Inversions de population lors de la création, par interaction laser résonnante, de plasmas complètement ionisés

J.L. Bobin, M.A. Zaibi

► To cite this version:

J.L. Bobin, M.A. Zaibi. Inversions de population lors de la création, par interaction laser résonnante, de plasmas complètement ionisés. *Journal de Physique Lettres*, 1985, 46 (16), pp.737-744. 10.1051/jphyslet:019850046016073700 . jpa-00232892

HAL Id: jpa-00232892

<https://hal.science/jpa-00232892>

Submitted on 1 Jan 1985

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

52.20 — 52.50 — 52.65

Inversions de population lors de la création, par interaction laser résonnante, de plasmas complètement ionisés

J. L. Bobin et M. A. Zaibi

Université Pierre et Marie Curie (P. VI), Laboratoire de Physique et Optique Corpusculaires,
4, Place Jussieu, Tour 12 (E. 5), F-75230 Paris Cedex 05, France

(Reçu le 4 mars 1985, accepté le 25 juin 1985)

Résumé. — Un traitement numérique des équations d'évolution montre l'importance, pour le début de la cinétique d'ionisation, des collisions entre espèces atomiques excitées. En particulier, le processus d'« energy pooling » peuple fortement les niveaux 5S et 4D entraînant ainsi une forte densité d'inversion de population. Celle-ci apparaît toujours mais de façon transitoire dans le processus qui conduit à l'ionisation complète.

Abstract. — Rate equations are investigated numerically. They evidence the importance at the beginning of ionization kinetics, of collisions between excited atomic species. Specially, energy pooling fills the 4D and 5S levels and consequently induces a strong population inversion. The transient inversion always takes place in the process which leads to complete ionization.

Lorsqu'un faisceau laser dont la fréquence est accordée sur la transition de résonance, traverse une vapeur alcaline, il produit un plasma fortement ionisé pour des intensités qui sont de plusieurs ordres de grandeur inférieurs au seuil habituel de claquage des gaz. Une intensité comprise entre 10^5 et 10^7 W/cm², obtenue à partir d'un laser à colorant pompé par les lampes éclair suffit à ioniser complètement une vapeur de sodium ayant une densité atomique de 10^{16} cm⁻³.

Le rayonnement laser a pour premier effet de peupler abondamment le niveau supérieur (3P) de la transition. Il se constitue ainsi un réservoir d'énergie pour une très grande variété de processus collisionnels qui conduisent progressivement à une ionisation presque totale, la température électronique restant basse (1 eV ou moins). En irradiant des vapeurs de densité supérieure à 10^{16} cm⁻³, on s'attend à créer des plasmas dont le paramètre de corrélation

$$\Gamma_e = \frac{e^2 N_e^{1/3}}{3 k T_e}$$

peut prendre des valeurs comprises entre 0,1 et 0,5, contrôlables par la variation de la densité initiale et/ou de l'intensité du faisceau laser.

Jusqu'ici, on a surtout étudié l'émission de rayonnement par de tels plasmas. C'est ainsi que Lucatorto et McIlrath [1] ont obtenu le spectre U.V. des ions Na^+ créés par ce procédé. Au passage, ils observent l'absorption du sodium neutre dans ce domaine spectral. Dans une autre expérience, Kumar *et al.* [2] se sont intéressés au rayonnement infrarouge de recombinaison après l'extinction de l'impulsion laser. La diminution de la densité électronique s'accompagne d'une transition entre un régime dominé par la recombinaison diélectronique et un régime de recombinaison radiative.

Plus récemment Müller *et al.* [3] ont obtenu un rayonnement intense dans l'infrarouge ($3,41 \mu\text{m}$ transition $5S/4P$) pour des irradiations ne permettant pas d'atteindre l'ionisation. Un renforcement de plusieurs ordres de grandeur se produit lorsque la cellule à vapeur de sodium est placée à l'intérieur d'une cavité optique convenablement accordée. Il s'agit donc d'une émission laser. L'inversion de population qui la provoque est attribuée à des collisions entre atomes excités (« energy pooling ») mais le modèle dont la résolution entraîne cette conclusion est très incomplet.

Un modèle numérique permettant de calculer l'évolution au cours du temps des populations de 20 niveaux atomiques de la densité et de la température électronique, avait été conçu et exploité par Measures *et al.* [4]. Mais il ne comporte aucun mécanisme de collisions entre atomes excités au contraire de celui que nous présentons ici.

1. Le modèle.

Les mécanismes physiques pris en compte peuvent être classés suivant 3 rubriques :

a) les réactions des photons :

— pompage à saturation du niveau 3P

La valeur de l'intensité laser incidente est telle que la saturation se produit en un temps très court (10^{-10} s), les populations des niveaux étant alors dans le rapport des poids statistiques soit trois fois plus d'atomes dans l'état 3P que dans l'état 3S ;

- ionisation à 2 photons du niveau 3P
- photo-ionisation simple des niveaux d'énergie supérieure à celle de 3P
- bremsstrahlung inverse électrons-atomes puis électrons-ions.

b) les réactions des électrons :

- collisions élastiques électrons-atomes
- excitations et désexcitations

— le processus de désexcitation (collisions superélastiques) du niveau 3P

joue un rôle particulier en raison de l'importance initiale de la population du niveau 3P. De plus, l'électron gagne une énergie $\Delta\varepsilon$ de 2,1 eV, élevée par rapport à la température moyenne (≤ 1 eV).

Après deux collisions de ce type, il peut ioniser le niveau 3P, son énergie résiduelle contribuant à la température électronique.

— ionisation collisionnelle et son inverse (recombinaison diélectronique)

d'autant plus facile que le niveau d'excitation (nI) est élevé ;

— recombinaison radiative

— bremsstrahlung

c) les réactions entre espèces excitées :

— ionisation associative

rendue possible parce que la somme des énergies d'excitation est légèrement supérieure à celle du fond du puits de potentiel de l'ion Na_2^+ ;

— « energy pooling »

où Na^* est un niveau 5P ou supérieur. Il faut une énergie cinétique relative minimale entre les protagonistes pour obtenir un niveau excité supérieur à 5S ;

— ionisation de Penning

où l'état excité Na^* (5P ou au-dessus) provient de la collision d'« energy pooling ».

Il est clair que ces processus entre états excités contribuent d'une part à accélérer l'ionisation et d'autre part servent à peupler sélectivement certains niveaux autour de 4,2 eV.

Le modèle comporte les équations d'évolution des populations de 15 niveaux (3S) à (7S), chacune faisant le bilan des gains et des pertes selon les mécanismes de la liste précédente. Les coefficients des réactions électroniques résultent d'intégrations de la section efficace sur la distribution en énergie des électrons. L'expérience à basse densité [5] a mis en évidence des pics pour des énergies 0, 2,1 eV et des multiples de cette dernière. Mais une étude cinétique [6] montre que la thermalisation intervient en un temps négligeable par rapport à l'évolution du système global de sorte qu'une distribution maxwellienne à la température T_e (< 1 eV) est une approximation suffisante. Chaque fois que cela était possible, c'est-à-dire pour les niveaux les plus bas, nous avons utilisé les valeurs expérimentales de la section efficace. Lorsqu'aucun résultat de mesure n'est disponible, nous avons adopté la formulation théorique de Grynsky [7]. La confrontation des diverses sources de données nous a conduit à réviser en hausse d'un facteur 2 la force d'oscillateur de la transition 3P-3S telle qu'on la trouve dans les tables [8]. Une conclusion identique a été formulée dans un contexte légèrement différent [9].

En ce qui concerne les collisions entre atomes excités, il existe un certain nombre de mesures sur l'ionisation associative [10, 11, 13] et l'« energy pooling » [5, 12-14]. Nous avons utilisé les valeurs expérimentales les plus récentes de la section efficace et calculé les taux de réactions par

$$k_{nl} = \bar{v} \sigma_{nl}$$

où $\bar{v}$ est la vitesse relative dans un jet donnée par Baylis [15] en fonction de la masse réduite μ ($\sim M/2$) et de la température T régnant dans la cellule à sodium. On tient compte ainsi d'une certaine sélection en vitesse accompagnant le pompage vers l'état (3P).

Nous ne reproduisons pas ici le système d'équations d'évolution que nous avons établi [14]. Sa forme est très semblable à celle donnée en [4] avec en plus pour les niveaux 3S, 3P, 5S, 4D les termes correspondant aux collisions entre atomes excités. La résolution se fait au moyen d'une méthode Runge-Kutta au 3^e ordre (schéma aux différences centrées) sur un ordinateur IRIS-80. Les conditions initiales sont :

— les niveaux 3S et 3P sont peuplés dans les conditions de la saturation forte ce qui revient à négliger le temps nécessaire à obtenir cette situation ;

— tous les autres niveaux sont initialement vides ;
 — la température électronique est choisie de telle façon que sa dérivée temporelle soit voisine de zéro pour le démarrage du calcul. On évite de la sorte des oscillations purement numériques. Le modèle est par ailleurs très peu sensible à la valeur initiale de la densité électronique pourvu que celle-ci soit inférieure à 10^7 cm^{-3} .

2. Résultats.

Nous avons exploité le modèle numérique pour plusieurs valeurs de la densité initiale de la vapeur de sodium et pour plusieurs valeurs de l'intensité laser accordée sur la transition de résonance.

La figure 1 montre l'évolution des populations de niveaux caractéristiques ainsi que celle du

Fig. 1. — Evolutions temporelles à intensité laser donnée constante. a) Population des niveaux 3S et 3P ; b) population des niveaux 4P et 5S ; c) coefficient d'ionisation ; d) puissance laser absorbée par unité de volume. (N.B. : Une impulsion laser gaussienne de largeur à mi-hauteur 30 ns produit des résultats très voisins).

[Time histories : a) populations of levels 3S and 3P ; b) populations of levels 4P and 5S ; c) ionization coefficient ; d) absorbed laser power per unit volume. (N.B. : These plots are for a given constant laser intensity. Results are very similar when 30 ns Gaussian pulses are used in the simulation.)]

coefficient d'ionisation pour une densité initiale de 10^{17} atomes par cm^3 . Tandis que les niveaux 3S et 3P se dépeuplent, les niveaux excités voient leur population passer par un maximum puis décroître jusqu'à une valeur qui pour les niveaux les plus élevés, dépend de la présence ou non de termes de recombinaison, cet effet étant d'autant plus important que la densité est forte (Fig. 2). La figure 1d montre aussi l'évolution de la puissance laser absorbée par unité de volume de vapeur. L'instant de son maximum τ_M qui caractérise l'évolution du système vers l'ionisation coïncide avec les maxima des populations des niveaux excités, à l'exception de 5S et 4D qui suivent une évolution particulière.

Fig. 2. — Importance de la recombinaison sur la population des niveaux d'énergie (ex. 4F). $\text{Na} = 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ et $I_L = 10^6 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$; (—) avec recombinaison (---) sans recombinaison.

[Influence of recombination on energy level population (ex. : 4F).]

En effet, par suite des collisions d'« energy pooling » très efficaces en début de processus d'ionisation, les niveaux 5S et 4D sont peuplés beaucoup plus rapidement que les autres. L'ionisation

Fig. 3. — Mise en évidence des inversions de population 5S-4P et 4D-4P.

[Evidencing population inversions 5S-4P and 4D-4P.]

de Penning intervient également assez tôt pour les vider. Le passage au maximum a donc lieu bien avant celui des niveaux ordinaires et la figure 1b montre que le niveau 5S est plus peuplé que le niveau 4P d'énergie pourtant inférieure. La figure 3 où les ordonnées sont les populations divisées par les poids statistiques met en évidence de façon plus précise ce phénomène d'inversion de population qui dans le cas particulier de la figure prend une valeur maximale

$$\frac{N(5S)}{g_{5S}} - \frac{N(4P)}{g_{4P}} \sim 1,3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$$

pour la transition 5S-4P à l'instant 6,3 ns. L'inversion de population pour 4D-4P est d'un ordre de grandeur plus faible et de durée plus courte. Nous avons vérifié que si l'on enlève du système d'équations, les termes relatifs à l'« energy pooling » et à l'ionisation de Penning, l'écart entre les populations des niveaux 5S et 4P n'est plus que de 10 %, tandis que le niveau 4D est constamment moins peuplé que 4P.

La figure 4 montre comment varie au cours du temps, à densité atomique donnée (10^{17} cm^{-3}), l'inversion de population 5S-4P pour diverses valeurs de l'intensité incidente. Elle est augmentée pour les intensités les plus faibles moins favorables à la photoionisation double qui dépeuple le niveau 3P et se trouve en compétition avec les collisions d'« energy pooling ».

Fig. 4. — Inversion (5S-4P) $N_a = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ pour diverses intensités laser.

[Inversion 5S-4P for various laser intensities.]

Les variations, à intensité laser donnée (10^6 Wcm^{-2}), des grandeurs caractérisant l'ionisation du milieu et l'inversion 5S-4P sont résumées sur le tableau I suivant

Tableau I.

Densité initiale (cm ⁻³)	10 ¹⁶	10 ¹⁷	10 ¹⁸
max. de τ_M (ns)	145	18	1,8
$\alpha(\tau_M)$ (%)	50	50	40
Inversion 5S-4P (cm ⁻³)	9×10^{12}	$1,3 \times 10^{14}$	$1,2 \times 10^{15}$
Durée d'inversion (ns)	120	13	1,4

Tous ces résultats sont obtenus pour une intensité laser constante dans le temps. Ils ne sont pas sensiblement modifiés lorsque l'on utilise une forme réaliste d'impulsion, de même intensité moyenne que le signal continu et de durée supérieure au temps $2 \tau_M$ nécessaire pour atteindre l'ionisation maximale.

D'autre part, l'évolution de la puissance absorbée par unité de volume (Fig. 1d) montre que la profondeur optique

$$L_0 \sim I/(dW/dt)$$

au-delà de laquelle le rayonnement laser est totalement absorbé, passe par un minimum trouvé inversement proportionnel au carré de la densité atomique.

3. Conclusion.

Le résultat principal de l'exploitation du modèle cinétique complété par les termes de collisions entre atomes excités concerne les inversions de population 5S-4P, 4D-4P qui ont été mises en évidence dans tous les cas traités. Ceux-ci couvrent une gamme de densité initiale allant de 10^{16} à 10^{18} atomes/cm³ et une gamme d'intensités laser de 10^5 à 10^7 W/cm² telles que l'on aboutit toujours à un degré d'ionisation supérieur à 80 %. La durée des inversions de population est de l'ordre du tiers du temps nécessaire pour atteindre l'ionisation maximale. La densité d'inversion de population est élevée. Mais son caractère transitoire rend difficile sa mise en évidence par une émission laser. Il faut pour cela que la longueur de la colonne de vapeur de sodium soit inférieure à l'épaisseur optique à l'instant du maximum d'inversion. Cette sujétion restreint les possibilités d'observation au cas des densités les plus basses soit pour les conditions de notre travail autour de 10^{16} cm⁻³.

Bibliographie

- [1] LUCATORTO, T. B., McILRATH, T. J., *Phys. Rev. Lett.* **37** (1976) 426.
- [2] KUMAR, J., SILFVAST, W. T., WOOD II, O. R., *J. Appl. Phys.* **53** (1982) 218.
- [3] MÜLLER, W., MCCLELLAND, J. J., HERTEL, I. V., *Appl. Phys. B* **31** (1983) 131.
- [4] MEASURES, R. M., DREWELL, N., CARDINAL, P., *J. Appl. Phys.* **50** (1979) 2662.
- [5] LE GOUËT, J. L., PICQUÉ, J. L., WUILLEUMIER, F., BIZAU, J. M., DHEZ, P., KOCH, P., EDERER, D. L., *Phys. Rev. Lett.* **48** (1982) 600.
- CARRÉ, B., SPIESS, G., BIZAU, J. M., DHEZ, P., GÉRARD, P., WUILLEUMIER, F., KELLER, J. C., LE GOUËT, J. L., PICQUÉ, J. L., EDERER, D. L., KOCH, P. M., *Opt. Commun.* **52** (1984) 29.
- [6] LOWELL MORGAN, N., *Appl. Phys. Lett.* **42** (1983) 790.
- [7] GRYSINSKY, M., *Phys. Rev.* **107** (1957) 1471 ; *Phys. Rev.* **109** (1959) 347 ; *Phys. Rev. A* **115** (1965) 336 ; *J. Chem. Phys.* **62** (1975) 2610.
- [8] MOORE, C., *Atomic Transition probabilities* NSRDS-NBS **22** vol. II (1969).
- [9] HUBER, M. C. E. and JAHREISS, L., *J. Physique Colloq.* **46** (1985) C1-215. (« *Atomic and Molecular Collisions in a Laser Field* », Abbaye de Royaumont, 26-30 mars 1984).

- [10] DE JONG, A., VAN DER VALK, F., *J. Phys. B* **12** (1979) L 561.
 - [11] HUENNEKENS, J. and GALLAGHER, A., *Phys. Rev. A* **28** (1983) 1276.
 - [12] ALLEGRI, M., ALZETTA, G., KOPYSTYNSKA, A., MOI, L., ORRIOLS, G., *Opt. Commun.* **19** (1976) 96.
ALLEGRI, M., BICCHI, P., MOI, L., *Phys. Rev. A* **28** (1983) 1338.
 - [13] ALLEGRI, M., GABBANINI, C. et MOI, L., *J. Physique Colloq.* **46** (1985) C1-61 (« Atomic and Molecular Collisions in a Laser Field », Abbaye de Royaumont, 26-30 mars 1984).
 - [14] KUSHAWAHA, V. S., LEVENTHAL, J. J., *Phys. Rev. A* **25** (1982) 570.
 - [15] BAYLIS, W. E., *Can. J. Phys.* **55** (1977) 1924.
 - [16] ZAIBI, M. A., Thèse de 3^e cycle. Université Paris-Sud (1984).
-