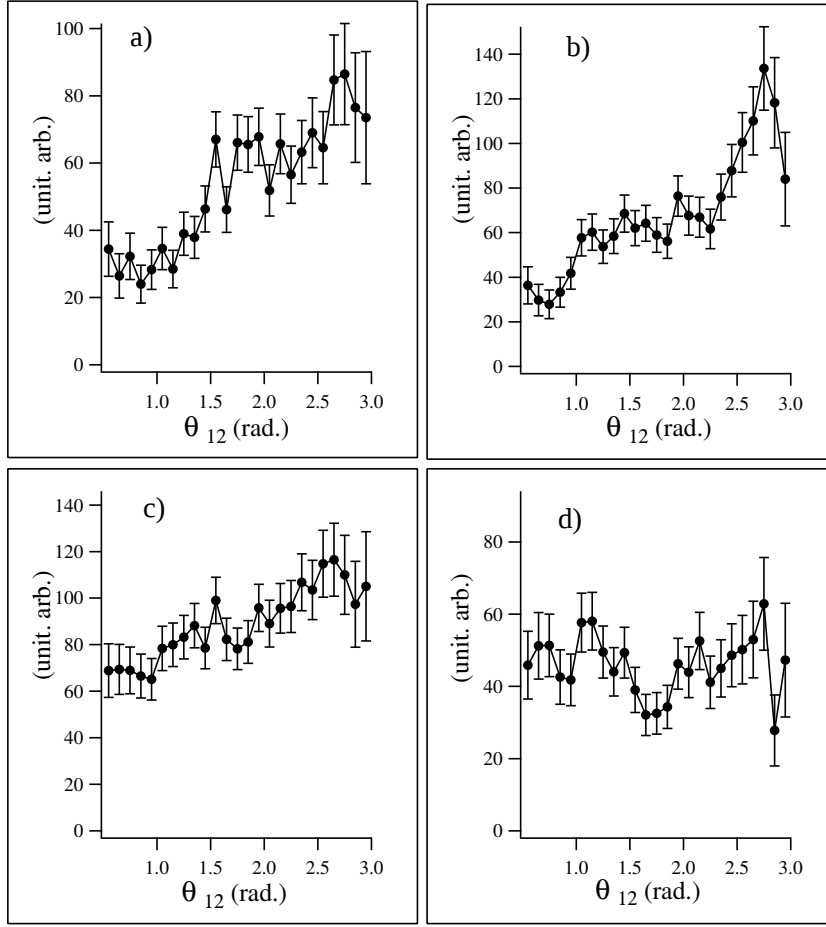


FIG. 4.18 – Corrélations angulaires par rapport à l'angle mutuel θ_{12} pour différents processus de DPI par l'harmonique H_{25} et l'infrarouge. Les cas a), b), c) et d) correspondent respectivement aux régions 1, 2, 3 et 4 de la figure 4.16.

Deux possibilités existent alors. La première est le processus non-séquentiel indirect "nsi" mettant en jeu les états Xe^{+**} qui s'autoionisent en $\text{Xe}^{2+}(5p)^4 {}^3\text{P}_2$. Ce scénario crée des photoélectrons de basse énergie lors de la seconde étape, qui n'ont pas de répulsion coulombienne avec les électrons de plus haute énergie créés lors de la première étape.

Le second scénario est le processus séquentiel "s" mettant en jeu les états

Xe^{+*} situés en dessous du seuil de double ionisation. Les données spectroscopiques (A. Kikas *et al.* 1996 [85]) montrent, comme nous l'avons déjà vu, qu'il existe un grand nombre d'états d'énergies voisines de 29 eV, proches en énergie de l'état $\text{Xe}^+(5p)^4\ ^1D\ (^2S_{1/2})$ situé à 28.88 eV, lequel est sans doute responsable du processus séquentiel de DPI par l'harmonique H_{19} et trois photons infrarouges (voir paragraphe 4.2.2). Ce même chemin est aussi possible avec l'harmonique H_{25} , mais bien sûr avec une énergie plus importante pour l'électron produit pendant la première étape. Dans ce second scénario, d'autres états de l'ion Xe^+ situés à des niveaux d'énergies plus élevées peuvent aussi être responsables de processus de DPI avec absorption de seulement deux photons infrarouges lors de la seconde étape, comme montré sur le schéma 4.4.c. Une résolution et une statistique meilleures seraient nécessaires pour analyser la région 4 en détail, et différencier entre les routes "nsi" et "s". Ceci est hors de portée de notre travail, mais nous arrivons néanmoins à la conclusion que cette région est dominée par des processus en deux étapes, "nsi" ou "s", produisant des électrons décorrélés angulairement.

4.5 Conclusion

Les résultats obtenus pour la DPI à deux couleurs par XUV + IR sont particulièrement difficiles à interpréter, malgré la puissante technique d'imagerie utilisée pour analyser les impulsions des deux photoélectrons. Néanmoins, nous avons montré que d'une part, les routes séquentielles de DPI dominent dans le cas $H_{19} + \text{IR}$ et que d'autre part, seuls deux processus sont compatibles avec nos mesures dans le cas $H_{25} + \text{IR}$. Par analogie avec les résultats obtenus pour $H_{19} + \text{IR}$, il est plus que probable que les processus de DPI séquentiels dominent aussi pour $H_{25} + \text{IR}$, les mêmes états Xe^{+*} de l'ion étant très probablement impliqués. On peut donc conclure de cette étude, d'une manière très générale, que les mécanismes de DPI à deux étapes dominent les processus de DPI non-séquentiels directs dans le cas du xénon.

CONCLUSION

Conclusions et perspectives

Simple ionisation

Dans la première partie de ce travail, nous avons présenté les premières mesures systématiques des distributions angulaires dans la photoionisation de l'hélium par des photons XUV harmoniques et infrarouges, avec des impulsions courtes. Les expériences menées au LOA et au SPAM se complètent tant par l'éclairement infrarouge que par la nature du rayonnement utilisé.

Les mesures obtenues au LOA ont été réalisées à un éclairement infrarouge de quelques $10^{11} \text{ W.cm}^{-2}$, en utilisant le peigne d'harmoniques complet, et avec un délai fixe entre les impulsions XUV et infrarouge. Les distributions angulaires des pics satellites apparaissent piquées dans la direction de polarisation, et les harmoniques habillées par l'infrarouge sont au contraire plus étalées.

Dans le cadre de l'approche perturbative au deuxième ordre, les pics satellites sont dominés par des transitions à deux photons, un photon harmonique et un photon infrarouge. Deux chemins, passant par les harmoniques $(2q-1)$ avec absorption d'un photon infrarouge, et $(2q+1)$ avec émission d'un photon infrarouge, interfèrent l'un avec l'autre. Le photoélectron est décrit principalement par les ondes partielles s et d, et l'onde d est responsable du maximum très marqué de la distribution angulaire. Les pics harmoniques résultent essentiellement de transitions à un photon XUV et à trois photons, un XUV et deux infrarouges. Dans l'approche perturbative au troisième ordre, cinq chemins quantiques et deux ondes partielles (p et f) contribuent à ces harmoniques habillées par l'infrarouge. La théorie "soft photon" permet de comprendre pourquoi l'interférence de ces deux ondes partielles conduit toujours à un étalement (ou élargissement) de la distribution angulaire par rapport à la direction de polarisation. Pour toutes les expériences effectuées au LOA les calculs TDSE sont en bon accord avec les mesures.

Pour les expériences réalisées au SPAM, l'éclairement infrarouge était de l'ordre de $10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$. Le spectre de photons XUV ne contenait que les harmoniques H_{15} , H_{17} et H_{19} , et le délai entre les impulsions XUV et infrarouge

CONCLUSION

était variable. L'expérience d'imagerie tri-dimensionnelle, mise en œuvre pour la première fois sur une source harmonique, nous a de nouveau permis, mais dans des conditions nouvelles, de mesurer les distributions angulaires des pics satellites et harmoniques. Dans le montage utilisé, conçu pour étudier aussi bien la simple que la double ionisation des atomes, l'infrarouge d'habillage suivait un chemin optique complètement séparé de celui des harmoniques. Le délai entre les deux faisceaux était affecté d'un "jitter", lié aux vibrations, de quelques femtosecondes. Nous avons donc obtenu des spectres et des distributions angulaires moyennées sur un temps comparable à la période du laser.

La confrontation de ces résultats expérimentaux avec les calculs théoriques de type TDSE montrent un excellent accord. De plus, les calculs font apparaître des propriétés remarquables des distributions angulaires des pics harmoniques. Celles-ci évoluent d'une manière spectaculaire sur une échelle de temps attoseconde, le signal dans la direction de la polarisation passant d'un maximum à un minimum lorsque le délai τ entre les impulsions harmoniques et infrarouge varie de 600 as environ. L'approximation du "soft photon" permet de comprendre ces effets en examinant les formes analytiques et leur dépendance au délai τ . Il apparaît également que, si τ est fixé, les distributions angulaires des pics harmoniques évoluent de manière spectaculaire avec un autre paramètre, la phase temporelle des harmoniques.

Perspectives pour la simple ionisation

La première perspective, qui découle directement de ce travail, est de réaliser un montage sans "jitter" afin de vérifier expérimentalement l'évolution des distributions angulaires en fonction du délai τ entre les impulsions XUV et infrarouge. Le montage utilisé dans ce travail avait pour but de mesurer aussi bien la simple que la double ionisation, et pour cette dernière il est nécessaire de pouvoir supprimer toutes les harmoniques basses, qui par simple ionisation produiraient un très grand nombre d'électrons de faible énergie cinétique masquant les électrons de la double ionisation. Cette contrainte impose de placer un filtre en aluminium sur le faisceau harmonique. Le faisceau infrarouge d'habillage ne peut donc suivre le même trajet, car il serait coupé par le filtre. Si cette contrainte est levée et si l'on construit un montage dédié à la simple ionisation, d'autres solutions deviennent possibles, comme celle utilisée par Aseyev *et al* (2003 [7]) où les faisceaux XUV et infrarouge sont concentriques, ou celle employée par Mairesse *et al* (2003 [5]). Dans un proche avenir il semble donc réalisable d'atteindre expérimentalement l'évolution attoseconde des distributions angulaires.

Une autre perspective qui découle directement de ce travail est d'étudier les distributions angulaires pour d'autres configurations du spectre d'harmoni-

niques : soit avec une harmonique unique, soit avec un peigne d'harmoniques très étendu, correspondant à un train de "bursts" attoseconde ultra-courts. Dans ce dernier cas, puisque les distributions angulaires dépendent, comme nous l'avons montré, des phases temporelles des harmoniques, l'influence des différents paramètres de la source sur celles ci pourrait être étudiée en observant directement les variations des distributions angulaires, tout en gardant le délai entre les impulsions XUV et infrarouge constant. Cette méthode constituerait un nouveau type de diagnostic, voire de mesure, des phases temporelles des harmoniques qui ne nécessiterait pas de balayer le délai τ , contrairement à la méthode RABITT.

Pour ce qui concerne la réponse des atomes aux champs combinés XUV et infrarouge, nous avons choisi dans ce travail d'étudier l'hélium, qui est le plus simple sur le plan théorique. Il serait intéressant de chercher à étendre les calculs TDSE à d'autres atomes, car sur le plan expérimental les mesures peuvent facilement être généralisées aux autres atomes, comme aux molécules. La comparaison entre résultats expérimentaux et théoriques permettrait de préciser la capacité du modèle TDSE à être étendu à des cibles plus complexes.

L'éclairement infrarouge de $10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$ provoque déjà, comme nous l'avons montré, des effets d'ordre élevé dans le traitement perturbatif, mais qui sont correctement pris en compte dans la méthode numérique TDSE. Il serait instructif de répéter les mesures et les calculs à plus haut éclairement infrarouge, afin de mieux connaître le domaine de validité de la méthode TDSE, dans sa forme actuelle. L'approche "soft photon" présentée dans ce travail doit, en principe, rester valable à plus haut éclairement, et guider l'interprétation des mesures ou des calculs numériques.

Enfin, l'éventualité de disposer d'impulsions plus courtes que celles utilisées dans ce travail garde un intérêt fondamental. De plus, dans le cas d'un "burst" attoseconde unique, la transformée de Fourier dans l'espace des fréquences est un spectre blanc, et l'ionisation d'un atome par une impulsion de ce type doit en principe produire un spectre de photoélectrons plat, sans structure. Les distributions angulaires des ces photoélectrons, en fonction de l'énergie cinétique, pourraient s'avérer particulièrement intéressantes à étudier.

Double ionisation

Les résultats obtenus dans ce travail montrent la faisabilité d'une expérience de double photoionisation à plusieurs photons, sur une source laser qui permet de combiner des photons harmoniques et infrarouges, à l'aide d'un système de

détection élaboré comme le spectromètre CIEL2, et à une fréquence de 1 kHz. L'atome choisi, le xénon, est le plus favorable pour les sources harmoniques existantes, en raison de son seuil de double ionisation très bas, mais il est en même temps le plus complexe. Dans l'expérience que nous avons présentée, tous les processus de DPI existent et sont en compétition. Les processus à deux étapes sont, très logiquement, majoritaires, ce que confirme l'analyse des deux électrons. A partir de cette première expérience de très nombreuses perspectives sont ouvertes, qui reposent essentiellement sur les progrès des sources de photons.

Perspectives pour la double ionisation à deux couleurs

Nous avons monté dans cette expérience de DPI que le taux de comptage de paires d'électrons analysés est typiquement de 0.2 Hz, conduisant à environ 4000 événements en 6 heures. Ce nombre est suffisant pour analyser des quantités différentielles, comme le diagramme de corrélation entre les énergies E_1 et E_2 des deux électrons, où les histogrammes de leur angle mutuel θ_{12} . Bien que ces deux quantités soient très instructives sur les corrélations qui existent entre les deux électrons, elles constituent encore des moyennes de la section efficace triplement différentielle :

$$\frac{d^3\sigma}{dE_1 d\Omega_1 d\Omega_2}$$

sur les angles pour ce qui concerne le diagramme E_1 , E_2 et sur l'orientation dans l'espace à angle mutuel fixe pour l'histogramme en θ_{12} . Dans la section triplement différentielle les deux vecteurs $\vec{k}_1$ et $\vec{k}_2$ des deux électrons sont fixés dans le repère du laboratoire. Cette quantité est atteinte couramment dans les expériences menées sur les sources synchrotron, où des nombres d'événements de 10^6 sont souvent enregistrés. Il serait donc très utile, pour progresser dans cette voie, d'optimiser tous les paramètres possibles.

Le premier paramètre qui peut sans aucun doute être amélioré dans un avenir proche est le flux des harmoniques. Dans les sources harmoniques utilisées pour ce travail, aussi bien au LOA qu'au SPAM, la longueur de la cellule de génération des harmoniques était de quelques mm. La génération d'harmoniques dans des volumes plus grands a été testée dans plusieurs laboratoires. Elle nécessite des énergies par impulsion lumineuse plus élevées (typiquement 100 mJ) mais donne tout naturellement des éclaircissements XUV plus élevés. La fréquence de ces sources de grand volume est actuellement limitée à quelques dizaines de Hz, mais des progrès rapides sont attendus dans ce domaine.

Un autre paramètre qui doit également pouvoir contribuer à la qualité statistique des résultats est la durée des mesures. Les sources synchrotron ont

un fonctionnement stable et continu sur plusieurs jours, ce qui n'est pas encore le cas des sources lasers, mais les progrès technologiques très rapides pourraient là encore changer cette situation dans un proche avenir. Enfin, les résultats sur la DPI présentés dans ce mémoire ont été obtenus sur un laser de fréquence 1 kHz. Dans ce domaine également, des fréquences plus élevées devraient être bientôt accessibles.

Perspectives pour la double ionisation à deux photons XUV

Le mécanisme séquentiel que nous avons identifié dans la DPI du xénon par des photons harmoniques et infrarouge existe très certainement pour les autres gaz rares. Pour ce qui concerne le xénon, et compte tenu de la statistique des mesures, ce processus masque le processus non séquentiel, qui serait pourtant particulièrement intéressant à étudier. Il est possible que pour d'autres gaz rares le rapport "ns/s" soit plus favorable, mais cela n'est pas certain. Le cas de l'argon, dont le potentiel de double ionisation est à 43.37 eV, soit 10 eV environ au dessus de celui du xénon, doit pouvoir être étudié avec le même montage. Si l'on dispose d'une bonne statistique, il n'est pas exclus de pouvoir séparer et étudier le mécanisme non séquentiel dans la DPI à deux couleurs, XUV et infrarouge.

Néanmoins la voie de la DPI par deux photons XUV est peut être la plus prometteuse. En effet, comme nous l'avons déjà discuté au chapitre 1, avec des photons exclusivement dans l'XUV, la DPI séquentielle peut être complètement éliminée en choisissant convenablement les énergies des deux photons. Avec deux photons XUV, si la somme $h\nu + h\nu'$ de leurs énergies est supérieure au potentiel I^{2+} d'un atome A, la DPI est possible. Si de plus ces deux énergies sont toutes les deux inférieures à l'énergie du premier état excité de l'ion A^+ , et inférieures à la différence $I^{2+} - I^+$ des potentiels de double et de simple ionisation, alors le processus séquentiel est interdit énergétiquement. Comme nous l'avons exposé au chapitre 1 ces conditions sont remplies dans l'hélium, pour deux photons XUV de même couleur, lorsque leur énergie commune est comprise entre 39.5 et 54.4 eV. Mais ces conditions peuvent également être satisfaites pour d'autres atomes, comme pour l'argon et les photons harmoniques H13 et H15 [3].

Dans les premières expériences de DPI à deux photons XUV réalisées sur des sources harmoniques [18, 3] et FLASH [14, 15, 16, 17] les taux de comptage étaient très faibles, et seul le signal d'ions doublement chargés a été mesuré. L'impulsion de ces ions a été obtenue dans le cas de l'expérience sur FLASH la plus récente [17], donnant en principe la somme des impulsions des deux électrons. Mais pour le cas étudié, celui du néon, le mélange des états finaux

singlet et triplet des ions doublement chargés ne permet de tirer aucune conclusion valable sur les corrélations entre les deux électrons. Il est donc nécessaire de mesurer les électrons produits, en coïncidence, par des méthodes similaires à celles que nous avons présentées dans ce mémoire. Ce type d'expériences deviendra sans doute possible, à plus ou moins brève échéance, grâce à des sources XUV très intenses de type harmoniques, XFEL ou Laser X. Mais les taux de comptage et la statistique seront des paramètres critiques pour permettre l'analyse des corrélations entre les deux électrons.

Impulsions ultra-courtes

De même que pour l'ionisation simple, les impulsions lumineuses ultra-courtes présentent un intérêt majeur pour la DPI. Plusieurs schémas de DPI à deux photons XUV ont d'ores et déjà été proposés par des théoriciens [54, 58]. Comme nous l'avons mentionné au chapitre 1, il est possible de définir un "temps de corrélation", qui est inverse de l'énergie de corrélation qui règne entre les électrons d'un atome dans son état initial. Si la durée des impulsions lumineuses descend, dans le domaine attoseconde, à des valeurs qui ne sont plus infiniment grandes devant ces temps de corrélation, ces travaux théoriques prédisent que les caractéristiques des deux électrons émis, et en particulier leur diagrammes de corrélation des énergies E_1 , E_2 tels que nous les avons présentés dans ce travail, doivent évoluer d'une manière spectaculaire en fonction de la durée exacte des impulsions. La DPI par ce type d'impulsions permettrait donc d'étudier très directement la dynamique des corrélations électroniques, ou encore la dynamique des effets multi-électroniques. Ces perspectives sont encore lointaines à l'heure actuelle, mais elles sont particulièrement prometteuses.

Bibliographie

- [1] F. Lindner, W. Stremme, M. G. Schätzel, F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, R. Hartmann, and L. Strüder. High-order harmonic generation at a repetition rate of 100 kHz. *Phys. Rev. A*, **68** :013814, (2003).
- [2] C. Gohle, T. Udem, M. Herrmann, J. Rauschenberger, R. Holzwarth, H. A. Schuessler, F. Krausz, and T. W. Hänsch. A frequency comb in the extreme ultraviolet. *Nature*, **436** :234–237, (2005).
- [3] E. P. Benis, D. Charalambidis, T. N. Kitsopoulos, G. D. Tsakiris, and P. Tzallas. Two-photon double ionization of rare gases by a superposition of harmonics. *Physical Review A*, **74** :051402, (2006).
- [4] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Auge, Ph. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, **292** :1689–1692, (2001).
- [5] Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovacev, R. Taieb, B. Carre, H. G. Muller, P. Agostini, and P. Salieres. Attosecond synchronization of high-harmonic soft X-rays. *Science*, **302** :1540–1543, (2003).
- [6] H.G. Muller. Reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transitions. *Appl. Phys. B*, **74** :S17–S21, (2002).
- [7] S. A. Aseyev, Y. Ni, L. J. Frasinski, H. G. Muller, and M. J. J. Vrakking. Attosecond angle-resolved photoelectron spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, **91** :223902, (2003).
- [8] A. Maquet and R. Taieb. Two-colour ir+xuv spectroscopies : the "soft-photon approximation". *J. Mod. Opt.*, **54** :1847–1857, (2007).
- [9] O. Schwarzkopf, B. Krässig, J. Elmiger, and V. Schmidt. Energy- and angle-resolved double photoionization in helium. *Phys. Rev. Lett.*, **70** :3008–3011, (1993).
- [10] Th. Weber, A. Czasch, O. Jagutzki, A. Müller, V. Mergel, A. Kheifets, J. Feagin, E. Rotenberg, G. Meigs, M. H. Prior, S. Daveau, A. L. Landers, C. L. Cocke, T. Osipov, H. Schmidt-Böcking, and R. Dörner. Fully differential cross sections for photo-double-ionization of D_2 . *Phys. Rev. Lett.*, **92** :163001, (2004).

- [11] M. Gisselbrecht, M. Lavollee, A. Huetz, P. Bolognesi, L. Avaldi, D. P. Seecombe, and T. J. Reddish. Photodouble ionization dynamics for fixed-in-space H_2 . *Physical Review Letters*, **96** :153002, (2006).
- [12] W. Vanroose, F. Martin, T. N. Rescigno, and C. W. McCurdy. Complete photo-induced breakup of the H_2 molecule as a probe of molecular electron correlation. *Science*, **310** :1787–1789, (2005).
- [13] J. Colgan, M. S. Pindzola, and F. Robicheaux. Triple differential cross sections for the double photoionization of H_2 . *Physical Review Letters*, **98** :153001, (2007).
- [14] T. Laarmann, A. R. B. de Castro, P. Gurtler, W. Laasch, J. Schulz, H. Wabnitz, and T. Moller. Photoionization of helium atoms irradiated with intense vacuum ultraviolet free-electron laser light. Part 1. experimental study of multiphoton and single-photon processes. *Physical Review A*, **72** :023409, (2005).
- [15] H. Wabnitz, A. R. B. de Castro, P. Gurtler, T. Laarmann, W. Laasch, J. Schulz, and T. Moller. Multiple ionization of rare gas atoms irradiated with intense VUV radiation. *Physical Review Letters*, **94** :023001, (2005).
- [16] A. A. Sorokin, M. Wellhofer, S. V. Bobashev, K. Tiedtke, and M. Richter. X-ray-laser interaction with matter and the role of multiphoton ionization : Free-electron-laser studies on neon and helium. *Physical Review A*, **75** :051402, (2007).
- [17] R. Moshhammer, Y. H. Jiang, L. Foucar, A. Rudenko, Th. Ergler, C. D. Schroter, S. Ludemann, K. Zrost, D. Fischer, J. Titze, T. Jahnke, M. Schoffler, T. Weber, R. Dorn, T. J. M. Zouros, A. Dorn, T. Ferger, K. U. Kuhnel, S. Dusterer, R. Treusch, P. Radcliffe, E. Plonjes, and J. Ullrich. Few-photon multiple ionization of Ne and Ar by strong free-electron-laser pulses. *Physical Review Letters*, **98** :203001, (2007).
- [18] Yasuo Nabekawa, Hirokazu Hasegawa, Eiji J. Takahashi, and Katsumi Midorikawa. Production of doubly charged helium ions by two-photon absorption of an intense sub-10-fs soft X-ray pulse at 42 eV photon energy. *Physical Review Letters*, **94** :043001, (2005).
- [19] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, Anne L’Huillier, and P. B. Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys. Rev. A*, **49** :2117–2132, (1994).
- [20] P. M. Paul. *Ionisation multiphotonique XUV-IR : Etudes et Applications à la mesure d’impulsions XUV Femto et Atto secondes*. Thèse de doctorat, SPAM, CEA - Saclay, (2001).
- [21] Y. Mairesse. *Génération et caractérisation d’impulsions attosecondes*. Thèse de doctorat, SPAM, CEA - Saclay, (2005).
- [22] W. Boutu. *Dynamique de la génération d’harmoniques dans les atomes et les molécules*. Thèse de doctorat, SPAM, CEA - Saclay, (2007).

-
- [23] P. B. Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.*, **71** :1994–1997, (1993).
- [24] A. L’Huillier, M. Lewenstein, P. Salières, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, J. Larsson, and C. G. Wahlström. High-order harmonic-generation cutoff. *Phys. Rev. A*, **48** :R3433–R3436, (1993).
- [25] L. Le Déroff. *Etudes des propriétés de cohérence de la génération d’harmoniques d’ordre élevé : qualité du faisceau cohérence spatiale et temporelle et applications*. Thèse de doctorat, Université Paris VI, (1999).
- [26] Ph. Antoine, A. L’Huillier, and M. Lewenstein. Attosecond pulse trains using high order harmonics. *Physical Review Letters*, **77** :1234–1237, (1996).
- [27] A. Baltuska, Th. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, Ch. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hansch, and F. Krausz. Attosecond control of electronic processes by intense light fields. *Nature*, **421** :611–615, (2003).
- [28] P. Agostini and L. F. DiMauro. The physics of attosecond light pulses. *Reports on Progress in Physics*, **67** :813–855, (2004).
- [29] F. Quere, Y. Mairesse, and J. Itatani. Temporal characterization of attosecond xuv fields. *Journal of Modern Optics (UK)*, **52** :339–60, (2005).
- [30] P. Villoresi, C. Altucci, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. altucci, R. Velotta, S. Stragira, D. De Silvestri, and M. Nisoli. Isolated single-cycle attosecond pulses. *Science*, **314** :443–446, (2006).
- [31] E. Gustafsson, M. Swoboda T. Ruchon, T. Remetter, E. Pourtal, R. Lopez-Martens, Ph. Balcou, and A. L’Huillier. Broadband attosecond pulse shaping. *Optics Letters*, **32** :1353, (2007).
- [32] J. Cooper and R. N. Zare. *Lectures in Theoretical Physics*. Gordon and Breach, New-York, (1969).
- [33] V. Veniard, R. Taieb, and A. Maquet. Phase dependance of (N+1)-color (N>1) ir-uv photoionization of atoms with higher harmonics. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, **54** :721–728, (1996).
- [34] R. Taieb, V. Veniard, and A. Maquet. Two-color coherent control of atomic multiphoton ionization with high-order harmonics : time-dependent Schrodinger equation treatment. *J. Opt. Soc. Am. B*, **13** :363, (1996).
- [35] K. C. Kulander, K. J. Schafer, and J. L. Krause. *Atoms in Strong Fields*. Adv. Atom. Molec. Opt. Phys. Suppl., acad. press, san diego edition, (1992).
- [36] K. J. Schafer. The energy analysis of time-dependent wave function. *Comp. Phys. Comm.*, **63** :427, (1991).

- [37] J. J. Sakurai. *Advanced Quantum Mechanics*. Addison Wesley Publishing Company, (1967).
- [38] V. Vénier, R. Taieb, and A. Maquet. Two-color multiphoton ionization of atoms using high-order harmonic radiation. *Physical Review Letters*, **74** :4161–4164, (1995).
- [39] N. M. Kroll and K. M. Watson. Charged-particle scattering in the presence of a strong electromagnetic wave. *Phys. Rev. A*, **8** :804–809, (1973).
- [40] F. E. Low. Bremsstrahlung of very low-energy quanta in elementary particle collisions. *Phys. Rev.*, **110** :974–977, (1958).
- [41] J. S. Briggs and V. Schmidt. Differential cross sections for photo-double-ionization of the helium atom. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, **33** :R1–R48, (2000).
- [42] L. Avaldi and A. Huetz. Photodouble ionization and the dynamics of electron pairs in the continuum. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, **38** :S861–S891, (2005).
- [43] L. Malegat, P. Selles, and A. Kazansky. Double photoionization of helium : The hyperspherical *R*-matrix method with semiclassical outgoing waves. *Phys. Rev. A*, **60** :3667–3676, (1999).
- [44] L. Malegat, P. Selles, and A. K. Kazansky. Absolute differential cross sections for photo double ionization of helium from the ab initio hyperspherical *R*-matrix method with semiclassical outgoing waves. *Phys. Rev. Lett.*, **85** :4450–4453, (2000).
- [45] P. Selles, L. Malegat, and A. K. Kazansky. Ab initio calculation of the whole set of He double-photoionization cross sections. *Phys. Rev. A*, **65** :032711, (2002).
- [46] P. Selles, L. Malegat, A. Huetz, A. K. Kazansky, S. A. Collins, D. P. Secombe, and T. J. Reddish. Convergence of the method of the hyperspherical *R*-matrix with semiclassical outgoing waves. *Physical Review A*, **69** :052707, (2004).
- [47] A. K. Kazansky, P. Selles, and L. Malegat. Hyperspherical time-dependent method with semiclassical outgoing waves for double photoionization of helium. *Phys. Rev. A*, **68** :052701, (2003).
- [48] C. Bouri, P. Selles, L. Malegat, and M. G. Kwato Njock. Dynamics of the helium atom close to the full fragmentation threshold : Double ionization. *Physical Review A*, **73** :022724, (2006).
- [49] C. W. McCurdy, M. Baertschy, and T. N. Rescigno. Solving the three-body coulomb breakup problem using exterior complex scaling. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, **37** :R137–R187, (2004).

- [50] C. William McCurdy and Fernando Martin. Implementation of exterior complex scaling in B-splines to solve atomic and molecular collision problems. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, **37** :917–936, (2004).
- [51] C. W. McCurdy, D. A. Horner, T. N. Rescigno, and F. Martín. Theoretical treatment of double photoionization of helium using a *B*-spline implementation of exterior complex scaling. *Phys. Rev. A*, **69** :032707, (2004).
- [52] M. S. Pindzola and F. Robicheaux. Time-dependent close-coupling calculations of correlated photoionization processes in helium. *Phys. Rev. A*, **57** :318–324, (1998).
- [53] J. Colgan and M. S. Pindzola. Core-excited resonance enhancement in the two-photon complete fragmentation of helium. *Phys. Rev. Lett.*, **88** :173002, (2002).
- [54] S. Laulan and H. Bachau. Correlation effects in two-photon single and double ionization of helium. *Phys. Rev. A*, **68** :013409, (2003).
- [55] S. X. Hu, J. Colgan, and L. A. Collins. Triple-differential cross-sections for two-photon double ionization of He near threshold. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, **38** :L35–L45, (2005).
- [56] D. A. Horner, F. Morales, T. N. Rescigno, F. Martin, and C. W. McCurdy. Two-photon double ionization of helium above and below the threshold for sequential ionization. *Physical Review A*, **76** :030701, (2007).
- [57] E. Fomouuo, Ph. Antoine, B. Piraux, L. Malegat, H. Bachau, and R. Shakeshaft. Evidence for highly correlated electron dynamics in two-photon double ionization of helium. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, **41** :051001, (2008).
- [58] T. Morishita, S. Watanabe, and C. D. Lin. Attosecond light pulses for probing two-electron dynamics of helium in the time domain. *Physical Review Letters*, **98** :083003, (2007).
- [59] A. Huetz, P. Selles, D. Waymel, and J. Mazeau. Wannier theory for double photoionization of noble-gases. *Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics*, **24** :1917–1933, (1991).
- [60] J. Mazeau, P. Lablanquie, P. Selles, L. Malegat, and A. Huetz. Symmetry-favoured double photoionization of argon. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, **30** :L293–L299, (1997).
- [61] E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mével, Ch. Dorrer, C. Le Blanc, F. Salin, and P. Agostini. Optimizing high harmonic generation in absorbing gases : Model and experiment. *Phys. Rev. Lett.*, **82** :1668–1671, (1999).

- [62] S. Kazamias, F. Weihe, D. Douillet, C. Valentin, T. Planchon, S. Sebban, G. Grillon, F. Augé, D. Hulin, and Ph. Balcou. High order harmonic generation optimization with an apertured laser beam. *Eur. Phys. J. D*, **21** :353–359, (2002).
- [63] S. Kazamias, D. Douillet, F. Weihe, C. Valentin, A. Rousse, S. Sebban, G. Grillon, F. Augé, D. Hulin, and Ph. Balcou. Global optimization of high harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.*, **90** :193901, (2003).
- [64] S. Kazamias, D. Douillet, C. Valentin, Th. Lefrou, G. Grillon, G. Mullot, F. Augé, P. Mercère, Ph. Zeitoun, and Ph. Balcou. Optimization of the focused flux of high harmonics. *Eur. Phys. J. D*, **26** :47–50, (2003).
- [65] M. Lavollée. A new detector for measuring three-dimensional momenta of charged particles in coincidence. *Review-of-Scientific-Instruments*, **70** :2968–2974, (1999).
- [66] A. Huetz and J. Mazeau. Double photoionization of Helium down to 100 meV above threshold. *Physical Review Letters*, **85** :530–533, (2000).
- [67] M. Gisselbrecht, A. Huetz, M. Lavollee, T.J. Reddish, and D.P. Seccombe. Optimization of momentum imaging systems using electric and magnetic fields. *Review-of-Scientific-Instruments*, **76** :013105, (2005).
- [68] W. C. Wiley and I. H. McLaren. Time-of-flight mass spectrometer with improved resolution. *Review of Scientific Instruments*, **26** :1150–1157, (1955).
- [69] R. Campargue. *Etude par simple et double extraction de jets supersoniques purs ou dopés, des effets intervenant dans la formation d'un faisceau moléculaire de haute intensité et d'énergie comprise entre 0 et 25 eV*. Thèse de doctorat, Faculté des sciences de Paris, (1979).
- [70] R. Campargue. Progress in overexpanded supersonic jets and skimmerd molecular beams in free-jet zone of silence. *Journal of physical Chemistry*, **88** :4466–4474, (1984).
- [71] David R. Miller. *Atomic and molecular Beam Methods*. Free Jet Sources, (1988).
- [72] S. Bouneau, P. Cohen, S. Della Negra, D. Jacquet, Y. Le Beyec, J. Le Bris, M. Pautrat, and R. Sellem. 256-anode channel plate device for simultaneous ion detection in time of flight measurements. *Review of Scientific Instruments*, **74** :57–67, (2003).
- [73] P. Kruit and F. H. Read. Magnetic field paralleliser for 2π ; electron-spectrometer and electron-image magnifier. *Journal of Physics E : Scientific Instruments*, **16** :313–324, (1983).
- [74] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker, V. Yakovlev, A. Scrinzi, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, and F. Krausz. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. *Nature*, **419** :803–807, (2002).

-
- [75] M. J. J. Vrakking. An iterative procedure for the inversion of two-dimensional ion/photoelectron imaging experiments. *Review of Scientific Instruments*, **72** :4084–4089, (2001).
- [76] K. Varju, Y. Mairesse, B. Carré, M. B. Gaarde, P. Johnsson, S. Kazamias, R. Lopez-Martens, J. Mauritsson, K.J. Schafer, P. Balcou, A. L’Huillier, and P. Salières. Frequency chirp oh harmonic and attosecond pulses. *Journal of Modern Optics*, **52** :379–394, (2005).
- [77] T. Remetter, P. Johnsson, J. Mauritsson, K. Varjú, Y. Ni, F. Lépine, E. Gustafsson, M. Kling, J. Khan, R. López-Martens, K. J. Schafer, M. J. J. Vrakking, and A. L’Huillier¹. Attosecond electron wave packet interferometry. *Nature*, **2** :323–326, (2006).
- [78] J. Mauritsson, P. Johnsson, E. Mansten, M. Swoboda, T. Ruchon, A. L’Huillier, and K. J. Schafer. Coherent electron scattering captured by an attosecond quantum stroboscope. *Physical Review Letters*, **100** :073003, (2008).
- [79] S. L. Chin and P. Lambropoulos. *Multiphoton Ionization of Atoms*. New York : Academic Press, (1984).
- [80] J. A. R. Samson and W. C. Stolte. Precision measurements of the total photoionization cross-sections of He, Ne, Ar, Kr, and Xe. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, **123** :265–276, (2002).
- [81] V. Schmidt. *Electrons Spectrometry of Atoms using Synchrotron Radiation*. Cambridge University Press, (1997).
- [82] J. H. D. Eland, O. Vieuxmaire, T. Kinugawa, P. Lablanquie, R. I. Hall, and F. Penent. Complete two-electron spectra in double photoionization : The rare gases Ar, Kr, and Xe. *Physical Review Letters*, **90** :053003, (2003).
- [83] M. Böttcher, H. Rottke, N. Zhavoronkov, W. Sandner, P. Agostini, M. Gisselbrecht, and A. Huetz. Reaction microscope study of near-threshold photo double ionization of xenon using high harmonics. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, **38** :L389–L396, (2005).
- [84] M. Böttcher, H. Rottke, N. Zhavoronkov, W. Sandner, P. Agostini, M. Gisselbrecht, and A. Huetz. Routes to multiphoton double ionization in combined extreme ultraviolet and infrared laser pulses. *Physical Review A*, **75** :033408, (2007).
- [85] A. Kikas, S. J. Osborne, A. Ausmees, S. Svensson, O.-P. Sairanen, and S. Aksela. High-resolution study of the correlation satellites in photoelectron spectra of the rare gases. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, **77** :241–266, (1996).
- [86] P. Selles, J. Mazeau, P. Lablanquie, L. Malegat, and A. Huetz. Interference effects in inner-shell double photoionization of xenon. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, **31** :L353–L360, (1998).

Bibliographie

Annexes

Article 1 :

Multicolour above-threshold ionization of helium : quantum interference effects in angular distributions.

O. Guyétand , M. Gisselbrecht , A. Huetz, P. Agostini, R. Taïeb, V. Vénier, A. Maquet, L. Antonucci, O. Boyko, C. Valentin, and D. Douillet

Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics, **38** :L357, (2005).

Article 2 :

Evolution of angular distributions in two-colour, few-photon ionization of helium.

O. Guyétand, M. Gisselbrecht, A. Huetz, P. Agostini, R. Taïeb, A. Maquet, B. Carré, P. Breger, O. Gobert, D. Garzella, J.-F. Hergott, O. Tcherbakoff, H. Merdji, M. Bougeard, H. Rottke, M. Böttcher, Z. Ansari and Ph. Antoine

Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics, **41** :051002, (2008).

Article 3 :

Complete momentum analysis of Multiphoton Photo-double ionization of xenon by XUV and infrared photons.

O. Guyétand, M. Gisselbrecht, A. Huetz, P. Agostini, B. Carré, P. Breger, O. Gobert, D. Garzella, J.-F. Hergott, O. Tcherbakoff, H. Merdji, M. Bougeard, H. Rottke, M. Böttcher, Z. Ansari, Ph. Antoine, and L.F. DiMauro

Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics, **41** :065601, (2008).

LETTER TO THE EDITOR

**Multicolour above-threshold ionization of helium:
quantum interference effects in angular distributions**

**O Guyétand¹, M Gisselbrecht¹, A Huetz¹, P Agostini^{1,2}, R Taïeb³,
V Véliard³, A Maquet³, L Antonucci⁴, O Boyko⁴, C Valentin⁴
and D Douillet⁴**

¹ Laboratoire d'Interaction du rayonnement X Avec la Matière (LIXAM), Université Paris Sud
Bat. 350, Centre d'Orsay, 91405 Orsay, France

² Commissariat à l'Energie Atomique, DRECAM/SPAM, Centre d'Etudes de Saclay,
91191 Gif-sur-Yvette, France

³ Laboratoire de Chimie Physique-Matière et Rayonnement, Université Pierre et Marie Curie,
11 rue Pierre et Marie Curie 75231 Paris Cedex 05, France

⁴ Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA-Ecole Polytechnique, 91761 Palaiseau, France

Received 18 July 2005, in final form 5 October 2005

Published DD MMM 2005

Online at stacks.iop.org/JPhysB/38/L1

Abstract

Energy- and angle-resolved photoionization spectra of He irradiated by linearly polarized intense 810 nm laser radiation and several of its XUV odd harmonics are investigated. The angular distribution of the odd-order peaks, produced by single-photon ionization by one harmonic, is, surprisingly, broadened by the IR field. The even-order ones, due to two-colour, two-photon ionization, show at 90° lobes which depend on the relative IR–XUV phase. Application to the characterization of attosecond pulses is suggested.

The physics of strong-field interaction in multicolour ionization of helium is of fundamental and applied interests. In the simultaneous presence of a comb of odd harmonics and of the fundamental radiation, the photoelectron spectrum displays a set of lines (termed ‘sidebands’) resulting from the absorption of one harmonic photon and of the exchange of one (or several) laser photon(s). These lines, associated to above-threshold ionization (ATI), come in addition to the ones (termed ‘harmonics’) that result from the absorption of a single harmonic photon. As the associated final state of the photoelectron can be reached through several interfering quantum paths, the magnitudes of the peaks depend on the relative phases of the transition amplitudes associated to each path. Moreover, photoionization of atoms under such conditions is relevant to the temporal characterization of attosecond pulses [1–4]. This is achieved by monitoring the heights of the sidebands as a function of the time delay between the laser pulse and its harmonics. Then, by comparing with numerical simulations performed for the atomic system considered, one can retrieve the corresponding phases and eventually reconstruct the time dependence of the ‘attosecond’ bursts of radiation produced in the harmonic generation process [5, 7].

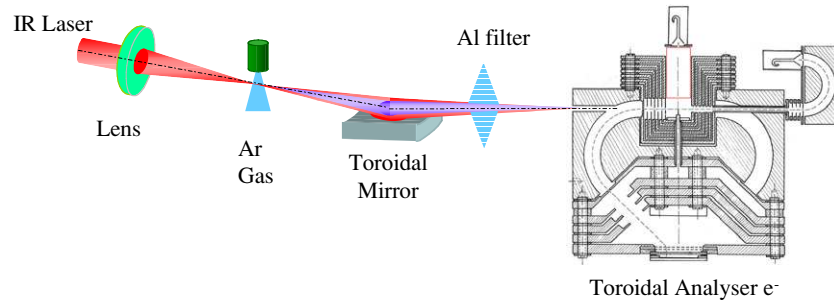


Figure 1. Experimental set-up. The effusive helium gas jet flows from a needle on the toroidal analyser symmetry axis. The analyser has been rotated by 90° on the drawing, to show the small spherical analyser attached on its side. The latter and the ion time of flight also shown are not used in this experiment.

The above-mentioned studies are based on angle-integrated photoelectron spectra. Here, we argue that recording the angular distributions of selected photoelectron lines can bring additional and useful informations on the dynamics of IR/XUV atomic photoionization and, ultimately, on the phase properties of the fields. We mention that similar studies have recently been performed in argon [15], using a velocity imaging device [16].

In the past, extensive studies of angular distributions in multiphoton ATI ionization have been carried out both in the perturbative [17] and strong field [18] limits. The present study differs from those ones by the simultaneous presence of several frequencies. We mention also that all ATI transitions are easily saturated by moderate IR intensities (10^{11} – 10^{12} W cm $^{-2}$). A consequence is that although the lines in the photoelectron energy spectra can be classified in harmonics and sidebands, the IR radiation couples and mixes all the final states through the exchange of an indefinite number of IR photons. This mixing has interesting consequences on the angular distributions which become sensitive to the respective phases of the fields.

In this letter, we report both calculations and preliminary measurements of the photoelectron angular distributions (AD) from helium atoms exposed simultaneously to high harmonics (orders 17–25, hereafter denoted by H17–H25) and fundamental (810 nm) femtosecond pulses, using a toroidal electron analyser. The calculation is based on a numerical resolution of the time-dependent Schrödinger equation (TDSE) on a spatio-temporal grid for a single-active electron model He atom. In particular, we predict and observe non-intuitive deformations of the angular distributions of the ‘harmonic’ peaks H17–H23, in the presence of the IR field. On the other hand, the analysis of the sideband peaks angular distributions (hereafter denoted by SB18–SB24) is shown theoretically to change significantly as a function of the XUV/IR relative phase. The latter property could provide a convenient tool to determine the phase differences between consecutive harmonics.

Figure 1 shows the scheme of the experiment. A Ti: Sapphire laser, of the Laboratoire d’Optique Appliquée (LOA) facility, delivering 30 fs, 8 mJ pulses at a 1 kHz repetition rate is focused onto an argon gas cell located inside a first vacuum chamber where it generates high harmonics in the XUV range. Then both the IR and XUV photon beams, with parallel linear polarizations, are focused into a second chamber by means of a toroidal mirror. These photons then interact with the helium gas beam located on the axis of the spectrometer. A filter can be used to suppress both the IR and the low order harmonics, letting only a train of harmonics from about H13 to H27 to reach the second chamber. When the filter is removed, the IR intensity is in the range of 10^{11} – 10^{12} W cm $^{-2}$ after focusing within the spectrometer. With

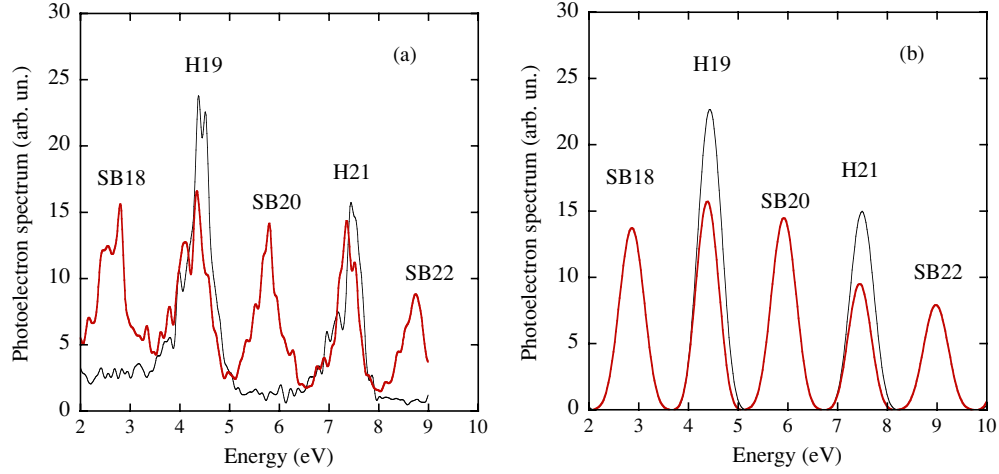


Figure 2. Integrated spectrum (a) experimental (b) from TDSE. Photoelectron spectrum from 2 to 9 eV without IR (thin line) showing the harmonic spectrum, and with an IR intensity $\approx 8 \times 10^{11} \text{ W cm}^{-2}$ (thick line) showing harmonics and sidebands. Due to the ponderomotive effect, the peaks are slightly shifted to the left (by a few 10^{-2} eV) by the IR field.

the present arrangement, the IR and XUV photons have both spatial and temporal coherence in the interaction region with helium.

The spectrometer used in this work has been described previously [19], in the context of synchrotron experiments. It mainly relies on a toroidal analyser which can select and detect electrons emitted in the horizontal plane, containing the photon beam and the axis of polarization. These electrons are imaged onto a position sensitive detector (PSD) at the bottom of the analyser, enabling to get angular distributions simultaneously for all angles between -90° and 90° , with respect to the polarization. The toroidal analyser can also be used in the spectroscopy mode by integrating the signal over the PSD and scanning the kinetic energy. The energy resolution was chosen to be 300 meV, allowing to resolve the harmonic and sideband peaks (figure 2).

Regarding theory, it is known that the phases of the complex transition amplitudes associated to ATI depend in an intricate way on both the photoelectron energy and on the atomic system considered. Although they can be computed with precision in hydrogen [20–22], their calculation in other atomic systems remains a challenge for theory, even in the perturbative limit [23]. Moreover, the free–free transitions, that are part of any ATI process, are easily saturated. It follows that standard lowest-order perturbation theory is not well adapted to the description of the situation at hand. For this reason, we have numerically solved the TDSE for a (3D) single-active electron model He atom. We have followed the lines of [2, 21] for the time propagation as well as for the angle-integrated spectra. We mention that the angular distributions are deduced from the flux of the photoelectron probability density within a given energy bin, through a surface element located far enough from the nucleus. Details of the technique will be published elsewhere.

The calculations have been carried out for infrared and harmonic intensities chosen to match the experimental conditions. In particular, the harmonic intensities have been determined by fitting the experimental angle-integrated photoelectron spectra with the XUV radiations alone. Regarding the phases of H19–H23, we have assumed that they were equal, in agreement with the recent findings by Mairesse *et al* [7].

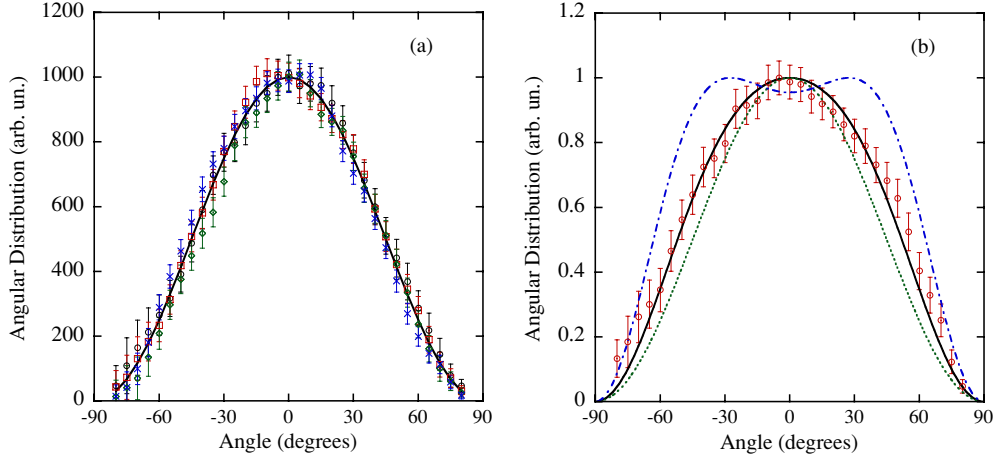


Figure 3. Angular distribution of harmonic H19. The dotted curve shows a $\cos^2 \theta$ distribution, and the full curve shows our calculations. (a) Calibration of the angular response of the spectrometer for different runs (H19 alone). The calculation coincides exactly with the $\cos^2 \theta$ distribution. (b) In the presence of an IR intensity of about $3 \times 10^{11} \text{ W cm}^{-2}$. A simulation for an IR intensity of $7 \times 10^{11} \text{ W cm}^{-2}$ (dot-dashed line) is also shown.

Typical spectra obtained with the toroidal analyser are reported in figure 2, in the 2–9 eV kinetic energy range. When only XUV light is present (see the thin line), harmonics H19 (29.1 eV) and H21 (32.1 eV) produce photoelectron peaks at 4.4 and 7.5 eV, respectively, as the helium ionization potential is $I_p \approx 24.6 \text{ eV}$. When only IR photons are present (by suppressing the argon gas in the HHG cell), no electron signal is observed, demonstrating that the infrared intensity was below the threshold for ATI process with IR photons on helium. Therefore the measurements presented below are purely due to XUV or XUV+IR photons.

When both photon beams are admitted into the spectrometer, the sideband peaks appear. Their amplitude and angular properties depend on the IR intensity which is therefore an important experimental parameter. While it is easy to measure the energy of the IR beam after the chamber, the beam waist is much more delicate to determine for two reasons: (i) the toroidal mirror images the harmonic source onto the target jet inside the spectrometer. However, the IR laser might be focused well before the Ar jet for optimizing the phase matching of the harmonics. Therefore, its image in the toroidal mirror would be displaced by the same amount. (ii) The quality of the focusing by the toroidal mirror depends critically on its positioning which is difficult to control in the chamber. From these arguments together with the measurement of the flux after the chamber, the peak intensity can be estimated to be in the range 10^{12} – $10^{13} \text{ W cm}^{-2}$. Another information is provided by the ponderomotive shift of the spectra. The highest measured value of 160 meV yields a value of $2.4 \times 10^{12} \text{ W cm}^{-2}$. However, the best fit with the simulations for both the angular distributions and the angle-integrated spectra is obtained for intensities about one order of magnitude lower. As mentioned above, we attribute this discrepancy either to a poor focusing of the toroidal mirror or to a poor overlap between the XUV and the IR beams.

It is well known that photoelectrons from one-photon single ionization of helium have a $\cos^2 \theta$ angular distribution with respect to the polarization axis. This property has been used to calibrate the apparatus and to derive its angular response, using photoelectrons produced by the train of harmonics, when the infrared light is removed by the filter. As a consistency check, figure 3(a) displays a few independent measurements of the peak labelled H19 in

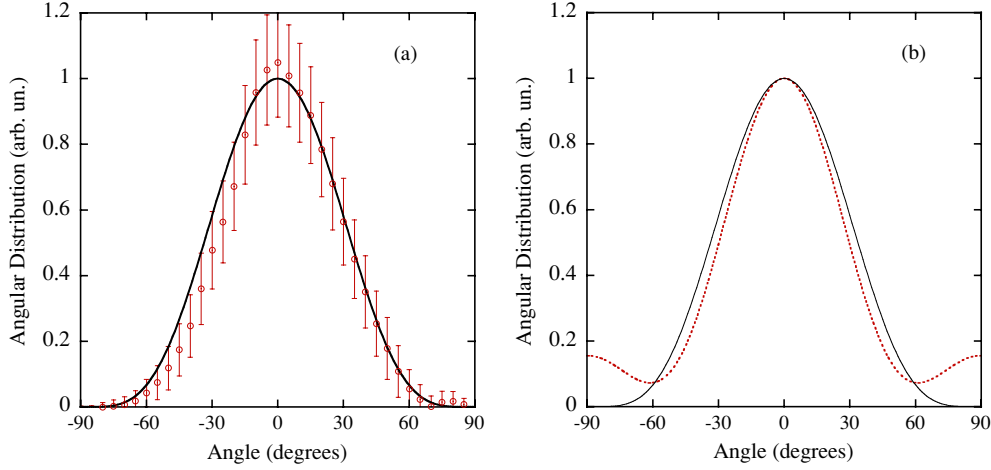


Figure 4. Angular distribution of harmonic SB20 for a IR intensity of about $3 \times 10^{11} \text{ W cm}^{-2}$. (a) The dots come from the experiment while the full curve is our calculations. (b) Calculated normalized variations of the angular distribution for 2 different delays of the IR versus the harmonics. solid line: 0; dotted: π (see text).

figure 2, compared to the $\cos^2 \theta$ distribution (dotted curve) and after angular correction. In the following, all experimental angular distributions are corrected according to the response of the analyser.

One might think that the angular distributions of the peaks labelled $H(2n + 1)$ should become more peaked along the polarization axis when the strong IR field with a parallel polarization is superposed to the XUV field. This has been observed in strong field ATI ionization, in the absence of the XUV field [17]. This intuitive picture is based on both the classical motion of a free electron accelerated by the IR field and on the fact that higher angular momenta are populated in the multiphoton regime. Here however, the results obtained from both the simulations and the experiment exhibit a significant broadening of the distributions. Figure 3(b) exemplifies such a broadening for H19. Further, the simulations indicate that as the IR intensity increases, not only these peaks broaden but also a dip at $\theta = 0^\circ$ (and $\theta = 180^\circ$) does appear. Such a behaviour may be ascribed to the admixture of three-photon interfering paths including one XUV photon and two IR photons that lead to the same final state.

The angular distribution of the sidebands is much different. The one labelled SB20 is shown in figure 4(a). In a lowest-order perturbative approach, it can be reached either from the absorption of H19 and of one IR photon or from the absorption of H21 and the stimulated emission of one IR photon. It exhibits a narrower angular distribution, and therefore appears to be more strongly peaked along the direction of linear polarization at $\theta = 0^\circ$. Globally, there is a very good agreement between the experimental results and the simulations.

In the present experiment the time delay between the XUV and IR pulses is expected to be very small, as the two beams follow the same optical path. Accordingly, a zero time delay has been used in the calculations. But it is known that the amplitudes of all the peaks are sinusoidally modulated when this time delay is scanned [2, 3]. Interestingly, for delays such that the amplitude of SB20 is minimum (corresponding to a destructive interference between the quantum paths leading to this final state), extra lobes appear at -90° and 90° in our calculations, see figure 4(b). The presence of these lobes could be used to determine precisely the IR/XUV time delay for which the total phase difference is π . Since the lobes

appear within a very small range of delays (around 80 as, i.e. 3% of a laser cycle), they might serve as a signature of the destructive interference in a more effective way than by looking for the actual minimum of the peak amplitude. Practically, the delay would be first scanned rapidly to locate the vicinity of a minimum. Then the angular distribution would be monitored until the appearance of the lobes. An obvious drawback of the method is that the AD should be recorded on a very small signal.

In conclusion, this work reports on theoretical and experimental investigations of the angular distributions in multicolour–multiphoton ATI transitions in helium, when irradiated simultaneously by a strong linearly polarized IR field at 810 nm and its odd harmonics of orders 17 to 25. The infrared intensity is in the range 10^{11} to 10^{12} W cm⁻². The main results are the dependence on the IR intensity of the ‘single’ photon ionization peak which counter intuitively become less peaked when the IR field becomes more intense. Even, we predict a destructive interference between the single-photon and the three-photon quantum paths leading to a local minimum in the direction of polarization at higher IR intensities. Theory also predicts qualitative changes of the ‘two-photon’ AD when the quantum paths leading to the same final state interfere destructively. This change is proposed as a signature of this destructive interference and as a method to obtain the phase difference between the harmonic pairs required to characterize the attosecond pulse train. When available, experimental preliminary results support the theoretical prediction, especially for the broadening of the single-photon AD. Future measurements involve a scan of the delay and possibly a detection of the lobes as well as a better control over the IR intensity. Angular distributions of multiphoton ATI carry more informations than the angle-integrated yields. In the perspective of the spectral characterization of single attosecond pulses [11] for which the single- and the two-photon peaks are not resolved energetically, they should allow to distinguish between the harmonics and sideband peaks at 90° from the polarization. They indeed appear to be a very sensitive test of quantum paths interferences.

Acknowledgments

The Laboratoire d’interaction du rayonnement X avec la matière is a Unité Mixte de Recherche, Associée au CNRS, UMR 8624. The Laboratoire de Chimie Physique-Matière et Rayonnement is a Unité Mixte de Recherche, Associée au CNRS, UMR 7614. Parts of the computations have been performed at the Institut du Développement et des Ressources en Informatique Scientifique (IDRIS).

References

- [1] Vénier V, Taïeb R and Maquet A 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 4161
- [2] Vénier V, Taïeb R and Maquet A 1996 *Phys. Rev. A* **54** 721
- [3] Paul P M, Toma E S, Breger P, Mullot G, Augé F, Balcou Ph, Muller H G and Agostini P 2001 *Science* **292** 1689
- [4] Muller H G 2002 *Appl. Phys. B* **74** S17
- [5] Lopez-Martens R *et al* 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 033001
- [6] Trebino R (ed) 2000 *Frequency-Resolved Optical Gating* (Dordrecht: Kluwer)
- [7] Mairesse Y *et al* 2003 *Science* **302** 1540
- [8] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann Ch, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M and Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
- [9] Itatani M, Quéré F, Yudin G L, Yu I M, Krausz F and Corkum P 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 173903
- [10] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, Uiberacker M, Yakovlev V, Scrinzi A, Westerwalbesloh Th, Kleineberg U, Heinzmann U and Krausz F 2002 *Nature* **419** 803
- [11] Kienberger R *et al* 2004 *Nature* **427** 817
- [12] Wickenhauser M, Burgdörfer J, Krausz F and Drescher M 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 023002

-
- [13] O’Keeffe P, López-Martens R, Mauritsson J, Johansson A, L’Huillier A, Vénier V, Taïeb R, Maquet A and Meyer M 2005 *Phys. Rev. A* **69** 051401(R)
 - [14] Johansson A *et al* 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 013001
 - [15] Aseyev S A, Ni Y, Frasinski L J, Muller H G and Vrakking M J J 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 223902
 - [16] Vrakking M J 2001 *Rev. Sci. Instrum.* **72** 4084
 - [17] Chin S L and Lambropoulos P (ed) 1984 *Multiphoton Ionization of Atoms* (New York: Academic)
 - [18] Gribakin G F, Ivanov V K, Korol A V and Kuchiev M Yu 1999 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **32** 5463
 - [19] Mazeau J, Lablanquie P, Selles P, Malegat L and Huetz A 1997 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **30** L293
 - [20] Cionga A, Florescu V, Taïeb R and Maquet A 1993 *Phys. Rev. A* **47** 1830
 - [21] Taïeb R, Vénier V and Maquet A 1996 *J. Opt. Soc. Am. B* **13** 363
 - [22] Fifiirig M, Florescu V, Taïeb R and Maquet A 2000 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **33** 5313
 - [23] Toma E S and Muller H G 2002 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **35** 3435

FAST TRACK COMMUNICATION

Evolution of angular distributions in two-colour, few-photon ionization of helium

O Guyétand¹, M Gisselbrecht¹, A Huetz¹, P Agostini¹, R Taïeb^{2,3},
A Maquet^{2,3}, B Carré⁴, P Breger⁴, O Gobert⁴, D Garzella⁴, J-F Hergott⁴,
O Tcherbakoff⁴, H Merdji⁴, M Bougeard⁴, H Rottke⁵, M Böttcher⁵,
Z Ansari⁵ and P Antoine⁶

¹ CNRS-Université Paris Sud, UMR8624, Laboratoire d'interaction du rayonnement X avec la matière, Bat. 350, Centre d'Orsay, 91405, Orsay, France

² CNRS, UMR7614, Laboratoire de Chimie Physique-Matière et Rayonnement, 11 rue Pierre et Marie Curie, 75231 Paris Cedex 05, France

³ UPMC, Université Paris 06, LCPMR, F75005, Paris, France

⁴ Service des Photons, Atomes et Molécules, CEA-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France

⁵ Max-Born-Institute, Max-Born-Str. 2A, 12489 Berlin, Germany

⁶ Unité de physique atomique, moléculaire et optique, Université catholique de Louvain, 2 chemin du cyclotron, 1348 Louvain-la-Neuve, Belgium

Received 18 January 2008, in final form 8 February 2008

Published 26 February 2008

Online at stacks.iop.org/JPhysB/41/051002

Abstract

Single ionization of helium by a superposition of selected XUV high harmonics and infrared radiation has been studied by a momentum imaging technique. The measured angular distributions of photoelectrons are compared to numerical time-dependent calculations, showing very good agreement after average. The calculated angular distributions appear to depend critically on the delay between harmonic and infrared pulses on the attosecond scale, and on the relative phases and intensities of the harmonics.

(Some figures in this article are in colour only in the electronic version)

The ionization of atoms by extreme ultraviolet (XUV) photons produced by high harmonic generation (HHG) has received growing interest recently. Combining harmonic with infrared photons issued from the same femtosecond laser gives access to few-photon, two-colour ionization of atoms and molecules. Two-colour photoionization, by itself of fundamental interest, is in addition a powerful tool to probe the harmonic properties. In particular the intensity modulation of the two-photon side-band peaks with respect to the delay between XUV and infrared pulses is the basis of a method (reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transitions (RABITT)) allowing one to reconstruct the attosecond pulse train time structure [1, 2]. So far the intensity of single ionization integrated over angles has been used extensively, but studies devoted to the angular

distributions of the photoelectrons are still scarce [3, 4]. In this communication, we show that these angular distributions appear to be a refined test of theory, as well as an alternative and sensitive probe of the XUV characteristics. Theoretical analysis requires solving the time-dependent Schrödinger equation (TDSE), even at moderate infrared intensities (around 10^{12} W cm⁻²) for which the perturbative approach breaks down.

The experimental set-up is schematized in figure 1. Briefly, it is installed by the PLFA laser facility (SPAM) delivering 13 mJ pulses at 812 nm, with a width of 35 fs and 1 kHz repetition rate. The beam is split into a main (11 mJ) IR1 and a dressing (2 mJ) IR2 beam. Beam IR1 is focused into an argon gas cell (at intensity $\sim 10^{14}$ W cm⁻²) to generate XUV harmonics up to 25th order in the plateau. An aluminium

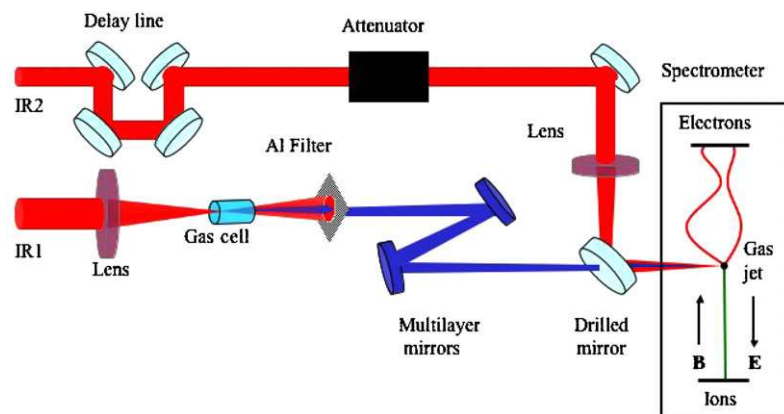


Figure 1. Scheme of the experimental set-up.

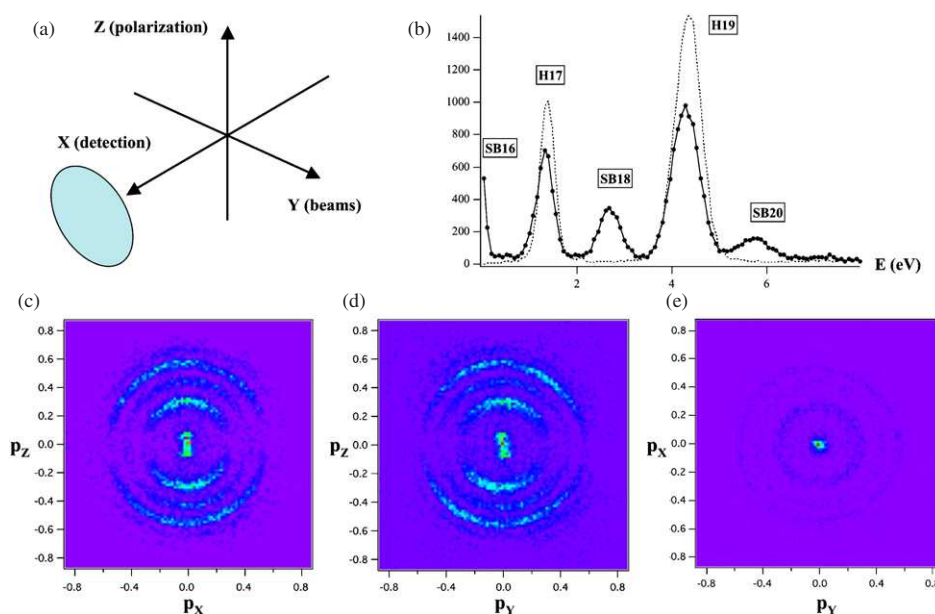


Figure 2. Momentum analysis of photoelectrons with the two overlapping harmonic and infrared beams: (a) reference frame; (b) energy spectrum (dotted curve harmonics only); (c), (d), (e), cuts in momentum space (au are used) for p_Y , p_X , $p_Z = 0 \pm 0.17$ respectively.

filter suppresses the low-order harmonics and the infrared. The remaining XUV light is then spectrally selected and focused into the electron spectrometer by a plane and a spherical multilayer mirrors, coated for maximum reflectivity (40%) at the 19th harmonic (29.01 eV). The harmonics of higher order are not reflected while those of lower order (17th and 15th adjacent harmonics) are strongly attenuated as discussed below. The IR2 dressing beam, delayed with sub-fs accuracy with respect to the harmonics, is intensity controlled by means of an attenuator. Most of the beam is reflected by a drilled mirror, through which harmonics are transmitted, and focused into the spectrometer, leading to peak intensities of the order of $10^{12} \text{ W cm}^{-2}$.

The spatial and temporal overlap between the harmonic and dressing beams in the spectrometer are obviously crucial. An external CCD camera images the overlap between IR1 and IR2 beams—after removing the Al filter—at the centre of the

spectrometer. We assume that the harmonic beam, not seen by the CCD, coincides with the IR1 beam.

When the two beams are spatially overlapped, an interference pattern is obtained and optimized by tuning the delay line, thus maximizing the time overlap. The temporal jitter between the two pulses, mainly due to mechanical vibrations, can be estimated to a few fs. The momentum imaging spectrometer CIEL2, optimized for the present experiment, is described in details elsewhere [5]. The momentum vector of the photoelectrons is accurately determined by deconvoluting their trajectories in parallel $\mathbf{E}$ and $\mathbf{B}$ electric and magnetic fields of 4 V cm^{-1} and 5 Gauss, respectively.

Figure 2 shows the momentum analysis of the photoelectrons issued from single ionization of helium with the overlapping harmonic and infrared beams. The p_X component along the detection axis is deduced directly from the electrons

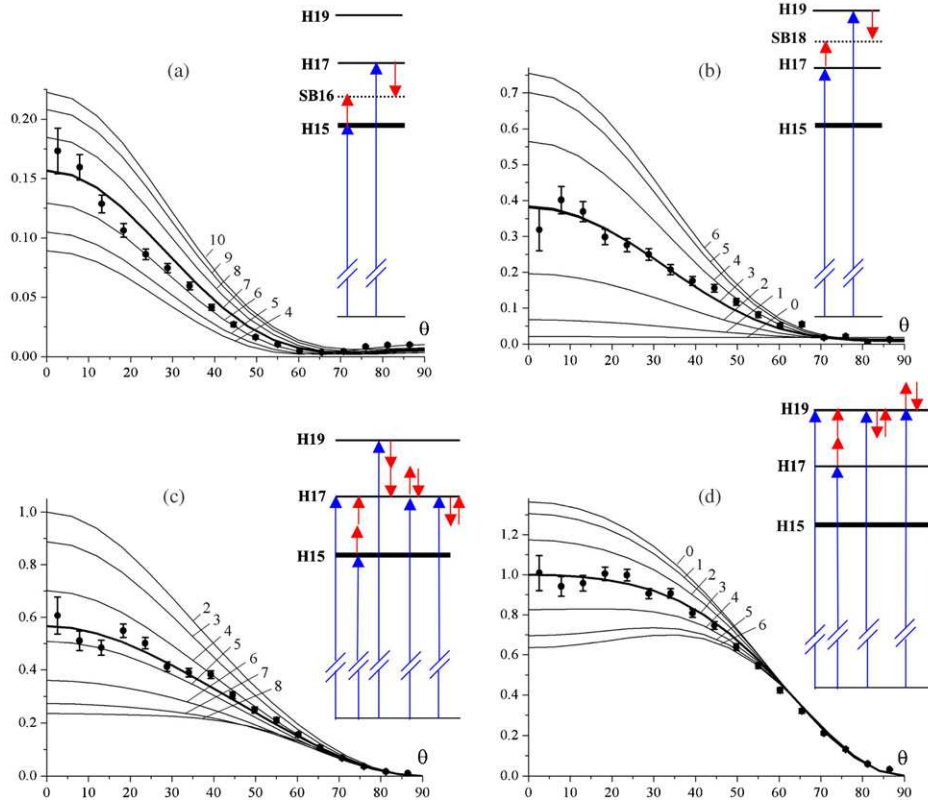


Figure 3. Angular distributions of harmonics and side-band peaks of the spectrum in figure 2(b): (a) SB16; (b) SB18; (c) H17; (d) H19. Calculations at $1.2 \times 10^{12} \text{ W cm}^{-2}$ are shown for various values of τ , ranging from 0 to 10 units of time, as indicated on each thin line curve. One unit of time is 4 au or 96.756 as. Curves averaged over τ are shown as thicker lines. In each panel the dominant (1-, 2-, 3-) photon pathways are reported. The thicker line indicates that H15 is quasi-resonant with the $1s3p \ ^1P^o$ excited state.

time of flight, whereas p_Y and p_Z are obtained from the positions where they hit the detector. The three cuts through the momentum distribution in the xz , yz and xy planes show that electrons are emitted preferentially along the common axis of polarization (z) of the XUV and infrared radiation. Moreover, the first two cuts are found to be quasi-identical, as demanded from the symmetry around the z -axis; this test strongly validates the consistency of the whole momentum analysis.

The energy spectrum is reported as a solid line in figure 2(b), where the dotted line recalls the energy spectrum due to the XUV alone. In the latter case, the 19th and 17th harmonic peaks (labelled H19 and H17) are located at their nominal energies (4.43 and 1.37 eV respectively) and their respective intensities are about 1 and 0.3, as found by dividing the peak areas by the helium ionization cross sections at the corresponding energies [6]. Similar spectra in neon indicate that the 15th harmonic is also partly reflected by the multilayer mirrors, with a weight of 0.2 relative to the 19th harmonic. In figure 2(b), the H19 and H17 peaks are slightly shifted down by about 0.08 eV with IR2 present. This shift, due to the ponderomotive increase of the ionization potential, allows one to estimate the IR2 intensity to $1.2 \times 10^{12} \text{ W cm}^{-2}$ in the region of overlap. Three additional peaks labelled SB16, SB18 and SB20 appear at kinetic energies close to 0, 2.8 eV and 5.85 eV, respectively.

A specific measurement at lower fields (1.7 V cm^{-1} and 1.2 Gauss) was performed to expand the image of SB16 electrons on the detector and to analyse their momenta with a higher precision. Note that the 15th harmonic is quasi-resonant with the $1s3p \ ^1P^o$ excited state of helium, which can be ionized by one single IR2 photon, producing photoelectrons under the SB16 peak. Indeed, the SB16 peak decreases by about a factor of 2 but is still present when IR2 is delayed up to 3 ps with respect to the harmonics, which is the signature of a two-step process.

Angular distributions have been derived from histograms of the polar angle θ between the momentum vector and the z -axis, weighted by $1/\sin\theta$ to eliminate the solid angle effect. They are reported in figure 3 for all peaks except SB20, for which the angular distribution is slightly distorted since 6 eV electrons are detected very close to the edge of the detector. Without IR2, the angular distributions for H19 and H17 are in excellent agreement with the expected $\cos^2\theta$ behaviour of photoelectrons ejected from s orbitals. With IR2, the distributions reported in figure 3 all differ from each other: that of SB16 is rather peaked at 0° and has a dip around 60° ; that of SB18 is broader but still narrower than the $\cos^2\theta$ curve; that of H17 appears to be almost identical to a $\cos^2\theta$ curve; that of H19 exhibits a remarkable plateau from 0° to about 40° , and then drops rapidly down to zero towards 90° .

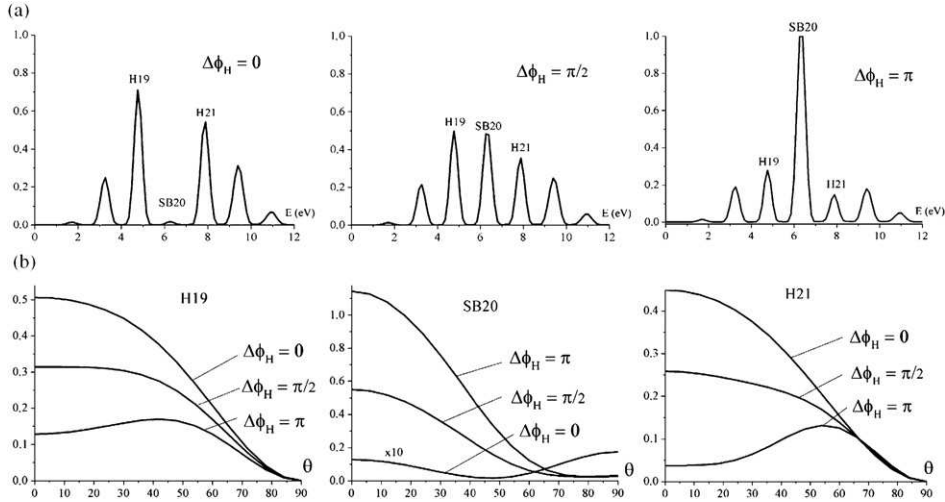


Figure 4. Two harmonics model at $1.5 \cdot 10^{12} \text{ W cm}^{-2}$ infrared intensity: (a) calculated spectra and (b) angular distributions for three values ($0, \pi/2, \pi$) of $\Delta\phi_H = \phi_{21} - \phi_{19}$, as indicated in the figures.

The present observations are more specific and spectacular than those already reported at lower infrared intensity and with a wider comb of harmonics [3]. In order to interpret them, we have performed numerical calculations by solving the TDSE, using a model Hamiltonian for a single active electron in a helium atom. We incorporate all relevant field parameters such as intensities, phases and envelopes in the atom–field interaction term. The integration technique is much similar to the one previously implemented [7]. The energy distribution has been determined with the help of a spectral analysis of the atomic wavefunction after turning off the fields. The calculation of the photoelectron angular distribution is more challenging. We have calculated the flux at a given energy through a surface element located far enough from the nucleus.

The results of the calculations are displayed in figure 3, together with schemes indicating the multi (1-, 2-, 3-) photon dominant transitions involved in each peak of the spectrum. It has been shown in previous studies [8] that within the second order perturbation theory the integrated side-band peaks contain an oscillating term $\propto \cos(\Delta\alpha + \Delta\phi_{2q} + 2\omega_L\tau)$. This term shows the important parameters. $\Delta\alpha$ is the difference of the so-called atomic phases, $\Delta\phi_{2q} = \phi_{2q+1} - \phi_{2q-1}$ is the relative phase of two adjacent harmonics, ω_L is the laser frequency and τ the delay between the XUV and infrared pulses. Atomic phases are intrinsically included in the present calculations since they result from the numerical solution of the TDSE. Harmonics 15, 17 and 19 are weighted by 0.2, 0.3 and 1 respectively, and $\Delta\phi_{16} = 6.50 \text{ rad}$, $\Delta\phi_{18} = 7.43 \text{ rad}$ values of the relative phases are used, as estimated from [2] at the intensity of $10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ for IR1. Values of τ for which the maxima of the XUV and infrared envelopes are close to each other are explored. In figure 3 the calculated angular distributions are shown only in a short time range of ten units of time (one time unit = $4 \text{ au} = 96.756 \text{ as}$). Each of these distributions evolves between lower and upper limiting curves, and such a spectacular evolution occurs within about six units of time. In the considered time range the harmonic curves (figures 3(c) and (d)) evolve from the upper down to the

lower limit, whereas the side-band curves (figures 3(a) and (b)) evolve from the lower up to the higher, and there is a noticeable time shift of 2 (4) units between the two harmonics (sidebands). In each case of figure 3 the averaged curve over τ is indicated as a thick line. Note that the period of the laser ($T = 2\pi/\omega_L$) is equal to 28 units. The above-mentioned second order perturbation theory leads to $T/4 = 7$ units between a minimum and a maximum in the angle integrated side-band oscillations. The value of six units which can be derived from figures 3(a) and (b) is slightly smaller than $T/4$, but it is worth mentioning that side-band distributions return to their lower limits within a slightly longer time of eight units. Thus the complete period of the side-band evolution is 14 units long, which is exactly $T/2$ as predicted by the second order perturbation theory. Such an asymmetric temporal profile is the signature of terms beyond the second order, introducing oscillations at $4\omega_L$ frequency when three harmonics are present.

The already mentioned jitter of a few femtoseconds between the harmonics and IR2 beams implies, at the present stage, that the experimental data can only be compared with the averaged theoretical angular distributions (thick lines in figure 3). A remarkable agreement is observed, for the four different shapes, resulting from various interference schemes between one-, two- and three-photon pathways. It clearly demonstrates the reliability of both the calculation and the experiment. Moreover, it gives confidence in the angular distributions calculated for a specific value of τ , and their spectacular attosecond evolution with respect to τ .

The calculations also show that the phase differences $\Delta\phi_{2q}$ between two adjacent harmonics are critical parameters for the angular distributions. In order to illustrate this property in a simple case, we have repeated the calculations in a two-harmonic model, at the slightly higher IR2 intensity of $1.5 \cdot 10^{12} \text{ W cm}^{-2}$, as shown in figure 4. Only harmonics 19 and 21 have been considered with equal intensities. In such a case one can show by using perturbation theory that both the integrated sidebands and dressed harmonics are periodically modulated as a function of the $\Delta\phi_H + 2\omega_L\tau$ phase, where

$\Delta\phi_H = \phi_{21} - \phi_{19}$. In figure 4 we have set $\tau = 0$ and varied $\Delta\phi_H$. Calculated spectra are shown in figure 4(a). All spectra have equal total areas, but harmonics and sideband peaks are alternatively favoured depending on the values of $\Delta\phi_H$. As for the angular distributions (figure 4(b)), both harmonics H19 and H21 have a pronounced dip at $\Delta\phi_H = \pi$, along the direction of polarization at $\theta = 0$. This dip turns into a maximum at $\Delta\phi_H = 0$, corresponding to cancellation of the SB20 sideband. It is important to note that for all values of $\Delta\phi_H$, harmonics H19 and H21 have non-vanishing intensities and therefore measurable angular distributions. Therefore the present results strongly suggest that the angular distributions of dressed harmonics could be used to monitor the phase-matching properties of HHG sources. In contrast with the RABITT method, this could be done at a constant delay τ .

The dip observed in the angular distributions of dressed harmonics along the direction of polarization is rather counterintuitive, as one would expect the three photon transitions even more peaked at $\theta = 0$ than the one photon transitions. However we show below that the behaviour of the different peaks can be explained within the ‘soft-photon’ approximation [9]. In principle it is applicable only whenever the kinetic energy of the photoelectron is large with respect to the energy of one infrared photon, which is only approximately true here. Although only TDSE numerical calculations can give the accurate results, as shown in figure 3, the soft photon approach can be helpful to interpret them. Within this approximation, the S -matrix transition amplitude component associated with the absorption of one harmonic $(2q-1)$ photon and the net exchange of n IR photons has the general form:

$$S^{(n)} = -2i\pi J_{-n}(\vec{\alpha}_0, \vec{k}_n) e^{-i(\phi_H + n\omega_L\tau)} \langle \chi_{\vec{k}_n} | \vec{A}_{2q-1} \cdot \vec{p} | \psi_{1s} \rangle.$$

Here $\vec{\alpha}_0 = \vec{F}_{0L}/\omega_L^2$ is the classical excursion vector of a free electron in a field of amplitude $\vec{F}_{0L}$, $\vec{A}_{2q-1} = \vec{F}_{2q-1}/[(2q-1)\omega_L]$ is the vector potential associated with the field amplitude F_{2q-1} of harmonic $(2q-1)$, $\chi_{\vec{k}_n}$ is the photoelectron Coulomb wavefunction associated with the wave vector $\vec{k}_n$ with $k_n = \sqrt{2(E_{1s}^2 + (2q-1)\omega_L + n\omega_L)}$, J_{-n} the Bessel function of order $-n$ and E_{1s} the ground state energy. If we consider only two harmonics $2q \pm 1$, as in figure 4, one can easily show that the angular dependence of the SB(2q) is given by

$$\left(\frac{d\sigma_{SB2q}}{d\theta} \right) \propto J_1^2(\alpha_0 k_{SB2q} \cos \theta) \times \left[1 - 2 \frac{\beta}{1 + \beta^2} \cos(\phi_{2q+1} - \phi_{2q-1} + 2\omega_L\tau) \right] \cos^2 \theta$$

with $\beta = (2q-1)F_{2q+1}/[(2q+1)F_{2q-1}]$ and $k_{SB2q} = \sqrt{2(E_{1s}^2 + 2q\omega_L)}$. Provided the argument of the Bessel function is much smaller than 1, we obtain

$$\left(\frac{d\sigma_{SB2q}}{d\theta} \right) \propto \left[1 - 2 \frac{\beta}{1 + \beta^2} \cos(\phi_{2q+1} - \phi_{2q-1} + 2\omega_L\tau) \right] \cos^4 \theta.$$

One can note the $\cos^4 \theta$ behaviour, much narrower than a $\cos^2 \theta$, and the fact that the above expression dependence on θ does not change with the phase difference $(\phi_{2q+1} - \phi_{2q-1} + 2\omega_L\tau)$. Only the amplitude changes with the phase difference.

Under the same conditions, we have for the harmonic peak $H(2q-1)$:

$$\left(\frac{d\sigma_{H(2q-1)}}{d\theta} \right) \propto \cos^2 \theta \left\{ 1 - (\alpha_0 k_0 \cos \theta)^2 \times \left[1 - \frac{\beta}{2} \cos(\phi_{2q+1} - \phi_{2q-1} + 2\omega_L\tau) \right] \right\}$$

We recognize the dominant (without IR) $\cos^2 \theta$ behaviour broadened by the extra term containing $\cos^2 \theta$ which reduces the value of the cross section at $\theta = 0$, when the intensity ratio β between the two harmonics is close to 1, which is the case in figure 4. Furthermore, we see that such reduction is maximum when $\phi_{2q+1} - \phi_{2q-1} + 2\omega_L\tau = \pi$, corresponding to large sidebands and small harmonic peaks, and minimum when $\phi_{2q+1} - \phi_{2q-1} + 2\omega_L\tau = 0$, associated with the opposite case. These findings are in qualitative agreement with the TDSE calculations displayed in figure 4. Thus the spectacular evolution of the H19 and H21 harmonics angular distributions in figure 4(b), with alternate maxima and minima at $\theta = 0$, can be interpreted as an interference phenomenon driven by the phase $\phi_{2q+1} - \phi_{2q-1}$, at a constant value of τ .

To summarize, the present work shows that at infrared intensities around $1.2 \times 10^{12} \text{ W cm}^{-2}$, theoretical predictions based on the numerical solution of the TDSE are in excellent agreement with detailed experimental results obtained by complete momentum imaging. The soft-photon approximation allows one to understand the main differences between the angular distributions of the dressed harmonics and those of the sidebands. On the experimental side even more refined measurements of the angular distributions should become accessible in the near future, by reducing the jitter between the two beams down to about one hundred as, as recently proved to be feasible [4]. The sensitivity of angular distributions to the various characteristics of the pulses could have practical applications to the monitoring of XUV sources. Another important aspect lies in the ongoing development of multiple ionization experiments [5]. In photo double-ionization (PDI) the angular behaviour of the two electrons, and more specifically their angular correlation, is under study. Before extending theoretical approaches to PDI, it is essential to test that the interaction of the target atom with the specific fields is correctly described, by looking at the angular distributions of a single electron from simple ionization. The present results indicate that, at intermediate infrared intensities, this is well realized by solving the TDSE numerically.

Acknowledgments

We are very grateful to the staff of the SLIC laser facility at Saclay, for constant support and technical help throughout this experiment. HR, MB, ZA and PA acknowledge financial support by the EU (Laserlab RII3-CT-2003-506350).

References

- [1] Paul P M *et al* 2001 *Science* **292** 1689
- [2] Mairesse Y *et al* 2003 *Science* **302** 1540

- [3] Guyétand O, Gisselbrecht M, Huetz A, Agostini P, Taïeb R, Vénard V, Maquet A, Antonucci L, Valentin C and Douillet D 2005 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **38** L357
- [4] Varju K *et al* 2006 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39** 3983
- [5] Guyétand O *et al* *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* submitted
- [6] Samson J A R and Stolte W C 2002 *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* **123** 265
- [7] Kulander K C, Schafer K J and Krause J L 1992 *Atoms in Strong Fields* 1 ed Gavrilu (San Diego, CA: Academic) pp 247 (*Adv. Atom. Opt. Phys. Suppl.*)
- Schafer K J 1991 *Comput. Phys. Commun.* **63** 427
- [8] Vénard V, Taïeb R and Maquet A 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 4161
- Vénard V, Taïeb R and Maquet A 1996 *Phys. Rev. A* **54** 721
- [9] Maquet A and Taïeb R 2007 *J. Mod. Opt.* **54** 1847

Complete momentum analysis of multi-photon photo-double ionization of xenon by XUV and infrared photons

O Guyétand¹, M Gisselbrecht¹, A Huetz¹, P Agostini^{1,2}, B Carré³,
P Breger³, O Gobert³, D Garzella³, J-F Hergott³, O Tcherbakoff³,
H Merdji³, M Bougeard³, H Rottke⁴, M Böttcher⁴, Z Ansari⁴, P Antoine⁵
and L F DiMauro²

¹ CNRS-Université Paris Sud, UMR8624, Laboratoire d'interaction du rayonnement X avec la matière, Bat. 350, Centre d'Orsay, 91405 Orsay, France

² Department of Physics, The Ohio State University, Columbus, OH 43210, USA

³ Service des Photons, Atomes et Molécules, CEA-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France

⁴ Max-Born-Institute, Max-Born-Str. 2A, 12489 Berlin, Germany

⁵ Unité de Physique Atomique, Moléculaire et Optique, Université Catholique de Louvain, 2 Chemin du Cyclotron, 1348 Louvain-la-Neuve, Belgium

Received 19 December 2007, in final form 8 February 2008

Published 10 March 2008

Online at stacks.iop.org/JPhysB/41/065601

Abstract

Photo-double ionization (PDI) of xenon by the Ti:Sapphire laser fundamental frequency combined to its 19th and 25th harmonics has been studied by means of a momentum imaging spectrometer. The measurement of the two emitted photoelectrons' momenta and their energy and angular correlations gives insight into the various mechanisms leading to PDI. Although the conditions for non-sequential direct photo-double ionization are fulfilled in the experiment, it is found that the two-step processes dominate.

(Some figures in this article are in colour only in the electronic version)

Introduction

Photo-double ionization (PDI) of atoms and molecules has been studied extensively by means of synchrotron radiation, characterized by 'long' light pulses (typically a few tens of ps) and 'weak' electric field (for a recent review, see [1]). Under these conditions a single high energy photon is absorbed, and the PDI process is the signature of electronic correlations as well as the ideal tool to study them in detail. For simple systems such as helium or molecular hydrogen momentum imaging experiments have recently provided detailed knowledge of these correlations, with a considerable impact on theory.

Other extreme ultraviolet (XUV) sources, such as high harmonic generation (HHG) driven by femtosecond infrared lasers or free electron lasers (X-FEL), generate much shorter and intense pulses, thus opening new perspectives. Recent theoretical studies [2, 3] have shown that ultra-short pulses could be used to observe directly the electronic correlations

in the initial state, which can be either the ground state or a prepared excited state, by measuring the momenta of the two photoelectrons after PDI. In the proposed schemes, at least two VUV photons are used to initiate PDI. Another interesting aspect arises from symmetry conservation rules in the final state. It was recognized a long time ago that the quantum numbers L, S, π associated with the electron pair impose severe restrictions on PDI, such as a node or an anti-node for back-to-back emission at equal energy sharing. These quantum numbers depend on both the state of the residual ion and the number of absorbed photons. Spectacular effects already observed when changing the symmetry of the residual ion [4] are also expected by switching from one photon (synchrotron) to two photon (or multi-photon) PDI experiments.

On the experimental side, PDI studies using HHG or X-FEL sources are a challenge in themselves. Synchrotron sources have a very high (MHz) repetition rate but relatively low numbers of photons per pulse. Thus, the probability of an ionization event to occur for a given light pulse is usually very

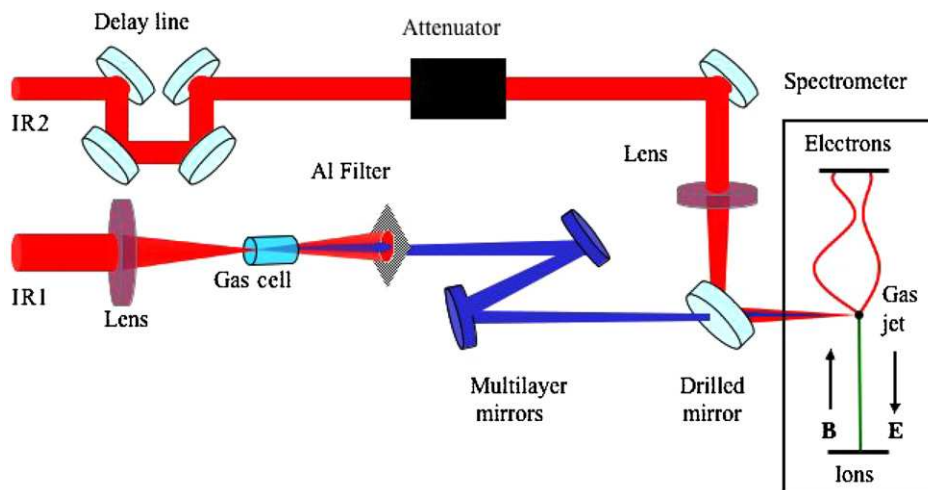


Figure 1. Schematic view of the experimental set-up.

low. Such a condition, which is necessary for coincidence techniques to be applicable, is more difficult to achieve with laser sources, characterized by a much lower (kHz) repetition rate and much higher photon numbers per pulse. Gas jets of low density and ultra-high-vacuum conditions are needed. As a consequence, the number of PDI events which can be recorded per hour largely drops. On the other hand, it is known that a very large number of events is necessary to keep sufficient statistics in the differential analysis of PDI with respect to the momenta of the two photoelectrons. So far PDI studies performed with harmonics [5, 6] and X-FEL [7–10] sources have been restricted to the measurement of doubly charged ions or of one electron [11, 12].

The goals of the present work are to show that (i) sufficient statistics can be achieved with 1 kHz sources to allow a complete analysis of the vector correlations between the two photoelectrons and (ii) this information can be used to disentangle the various PDI mechanisms involved in combined harmonic and infrared laser pulse PDI. The present paper follows two previous studies of PDI of xenon using HHG sources. In the first one [11], to be called paper I hereafter, PDI of xenon by the 25th harmonic of Ti:Sapphire laser radiation was studied by means of a COLTRIMS reaction microscope, showing for the first time the feasibility of such an experiment. In a second study [12], to be called paper II below, the 17th and 21st harmonics were successively superimposed on infrared Ti:Sapphire pulses and PDI of xenon was studied with the same apparatus. In both experiments harmonics were selected by a grating, stretching the XUV pulse width from fs to ps. Moreover, for the heavy Xe^{++} ions the recoil ion technique did not allow us to reach a momentum resolution sufficient for the analysis of the momentum of the second photoelectron.

In the present experiment, these two limitations have been removed. Multilayer mirrors have been used to select harmonics, and a new momentum imaging system allowing the direct determination of the momenta of the two photoelectrons has been employed. The paper is organized as follows: in section 1, we briefly describe the XUV and infrared laser beam generation, and the momentum imaging spectrometer;

in sections 2–4 we present PDI results obtained with the 25th harmonic alone, the 19th harmonic and the 25th harmonic superimposed with infrared laser pulses respectively.

1. Experimental set-up

The scheme of the set-up is shown in figure 1. The new laser facility PLFA (SLIC, France) delivering 10 mJ pulses at 812 nm, with a width of 35 fs (FWHM) at a 1 kHz repetition rate, was used. The beam was split into a main (8 mJ) IR1 and a dressing (2 mJ) IR2 branch. The IR1 beam was focused into an argon gas cell to generate the XUV harmonics. Thereafter, passing the beam through an aluminium filter removed low harmonics and the infrared radiation. The XUV light was then reflected and filtered by a mirror pair consisting of a plane and spherical multilayer mirrors designed to reflect the 19th or the 25th harmonic. The spherical mirror focused the beam through a drilled plane mirror into the spectrometer, to a spot size of about $100\ \mu\text{m}$. The reflectivity of the multilayer mirrors was typically 40% and 20% for the 19th and 25th harmonics, respectively. In each case, harmonics of a higher order were almost completely rejected. Adjacent harmonics of a lower order were observable, but with lower intensities. The XUV signal was monitored by means of a removable photomultiplier, and the number of harmonic photons on target was estimated to be in the range 5×10^5 – 5×10^6 photons per pulse.

The IR2 dressing laser pulses were delayed with sub-fs accuracy with respect to the XUV pulses. The IR2 beam intensity was adjusted by means of a half-wave plate followed by a polarizer. The beam was focused with a lens of 1500 mm focal length (numerical aperture $\sim 1/60$). An annular part of the IR2 beam was reflected into the spectrometer by the drilled mirror. IR2 pulse energies typically in the 50–100 μJ range were used, leading to intensities in the 10^{12} – $10^{13}\ \text{W cm}^{-2}$ range in the focal spot of diameter 100–150 μm .

One of the experimental challenges was to optimize and to monitor the spatial and temporal overlap of the two beams

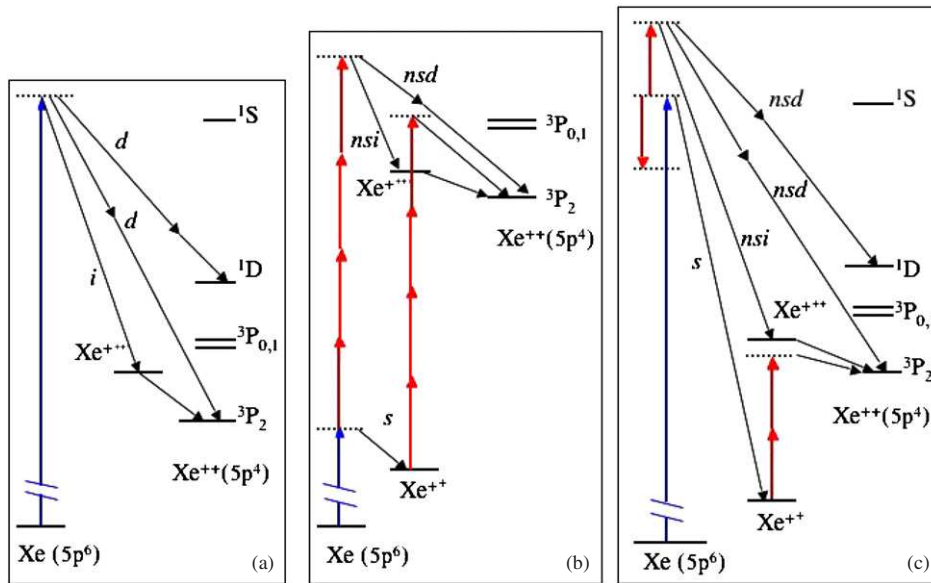


Figure 2. Typical routes to PDI of xenon by the 25th harmonic (a), by the 19th harmonic combined with infrared radiation (b) and by the 25th harmonic combined with infrared radiation (c). Long and short vertical arrows indicate harmonics and infrared photons respectively. Each non-vertical arrow marks the emission of one electron. Various routes are labelled with letters *s* (sequential), *ns* (non-sequential), *d* (direct) and *i* (indirect). Full horizontal line segments mark energy levels of Xe, Xe⁺ and Xe⁺⁺. Xe⁺⁺ and Xe⁺⁺⁺ indicate excited states located below and above the Xe⁺⁺ 3P₂ ground state, respectively. Dotted line segments are non-resonant energy levels.

in the spectrometer. A CCD camera imaging the centre of the spectrometer was used to find the overlap of the IR1 and IR2 beams, after removing the Al filter. The time overlap of the IR1 and IR2 pulses was optimized from their interference in the target region (spatial interference pattern produced from side rays in IR2 beam crossing IR1 at a small angle). Mechanical vibrations lead to a jitter estimated to be a few fs from the fluctuations of the interference pattern. The multilayer mirrors and the drilled beam recombination mirror were placed in vacuum, and controlled by high precision motors. The overlap of the XUV and IR2 pulses in time was monitored by observing the side-band peaks in the photoionization spectrum of helium [13].

The momentum imaging spectrometer, CIEL2, was optimized for the present experiment. It derives from a previous one [14] built for synchrotron experiments. Electrons are detected by a pixel detector similar to that already described [15]. However, important improvements have been incorporated. The gas jet is emitted from a 20 μ m nozzle and shaped by two skimmers, with a resulting beam diameter of 1 mm at the point where the jet and the light beams intersect (located about 12 cm downstream from the nozzle). The background gas pressure in the vacuum chamber is about 2×10^{-10} Torr. The central region for the photoelectrons and ions has a large inner diameter of 16 cm, and the homogeneous magnetic and electric fields used in the present study were typically 5 Gauss and 4 V cm⁻¹ respectively. The time of flight and the position of atomic ions are measured by a stack of three 40 mm diameter micro-channel plates (MCP) and a conventional resistive anode encoder. The two electrons are detected by a stack of two 80 mm diameter MCP followed by a pixel anode with 64 detection lines along each (*x* and *y*) direction. The readout of this new detector is done by a fast

multi-hit TDC with 128 inputs. Each time-to-digital convertor (TDC) channel has a time resolution of 100 ps. It is triggered in the ‘stop’ mode within a time window centred on the time of flight of doubly charged Xe ions, and it is synchronized with the light pulses for an accurate determination of the time of flight of each electron from a PDI event. Thus, single ionization is discarded and only triple Xe⁺⁺-electron-electron coincidence events are recorded, at a rate of typically a few times 10⁻¹ Hz. The momenta of the two photoelectrons are accurately determined by deconvoluting their trajectories. With the spatial and time resolutions indicated above, and the fields used in the present study, electrons with kinetic energies in the [0, 6 eV] range can be measured, with typical angular and energy resolutions $\Delta\theta \sim 5^\circ$ and $\Delta E/E \sim 0.15$, respectively.

As the MCP stack efficiency is about 40%, the recording of only one of the two electrons issued from PDI frequently occurs in the data acquisition. When processing the data such events are indistinguishable from those with two detected electrons of nearly equal momenta, which have neighbouring hits on the detector and almost equal times of flight. Therefore, very specific events with equal energy sharing ($E_1 \sim E_2$) and small mutual angle ($\theta_{12} \sim 0$) are not reliably identified. Accordingly in the following, we have chosen to remove events close to the $E_1 \sim E_2$ lines from the two-dimensional energy plots and the region of low angles from the angular distribution histograms.

2. PDI by the 25th harmonic

The measurements reported in paper I with the 25th harmonic have been repeated with the present set-up. Energy levels and PDI routes are shown in figure 2(a). The energy of the 25th

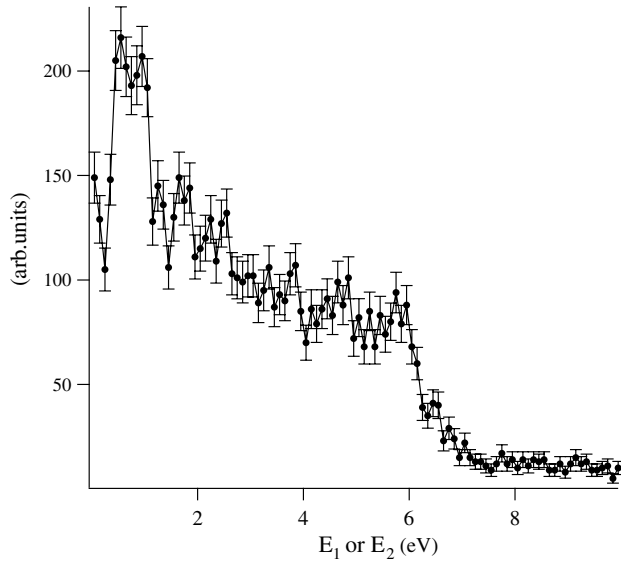


Figure 3. Kinetic energy distribution of photoelectrons from PDI by the 25th harmonic.

harmonic photons (38.17 eV) is in excess of all $\text{Xe}^{++}(5p^4)$ 3P_2 , $^3P_{0,1}$, 1D and 1S levels. Therefore, direct PDI routes to all of these states are possible. Moreover, indirect PDI through Xe^{+++} states located above the Xe^{++} ground state is known to occur from helium lamp measurements [16]. The kinetic energy distribution of the photoelectrons is presented in figure 3 and is similar to the observations reported in paper I. The peaks in the region below 2 eV can be attributed to $\text{Xe}^+(5p^4)^1D$ and nd ($n = 8, 9$) and $\text{Xe}^+(5p^4)^1S$ $7d$ states. They are superimposed on a plateau due to direct PDI as discussed in paper I, where angular distributions for various energy regions of figure 3 were also analysed.

In the present experiment the momentum vectors of both the two photoelectrons are determined, allowing us to reconstruct the two-dimensional energy correlation plot shown in figure 4. This representation, recently used in synchrotron studies of double Auger decay in xenon [17], provides detailed information on the various PDI processes. Energy conservation restricts the possible kinetic energies E_i ($i = 1, 2$) of the two photoelectrons to

$$E_{\text{tot}} = E_1 + E_2 = h\nu - I^{++}(\text{final state}),$$

where $h\nu$ is the photon energy and I^{++} is the energy of the Xe^{++} final state. Thus, the various $\text{Xe}^{++}(5p^4)$ final states restrict the allowed kinetic energies E_i to lines of constant $E_1 + E_2$ in figure 4. Lines at $E_1 + E_2 = 1.7, 3.5, 7.1$ eV are indicated, to separate the 1D state at $E_{\text{tot}} = 2.98$ eV from the $P_{0,1,2}$ states at 3.89, 4.09 and 5.15 eV, respectively. For a given final state, the density along a constant $E_1 + E_2$ line should consist of a smooth and continuous contribution from direct PDI routes, with peaks superimposed which correspond to indirect routes through the various Xe^{+++} states. The 2D plot has to be symmetric with respect to reflection at the bisector of the two energy axes, due to indistinguishability of the two photoelectrons (E_1, E_2 permutation). This is indeed verified by figure 4. Another important information is the signal-to-noise

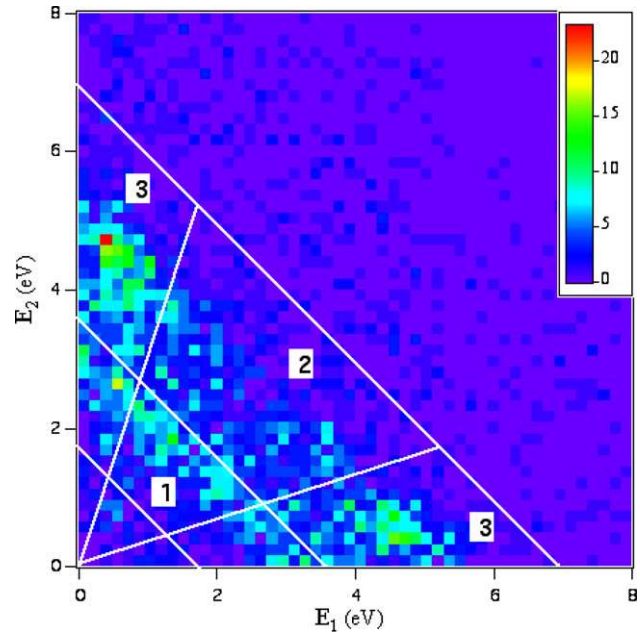


Figure 4. Two-dimensional energy correlation diagram for PDI by the 25th harmonic.

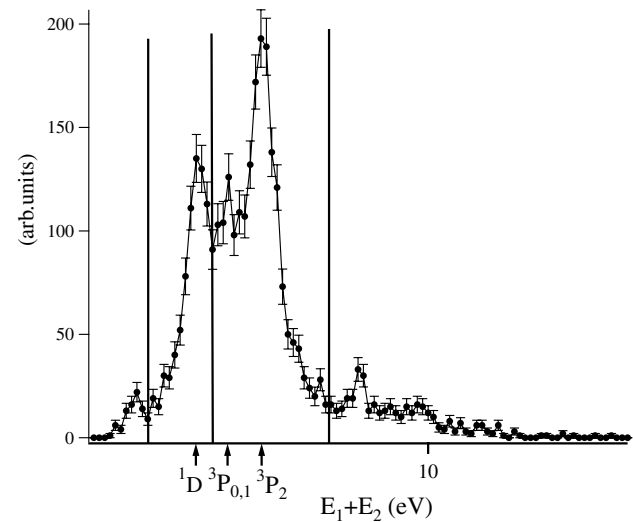


Figure 5. Total energy spectrum for PDI by the 25th harmonic from equation (1) and figure 4. Vertical lines are located at 1.7, 3.5, 7.1 eV, and total energies for PDI leading to the various Xe^{++} final states are indicated by arrows.

ratio in the coincidence mode, which can be estimated to about 20 from region 3 and from the centre of the plot ($E_1 \sim E_2 \sim 4$ eV), where no physical process is present.

Integrating the kinetic energy distribution $f(E_1, E_2)$ of the photoelectrons in the 2D plot in figure 4 subject to the condition $E_1 + E_2 = E_{\text{tot}}$, the total energy spectrum

$$f_{\text{tot}}(E_{\text{tot}}) = \int_0^{E_{\text{tot}}} dE_1 f(E_1, E_{\text{tot}} - E_1) \quad (1)$$

can easily be derived, as shown in figure 5, where the various final Xe^{++} states which are reached are indicated by

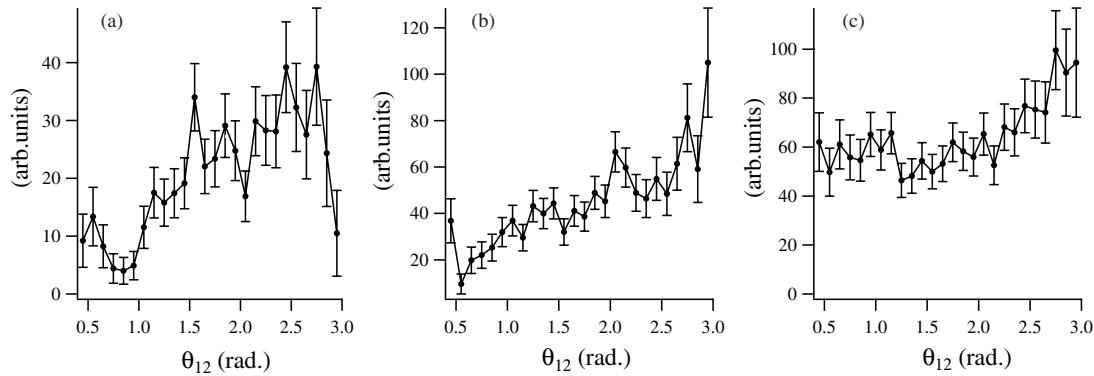


Figure 6. Angular correlations with respect to the mutual angle θ_{12} for various processes (various regions of figure 4) in PDI by the 25th harmonic: (a) region 1 1D final state; (b) region 2 3P final state, direct PDI; (c) region 3, 3P final state, mainly indirect PDI.

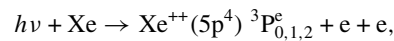
arrows. Peaks corresponding to the main final states are clearly observed, although they are not perfectly resolved. The black lines at $E_{\text{tot}} = 1.7, 3.5, 7.1$ eV comprise the P and D states. The final S state which should appear at 0.65 eV is not clearly observed. However, this is not surprising as this state is known to be less populated by PDI [16]. The small peak around 8 eV, observed at the limit of the present statistics, could be due to traces of the 27th harmonic, with decay to the 3P_2 state.

In figure 4, two lines $E_2 = 0.3 E_1$ and $E_1 = 0.3 E_2$ have been drawn. They divide the plot into three sections labelled 1 to 3. Intense spots are visible in region 3. They are consistent with indirect PDI through the already mentioned $\text{Xe}^+(5p^4)^1D$ and $(n = 8, 9)$ and $\text{Xe}^+(5p^4)^1S$ 7d states, with decay to the final $\text{Xe}^{++}^3P_2$ state. They correspond to the low energy peaks already present in the kinetic energy distribution spectrum (figure 3). Indeed, these indirect PDI routes were observed to be the dominant ones in previous work [16]. In the other regions (1 and 2) of figure 4, the density is more continuous and consistent with direct PDI.

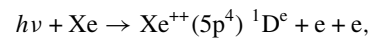
Once the map of the various PDI mechanisms has been established, it is worth studying the angular correlation of the two emitted electrons. The statistics of the present experiment does not allow us to reach a fully differential cross section, as in synchrotron experiments [1], by fixing the energy and direction of emission of the first electron and plotting the emission diagram of the second electron in various planes. However, for each PDI event the angle θ_{12} enclosed by the momentum vectors of the two photoelectrons can be calculated, and it is instructive to look at histograms of this angle over the whole ensemble of events for the various regions in the 2D energy plot (figure 4). The results are shown in figure 6, where θ_{12} ranges from 0.5 to 3 rad. Histograms have been weighted by a factor $1/\sin \theta_{12}$, to suppress the solid angle effect well known in momentum imaging experiments. Therefore, figure 6 displays the probability distribution in arbitrary units for the different regions of figure 4 which correspond to different PDI processes. Note that the statistical error bars increase towards $\theta_{12} = 3$ rad, where the solid angle becomes very small.

For regions 1 and 2 small values of θ_{12} appear to be very unlikely, but the probabilities increase towards higher values of θ_{12} . This can be understood to be the result of the mutual

Coulomb repulsion of the two electrons, which is at work for the direct PDI mechanism. Approaching $\theta_{12} = \pi$, which corresponds to back-to-back emission of the photoelectrons, regions 1 and 2 show opposite behaviour. For the D final state (region 1) the probability rapidly drops to zero, whereas it increases for the P final state (region 2). These properties can be understood from symmetry considerations [18]. In the direct PDI process



the S and π quantum numbers of the electron pair have the values 1 and ‘odd’ from spin and parity conservation respectively. Then, in spectroscopic notation two final states for the photoelectron pair, namely $^3P^o$ and $^3D^o$, are allowed by conservation rules. For the first one, as $(-1)^S$, $(-1)^L$ and π all have the same sign, back-to-back emission of the two photoelectrons at equal energy sharing is allowed [18]. Moreover, it is favoured by Coulomb repulsion. Therefore, a maximum around $\theta_{12} = \pi$ should be observed. In contrast, in the direct PDI process



the parity π is unchanged but now $S = 0$. Then $^1P^o$, $^1D^o$, $^1F^o$ states of the photoelectron pair are allowed. However, since $(-1)^S$ and π have opposite signs back-to-back emission at equal energy sharing now is forbidden, resulting in a node at $\theta_{12} = \pi$.

Despite the low statistics, figures 6(a) and (b) appear to be consistent with these symmetry properties. Regions 1 and 2 of figure 4 which have been selected for figures 6(a) and (b), respectively, are centred on equal energy sharing, along the bisector of figure 4, but they also include unbalanced energy sharing, limited by the lines $E_2 = 0.3 E_1$ and $E_1 = 0.3 E_2$. Only strongly asymmetric energy sharing is excluded. Since the differential cross sections are known to vary slowly with energy sharing, the nodal properties at exactly equal energy sharing are expected to extend far into the regime $E_1 \neq E_2$, allowing their observation in figures 6(a) and (b).

As discussed above in region 3, indirect routes (figure 2(a)) contribute to PDI. Since indirect PDI is a two-step process, electrons from each step are expected to be almost uncorrelated. Only in very specific situations, the Coulomb repulsion may play a role through the so-called post-collision

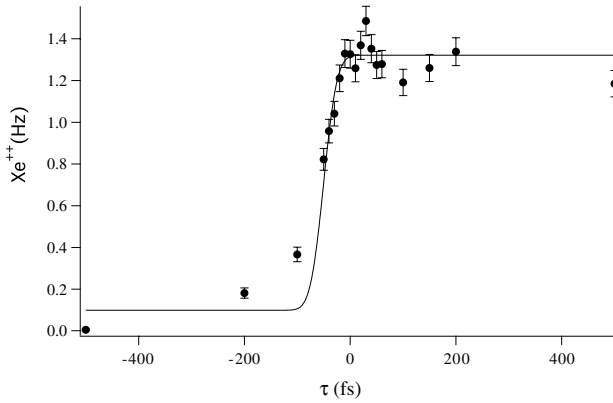


Figure 7. Dependence of the Xe^{++} ion yield on the delay of the infrared with respect to the 19th harmonic. The full line shows a convoluted step function (see text).

interaction (PCI). Nodal properties related to the symmetry of the final state have also been observed in two-step processes [19], but only under conditions which are not met here. Thus, indirect routes to PDI are expected to give rise to uncorrelated photoelectrons and therefore flat angular distributions with respect to θ_{12} . This is well verified by figure 6(c), showing a high probability for small angles θ_{12} . Only a weak maximum is noticeable near $\theta_{12} = \pi$, which can be explained by the fact that region 3 also includes some contribution from direct PDI to the Xe^{++}P final state, superimposed on the indirect processes.

These results for PDI of xenon by absorption of a single harmonic photon appear to be consistent with previous work and known properties of the various mechanisms. They show that despite the low 1 kHz laser repetition rate, differential cross sections can be extracted from the data, giving insight into the electronic correlations. Therefore, we can now proceed to PDI measurements initiated by combined absorption of XUV and infrared photons.

3. PDI by the 19th harmonic and infrared photons

The energy of the 19th harmonic (29 eV) is not sufficient for PDI of xenon. The release of two electrons is only accessible by a multi-photon route through absorption of both one harmonic and several infrared photons. The intensity of the infrared radiation is below the threshold for multi-photon ionization (MPI) of Xe. No Xe^+ ions are detected with the IR2 beam alone. Thus, sequential PDI routes starting with MPI of Xe followed by XUV ionization of Xe^+ are ruled out. Under these conditions, figure 7 shows the dependence of the total Xe^{++} yield on the delay τ of the infrared with respect to the harmonic laser pulse. For negative delay, no signal is observed. As expected, at $\tau \approx 0$ the ion signal rises to about 1.2 Hz, and interestingly a plateau is observed at least up to a delay of 400 fs. Looking at the scheme of levels (figure 2(b)), absorption of at least three infrared photons is required for PDI. Various further routes are illustrated which require the absorption of four infrared photons. The plateau in figure 7 reveals the existence of sequential routes, labelled ‘s’ in

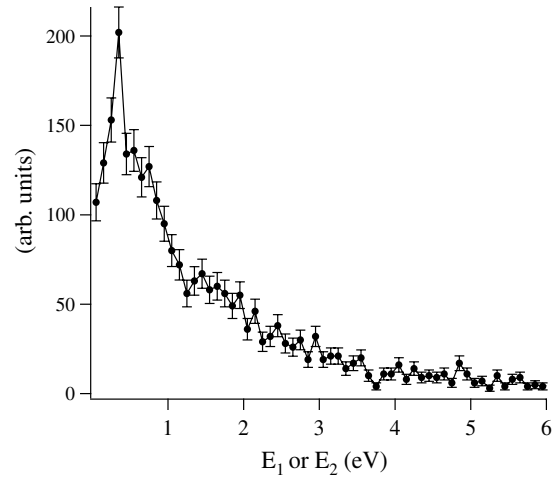


Figure 8. Kinetic energy distribution of photoelectrons from PDI by the 19th harmonic and infrared.

figure 2(b). They start with ionization of Xe by the 19th harmonic producing Xe^{++} states with a long life time, which are then ionized by infrared multi-photon absorption after some delay.

At zero delay one may expect a peak to appear due to non-sequential direct or indirect PDI, labelled ‘*nsd*’ and ‘*nsi*’ in figure 2(b). Note that the existence of such routes is made *a priori* possible here by the control of the overlap between the XUV and infrared beams, and by the observation of side bands for single ionization of helium [13]. These conditions were not fulfilled in paper II, where similar PDI by the 17th and 21st harmonics combined with infrared was reported. However, no side bands were observed in single ionization of xenon. Nevertheless, looking at figure 7, in spite of favourable conditions for non-sequential PDI, no significant peak is observed at $\tau \approx 0$. We thus conclude that sequential routes dominate. A convoluted step function has been calculated assuming pulse durations of 25 fs (FWHM) for harmonic and 40 fs for IR2 pulse (IR2 pulse slightly broadened after glass lens and window) and a lifetime of the intermediate states in the ps range or higher. The harmonic pulse duration is possibly shorter than the above value, which reasonably accounts for the jitter of a few fs mentioned in section 1. Figure 7 shows that such a step curve is consistent with the data, when the photon beams’ instability (typically up to 10%) is taken into account.

Further insight can be obtained by analysing the momenta of the two emitted electrons. Figure 8 shows that most of the photoelectrons have low kinetic energy, below 3 eV, with a peak at about 0.4 eV. The shape of this energy distribution is similar to that already reported in paper II. The sequential route in figure 2(b) involves Xe^{++} states lying below 29 eV. From spectroscopic data [20], a good candidate could be the $\text{Xe}^+(5p^4) \ ^1D \ 5d \ (^2S_{1/2})$ state at 28.88 eV binding energy. It can be ionized by absorption of three infrared photons. The first step would produce one 0.12 eV and the second step one 0.45 eV photoelectron. However, the density of $\text{Xe}^+(5p^4) \ nl$ correlation satellites in this binding energy region is very high preventing a precise assignment.

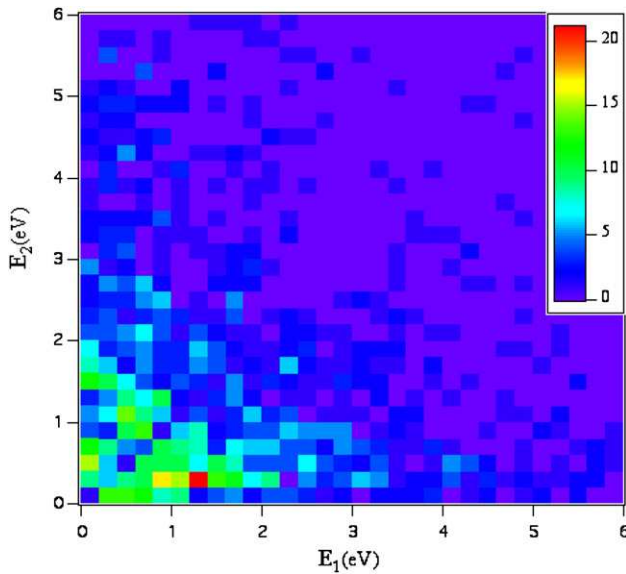


Figure 9. Two-dimensional kinetic energy correlation diagram for PDI by the 19th harmonic and infrared.

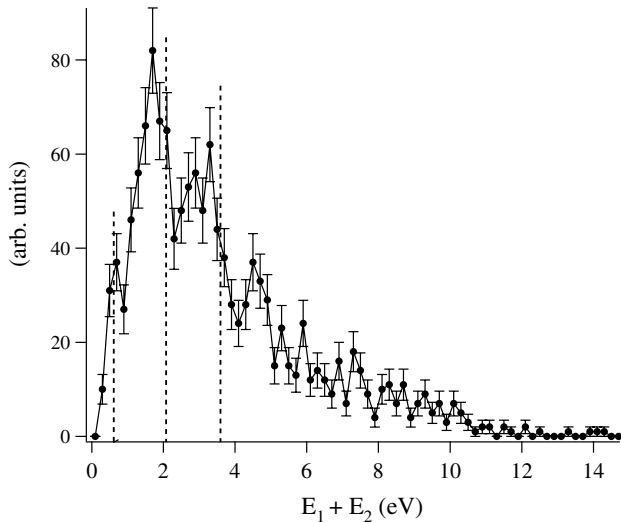


Figure 10. Total energy spectrum for PDI by the 19th harmonic and infrared.

The 2D kinetic energy correlation plot shown in figure 9 confirms that the photoelectrons pile up in the low energy region, and unlike figure 4 no structure is clearly visible. However, the total energy spectrum ($f_{\text{tot}}(E_{\text{tot}})$, equation (1)) in figure 10 shows several peaks around 0.6, 2.1 and 3.6 eV (dotted vertical lines), corresponding to the absorption of 3, 4 or 5 infrared photons, respectively. This generalizes the well-known above threshold ionization (ATI) spectra known from single ionization to PDI. Note that, although not considered in figure 2(b), sequential routes leading to the $^3\text{P}_{0,1}^e$ or $^1\text{D}^e$ excited states of Xe^{++} may also add a structure to the spectrum in figure 10, especially on the low energy side. Despite the low statistics the main peaks appear to be slightly shifted down, which is consistent with the expected ponderomotive shift at the present intensity regime [13].

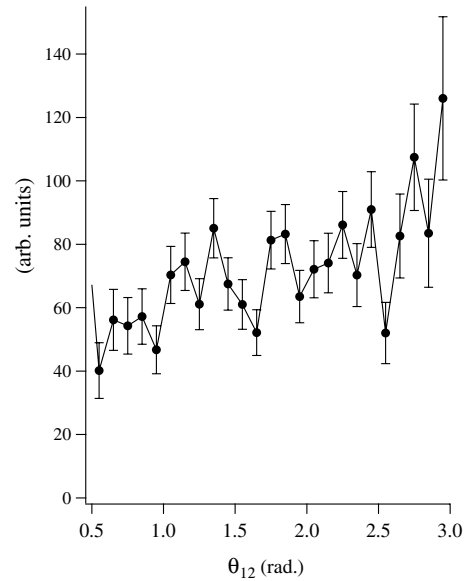


Figure 11. Angular correlations from PDI by the 19th harmonic and infrared.

Finally, figure 11 shows the probability distribution for the angle θ_{12} enclosed by the momentum vectors of the two photoelectrons irrespective of their kinetic energy. This rather flat distribution corroborates our findings, i.e. the dominance of sequential PDI, although a small contribution of non-sequential direct ‘*nsd*’ routes cannot be completely ruled out, as the probability is slightly increasing towards large θ_{12} .

4. PDI by the 25th harmonic and infrared photons

Combining the 25th harmonic with the infrared pulses already allows one-photon routes to contribute to PDI as discussed in section 2 and shown in figure 2(a). In addition, multi-photon routes become possible as shown in figure 2(c). Simultaneous absorption of one 25th harmonic photon and absorption or emission of one or more infrared photons can give rise to direct PDI that populates various $\text{Xe}^{++}(5p^4)$ final states (‘*nsd*’ routes). It may also result in indirect PDI via Xe^{+++} states lying above the $(5p^4) ^3\text{P}_2 \text{Xe}^{++}$ ground state (‘*nsi*’ routes). Finally, sequential PDI (‘*s*’ routes) which is already allowed for the 19th harmonic is also possible with the 25th harmonic.

Figure 12 shows the dependence of the total Xe^{++} yield on the delay τ of the infrared with respect to the XUV laser pulses. For negative delay only, the one-photon routes in figure 2(a) can contribute to Xe^{++} formation at a measured event rate of about 1.5 Hz. At $\tau \approx 0$ a step is observed, similar to that in figure 7, followed by a plateau at a rate of about 2.5 Hz. Similar to figure 7 again no noticeable peak appears at $\tau \approx 0$, but the situation is different now. The one XUV photon transition contributes to PDI, whatever the delay of the infrared pulse. It is well known for joint harmonic and infrared single ionization that increasing the infrared light intensity beyond about $10^{11} \text{ W cm}^{-12}$ gives rise to side-band peaks in the photoelectron kinetic energy distribution with the harmonic peaks losing intensity. More precisely, it can be shown that the

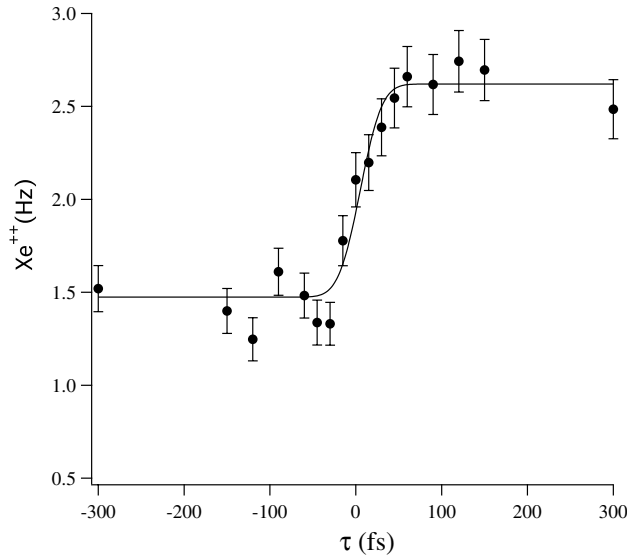


Figure 12. Dependence of the Xe^{++} ion yield on the delay between the infrared and the 25th harmonic pulses. The full line shows a convoluted step function (see text).

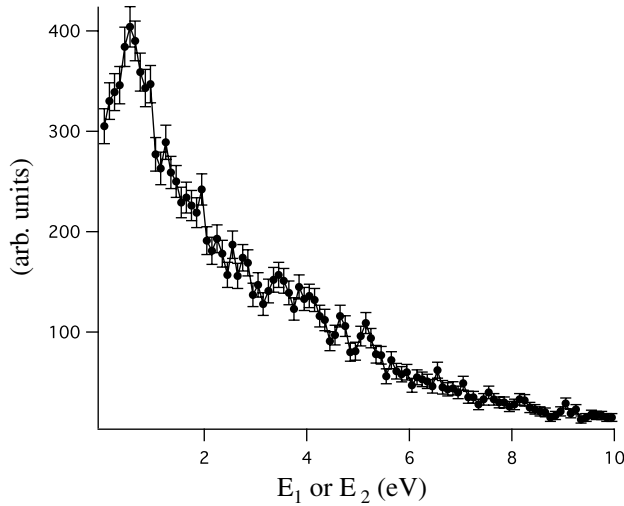


Figure 13. Kinetic energy distribution of photoelectrons from PDI by the 25th harmonic and infrared.

total intensity of the harmonic peaks without infrared remains unchanged, but is redistributed over all possible multi-photon transitions. Extending this idea to PDI, in the present case where the one XUV photon route is energetically accessible, the non-sequential routes should not give rise to an increased Xe^{++} yield at $\tau \approx 0$. As in figure 7, a convoluted step function using the same width parameters is in good agreement with the data of figure 12. In order to understand the experimental observation more refined information is needed, which can only be provided by the emitted electrons.

Figure 13 shows the kinetic energy distribution of the photoelectrons. It extends up to about 10 eV. A structure is visible in the low energy region, below 2 eV. It seems to be similar to the one already present in figure 3. Its appearance is

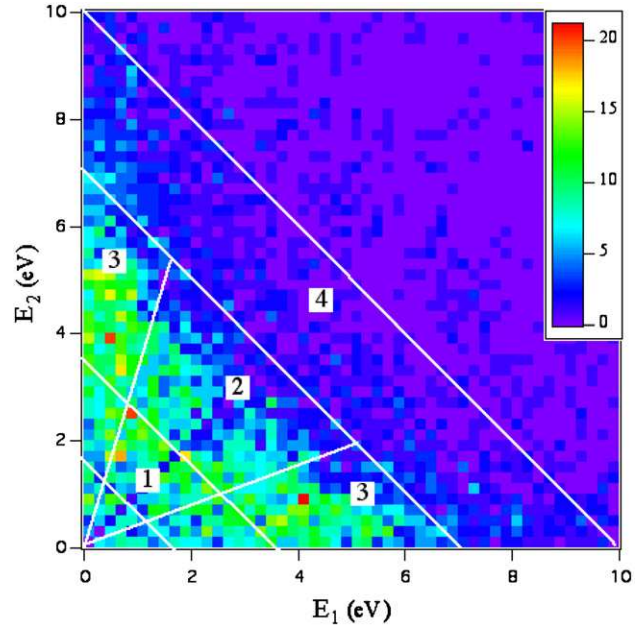


Figure 14. Two-dimensional energy diagram for PDI by the 25th harmonic and infrared.

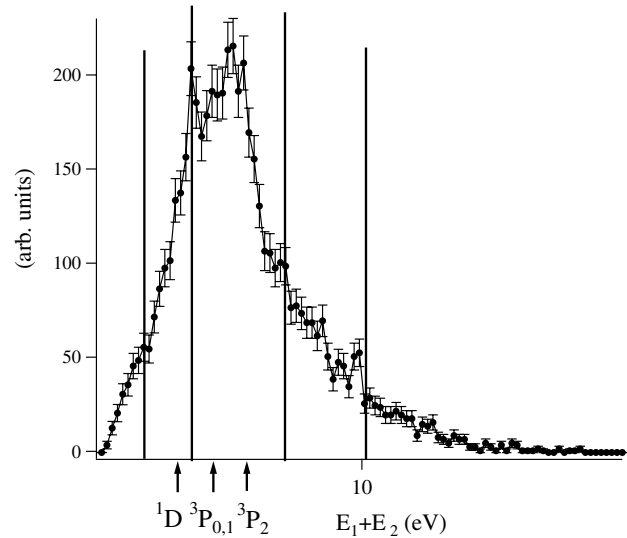


Figure 15. Spectrum of the total energy $E_1 + E_2$ for PDI by the 25th harmonic and infrared. Black vertical lines are shown at the energies 1.7, 3.5, 7.1, 10.1 eV. The total energies corresponding to PDI by the 25th harmonic that leads to various Xe^{++} final states are indicated by black arrows.

expected since in the present case, PDI by the 25th harmonic alone is possible. Deeper insight into the PDI mechanisms can be gained by looking at the 2D plot of the kinetic energy correlation of the two photoelectrons in figure 14, and the distribution $f_{\text{tot}}(E_{\text{tot}})$ of the total energy (equation (1)) in figure 15. Lines at $E_{\text{tot}} = 1.7, 3.5, 7.1$ and 10.1 eV have been drawn in both figures, as well as the $E_2 = 0.3 E_1$ and $E_1 = 0.3 E_2$ lines in the 2D plot. $f_{\text{tot}}(E_{\text{tot}})$ (figure 15) shows that total energies higher than 7.1 eV become accessible to the photoelectron pair, in contrast to one photon PDI with the 25th harmonic

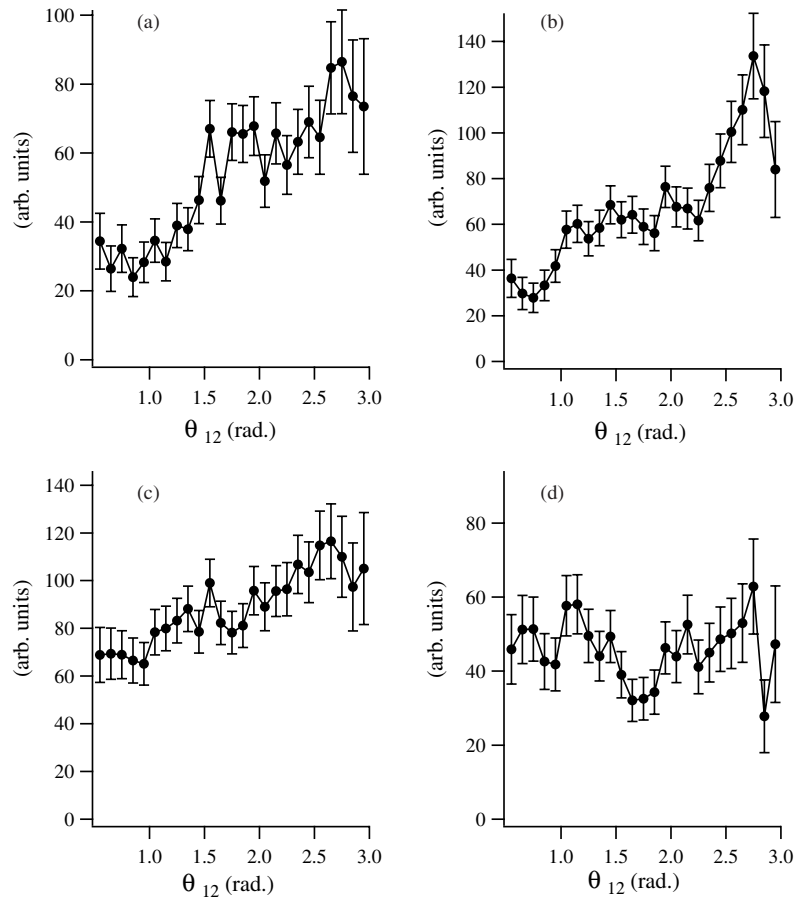


Figure 16. Angular correlations with respect to the angle θ_{12} for various processes in PDI by the 25th harmonic and infrared: (a)–(d) correspond to regions 1–4 of figure 14, respectively.

alone (figure 5). Therefore, purely multi-photon PDI routes contribute to the signal in the [7.1, 10] eV energy range, such as those shown in figure 2(c). To simplify matters, the figure only shows examples with one infrared photon absorbed for the non-sequential routes and two infrared photons absorbed on the sequential ones. However, more infrared photons may be involved in both cases.

Considering first the low energy region ($E_{\text{tot}} < 7.1$ eV) possible contributions of different PDI routes are difficult to identify, making an analysis intricate. In the $3.5 < E_{\text{tot}} < 7.1$ eV region, transitions to P final states involving one XUV photon may be mixed with transitions which involve the absorption of one or two additional infrared photons. The multi-photon transition results in the population of D final states in Xe^{++} , whatever the followed route. Looking at the energy correlation plot (figure 14), the signal is still more intense in region 3 than in region 2. This is reminiscent of our observations in figure 4. In the $1.7 < E_{\text{tot}} < 3.5$ eV region, one XUV photon transition to the D final state may be mixed with one XUV photon absorption plus the emission of one or two infrared photons, the latter leading to the P state through non-sequential routes. Consequently, regions 1–3 can no longer be considered as ‘pure’, i.e. dominated by a single type of route, as was the case in section 2. They still incorporate the PDI

routes shown in figure 2(a), with an overall intensity of about 1.5 in terms of the Xe^{++} yield (from figure 12). However, some of the multi-photon routes shown in figure 2(c) also contribute, with an additional overall intensity of about 1 in terms of the Xe^{++} yield. This contribution is spread over all regions 1 to 4 of figure 14. Interestingly, the region labelled 4 in figure 14, which corresponds to the highest values of E_{tot} ([7.1, 10] eV), appears to be populated only close to the E_1 and E_2 axes, respectively. This means that strongly asymmetric energy sharing is favoured.

The θ_{12} angular probability distributions corresponding to regions 1–4 of figure 14 are displayed in figure 16. For both regions 1 and 2, the probability to find electron pairs with θ_{12} small is slightly higher than it was for PDI with the 25th harmonic alone (figures 6(a) and (b)). The effect of Coulomb repulsion is still clearly visible, as both probabilities increase at higher angles. However, when approaching π , the nodal properties seem to be washed out. Both dependences of the electron pair yield on θ_{12} (figures 16(a) and (b)) are very similar. This is consistent with the above discussion, based on energy arguments in connection with the electron kinetic energy correlation plot and on the total energy spectrum. Regions 1 and 2 may now include sequential routes to PDI, which result in electron pairs without any angular correlation.

Moreover, with the absorption of infrared photons becoming involved, the symmetry properties discussed in section 2 do not hold any more. For instance, adding one infrared photon to the 25th harmonic in the processes considered in section 2 changes the parity of the emitted electron pair from odd to even, thus interchanging a node with an antinode and vice versa. The mixing of processes with different angular correlations destroys the typical dependence of the electron pair yield on θ_{12} (section 2) in the vicinity of $\theta_{12} \approx \pi$ for pairs from regions 1 and 2 of figure 14. For region 3, the observed angular probability distribution in figure 16(c) is almost identical to that shown in figure 6(c): it is rather flat, with a weak increase at large angles. More instructive, however, is the θ_{12} distribution in figure 16(d), associated with region 4 of figure 14. It appears to be completely flat within the statistical error. This is characteristic of two-step processes with uncorrelated photoelectron pairs.

Let us now focus on region 4, where PDI by the 25th harmonic plus infrared is isolated. Both, the electron pair energy distribution (figure 14), peaked at strongly asymmetric kinetic energy sharing, and the flat angular distribution (figure 16(d)), demonstrate that two-step PDI dominates. Two possible processes can account for our findings. The first one is non-sequential indirect ‘*nsi*’ involving Xe^{+*} states which autoionize yielding $\text{Xe}^{++}(5p^4) \ ^3P_2$. This scenario would result in a low kinetic energy electron from the second step, not correlated with the high energy one from the first step. The second scenario is the sequential ‘*s*’ process via Xe^{+*} states lying below the double ionization threshold. Spectroscopic data [20] show that there exist many of these states with binding energies around 29 eV together with the $\text{Xe}^+(5p^4) \ ^1D \ 5d \ (^2S_{1/2})$ state at 28.88 eV which was involved in sequential PDI induced by the 19th harmonic together with the absorption of three infrared photons in the second step (see section 3). The same route is possible with the 25th harmonic, but now with a much higher energy photoelectron in the first step. In addition, also in the second scenario, Xe^{+*} states at higher binding energy (above 30 eV) may be responsible for sequential PDI, with only two infrared photons absorbed in the second step (this case is illustrated in figure 2(c)). Only better statistics and energy resolution would allow one to disentangle all these possible ‘*nsi*’ and ‘*s*’ routes and to determine their respective contributions to PDI in region 4 of the kinetic energy correlation plot, in the vicinity of the E_1 and E_2 axes.

5. Summary

The results reported in paper II for the 17th and 21st harmonics gave evidence of the sequential routes’ contribution to PDI. In that experiment the XUV and infrared pulse widths were different, thus giving rise to an incomplete temporal overlap. This may have resulted in a suppressed ‘*ns*’ contribution to PDI. However, the pulse widths themselves are more important in this respect. In paper II pulses were longer than 2 ps, whereas in the present work the infrared pulse width is 35 fs and the XUV one certainly shorter. These heavily reduced pulse widths should definitely enhance the non-sequential with respect to the sequential routes to PDI.

However, we have shown that sequential appears to dominate over non-sequential PDI for the 19th harmonic.

Our results with the 25th harmonic are more difficult to interpret, despite the powerful momentum imaging technique used which provides the complete momentum vectors of both photoelectrons. Nevertheless, we have shown that for the absorption of one 25th harmonic plus at least one infrared photon, only two processes can account for our observations. By analogy with the results obtained with the 19th harmonic (the same states of the singly charged ion are probably involved), it is tempting to conclude that sequential PDI dominates as well for the 25th harmonic plus infrared. As a general finding, the present study indicates that non-sequential direct PDI is weaker than two-step PDI in the case of xenon.

The present work demonstrates that complete measurements on PDI, where the momentum vectors of both outgoing photoelectrons are determined, can be achieved with high harmonic light sources, at a repetition rate of 1 kHz. The signal-to-noise ratio in the coincidence mode, estimated to be around 20, can be further improved in forthcoming experiments by decreasing the background pressure below 2×10^{-10} Torr. With infrared and harmonic laser pulses combined, the various PDI mechanisms have been analysed for Xe. Since two-step PDI appears to be dominant, the present study appeals for repeating these measurements on lighter atoms, either with XUV plus infrared or visible photons or with two XUV photons. With these lighter atoms, PDI is expected to be simpler to analyse. For example, it is well known that non-sequential direct PDI by two equal energy XUV photons can be isolated for helium. The rapid progress in the development of harmonic and X-FEL sources is likely to make these experiments possible in the near future.

Acknowledgments

We are very grateful to the staff of the SLIC laser facility at Saclay, for constant support and technical help throughout this experiment. HR, MB, ZA and PA acknowledge financial support by the EU (Laserlab RII3-CT-2003-506350).

References

- [1] Avaldi L and Huetz A 2005 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **38** S861
- [2] Laulan S and Bachau 2003 *Phys. Rev. A* **68** 013409
- [3] Morishita T, Watanabe S and Lin C D 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 083003
- [4] Mazeau J, Lablanquie P, Selles P, Malegat L and Huetz A 1997 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **30** L293
- [5] Nabekawa Y, Hasagawa H, Takahashi E J and Midorikawa K 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 043001
- [6] Benis E P, Charalambidis D, Kitsopoulos T N, Tsakiris G D and Tzallas P 2006 *Phys. Rev. A* **74** 051402(R)
- [7] Laarmann T, De Castro A R B, Gürtler P, Laasch W, Schulz J, Wabnitz H and Möller T 2005 *Phys. Rev. A* **72** 023409
- [8] Wabnitz H, De Castro A R B, Gürtler P, Laarmann T, Laasch W, Schulz J and Möller T 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 023001
- [9] Sorokin A A, Wellhöfer M, Bobashev S V, Tiedke K and Richter M 2007 *Phys. Rev. A* **75** 051402(R)
- [10] Moshhammer R *et al* 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203001

- [11] Böttcher M, Rottke H, Zhavoronkov N, Sandner W, Agostini P, Gisselbrecht M and Huetz A 2005 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **38** L389
- [12] Böttcher M, Rottke H, Zhavoronkov N, Sandner W, Agostini P, Gisselbrecht M and Huetz A 2007 *Phys. Rev. A* **75** 033408
- [13] Guyétand O *et al* 2008 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **41** 051002
- [14] Gisselbrecht M, Huetz A, Lavollée M, Reddish T J and Seecombe D P 2005 *Rev. Sci. Instrum.* **76** 013105
- [15] Lavollée M 1999 *Rev. Sci. Instrum.* **70** 2968
- [16] Eland J H D, Vieuxmaire O, Kinugawa T, Labalanquie P, Hall R I and Penent F 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 053003
- [17] Penent F, Palaudoux J, Lablanquie P, Andric L, Feifel R and Eland J H D 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 083002
- [18] Huetz A, Selles P, Waymel D and Mazeau J 1991 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **24** 1917
- [19] Selles P, Mazeau J, Lablanquie P, Malegat L and Huetz A 1998 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **31** L353
- [20] Kikas A, Osborne S J, Ausmees A, Svensson S, Sairanen O P and Aksela S 1996 *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* **77** 241

Résumé

Ce travail de thèse s'attache à l'étude des phénomènes de photoionisation simple et double d'atomes de gaz rares par un rayonnement harmonique produit par un laser infrarouge, et combiné avec celui ci. Les aspects techniques liés à l'utilisation de sources de génération d'harmoniques et à la détection des ions et des électrons utilisant la technique des coïncidences sont exposés. Les aspects théoriques pour les processus de photoionisation simple et double par des photons XUV et infrarouge sont détaillés. Les mesures des spectres et des distributions angulaires des photoélectrons issus de la simple ionisation à deux couleurs d'atomes d'hélium sont présentées et sont confrontées à des calculs théoriques TDSE, dans plusieurs conditions différentes en terme de rayonnement harmonique. La forme des distributions angulaires obtenues peut être interprétée analytiquement dans le cadre de deux approximations distinctes : la théorie des perturbations et l'approximation « soft-photon ». Les expériences sur la double ionisation ont nécessité la construction d'un nouveau système de détection des ions et des électrons en coïncidence (CIEL2). Les mesures de double ionisation ont été réalisées sur le xénon, qui est un atome complexe présentant de nombreux chemins de double ionisation. L'analyse des énergies des deux photoélectrons ainsi que de leur angle mutuel prouve la faisabilité d'une telle expérience sur une source harmonique générée par un laser infrarouge femtoseconde. Elle montre que les processus à deux étapes sont majoritaires dans le cas du xénon. Elle ouvre la voie à des expériences futures de double photoionisation à deux photons des autres gaz rares plus légers.

Abstract

The present work deals with simple and double ionization of rare gases by harmonic radiation produced by, and combined with, an intense femtosecond infrared laser. Technical aspects related to the use of harmonic generation and to the detection of ions and electrons in coincidence are exposed. Theoretical background for two colour, few photon, single and double ionization is detailed. Spectra and angular distributions of the photoelectrons measured in helium are described and compared with TDSE theoretical calculations, for various conditions of the harmonic photons. The shape of the angular distributions can be explained within the frame of two distinct analytic approaches : the perturbation theory and the soft-photon approximation. The double ionization measurements have been performed on xenon, a complex atom characterized by many possible routes leading to double ionization. The analysis of energy and angular correlations of the two photoelectrons proves the feasibility of such experiments, which combine harmonic and infrared radiations. It shows that two step processes are dominant in the case of xenon. This work appeals for extending few photon, double ionization experiments to lighter rare gases.

