



**HAL**  
open science

# Ionisation des atomes alcalins produite par des lasers par absorption de trois photons : comparaison des sections efficaces théoriques et expérimentales

G. Laplanche, Y. Flank, M. Jaouen, A. Rachman

► **To cite this version:**

G. Laplanche, Y. Flank, M. Jaouen, A. Rachman. Ionisation des atomes alcalins produite par des lasers par absorption de trois photons : comparaison des sections efficaces théoriques et expérimentales. *Journal de Physique*, 1977, 38 (10), pp.1237-1241. 10.1051/jphys:0197700380100123700 . jpa-00208692

**HAL Id: jpa-00208692**

**<https://hal.science/jpa-00208692>**

Submitted on 4 Feb 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.

Classification  
 Physics Abstracts  
 32.00 — 32.80F

## IONISATION DES ATOMES ALCALINS PRODUITE PAR DES LASERS PAR ABSORPTION DE TROIS PHOTONS : COMPARAISON DES SECTIONS EFFICACES THÉORIQUES ET EXPÉRIMENTALES (\*)

G. LAPLANCHE, Y. FLANK, M. JAOUEN et A. RACHMAN

Laboratoire d'Optique Quantique, Faculté des Sciences, 86022 Poitiers Cedex, France

(Reçu le 27 janvier 1977, révisé le 15 juin 1977, accepté le 21 juin 1977)

**Résumé.** — Dans ce travail nous avons calculé les sections efficaces d'ionisation des atomes alcalins, par absorption simultanée de trois photons, pour des lumières linéairement et circulairement polarisées ; ceci dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique. Les sommes infinies, sur l'ensemble complet des états atomiques non perturbés, qui apparaissent dans le  $N$ -ième ordre de la théorie des perturbations dépendante du temps, sont calculées en utilisant le formalisme des fonctions de Green et la méthode du défaut quantique. Les résultats que nous obtenons sont comparés avec les valeurs expérimentales publiées par Cervenán, Chan et Isenor.

**Abstract.** — In this work, three-photon ionization cross-sections of alkali atoms for linearly and circularly polarized light have been calculated in the electric dipole approximation. The infinite summations over the complete set of unperturbed atomic states, appearing when  $N$ th-order time-dependent perturbation theory is applied, have been calculated by using the Green's function formalism and the quantum defect method. Our theoretical results are compared with the values experimentally obtained by Cervenán, Chan and Isenor.

Dans ce travail nous avons calculé les sections efficaces d'ionisation des atomes alcalins, par absorption simultanée de trois photons de lumière linéairement et circulairement polarisée, ainsi que le rapport des probabilités circulaire et linéaire  $W^C/W^L$ . Nos valeurs ont été calculées au voisinage, et pour la longueur d'onde du Rubis pour laquelle il existe des résultats expérimentaux [3] permettant d'effectuer des comparaisons.

Les méthodes perturbatives sont couramment employées pour décrire théoriquement l'absorption multiphotonique et pour calculer les probabilités d'ionisation sous l'action de champs électromagnétiques intenses pour des flux photoniques où la théorie est encore valide. Quand nous appliquons la théorie des perturbations dépendante du temps au  $N$ -ième ordre la principale difficulté, rencontrée au cours de tels calculs, est celle de la somme infinie sur l'ensemble complet des états atomiques non perturbés des spectres discret et continu.

Différentes approches ont été utilisées pour résoudre ce problème. Bebb et Gold [7] calculent la somme de manière approchée en introduisant une fréquence moyenne  $\bar{\omega}$  directement liée au spectre énergétique

réel de l'atome. De cette façon la somme infinie est remplacée par un terme moyen, de telle sorte que la propriété de fermeture des vecteurs d'état de l'espace de Hilbert peut être utilisée pour écarter du problème les transitions sur les états intermédiaires. Gontier et Trahin [8] font des calculs exacts pour l'hydrogène atomique en reliant les sommes infinies aux solutions d'un ensemble d'équations différentielles du premier ordre. Récemment la méthode des fonctions de Green a été introduite pour effectuer cette somme. Elle présente l'avantage de permettre d'évaluer les éléments de matrice de manière analytique fermée.

Au premier ordre non nul de la théorie des perturbations dans l'approximation non relativiste, la section efficace d'ionisation à trois photons est reliée au terme  $K_{f,i}^{(3)}$  — élément de matrice de transition de l'état initial  $i$  à l'état final  $f$  — donné en unités atomiques par [1], en se limitant à l'approximation dipolaire électrique seulement :

$$K_{f,i}^{(3)}(\omega) = \langle f(\mathbf{r}_1) | \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{r}_1 G(E_i + 2\omega, \mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \times \\ \times \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{r}_2 G(E_i + \omega, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3) \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{r}_3 | i(\mathbf{r}_3) \rangle \quad (1)$$

où  $\boldsymbol{\varepsilon}$  est le vecteur unitaire de polarisation,  $\mathbf{r}$  est le rayon vecteur de l'électron,  $E_i$  est l'énergie de l'état électronique initial et  $\omega$  l'énergie du photon incident.

(\*) Communication présentée au Congrès National de Physique des Plasmas, Paris, 6-10 décembre 1976.

Les états initial et final  $|i\rangle$  et  $|f\rangle$ , ainsi que la fonction de Green  $G(E, \mathbf{r}, \mathbf{r}')$  ont été calculés sur les bases de la méthode du défaut quantique [2].

En séparant les variables radiales et angulaires, la fonction de Green peut s'écrire :

$$G(E; \mathbf{r}, \mathbf{r}') = \sum_{l,m} g_l(E; r, r') Y_l^m(\hat{r}) Y_l^{m*}(\hat{r}') \quad (2)$$

où  $g_l$  est la fonction de Green de l'équation de Schrödinger radiale pour le moment angulaire  $l$ .  $\hat{r}$  et  $\hat{r}'$  sont les parties angulaires de  $\mathbf{r}$  et  $\mathbf{r}'$ .

La méthode du défaut quantique nous permet d'obtenir pour  $g_l(E; r, r')$  :

$$g_l(E; r, r') = \frac{v_l}{rr'} \left[ \frac{\Gamma(l+1-v_l)}{\Gamma(2l+2)} M_{v_l, l+1/2} \left( \frac{2r <}{v_l} \right) + \frac{\Gamma(l+1-v_l)}{\Gamma(l+1+v_l)} \cdot \frac{\sin \pi(\mu_l(E)+l)}{\sin \pi(\mu_l(E)+v_l)} W_{v_l, l+1/2} \left( \frac{2r <}{v_l} \right) \right] \times W_{v_l, l+1/2} \left( \frac{2r >}{v_l} \right) \quad (3)$$

$r >$  ( $r <$ ) est la plus grande (petite) des variables  $r$  et  $r'$ .  $v_l$  et  $\mu_l$  sont respectivement le nombre quantique effectif et le défaut quantique pour l'énergie  $E$  et le moment angulaire  $l$ .

Dans le cas des atomes alcalins, la partie radiale de la fonction d'onde initiale est donnée par :

$$R_{v_l, l_i}(r) = \frac{1}{r} [v_l^2 \Gamma(v_l + l_i + 1) \Gamma(v_l - l_i)]^{-1/2} \times W_{v_l, l_i+1/2} \left( \frac{2r}{v_l} \right) \quad (4)$$

et pour la partie radiale de la fonction d'onde finale :

$$R_{k, l_f}(r) = \frac{1}{r} \sqrt{\frac{2}{\pi k}} e^{-\pi/2k} \Re e \times \left[ \frac{W_{i/k, l_f+1/2}(-2ikr)}{i^{l_f+1} e^{-i\sigma_{l_f}}} (\cos[\delta_{l_f}(E)] + iA \sin[\delta_{l_f}(E)]) \right] \quad (5)$$

où

$$A = \left[ 1 - \exp \left( -\frac{10r}{l_f(l_f+1)} \right) \right]^{2l_f+1}$$

est un facteur de coupure,  $\sigma_{l_f} = \arg \Gamma(l_f + 1 - i/k)$  est le déphasage coulombien,  $\delta_{l_f}(E) \simeq \pi\mu_{l_f}(E)$  est le déphasage dû à la partie non coulombienne du potentiel attractif.

Les fonctions  $M$  et  $W$  qui apparaissent dans (3), (4) et (5) sont les fonctions de Whittaker.

Les sections efficaces d'ionisation ( $W/F^3$  en  $\text{cm}^6 \text{s}^2 \text{ photon}^{-3}$ ,  $F$  étant le flux photonique) des atomes alcalins par absorption de trois photons de lumière linéairement ou circulairement polarisée ont été calculées dans un intervalle d'énergies photoniques comprises entre  $14\,000 \text{ cm}^{-1}$  et  $14\,900 \text{ cm}^{-1}$  incluant celle correspondant à un laser à rubis.

Sur les figures 1, 2, 3, 4 nous avons reporté  $W/F^3$  (en  $\text{cm}^6 \text{s}^2 \text{ photon}^{-3}$ ) en fonction de l'énergie du photon incident (en  $\text{cm}^{-1}$ ) pour le sodium, le potassium, le rubidium et le césium. Les courbes en trait plein correspondent à une lumière linéairement polarisée, celles en pointillés à une lumière circulairement polarisée. Dans le tableau I nous donnons de manière explicite les valeurs obtenues pour la longueur d'onde du rubis ( $6\,943 \text{ \AA} \sim 14\,402 \text{ cm}^{-1}$ ) et nous les comparons avec les valeurs obtenues expérimentalement [3] et avec celles calculées ailleurs en utilisant d'autres méthodes [4], [5], [6]. Les erreurs expérimentales qui sont portées dans le tableau I, par exemple (1,25) ou (1,6) sont les facteurs qui multiplient et divisent les valeurs mesurées. Comme nous pouvons le voir les sections efficaces ainsi obtenues sont en assez bon accord avec les mesures expérimentales et avec celles obtenues par d'autres auteurs. En ce qui concerne le rapport  $W^C/W^L$  un bon accord est obtenu dans tous les cas.

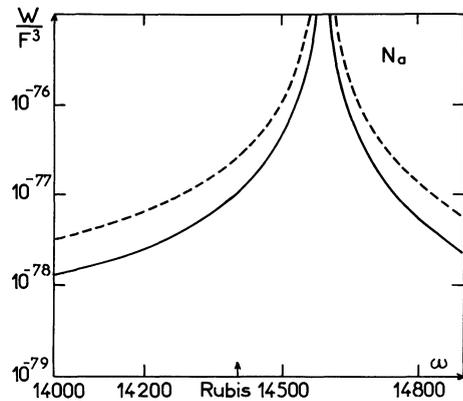


FIG. 1. — Courbe  $W/F^3$  (en  $\text{cm}^6 \text{s}^2 \text{ photon}^{-3}$ ) en fonction de l'énergie photonique  $\omega$  (en  $\text{cm}^{-1}$ ) dans le cas du sodium : — En pointillés : lumière circulaire. — En trait plein : lumière linéaire.

[ $W/F^3$  (in  $\text{cm}^6 \text{s}^2 \text{ phot}^{-3}$ ) as a function of the photon energy  $\omega$  (in  $\text{cm}^{-1}$ ) for sodium. Broken line : circularly polarized radiation. Full line : linearly polarized radiation.]

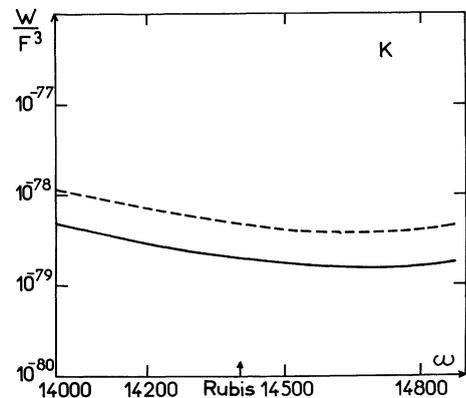


FIG. 2. — Courbe  $W/F^3$  en fonction de  $\omega$  dans le cas du potassium (même présentation que sur la figure 1 dans le cas du sodium).

[ $W/F^3$  (in  $\text{cm}^6 \text{s}^2 \text{ phot}^{-3}$ ) as a function of  $\omega$  (in  $\text{cm}^{-1}$ ) for potassium. Broken line : circularly polarized radiation. Full line : linearly polarized radiation.]

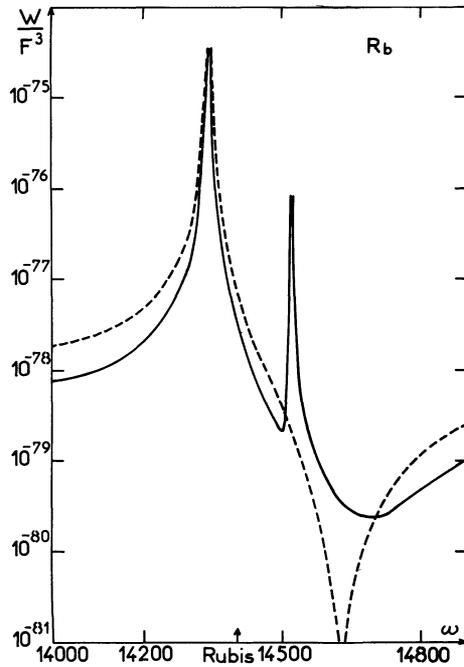


FIG. 3. — Courbe  $W/F^3$  en fonction de  $\omega$  dans le cas du rubidium (même présentation que sur la figure 1 dans le cas du sodium).

[ $W/F^3$  (in  $\text{cm}^6 \text{s}^2 \text{phot}^{-3}$ ) as a function of  $\omega$  (in  $\text{cm}^{-1}$ ) for rubidium. Broken line : circularly polarized radiation. Full line : linearly polarized radiation.]

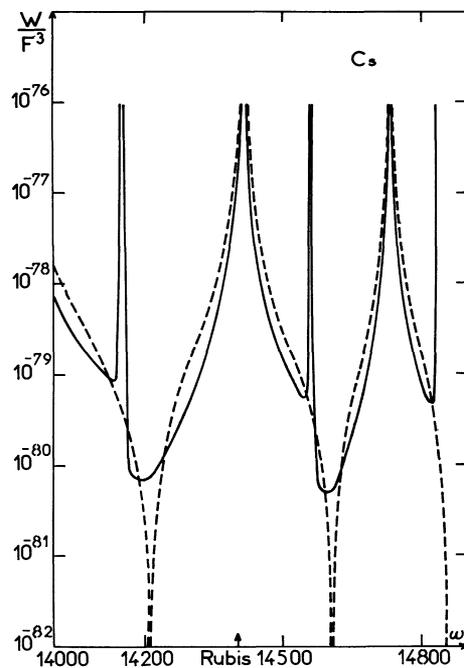


FIG. 4. — Courbe  $W/F^3$  en fonction de  $\omega$  dans le cas du césium (même présentation que sur la figure 1 dans le cas du sodium).

[ $W/F^3$  (in  $\text{cm}^6 \text{s}^2 \text{phot}^{-3}$ ) as a function of  $\omega$  (in  $\text{cm}^{-1}$ ) for caesium. Broken line : circularly polarized radiation. Full line : linearly polarized radiation.]

La donnée des courbes  $W/F^3$  en fonction de l'énergie photonique permet de voir l'environnement des points expérimentaux et de bien les situer par rapport aux résonances. En ce qui concerne le sodium (Fig. 1), le point expérimental se trouve assez proche ( $183,4 \text{ cm}^{-1}$ ) d'une résonance à deux photons sur l'état  $3D \ 5/2$  c'est-à-dire dans une zone de variation relativement rapide des probabilités, ce qui explique le léger décalage entre valeurs théoriques et expérimentales.

Pour le potassium (Fig. 2) l'accord entre valeurs théoriques et expérimentales est bien meilleur, ce qui peut s'expliquer par le fait que le point expérimental se trouve dans une zone de variation assez faible des probabilités de transition. Le cas du rubidium (Fig. 3) est analogue au cas du sodium. En effet le point expérimental se trouve à  $59,4 \text{ cm}^{-1}$  d'une résonance à deux photons sur l'état  $6D \ 3/2$  c'est-à-dire dans une région de variation très rapide de la probabilité de transition. Enfin en ce qui concerne le césium l'accord est assez bon également bien que l'on se trouve extrêmement près ( $11,4 \text{ cm}^{-1}$ ) d'une résonance à deux photons sur l'état  $9D \ 3/2$ , ce qui en apparence est contradictoire avec les remarques précédentes. En fait à proximité d'une résonance un décalage de quelques  $\text{cm}^{-1}$  de part et d'autre du point expérimental conduit à une variation de plusieurs ordres de la probabilité d'ionisation, ce qui explique qu'une telle proximité puisse jouer un rôle favorable ou défavorable par rapport au point expérimental.

D'autre part les résultats obtenus ont été calculés sur les bases de la méthode du défaut quantique. Cette méthode permet d'obtenir une forme fermée de la fonction de Green. Elle utilise un potentiel permettant d'exprimer la solution de l'équation de Schrödinger sous forme d'une combinaison linéaire de solutions coulombiennes dont les coefficients peuvent être reliés directement au défaut quantique déterminé à partir du spectre réel. Néanmoins le potentiel utilisé est approché et ceci peut contribuer en partie à expliquer l'écart observé entre nos valeurs théoriques et les valeurs expérimentales. Des calculs effectués avec des potentiels paramétrés permettraient peut être d'obtenir de meilleurs résultats mais présentent la difficulté de pouvoir trouver la forme correcte du potentiel. On peut aussi considérer qu'ajouter un potentiel de polarisation [10, 11, 12] dû à l'action de l'électron de valence sur l'ion résiduel permettrait un calcul plus exact des probabilités de transition et aiderait éventuellement à expliquer les écarts entre valeurs théoriques et expérimentales.

Il faut aussi ajouter que ce calcul ne tient pas compte du déplacement et de l'élargissement des niveaux atomiques induits par le champ électromagnétique, effets qui ne sont peut être pas négligeables aux intensités où les mesures ont été effectuées. Nous pouvons préciser par exemple qu'en présence d'un champ intense, au voisinage d'une résonance, il y a un élargissement du niveau fondamental qui peut être important et que loin des résonances il peut être fortement déplacé, ce

TABLEAU I

Valeurs numériques de  $W/F^3$  (en  $\text{cm}^6 \text{s}^2 \text{photon}^{-3}$ ) pour l'ionisation à trois photons de Na, K, Rb et Cs pris dans leur état fondamental pour des lumières linéairement ( $W^L/F^3$ ) et circulairement ( $W^C/F^3$ ) polarisées pour la longueur d'onde du rubis (6 943 Å) et rapport  $W^C/W^L$ . Les erreurs expérimentales (entre parenthèses) sont données comme des facteurs qui multiplient et divisent le résultat donné.

[Numerical values of  $W/F^3$  (in  $\text{cm}^6 \text{s}^2 \text{photon}^{-3}$ ) for the three-photon ionization of Na, K, Rb and Cs in the ground states for linearly ( $W^L/F^3$ ) and circularly ( $W^C/F^3$ ) polarized radiation at the ruby laser wavelength (6 943 Å) together with the ratios  $W^C/W^L$ . The experimental errors (in brackets) are expressed as multiplying and dividing factors of the measured values.]

Elément	Ce travail	Cervenán <i>et al.</i>				
		travail expérimental	Bebb	Morton	Manakov <i>et al.</i>	
Na	$W^L/F^3$	1,05 (– 77)	5,6 (– 77) (1,25)	8,0 (– 77)	9,4 (– 78)	9,33 (– 78)
	$W^C/F^3$	2,61 (– 77)	1,31 (– 76) (1,25)			2,32 (– 77)
	$W^C/W^L$	2,49	2,35 (1,04)			2,49
K	$W^L/F^3$	2,00 (– 79)	3,5 (– 79) (1,25)	5,0 (– 80)	8,9 (– 79)	1,87 (– 79)
	$W^C/F^3$	4,92 (– 79)	9,3 (– 79) (1,3)			4,6 (– 79)
	$W^C/W^L$	2,46	2,66 (1,04)			2,46
Rb	$W^L/F^3$	3,68 (– 78)	1,44 (– 77) (1,3)	1,4 (– 77)	7,25 (– 77)	1,14 (– 78)
	$W^C/F^3$	8,52 (– 78)	3,0 (– 77) (1,3)			2,68 (– 78)
	$W^C/W^L$	2,31	2,16 (1,06)			2,35
Cs	$W^L/F^3$	1,02 (– 77)	1,8 (– 77) (1,6)	1,8 (– 77)	1,08 (– 76)	9,57 (– 76)
	$W^C/F^3$	2,49 (– 77)	4,1 (– 77) (1,6)			1,36 (– 75)
	$W^C/W^L$	2,45	2,24 (1,05)			1,42

qui peut faire apparaître de nouveaux pics de résonances sur les courbes [13]. Ainsi à intensités élevées de nouveaux phénomènes peuvent se produire et il serait intéressant d'en tenir compte dans les calculs.

Nous voulons ajouter que nous avons aussi comparé nos résultats théoriques avec la valeur mesurée de la section efficace donnée dans le travail [9] pour l'ionisation du sodium par absorption de trois photons de la seconde harmonique d'un laser à néodyme, ceci pour un rayonnement monomode transverse linéairement polarisé. Les résultats sont les suivants :

valeurs théoriques :

linéaire  $W^L/F^3 = 1,011 \times 10^{-80} \text{cm}^6 \text{s}^2 \text{photon}^{-3}$ ,  
circulaire

$W^C/F^3 = 6,336 \times 10^{-81} \text{cm}^6 \text{s}^2 \text{photon}^{-3}$  ;

valeur expérimentale (polarisation linéaire) :

$$W^L/F^3 = 10^{-79,6 \pm 1,1} \text{cm}^6 \text{s}^2 \text{photon}^{-3}$$

qui correspond à la valeur  $2,511 \times 10^{-80}$  comprise entre les limites  $3,162 \times 10^{-79}$  et  $1,995 \times 10^{-81}$ .

En conclusion, nous pouvons dire que la somme sur l'ensemble complet des états atomiques non perturbés qui apparaît dans la théorie des perturbations a été effectuée de manière exacte en employant la méthode des fonctions de Green d'une part et la méthode QDM d'autre part.

La méthode a été appliquée aux atomes alcalins et des calculs de section efficace d'ionisation à trois photons ont été effectués. Un accord raisonnable a été constaté entre nos valeurs et celles obtenues expérimentalement ainsi qu'avec celles calculées par d'autres méthodes.

**Bibliographie**

- [1] LAPLANCHE, G., DURRIEU, A., FLANK, Y., JAOUEN, M. and RACHMAN, A., *J. Phys. B, Atom. Molec. Phys.* **9** (1976) 1263.
- [2] BURGESS, A. and SEATON, M., *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.* **120** (1960) 191.
- [3] CERVENAN, M. R., CHAN, R. H. C., ISENER, N. R., *Can. J. Phys.* **53** (1975) 1573.
- [4] BEBB, H. B., *Phys. Rev.* **153** (1967) 23.
- [5] MORTON, V. M., *Proc. Phys. Soc.* **92** (1967) 30.
- [6] MANAKOV, N. L., PREOBRAZHENSKY, M. A. and RAPOPORT, L. P., Proc. XI Int. Conf. Phenom. Ioniz. Gases, Prague, 23 (1973).
- [7] BEBB, H. B. and GOLD, A., *Phys. Rev.* **143** (1966) 1.
- [8] GONTIER, Y. and TRAHIN, M., *Phys. Rev.* **172** (1968) 83.
- [9] DELONE, G. A., DELONE, N. B., ZOLOTAREV, V. K., MANAKOV, N. L., PISKOVA, G. K. and TURSUNOV, M. A., *Sov. Phys. JETP* **38** (1974) 236.
- [10] HAM, F. S., *Solid State Phys.* Vol. I (Academic Press) 1955, p. 127.
- [11] NORCROSS, D. W., *Phys. Rev. A* **7** (1973) 606.
- [12] TEAGUE, M. R., LAMBROPOULOS, P., GOODMANSON, D. and NORCROSS, D. W., *Phys. Rev. A* **14** (1976) 1057.
- [13] GONTIER, Y., RAHMAN, N. K. and TRAHIN, M., *Phys. Rev. A* **14** (1976) 2109.
-