



Bifurcation dans la configuration électronique d'un atome soumis à un champ laser de forte intensité

Jonathan Dubois, S A Berman, C. Chandre, T Uzer

► To cite this version:

Jonathan Dubois, S A Berman, C. Chandre, T Uzer. Bifurcation dans la configuration électronique d'un atome soumis à un champ laser de forte intensité. 21ème Rencontre du Non Linéaire, Mar 2018, Paris, France. hal-01735591

HAL Id: hal-01735591

<https://hal.science/hal-01735591>

Submitted on 22 Mar 2018

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.

Bifurcation dans la configuration électronique d'un atome soumis à un champ laser de forte intensité

J. Dubois¹, S. A. Berman^{1,2}, C. Chandre¹ & T. Uzer²

¹ Aix Marseille Univ, CNRS, Centrale Marseille, I2M, Marseille, France

² School of Physics, Georgia Institute of Technology, Atlanta, Georgia 30332-0430, USA

jonathan.dubois@univ-amu.fr

Résumé. On considère un atome soumis à un champ laser de forte intensité polarisé elliptiquement. Les moments des électrons ionisés sont analysés en terme de distributions, appelées “Photoelectrons Momentum Distributions” (PMDs). La forme des PMDs dépend fortement des paramètres du laser, et en particulier de l'ellipticité du laser. On présente une analyse des distributions statistiques du modèle hamiltonien calculées à l'aide de méthodes de Monte Carlo. On observe une bifurcation associée aux moments des électrons en fonction de l'ellipticité, en accord avec les mesures expérimentales.

Abstract. We consider an atom driven by a strong laser field elliptically polarized. Ionized electron momenta are analyzed in terms of distributions, namely Photoelectrons Momentum Distributions (PMDs). The shape of the PMDs strongly depends in the laser parameters. We present an analyses of the ionized electron momentum distributions computed from Monte Carlo methods. We observe a bifurcation associated with the electron momenta as a function of the ellipticity, in agreement with experiments.

1 Introduction

On considère un atome soumis à un champ laser intense, d'intensité I . Si I est trop faible, la force du champ laser n'est pas assez forte pour entrer en compétition avec la force de Coulomb, i.e., il n'y a pas d'ionisation. Si I est trop fort, l'ionisation est directe, c'est-à-dire que le champ laser est si fort que l'électron est éjecté de l'ion parent et sa dynamique est décrite comme s'il n'y avait pas d'effet de Coulomb : c'est l'approximation en champ fort [Strong Field Approximation (SFA)]. Pour des intensités intermédiaires, la dynamique devient riche, typiquement pour $I \in [10^{13}, 10^{16}] \text{ W.cm}^{-2}$, là où la force du champ laser et la force de Coulomb sont en compétition. Pour ces valeurs d'intensités, l'électron ionisé peut retourner sur l'ion parent, c'est ce qu'on appelle une recollision.

La recollision [1] est un processus clé en physique attoseconde. Le scénario semi-classique de la recollision est définie par trois étapes : (i) l'électron dépasse la barrière de potentiel de l'atome par effet tunnel, évincée par le champ électrique, (ii) se meut librement dans le champ électrique, puis retourne sur l'atome, (iii) est diffusé par l'atome, de façon élastique ou inélastique, ou recombine avec la partie toujours bornée de son propre paquet d'onde. Dans le cas de la diffusion élastique, l'électron gagne de l'énergie dû aux fortes non-linéarités de l'interaction Coulomb-Laser avant d'ioniser : c'est le phénomène d'ionisation au-dessus du seuil [Above-Threshold Ionization (ATI)]. Dans le cas de la diffusion inélastique, l'électron échange de l'énergie avec un ou plusieurs électrons de l'ion parent, qui provoque une ionisation multiple : c'est le phénomène d'ionisation multiple non-séquentielle [Non-Sequential Multiple Ionization (NSMI)]. Dans le cas où le paquet d'onde conduit par l'électron dans le continuum recombine avec le paquet d'onde qui est resté borné proche du noyau, les interférences de ces paquets d'onde produit une radiation électromagnétique de haute fréquence : c'est la génération de hautes harmoniques [High Harmonic Generation (HHG)]. Les électrons qui recollisionnent sont appelés les *électrons diffusés*, tandis que ceux qui ne recollisionnent pas sont appelés les *électrons directs*.

Dans les expériences, les moments des électrons ionisés sont mesurés, puis analysés au travers de distributions en moment, appelées “Photoelectron Momentum Distributions” (PMDs). A partir de ces distributions, il est possible de déterminer la structure des atomes ou des molécules [2]. Aussi, on peut

analyser leurs distributions angulaire ou leurs distributions en énergie, appelées “Photoelectron Angular Distributions” (PADs) ou ATI spectrum. Les électrons directs et les électrons diffusés contribuent tous deux à ces distributions. La forme des distributions en moment des électrons ionisés varie fortement en fonction des paramètres du laser comme l’intensité, la fréquence ou l’ellipticité. Notre objectif est de comprendre la forme des distributions, et comment elles varient.

Dans un premier temps, nous présentons un modèle hamiltonien que nous étudions. Dans un second temps, nous présentons la technique utilisée pour calculer les distributions des moments des électrons ionisés, puis nous analysons les distributions obtenues.

2 Modèle Hamiltonien en approximation dipolaire

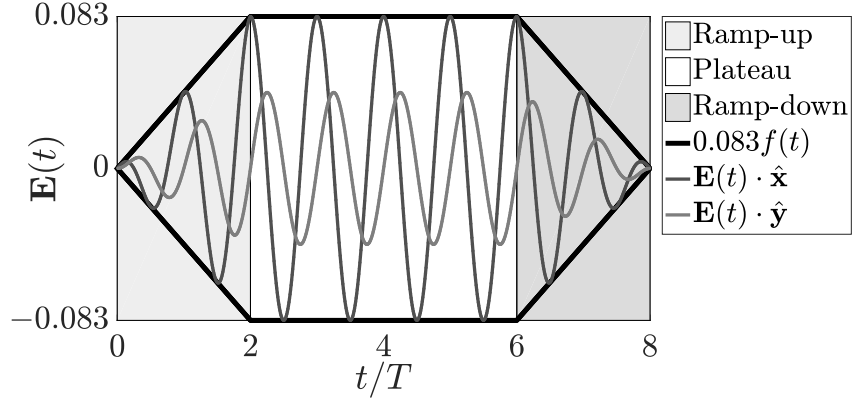


Figure 1. Champ électrique $\mathbf{E}(t)$ en fonction du temps par cycle laser, pour une intensité $I = 3 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ et une ellipticité $\xi = 0.5$. On a donc $E_0(\xi^2 + 1)^{-1/2} \approx 0.083$. Les courbes en gris foncé et en gris clair sont respectivement le champ électrique selon l’axe majeur de polarisation $\hat{\mathbf{x}}$ et selon l’axe mineur de polarisation $\hat{\mathbf{y}}$. La courbe noire est $f(t)E_0(\xi^2 + 1)^{-1/2}$, proportionnelle à l’enveloppe du champ. Les zones en gris clair, en blanc et en gris foncé sont respectivement le ramp-up, le plateau et le ramp-down du champ.

Nous utilisons un modèle hamiltonien afin de déterminer la dynamique de l’électron en interaction avec l’ion et le champ laser de forte intensité. Le potentiel scalaire et le potentiel vecteur du champ électrique sont respectivement notés $\varphi(\mathbf{r}, t)$ et $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$, et dépendent des coordonnées spatiales $\mathbf{r}$ et temporelle t . L’échelle de distance caractéristique d’un électron dans un champ électrique est E_0/ω^2 , où E_0 et ω sont respectivement l’amplitude et la fréquence du champ électrique. Nous supposons que l’échelle caractéristique de distance de l’électron est petite comparée à la longueur d’onde du champ, i.e., $E_0/\omega^2 \ll 2\pi c/\omega$, ce qui nous permet d’utiliser l’approximation dipolaire $\phi(\mathbf{r}, t) = \phi(t)$ et $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}(t)$: les effets magnétiques sont alors négligés. Dans cette approximation, le champ électrique est $\mathbf{E}(t) = -\partial\mathbf{A}(t)/\partial t$, et le hamiltonien du système s’écrit comme

$$H(\mathbf{r}, \mathbf{p}, t) = \frac{|\mathbf{p}|^2}{2} + V(\mathbf{r}) + \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t). \quad (1)$$

Les unités atomiques (u.a.) sont utilisées tout au long du manuscrit. La position de l’électron est $\mathbf{r}$ et son moment canoniquement conjugué est $\mathbf{p}$. Le potentiel que nous utilisons est le potentiel de Coulomb régularisé [3], i.e., $V(\mathbf{r}) = -(|\mathbf{r}|^2 + 1)^{-1/2}$. Le champ électrique que nous utilisons est polarisé elliptiquement et s’écrit

$$\mathbf{E}(t) = \frac{f(t)E_0}{\sqrt{\xi^2 + 1}} [\hat{\mathbf{x}} \cos(\omega t + \phi) + \hat{\mathbf{y}} \xi \sin(\omega t + \phi)].$$

Les paramètres ξ et ϕ sont respectivement l'ellipticité du champ et sa phase. La période du champ est donnée par $T = 2\pi/\omega$. Les axes $\hat{x}$ et $\hat{y}$ sont respectivement appelés les axes de polarisation majeur et mineur. Les composantes du champ électrique sont montrées sur la figure 1. L'enveloppe du champ $f(t)$ est de la forme : ramp-up de durée $2T$, plateau de durée $4T$, ramp-down de durée $2T$. L'amplitude du champ électrique est reliée à son intensité par

$$E_0 \text{ (u.a.)} = 5.338 \times 10^{-9} \sqrt{I \text{ (W.cm}^{-2}\text{)}}.$$

Tout au long de ce manuscrit, nous utilisons un champ électrique d'une intensité $I = 3 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ et de longueur d'onde $\lambda = 780 \text{ nm}$, où $\lambda = 2\pi c/\omega$. Pour une intensité $I = 3 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$, on a $E_0 = 9.925 \times 10^{-2} \text{ u.a.}$ Lorsque l'électron est hors du noyau, sa distance caractéristique est alors de $E_0/\omega^2 \approx 25 \text{ u.a.}$ qui est très petit devant la longueur d'onde $\lambda \approx 1.5 \times 10^4 \text{ u.a.}$ L'énergie de l'atome est elle de l'ordre de l'énergie de l'état fondamental $\mathcal{E}_g \sim 1 \text{ u.a.}$ Le caractère compétitif entre la force de Coulomb et la force du champ laser permet de localiser l'électron : si l'électron est à l'intérieur de l'atome, alors la force de Coulomb prédomine, cependant si l'électron est en-dehors de l'atome, alors c'est la force du champ laser qui prédomine.

3 Distributions des moment des électrons ionisés

Dans cette section, nous présentons dans un premier lieu, la méthode de marche aléatoire de Metropolis qui nous a permis de calculer les distributions en moment du hamiltonien (1). Enfin, nous analysons ces distributions.

3.1 Détermination des conditions initiales des électrons

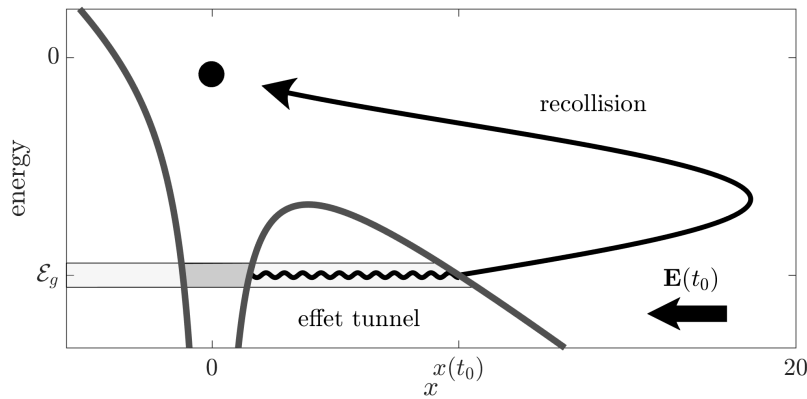


Figure 2. Schéma 1D du scénario semi-classique de la recollision pour $I = 3 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$. La courbe en gris foncé représente le potentiel effectif du système pour $\omega t + \phi = \pi$, quand le champ est maximal selon l'axe majeur de polarisation. La zone grise représente l'“énergie” et la “position” du paquet d'onde dans son état initial. Les zones en gris clair représentent les zones où le paquet d'onde peut potentiellement se diffuser par effet tunnel. La courbe noire est la trajectoire de l'électron dans le modèle semi-classique : (i) ionisation par effet tunnel, (ii) la trajectoire de l'électron est initialisée sur la barrière de potentiel, et sa dynamique est décrite par SFA.

Dans la théorie de la recollision, l'électron ionise par effet tunnel. L'idée est que la fonction d'onde de l'atome isolé est faiblement perturbée par le champ électrique près du noyau, ce dernier de l'ordre de E_0 . De plus, on suppose que la fréquence du champ laser est forte comparée à la fréquence d'ionisation par effet tunnel, on peut alors utiliser une approximation quasi-statique du potentiel effectif pour calculer le

taux d'ionisation. Le taux d'ionisation de l'électron est déterminé par la formule de Ammosov-Delone-Krainov [5] (ADK) qu'on note $W(t_0, v_\perp)$, où t_0 et $v_\perp$ sont respectivement le temps d'ionisation et la vitesse transverse initiale de l'électron. Le taux d'ionisation avec les conditions initiales $(t_0, v_\perp)$ est donné par

$$W(t_0, v_\perp) \propto \left[\frac{(2I_p)^2}{|\mathbf{E}(t_0)|} \right]^{\sqrt{2/I_p}} \exp \left[-\frac{(2I_p)^{3/2}}{|\mathbf{E}(t_0)|} \left(\frac{2}{3} + \frac{v_\perp^2}{2I_p} \right) \right]. \quad (2)$$

On suppose qu'après ionisation par effet tunnel, l'électron est sur la barrière de potentiel et dans la direction du champ électrique, comme l'indique la figure 2. Sa vitesse initiale est nulle dans la direction du champ électrique. Par conséquent, les conditions initiales de l'électron sont entièrement déterminées par t_0 et $v_\perp$, et s'écrivent

$$\mathbf{r}_0 = -\frac{I_p \mathbf{E}(t_0)}{2|\mathbf{E}(t_0)|^2} \left[1 + \left(1 - \frac{4|\mathbf{E}(t_0)|}{I_p^2} \right)^{1/2} \right],$$

$$\mathbf{p}_0 = v_\perp \hat{\mathbf{n}}.$$

Le vecteur $\hat{\mathbf{n}}$ est unitaire et transverse au champ électrique, i.e., $\hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{E}(t_0) = 0$. Après l'ionisation par effet tunnel, l'électron est dans le continuum, et sa dynamique peut être décrite classiquement en intégrant les équations du mouvement du hamiltonien (1). Pour calculer la distribution en moment $f(\mathbf{P})$ des électrons ionisés, il suffit d'intégrer chaque trajectoire classiquement et de la pondérer par le poids $W(t_0, v_\perp)$ qui lui est associé, i.e.,

$$f(\mathbf{P}) = \int_0^{T_f} dt_0 \int_{-\infty}^{\infty} dv_\perp W(t_0, v_\perp) \delta(\mathbf{P} - \mathbf{p}(t_0, v_\perp; t \rightarrow \infty)).$$

Ici, $T_f = 8T$, c'est le dernier instant tel que l'enveloppe du champ est non-nulle, et δ est la distribution de Dirac. L'observable $\mathbf{P}$ correspond au moment des électrons ionisés, c'est-à-dire le moment des électrons lorsqu'ils ont atteint le détecteur.

Les méthodes de Monte Carlo consistent à calculer f en générant aléatoirement des valeurs de variables distribuées selon la loi de distribution W , puis de calculer

$$f(\mathbf{P}) \approx \frac{1}{N} \sum_{\{(t_0^{(i)}, v_\perp^{(i)}) \sim W\}_{i=1}^N} \delta(\mathbf{P} - \mathbf{p}(t_0^{(i)}, v_\perp^{(i)}; t \rightarrow \infty)).$$

La loi de distribution W n'étant pas de forme simple, nous utilisons la *méthode de rejet* –plus communément appelée la marche aléatoire de Metropolis [6]– afin de générer aléatoirement des variables $t_0^{(i)}$ et $v_\perp^{(i)}$ distribuées selon la loi de probabilité W . Les étapes de l'algorithme sont schématisées sur la figure 3.

Nous considérons un point initial $(t_0^{(0)}, v_\perp^{(0)})$ généré de manière uniforme dans l'espace des configurations possibles. A chaque itération, un point test $(t_0^{(t)}, v_\perp^{(t)})$ est généré uniformément de façon aléatoire dans le disque de rayon η centré au point précédent $(t_0^{(i)}, v_\perp^{(i)})$. Pour cela, deux variables μ_1 et μ_2 sont générées aléatoirement et uniformément dans l'intervalle $[0, 1]$, i.e., $(\mu_1, \mu_2) \sim \mathcal{U}(0, 1)$, et la valeur associée au point test est $(t_0^{(t)}, v_\perp^{(t)}) = (t_0^{(i)}, v_\perp^{(i)}) + \eta \sqrt{\mu_1} (\cos(2\pi\mu_2), \sin(2\pi\mu_2))$. A ce stade, une troisième variable μ_3 est générée uniformément dans l'intervalle $[0, 1]$, i.e., $\mu_3 \sim \mathcal{U}(0, 1)$.

- Si $\mu_3 < W(t_0^{(t)}, v_\perp^{(t)})/W(t_0^{(i)}, v_\perp^{(i)})$, alors le point test est accepté $(t_0^{(i+1)}, v_\perp^{(i+1)}) = (t_0^{(t)}, v_\perp^{(t)})$.
- Si $\mu_3 > W(t_0^{(t)}, v_\perp^{(t)})/W(t_0^{(i)}, v_\perp^{(i)})$, alors le point test est refusé $(t_0^{(i+1)}, v_\perp^{(i+1)}) = (t_0^{(i)}, v_\perp^{(i)})$.

L'étape de refus du point test est importante afin de satisfaire l'équation maîtresse des chaînes de Markov, et ainsi d'assurer que la distribution des valeurs suit la loi de probabilité donnée par l'équation. (2).

En d'autre termes, cette méthode est une marche aléatoire biaisée, qui permet de sonder les conditions initiales qui ont le plus de poids. Ainsi, on s'assure que les trajectoires calculées à partir des conditions initiales échantillonnées ont toutes une contribution significative dans la distribution finale.

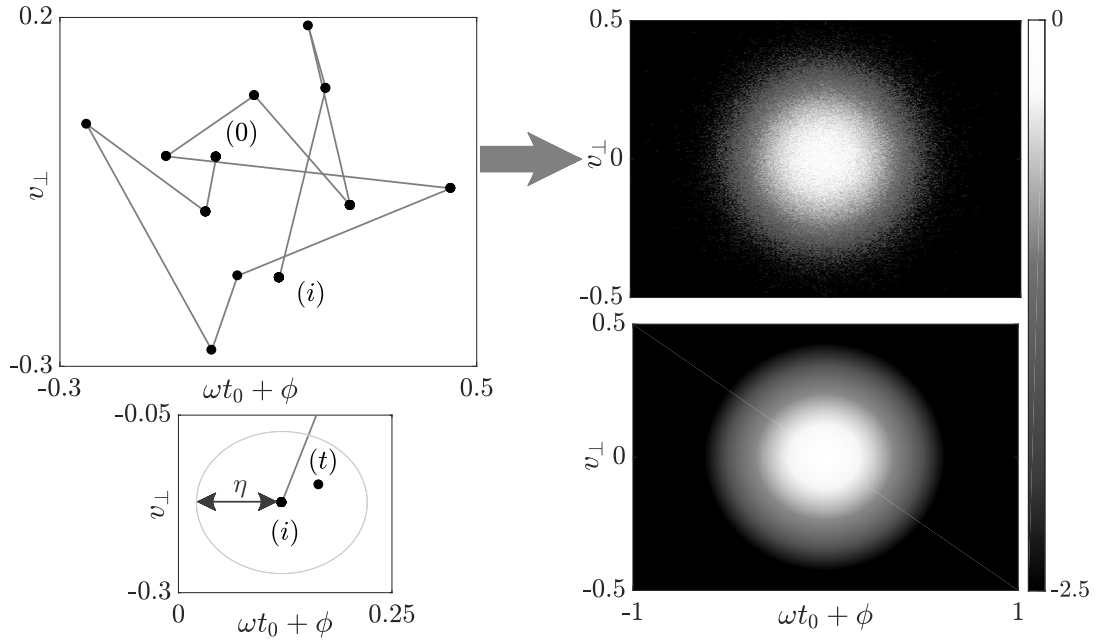


Figure 3. Schéma de l'algorithme de marche aléatoire de Metropolis pour $I = 3 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ et $\xi = 0.5$. En haut à gauche : Une chaîne de Markov selon la méthode de rejet pour 50 itérations. En bas à gauche : Schéma de la détermination du point test (t) à partir du point (i). En haut à droite : La distribution des conditions initiales obtenue en utilisant l'algorithme de marche aléatoire de Metropolis pour 4×10^6 trajectoires. En bas à droite : Distribution calculée en utilisant l'équation (2). Le maximum des distributions est arbitrairement fixé. Les distributions sont représentées en échelle logarithmique.

3.2 Bifurcation des PMDs

Sur le panneau du bas de la figure 4, nous montrons la distribution en moment selon l'axe mineur de polarisation P_y du modèle calculé en utilisant les méthodes de Monte Carlo. A faible ellipticité, pour $\xi = 0.1$, on observe que la distribution est centrée en $P_y = 0$. Ce phénomène est appelé la focalisation de Coulomb (Coulomb focusing). C'est-à-dire qu'une forte proportion d'électrons ionisée est ramenée vers le noyau. A forte ellipticité, pour $\xi = 0.4$, nous observons que les électrons ionisés sont décentrés de l'origine, et le Coulomb focusing semble s'être estompé. De plus, nous observons que la distribution est décentrée de $P_x = 0$, c'est ce qu'on appelle l'asymétrie de Coulomb (Coulomb asymmetry). Après ionisation, les électrons sont toujours sujets à l'attraction de Coulomb. Cette interaction dévie leur trajectoire après ionisation. Dans les distributions en moments, nous observons donc ce décalage de $P_x < 0$. Pour des ellipticités intermédiaires, on observe un cross-over entre les formes observées à faible, et à forte ellipticité.

Sur les panneaux du haut de la figure 4, nous montrons la distribution en moment selon l'axe mineur de polarisation P_y . A faible ellipticité, on observe que la distribution est centrée autour de $P_y = 0$. Cette contribution est due aux électrons diffusés par le noyau. Lorsque l'ellipticité augmente, on observe que la proportion d'électrons diffusés diminue. Pour $\xi \approx 0.15$, on observe une bifurcation. Après la bifurcation, la proportion d'électrons directs est très forte comparée à la proportion d'électrons diffusés. Cette bifurcation est un indicateur de la réduction du nombre d'électrons diffusés. Ces résultats sont en accord avec les résultats expérimentaux [7,8].

Remerciements

The project leading to this research has received funding from the European Union's Horizon 2020 research and innovation program under the Marie Skłodowska-Curie grant agreement No 734557.

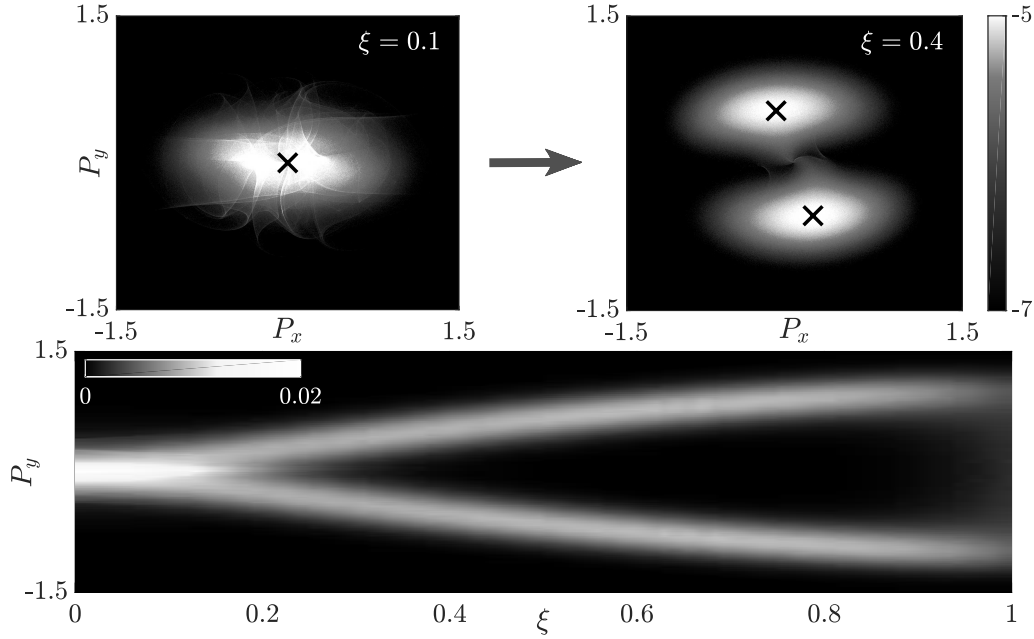


Figure 4. Distribution des moments en fonction de l'ellipticité ξ , pour un atome He. L'intensité et la fréquence du laser sont respectivement $I = 3 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ et $\omega = 0.0584 \text{ u.a.}$. En haut : Distribution des moments des électrons ionisés dans le plan (p_x, p_y) en échelle logarithmique, pour $\xi = 0.1$ (à gauche) et $\xi = 0.4$ (à droite). Les croix blanches montrent le pic de la distribution. En bas : Distribution des moments selon l'axe mineur de polarisation en fonction de l'ellipticité ξ en échelle linéaire.

Références

1. P. B. CORKUM, Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization, *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 1994 (1993).
2. M. MECKEL *et al.*, Laser-induced electron tunneling and diffraction, *Science*, **320**, 1478 (2008).
3. J. JAVANAINEN *et al.*, Numerical simulations of multiphoton ionization and above-threshold electron spectra, *Phys. Rev. A*, **38**, 3430 (1988).
4. J. R. CARY *et al.*, Noncanonical Hamiltonian mechanics and its application to magnetic field line flow, *Ann. Phys.*, **151**, 1 (1983).
5. M. V. AMOSOV *et al.*, Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field, *Sov. Phys. JETP*, **64**, 6 (1986).
6. N. METROPOLIS *et al.*, Equation of state calculations by fast computing machines, *J. Chem. Phys.*, **21**, 1087 (1953).
7. A. S. LANDSMAN *et al.*, Unified approach to probing Coulomb effects in tunnel ionization for any ellipticity of Laser light, *Phys. Rev. Lett.*, **101**, 263001 (2013).
8. M. LI *et al.*, Experimental verification of the nonadiabatic effect in strong-field ionization with elliptical polarization, *Phys. Rev. A*, **95**, 053425 (2017).