HAL
open science

Double ionisation d'atomes en champ laser intense : Cas du magnésium

Francois Mauger, Cristel Chandre, Turgay Uzer

To cite this version:

Francois Mauger, Cristel Chandre, Turgay Uzer. Double ionisation d'atomes en champ laser intense : Cas du magnésium. 13e Rencontre du Non-Linéaire, Mar 2010, Paris, France. pp.109-114. hal-00452092

HAL Id: hal-00452092

https://hal.science/hal-00452092

Submitted on 1 Feb 2010

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.

Double ionisation d'atomes en champ laser intense : Cas du magnésium

François Mauger[1], Cristel Chandre[1], & Turgay Uzer[2]

[1] Centre de Physique Théorique, CNRS – Aix-Marseille Université, Campus de Luminy, case 907, F-13288 Marseille cedex 09, France
[2] School of Physics, Georgia Institute of Technology, Atlanta, GA 30332-0430, USA
mauger@cpt.univ-mrs.fr

Résumé. Nous identifions les structures dans l'espace des phases qui régulent la double ionisation d'atomes (ici le magnésium) soumis à des impulsions laser intenses et très courtes. Cette nouvelle image de la dynamique complète le scénario de la recollision en clarifiant les rôles distincts des électrons interne et externe. Cela conduit à des prédictions sur les intensités caractéristiques du "coude" dans la probabilité de double ionisation en fonction de l'intensité du champ laser, ce coude étant une marque de fabrique des processus non-séquentiels. Nous comparons les résultats obtenus pour le magnésium avec ceux de l'hélium.

Abstract. We identify the phase-space structures that regulate atomic double ionization in strong ultrashort laser pulses. The emerging dynamical picture complements the recollision scenario by clarifying the distinct roles played by the recolliding and core electrons, and leading to verifiable predictions on the characteristic features of the "knee" in the double ionization probability versus intensity of the field, a hallmark of the nonsequential process. We compare the results obtained for magnesium with the ones for helium.

1 Introduction

Une des surprises les plus frappantes de ces dernières années dans l'étude des interactions laser-matière est venue de l'étude de l'ionisation multiple au moyen d'imputions laser ultracourtes et intenses : la probabilité de double ionisation corrélée (non-séquentielle) s'est révélée être de plusieurs ordres de grandeur supérieure à ce que de simples modèles décorrélés prédisaient. Cette différence, se manifestant par un "coude" dans la probabilité de double ionisation en fonction de l'intensité du champ laser, en fait l'une des manifestations les plus importantes de la corrélation entre électrons. Le mécanisme qui rend la corrélation si efficace est loin d'être établi. Différents scénarios ont été proposés pour expliquer les mécanismes sous-jacents à l'ionisation [1,2]. Le modèle de la recollision [2] (dans lequel l'électron qui est le premier ionisé est précipité sur le noyau par le champ laser) est le plus en accord avec les résultats expérimentaux. La figure 1 représente une courbe typique de double ionisation en fonction de l'intensité du champ laser. Elle montre clairement un excès de double ionisation avant saturation par rapport à des prédictions obtenues à partir de modèles décorrélés. Des courbes similaires ont été obtenues avec des calculs quantiques pour différents atomes et molécules. Des travaux (voir par exemple [3]) montrent que les caractéristiques essentielles de la double ionisation sont reproduites au moyen de calculs classiques des trajectoires des électrons. Ce succès a été attribué au rôle prépondérant de la corrélation, présent aussi dans le modèle classique.

Dans une série de travaux [4,5,6], nous avons complété le scénario bien connu de la recollision en identifiant les structures qui organisent les propriétés statistiques des trajectoires classiques telle que la probabilité d'ionisation. En plus de l'image de la dynamique de l'électron ionisé donnée par le scénario de la recollision, nous connectons la dynamique de l'électron resté au voisinage du noyau et l'échange d'énergie qui conduit à la double ionisation avec les structures qui organisent l'espace des phases (essentiellement, des orbites périodiques ou des tores invariants). L'image qui en découle conduit à deux prédictions vérifiables pour les caractéristiques du coude représenté sur la figure 1 : l'intensité du laser pour laquelle la double ionisation non-séquentielle est maximale et celle pour laquelle la double ionisation

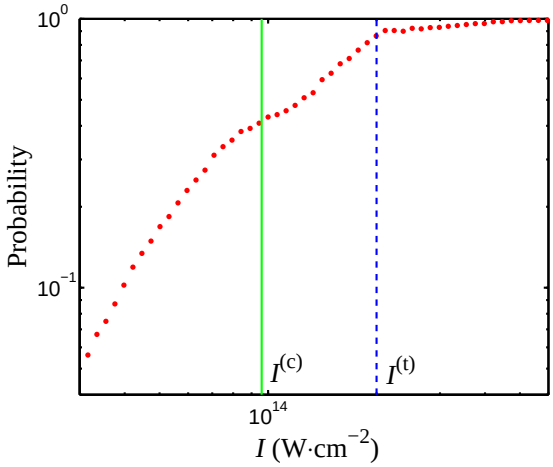

Figure1. Probabilité de double ionisation en fonction de l'intensité du champ laser I pour le hamiltonien (1) pour $\omega = 0.0584$ a.u. (780 nm) avec $a = 3$ et $b = 1$ (magnésium). Les lignes verticales indiquent les intensités pour lesquelles notre analyse prédit le maximum de double ionisation non-séquentielle ($I^{(c)}$, trait continu) et une double ionisation complète ($I^{(t)}$, tirets). (Voir figure 4).

est complète. Ici, nous revisitons ce scénario de la recollision en considérant le cas du magnésium et nous comparons les résultats de double ionisation avec le cas de l'hélium. En particulier, nous identifions un mécanisme très similaire pour la double ionisation non-séquentielle et nous expliquons pourquoi le coude du magnésium est moins prononcé que celui de l'hélium.

2 Modèle et description qualitative

Nous considérons le hamiltonien classique pour le modèle de l'atome de magnésium en utilisant un potentiel de Coulomb régularisé (aussi appelé potentiel de Rochester). Le hamiltonien est donné par :

$$\mathcal{H}\left(x, y, p_x, p_y, t\right) = \frac{p_x^2}{2} + \frac{p_y^2}{2} - \frac{2}{\sqrt{x^2+a^2}} - \frac{2}{\sqrt{y^2+a^2}} + \frac{1}{\sqrt{\left(x-y\right)^2+b^2}} + \left(x+y\right) E\left(t\right) \tag{1}$$

où x et y sont les positions, p_x et p_y les moments canoniquement conjugués associés à chaque électron. L'énergie est initialement fixée à l'état fondamental $\mathcal{E}_g = -0.83$. Les paramètres a et b du hamiltonien (1) sont choisis de la façon suivante : a est choisi de telle sorte qu'il n'y ait aucune double ionisation spontanée sur la surface d'énergie considérée, et b est choisi assez petit afin de fournir suffisamment d'énergie lors d'une recollision. Une borne minimale de a est $-2/\mathcal{E}_g$. Pour le magnésium, on choisit $a = 3$ et $b = 1$ (nous rappelons que pour l'hélium, nous avions choisi $a = 1$ et $b = 1$). Le laser d'amplitude maximale E_0 et de fréquence $\omega = 0.0584$ (correspondant à une longueur d'onde de 780nm) est modulé par une enveloppe $f(t)$, i.e. $E\left(t\right) = E_0 f\left(t\right) \sin \omega t$. L'enveloppe du champ est un trapézoïde composé de deux cycles laser de montée, quatre cycles pour le plateau et deux cycles pour la descente. Une étude qualitative de la dynamique révèle deux chemins distincts pour la double ionisation : la double ionisation non-séquentielle dans laquelle les deux électrons quittent la région du noyau au même moment, et la double ionisation séquentielle dans laquelle les deux électrons sont ionisés à des instants différents.

Afin de comprendre les mécanismes sous-jacents, nous commençons par analyser la dynamique du hamiltonien (1) sans le champ laser ($E_0 = 0$). L'utilisation des propriétés de stabilité linéaire tels que celles données par les indicateurs de Lyapunov en temps fini révèle que la dynamique sur tout l'espace admissible est relativement régulière. Pour mieux visualiser cela, nous considérons des sections de Poincaré (d'équation $p_y = 0$), telles que représentées sur la figure 2. On remarque alors que presque l'intégralité

de l'espace des phases accessible est recouvert par des tores invariants et que les régions chaotiques entre les tores de différentes espèces sont très fines (contrairement à ce que l'on avait observé pour l'hélium où la mer chaotique recouvre tout l'espace admissible).

Sans le champ, l'analyse des trajectoires révèle également un mouvement d'ensemble relatif des électrons, i.e. la quantité $x - y$ varie peu au cours du temps et les deux électrons (de chaque côté du noyau) "vibrent", dans un mouvement presque solide, d'un côté vers l'autre. On peut alors considérer un modèle réduit dans lequel on fixe la distance inter-électronique. Ce modèle est à un degré de liberté (et donc intégrable) et l'espace des phases est recouvert par des orbites périodiques. Le système complet est une déformation du système réduit, ce qui explique la persistance de structures régulières pour le magnésium. Cette quasi-conservation de la distance inter-électronique implique qu'à tout instant, si l'un des électrons est proche du noyau, l'autre s'en trouve alors éloigné. Cela permet de définir, même en l'absence du champ laser, un électron interne et un électron externe.

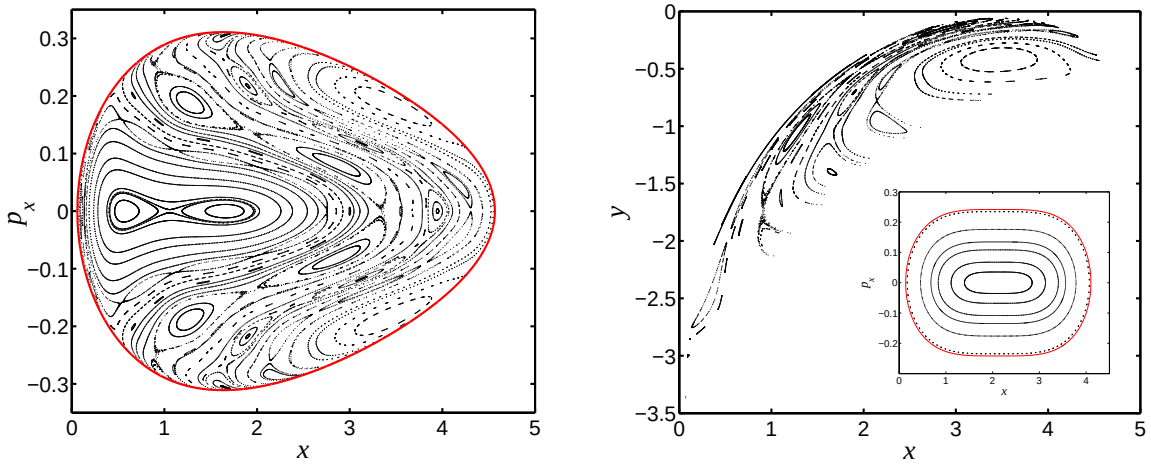

Figure2. Sections de Poincaré pour le hamiltonien (1) sans le champ ($E_0 = 0$) avec $a = 3$ et $b = 1$ pour la section d'équation $p_y = 0$, dans le plan (x, p_x) sur le panneau de gauche et le plan (x, y) sur le panneau de droite. Le panneau intérieur représente quelques orbites périodiques qui recouvrent l'espace des phases du modèle réduit associé à une distance inter-électronique fixe.

3 Ionisation simple

Lorsque le champ est allumé, l'électron externe est attrapé et envoyé loin du noyau. Par conséquent, son hamiltonien effectif est :

$$\mathcal{H}_1 = \frac{p_x^2}{2} + xE_0 f(t) \sin \omega t. \tag{2}$$

On remarque que l'on peut écrire facilement les expressions des trajectoires associées au hamiltonien (2). Les solutions sont composées d'une dérive linéaire modulée par l'action du champ [voir la figure 3].

Pour l'électron interne, le hamiltonien effectif regroupe les interactions avec le noyau et le champ laser :

$$\mathcal{H}_2 = \frac{p_y^2}{2} - \frac{2}{\sqrt{y^2 + a^2}} + yE_0 \sin \omega t. \tag{3}$$

En l'absence de champ ($E_0 = 0$), $\mathcal{H}_2$ est intégrable et l'électron interne est confiné sur une orbite périodique. Puisqu'il est proche du noyau, sa période est approximativement $\pi a^{3/2}\sqrt{2} \approx 23$ obtenue à partir d'une approximation harmonique (ce comportement est observé sur la figure 3).

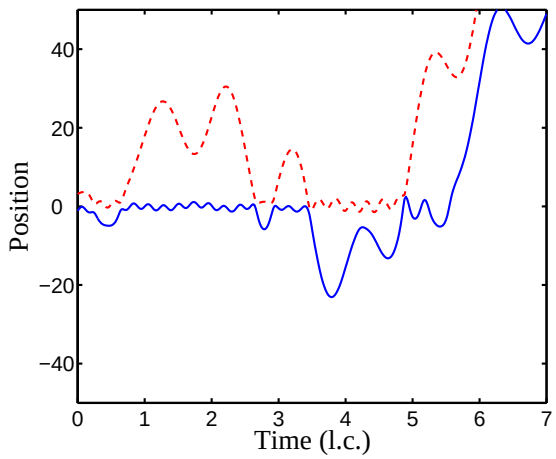

Figure3. Trajectoire typique de double ionisation non-séquentielle pour le hamiltonien (1) avec $a = 3$ et $b = 1$ pour une intensité $I = 5 \times 10^{13}$ W$\cdot$cm^{-2} avec des conditions initiales choisies sur la surface d'énergie associée avec l'état fondamental du magnésium. Les deux positions [x trait continu et y tirets] sont représentées en fonction du temps (exprimé en cycles laser). On observe alors les comportements caractéristique pour les électrons internes et externes, comme prédits par les hamiltoniens effectifs (2) et (3).

4 Double Ionisation Séquentielle (SDI)

Une fois que l'un des électrons est ionisé (généralement pendant la montée du champ), l'autre électron est laissé sous l'influence du noyau et du champ. Son hamiltonien effectif est alors donné par $\mathcal{H}_2$. Sur la figure 4, on représente une carte de l'excursion de l'électron après deux cycles laser ainsi que des sections de Poincaré. Deux régions distinctes apparaissent alors clairement. La première, la région interne, est composée de tores invariants qui sont de petites déformations de ceux obtenus sans le champ pour $\mathcal{H}_2$. Cette région elliptique est organisée autour d'une orbite périodique (elliptique) principale qui a la même période que le champ $2\pi/\omega \approx 107.6$ a.u. Dans cette région, les électrons sont presque insensibles au champ et ne ionisent pas. La seconde région est celle extérieure dans laquelle les électrons ionisent rapidement (c'est la région où le champ l'emporte sur le potentiel d'interaction avec le noyau). Cela correspond à des trajectoires qui double-ionisent séquentiellement. Au contact de ces deux régions, une toute petite interaction (avec l'électron externe par exemple) peut déplacer l'électron interne d'un tore invariant situé près du bord de l'îlot elliptique jusque dans la région externe où il ionise rapidement.

Si l'intensité du laser I est trop faible, alors l'espace des phases est recouvert par des tores invariants et aucune double ionisation séquentielle n'est possible. La probabilité de double ionisation séquentielle dépend donc de la taille de la région régulière autour de l'orbite périodique, et donc de I (comparée à la taille caractéristique de la distribution initiale). Nous avons suivi numériquement la position et la stabilité de cette orbite périodique pour $\omega = 0.0584$. Tant qu'elle existe, cette orbite reste elliptique pour toutes les intensités que nous avons regardées. Avec un dessin stroboscopique (de fréquence ω) l'orbite périodique se trouve proche de $p_y \approx 0$. Sur la figure 4, nous représentons le moment de l'orbite périodique sur le dessin stroboscopique en fonction de I. On remarque que pour des intensités plus grandes que $I^{(t)} \approx 2 \times 10^{14}$ W $\cdot$ cm^{-2}, l'orbite périodique a disparu ainsi que l'îlot elliptique. Par conséquent, on s'attend à ce que la probabilité de double ionisation séquentielle soit égale à 1 pour des intensités plus grandes que $I^{(t)}$. La localisation du maximum du potentiel pour le hamiltonien (3) prédit que cette intensité $I^{(t)}$ est approximativement indépendante de ω. On trouve une amplitude correspondante qui est approximativement égale à $4/(3a^2\sqrt{3})$. On remarque donc que l'intensité correspondante décroît comme $1/a^4$. Pour le magnésium, cette intensité est de 2.6×10^{14} W$\cdot$cm^{-2} (en bon accord avec la valeur donnée par la localisation de l'orbite périodique), à comparer avec 2×10^{16} W $\cdot$ cm^{-2} pour l'hélium, donc une énergie de saturation de la double ionisation de deux ordres de grandeur plus faible que pour l'hélium.

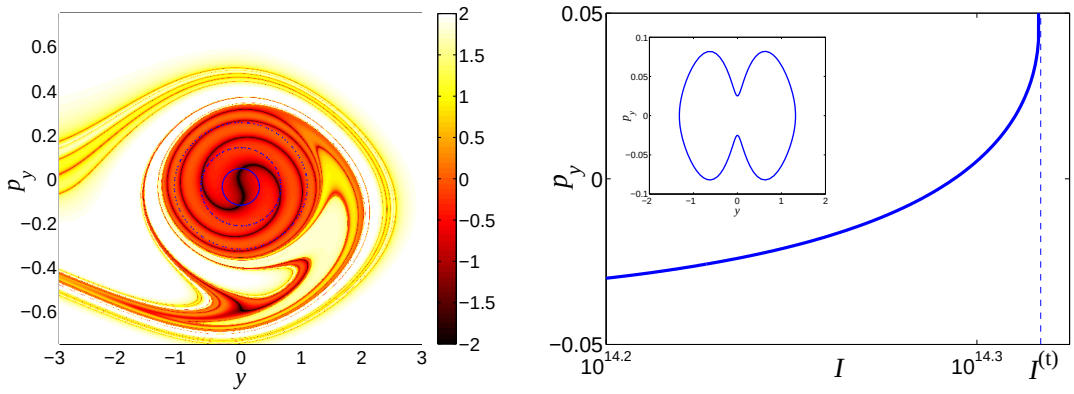

Figure4. Panneau de gauche : Carte de position $y\,(t)$ pour $t = 215.2$ a.u. (2 cycles laser), pour le hamiltonien (3) avec $a = 3$ pour $I = 10^{14}$ W $\cdot$ cm^{-2}. Sections de Poincaré (dessin stroboscopique) pour des trajectoires choisies dans la région elliptique. Le code couleur utilisé est en échelle logarithmique. Panneau de droite : Moment p_y de l'orbite périodique centrale (sur la section de Poincaré) pour le hamiltonien (3) en fonction de l'intensité du champ laser. La ligne verticale en tirets indique l'intensité $I^{(t)} \approx 2 \times 10^{14}$ W $\cdot$ cm^{-2} telle que pour $I \geq I^{(t)}$ une double ionisation séquentielle complète est attendue. Le panneau intérieur représente une projection de cette orbite périodique pour $I = 1.7 \times 10^{14}$ W $\cdot$ cm^{-2} dans le plan (y, p_y).

Ces résultats sont en bon accord avec la simulation d'un ensemble de trajectoires et aussi en très bon accord avec les résultats expérimentaux [7].

5 Double ionisation non-séquentielle

Comme on l'a remarqué plus tôt, lorsque le champ est allumé, son action est concentrée principalement sur un électron, l'électron externe. Le champ pilote l'électron externe loin du noyau, laissant ainsi l'électron interne presque non affecté par le champ puisque sa position reste petite. Avec le processus de recollision [1], l'électron externe peut revenir proche du noyau pendant le plateau du champ laser, si son amplitude n'est pas trop grande. Dans ce cas, l'électron externe transfert une partie de son énergie à l'électron interne par le biais de l'interaction électron-électron. A partir de là plusieurs scénarios sont possibles : Si l'énergie que l'électron externe a communiquée à l'électron interne est suffisante pour lui permettre de s'échapper de la région régulière (comme dans la figure 3) alors les deux électrons peuvent ioniser ensemble. Si l'énergie n'est pas suffisante, alors l'électron interne reste confiné près du noyau. Si l'énergie cédée à l'électron interne est trop grande alors on a un échange des rôles des électrons interne et externe. L'énergie maximale $\mathcal{E}_x$ que l'électron externe gagne lorsqu'il retourne à la région interne (après avoir ionisé avec un moment proche de zéro) est obtenue à partir du hamiltonien (2) : $\mathcal{E}_x = \kappa U_p$ où $U_p = E_0^2/(4\omega^2)$ est l'énergie pondéromotrice et $\kappa \approx 3.17$ [1]. Nous complétons le scénario de la recollision (qui se concentre sur l'électron externe) en fournissant la dynamique de l'électron interne qui contribue à la recollision : Pour ioniser l'électron interne, l'énergie fournie par l'électron externe doit être de l'ordre de grandeur de la différence d'énergie entre l'orbite la plus interne ($y = 0$) et celle à la limite de la région elliptique ($y = y_m$) pour le hamiltonien $\mathcal{H}_2$ (voir figure 4) qui est égale à :

$$\Delta\mathcal{E}_y = \frac{2}{a} - \frac{2}{\sqrt{y_m^2 + a^2}} \tag{4}$$

Une bonne approximation de y_m est donnée par la valeur pour laquelle le potentiel présente un maximum local, i.e. $E_0 = 2y_m/\left(y_m^2 + a^2\right)^{3/2}$. La relation de partage équitable qui lie le modèle classique de l'électron externe x à celui de l'électron interne y :

$$\Delta\mathcal{E}_y = \frac{\mathcal{E}_x}{2} = \frac{\kappa}{2\omega^2}\frac{y_m^2}{\left(y_m^2 + a^2\right)^3} \tag{5}$$

qui définit (à travers une équation implicite) la valeur attendue du champ $E_0^{(c)}$ pour laquelle on réalise le maximum de double ionisation non-séquentielle puisque cela décrit le cas où chaque électron externe ramène assez d'énergie cinétique pour ioniser un électron interne (même dans la configuration la plus stable pour l'électron interne) tout en restant lui même ionisé. Toutefois, remplir cette condition ne garantit pas la double ionisation non-séquentielle : le résultat final dépend du nombre et de l'efficacité des recollisions. Pour $\omega = 0.0584$, la valeur prévue par l'équation (5) pour l'amplitude du champ $E_0^{(c)}$ correspond à une intensité $I^{(c)} = 9.59 \times 10^{13}$ W $\cdot$ cm^{-2} et se trouve être en très bon accord avec la simulation représentée sur la figure 1. Un développement de $E_0^{(c)}$ obtenu à partir des équations (4) et (5) donne :

$$E_0^{(c)} = \frac{4\omega}{\sqrt{\kappa a}} - \left(\frac{2\omega}{\sqrt{\kappa}}\right)^{3/2} a^{1/4} + O\left(\frac{4\omega^2}{\kappa}\right), \tag{6}$$

pour ω assez petit. A l'ordre dominant, l'intensité varie comme ω^2. Il est aussi intéressant de noter que cette intensité décroît avec a (avec un rapport $1/a$), ce qui explique que le maximum de double ionisation séquentielle est observé à une intensité plus faible pour le magnésium que pour l'hélium. Pour $\omega = 0.0584$, l'intensité donnée par l'équation (6) est 10^{14} W $\cdot$ cm^{-2} ce qui est très proche de la valeur calculée pour $I^{(c)}$. Lorsque l'amplitude E_0 du champ est trop petite, alors l'électron externe ne peut pas acquérir assez d'énergie pour ioniser l'électron interne. Lorsque le champ E_0 est trop grand alors l'électron externe ne recollisionne pas avec l'électron interne puisqu'il quitte la région d'interaction presque linéairement. Ces deux limites expliquent les composantes asymptotiques de la courbe de double ionisation non-séquentielle. Une analyse plus poussée, en particulier celle du processus de recollision, permet de déduire une forme en cloche pour cette probabilité de double ionisation [6]. Ceci, mis en commun avec la courbe monotone de probabilité de double ionisation séquentielle explique la forme du coude dans la probabilité totale de double ionisation.

Pour comparer la forme du coude du magnésium avec celle de l'hélium, on regarde les variations des deux intensités caractéristiques $I^{(c)}$ et $I^{(t)}$ avec a. On rappelle que $I^{(c)}$ décroît comme $1/a$ alors que $I^{(t)}$ décroît beaucoup plus vite en $1/a^4$. La conséquence est que le pic de double ionisation non-séquentielle se rapproche du pic de double ionisation séquentielle lorsqu'on augmente a. Ce qui a pour conséquence d'avoir un coude moins marqué pour le magnésium que pour l'hélium.

Remerciements : Ce travail bénéficie du soutien financier du CNRS (sous la forme d'un contrat PICS) et de la NSF.

Références

1. P. B. Corkum, Plasma perspective on strong field multiphoton ionization, *Physical Review Letters*, **71** (13), 1994 (1993).
2. W. Becker et H. Rottke, Many-electron strong-field physics, *Contemporary Physics*, **49** (3), 199 (2008).
3. P. J. Ho et R. Panfili et S. L. Haan et J. H. Eberly, Nonsequential Double Ionization as a Completely Classical Photoelectric Effect, *Physical Review Letters*, **94** (9), 093002 (2005).
4. F. Mauger, C. Chandre et T. Uzer, Strong Field Double Ionization : The Phase Space Perspective, *Physical Review Letters*, **102** (17), 173002 (2009).
5. F. Mauger, C. Chandre et T. Uzer, Strong field double ionization : what is under the knee ?, *Journal of Physics B*, **42** (16), 165602 (2009).
6. F. Mauger, C. Chandre et T. Uzer, From Recollisions to the Knee : A Road map for Double ionization in Intense Laser Fields, *Physical Review Letters*, **104** (4), 043005 (2010).
7. G. D. Gillen, M. A. Walker et L. D. Van Woerkom, Enhanced double ionization with circularly polarized light, *Physical Review A*, **64** (4), 043413 (2001).