



HAL
open science

Développement d'un détecteur sans temps mort sensible en temps et en position: Application à l'étude des collisions de petits agrégats d'argon $Ar+n$ sur une cible d'argon

Iyas Ismail

► **To cite this version:**

Iyas Ismail. Développement d'un détecteur sans temps mort sensible en temps et en position: Application à l'étude des collisions de petits agrégats d'argon $Ar+n$ sur une cible d'argon. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2005. Français. NNT: . tel-00011289

HAL Id: tel-00011289

<https://theses.hal.science/tel-00011289>

Submitted on 4 Jan 2006

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.

ORSAY

N° D'ORDRE :

UNIVERSITE DE PARIS-SUD
U.F.R. SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THESE

présentée

Pour obtenir

Le **GRADE de DOCTEUR EN SCIENCES DE**
L'UNIVERSITE PARIS XI ORSAY

PAR

Iyas ISMAIL

SUJET :

Développement d'un détecteur sans temps mort sensible en temps et en position : Application à l'étude des collisions de petits agrégats d'argon Ar_n^+ sur une cible d'argon

Soutenue le 25 novembre 2005 devant la commission d'examen :

Amine CASSIMI	Rapporteur
Jacqueline FAYETON	Directeur de thèse
Jérôme LEYGNIER	Président
Yan PICARD	
Marc SIMON	Rapporteur
Wim van der ZANDE	

À

mon père, ma mère

Anas, Saad,

la mémoire de ma grand-mère

et toute ma famille

Remerciements

Ce travail a été effectué au sein du Laboratoire des Collisions Atomiques et Moléculaires à l'Université Paris-Sud à Orsay. Je tiens tout d'abord à remercier son directeur Victor Sidis pour m'avoir accueilli dans son laboratoire durant la préparation de ce travail.

J'exprime à Messieurs Amine Cassimi, Jérôme Leygnier, Marc Simon et Wim van der Zande toute ma gratitude pour l'intérêt qu'ils ont montré à ce travail en acceptant de faire partie de la commission d'examen. Je remercie en particulier Amine Cassimi et Marc Simon qui ont accepté d'être les rapporteurs de ce travail.

Je tiens particulièrement à témoigner toute ma reconnaissance à Jacqueline Fayeton qui a dirigé ce travail. Merci pour sa disponibilité, la patience avec laquelle elle a répondu à mes nombreuses questions, ses conseils et son aide. Merci simplement pour tout ce qu'elle a fait pour moi.

Mes remerciements vont également à Michel Barat et Karine Wohrer qui m'ont fait profiter de leur longue expérience scientifique et de leurs conseils précieux.

Un grand merci du fond du cœur va à Jean-Claude Brenot avec qui j'ai "réappris" l'électronique, l'informatique et également la physique. Merci pour tout le temps qu'il a passé avec moi. Sa compétence scientifique, son exigence et sa rigueur resteront pour moi un exemple à suivre.

J'exprime également mes reconnaissances et mon amitié à Yan Picard pour sa gentillesse, sa disponibilité, son aide tout au long de ces années et les très nombreuses discussions scientifiques et... je n'oublierai jamais l'agréable ambiance qui régnait, particulièrement les soirées de manip et les tournois de réseaux très sérieux ! Je remercie également Valéria Lepère, pour sa gentillesse et sa disponibilité.

Je suis certain que je ne pourrai penser à ces années à Orsay sans me souvenir de Fabrice Catoire, de toutes les longues et nombreuses discussions, soirées, cinés... Je profite de cette occasion pour lui témoigner mon amitié.

J'aimerais adresser un grand merci à tous les membres du laboratoire des Collisions Atomiques et Moléculaires. J'ai eu beaucoup de chance de travailler dans un laboratoire de haute qualité aussi bien sur le côté scientifique que humain. Je remercie en particulier Laurent Guillemot avec qui j'ai partagé son bureau pendant la rédaction de ce manuscrit. Merci à Azzedine Bennani, Philippe

Roncin, Elena Magdalena Casagrande, Angel Abadia, Bernadette Rome, Jean Christophe Koudar, Hocine Khemliche et Muriel Sizun pour leurs sympathies et leurs encouragements.

Je remercie également le Commissariat à l'Energie Atomique Syrien pour avoir financé mes études durant ces années de thèse.

Enfin, je ne peux oublier tous mes enseignants (es) depuis l'école primaire à Massyaf, et jusqu'à l'Institut Supérieur des Sciences Appliqués et de Technologie à Damas. Tout particulièrement, je remercie mon père qui m'a appris les mathématiques, et ma mère à qui je dois ma connaissance du français.

Orsay le 6 décembre 2005

TABLE DES MATIÈRES

I. Introduction	5
II. Dispositif expérimental	21
II.1. Description générale de l'expérience	22
II.2. Source d'agrégats ionisés	23
II.2.1. Ionisation et accélération	25
II.3. Sélection en masse	27
II.4. La cible : jet supersonique	29
II.5. Analyseur électrostatique	35
II.6. Le puits de collection des ions de recul : spectromètre de vitesse	36
II.6.1. Le temps de vol	37
II.6.2. Les valeurs mesurables des vitesses	40
II.6.3. Résolution sur la mesure des vitesses	41
II.6.3.1. Le choix de la tension d'extraction	42
II.6.4. Montage mécanique	42
II.6.5. Montage électrique	43
II.6.6. Détecteurs temps-position des fragments chargés rapides et des ions de recul : anode résistive	45
II.6.7. Tests & Calibration	47
II.6.7.1. Calibration du détecteur des ions de recul	48

II.6.7.2. Déviation du faisceau incident par le champ d'ex- traction	48
II.6.7.3. Vitesse du jet supersonique	50
II.6.7.4. Dimensions de la zone de collision	51
II.7. Détecteur des neutres : résolution sur les mesures des vitesses	52
II.8. Traitement de données et observables	54
II.8.1. Les observables	54
II.8.2. Comment procéder?	55
II.8.3. Limitations angulaires	57
II.9. Généralités sur les mécanismes de dissociation d'un agrégat . .	59
II.9.1. Le modèle de collision binaire (mécanisme impulsional)	59
II.9.2. Corrélation ZZ	62
II.9.3. Diagramme de Dalitz	63
III. Détecteur multi-particules sans temps mort	71
III.1. Introduction	72
III.2. Amplification : les galettes de microcanaux	74
III.2.1. Efficacité absolue de détection	74
III.2.2. Le montage des galettes des microcanaux	76
III.2.3. Montage électrique et prise du signal temps	76
III.3. Système de localisation par lignes à retard "modifié" (mDLA) . .	79
III.3.1. Principe de la mDLA	79
III.3.2. Signaux « temps - position »	80
III.3.3. Mise en niveau logique	80
III.3.4. Modifications des lignes à retard	81
III.3.5. Le choix de la polarisation des lignes et de l'écran phos- phore	82
III.3.6. Gain des galettes de microcanaux	82
III.3.7. Réglage des seuils des discriminateurs à niveau sur les voies temps et temps-position :	83
III.3.8. Performances en "multi-hits" : zone morte	85
III.4. Système de mesure du temps : le numériseur	87
III.4.1. La mesure du temps d'arrivée à temps mort nul	88
III.4.2. Reconstitution du signal réel :	88
III.4.2.1. Rappel de la théorie du traitement de signal	88

III.5. Localisation par une caméra-CCD	91
III.5.1. Lecture de l'image	92
III.5.2. Couplage optique "passif"	93
III.5.3. Intensificateur d'image	94
III.5.4. Couplage optique "actif"	96
III.6. Interfaçage avec le PC	99
III.7. Acquisition de données	101
III.8. Pré-traitement de données	104
III.8.1. Corrélation temps-position	104
III.8.2. Prise en compte des intégrales des pics vus sur le signal temps et mesurés la caméra	107
III.8.3. Limite de séparation temporelle et spatiale	109
III.9. Traitement de l'image caméra	110
III.9.1. Identification des spots :	111
III.9.2. Le calcul du centroïde	112
III.10. Séquence d'acquisition : diagramme en temps	115
III.10.1. Gestion de la caméra	115
III.10.2. Gestion du système : diagramme en temps	117
III.10.3. Cadence de l'acquisition	119
III.11. Tests & performances	121
IV. Collision Ar_n^+/Ar	129
IV.1. Énergie interne Ar_2^+	130
IV.1.1. Source de Ar_2^+	130
IV.1.2. Ar_2^+ Métastable	132
IV.2. Énergie interne de Ar_3^+	134
IV.3. Collision $\text{Ar}_2^+ / \text{Ar}$	134
IV.3.1. Échange de charge : $\overline{\text{Ar}}_2^+ + \text{Ar} \longrightarrow \overline{\text{Ar}} + \overline{\text{Ar}} + \text{Ar}^+$	136
IV.3.1.1. I (KER, χ)	137
IV.3.1.2. I(KER/ α)	140
IV.3.1.3. Étude en fonction de l'énergie interne initiale de Ar_2^+ : effet de la pression de stagnation	143
IV.3.2. La fragmentation induite par collision CID :	148
IV.4. Collision $\text{Ar}_3^+ / \text{Ar}$	151
IV.4.1. Fragmentation induite par collision de $\text{Ar}_3^+ / \text{Ar}$	152

IV.4.1.1.Dissociation en deux fragments	152
IV.4.1.2.Dissociation en trois fragments	157
IV.4.2.Échange de charge : $\overline{\text{Ar}}_3^+ + \text{Ar} \longrightarrow \overline{\text{Ar}} + \overline{\text{Ar}} + \overline{\text{Ar}} + \text{Ar}^+$	162
IV.5.Conclusion	167
V. Conclusion	171
A. Schéma carte contrôle CTNM3	175
B. La structure des fichiers *.i03	179

CHAPITRE

I

Introduction

UN agrégat est un ensemble d'atomes ou de molécules identiques (agrégats homogènes) ou de même famille (agrégats hétérogènes) dont le nombre de constituants (la taille) varie entre quelques unités à quelques dizaines de milliers. L'agrégat est donc un "nano-objet" intermédiaire entre l'atome et le solide et l'un des sujets d'étude concerne le passage d'un état à l'autre, observé « via » certaines propriétés de l'objet, lorsqu'on fait varier le nombre de constituants.

Une méthode efficace souvent utilisée pour caractériser les systèmes complexes consiste à étudier la réponse du système à une perturbation externe donnée. La perturbation réagissant avec le système, révélera donc des informations sur certaines propriétés.

En particulier, cette méthode est appliquée dans l'étude des agrégats libres en utilisant différents perturbateurs ayant chacun sa spécificité et son domaine d'application. Par exemple, la perturbation du cortège électronique peut être induite par une excitation photonique, ce qui doit être complété par une spectroscopie d'électrons pour sonder les transitions optiquement interdites. La perturbation peut être aussi induite par l'impact d'un atome ou

I. Introduction

d'une molécule sur l'agrégat. Dans ce cas, il ne s'agit pas seulement d'une excitation du cortège électronique, mais aussi la possibilité de transmettre une quantité de mouvement aux noyaux de l'agrégat. Il est intéressant d'analyser la dynamique d'un tel système à n corps en étudiant sa fragmentation après qu'une certaine quantité d'énergie lui ait été transférée,

En effet, lorsque un agrégat entre en collision avec une cible atomique deux types d'interaction peuvent se produire conduisant à la dissociation de l'agrégat. Le mécanisme impulsif (MI) dans lequel une quantité de mouvement est transférée aux atomes constituant l'agrégat dans un choc de type boules de billard. Il provoque une dissociation rovibrationnelle de l'agrégat. Dans le mécanisme électronique (ME) l'agrégat est porté dans un état excité dissociatif par perturbation de son nuage électronique. Alors que le premier mécanisme domine le régime des basses énergies (<100 eV), le second régit les processus aux grandes énergies (MeV). On notera que l'échange de charge est un mécanisme électronique spécifique qui, s'il est résonant, peut être important à petites vitesses de collision. Aux énergies intermédiaires (keV), la compétition entre ces deux mécanismes complique singulièrement l'analyse du processus d'interaction. La dissociation induite par collision est une des approches qui permet de déterminer la géométrie, la structure électronique et les énergies de liaison des agrégats. La méthode que nous utilisons pour l'étude de fragmentation induite par collision consiste en la corrélation vectorielle de l'ensemble des produits de la collision détectés en coïncidence. La position d'impact sur les détecteurs et le temps d'arrivée mesurés pour chaque particule permettent de déterminer son vecteur vitesse. La détermination simultanée de toutes ces grandeurs, événement par événement, rend possible la reconstitution de la cinématique de l'événement de dissociation.

L'étude des collisions entre de petits agrégats métalliques et des cibles légères, dans la gamme du keV, a permis de mettre en évidence les importances relatives des différents mécanismes de fragmentation. Après avoir étudié les agrégats métalliques, l'équipe "Agrégats" s'est orientée vers l'étude des agrégats d'argon. La principale différence entre ces agrégats de type Van der Waals et les agrégats métalliques est la répartition de la charge dans l'agrégats : localisée autour d'un coeur central et délocalisée respectivement.

Une première étude de collision de petits agrégats d'argon sur une cible d'hélium a montré la co-existence de deux mécanismes impulsif et élec-

tronique. En particulier la fragmentation de Ar_2^+ ainsi que de Ar_3^+ en trois fragments, sont principalement dues à l'excitation électronique. En revanche, la fragmentation de Ar_3^+ en deux fragments se fait majoritairement par transfert d'impulsion. Dans l'optique de compléter cette étude pour mieux comprendre l'état initial du projectile ainsi que la dynamique de collision, nous avons étudié au cours de ce travail la collision de petits agrégats d'argon Ar_2^+ et Ar_3^+ à une énergie de 4,8 keV avec une cible d'argon atomique. La cible argon offre de plus la possibilité d'étudier le mécanisme d'échange de charge qui peut être important dans un tel système quasi-résonant.

L'échange de charge entre des ions et des atomes à basses énergies a fait l'objet de nombreux travaux expérimentaux et théoriques. En revanche, l'échange de charge avec des agrégats ou des molécules polyatomiques a été moins étudiée. Un des premiers travaux concernant la collision de C_6H_6^+ avec des gaz rares [1] a mis en évidence le rôle du défaut à la résonance sur le processus de fragmentation et l'énergie interne finale du projectile. Plus tard, des études expérimentales ont permis de déterminer les sections efficaces et les rapports de branchement dans les collisions d'agrégats d'alcalins avec des atomes alcalins [2, 3, 4]. Récemment, l'étude de l'échange de charge de peptides et de protéines de grande taille a reçu beaucoup d'attention [5, 6]. La plupart des travaux théoriques visaient les collisions d'agrégats métalliques. Les sections efficaces dans le cas de collisions ion - agrégat [7, 8, 10] et de collisions agrégat ionique- atome [9, 10, 11] et des prédictions de la fragmentation associée ont été données [12, 13, 4, 14]. Certaines de ces approches théoriques ont été confrontées avec succès à l'expérience [4, 15]. Dans ces deux cas, le rôle de l'énergie interne initiale de l'agrégat dans le processus d'échange de charge a été mis en évidence.

Dans ce travail nous présentons les résultats de l'étude d'échange de charge dissociatif (DCT) dans une collision entre des agrégats d'argon Ar_2^+ et Ar_3^+ à une énergie de 4,8 keV avec une cible d'argon atomique. A notre connaissance, c'est la première étude de DCT concernant des agrégats de Van der Waals. La dynamique du processus d'échange de charge a été mise en évidence grâce à la mesure en coïncidence des vecteurs vitesse de tous les produits de la collision. La fragmentation induite par collision a été aussi étudiée. Précédemment, Chiu *et al.* ont étudié le CID de Ar_2^+ sur Ar mais à très faible énergie de collision (1-7 eV dans CM). Ils ont observé un mécanisme

I. Introduction

de type impulsif dans lequel le neutre est fortement dévié alors que l'ion reste spectateur. Cette asymétrie est expliquée par la possibilité d'échange de charge entre l'ion diffusé et la cible, conduisant à une particule de recul qui ne peut être détectée dans leur expérience.

Une analyse complète de la dynamique nécessite, comme nous venons de le mentionner, une détection résolue en temps et en position de plusieurs particules (jusqu'à 4 dans ce cas présent) en coïncidence. Les fragments rapides, éjectés avec une faible énergie cinétique relative ou avec des orientations angulaires particulières, peuvent atteindre le détecteur pendant un intervalle de temps assez bref. Un tel événement est perdu si le temps mort du détecteur est plus grand que la différence de temps d'arrivée des fragments. Cette problématique de la détection simultanée résolue en temps et en position de plusieurs particules provenant d'un même événement physique n'est pas restreint à notre application. Elle a été déjà rencontrée dans plusieurs domaines de la physique, allant de la physique atomique [16, 17, 18] et moléculaire [19-31] jusqu'à la science des matériaux [32, 33, 34, 35]. Ce besoin nous a emmené à développer un nouveau type de détecteur capable de détecter sans temps mort, les particules ayant des énergies cinétique de quelques keV.

Notre expérience était dotée d'un système de détection non adapté à la multi-détection. La mise en place d'un autre détecteur mieux approprié était donc indispensable pour réaliser nos expériences. C'est la raison pour laquelle nous avons conçu, réalisé et mis au point un nouveau type de détecteur ayant comme principale caractéristique d'être "sans temps mort".

Dans la suite de cette introduction nous montrerons quelques exemples de limitations expérimentales introduites par un temps mort non négligeable. Un résumé sur les techniques de détection, basées sur les galettes de microcanaux, sera ensuite présenté. Mais avant, commençons par définir le temps mort d'un système de détection.

Définition

Le temps mort d'un système de détection est le temps pendant lequel le système est inactif après l'arrivée d'une première particule. Si une deuxième particule arrive pendant ce temps, elle ne sera pas détectée, et risquera même

de biaiser la mesure de la première particule.

Pour mieux expliquer, prenons le cas d'un discriminateur à niveau (fig. I.1) : quand l'amplitude du signal dépasse un certain seuil le discriminateur à niveau génère un signal logique de durée τ . L'arrivée de deux particules avec une différence de temps d'arrivée $\Delta t > \tau$ provoque la génération de deux signaux logiques. Lorsque cette différence Δt devient inférieure à la durée du signal logique τ la deuxième particule n'est pas détectée (fig I.1.b). Dans cet exemple, τ détermine le temps mort du système.

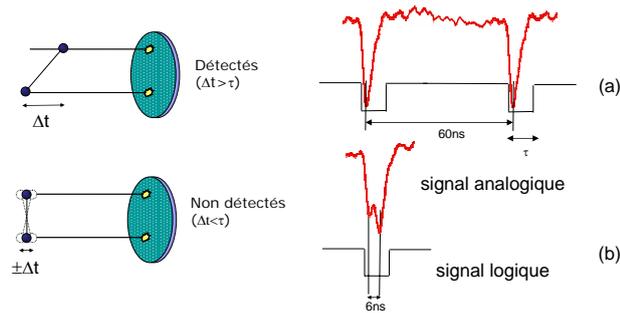


FIG. I.1.: temps mort d'un discriminateur à niveau (a) différence de temps d'arrivée supérieur à la durée du signal logique (b) différence de temps d'arrivée inférieure à la durée du signal logique

Motivations : Pourquoi le temps mort d'un détecteur est-t-il si important ?

Pour répondre à cette question nous avons repris les résultats d'une expérience de fragmentation des agrégats de Na_3^+ induite par collision sur une cible de He effectuée par l'équipe "Agrégat" [36]. Dans cette expérience, on mesure en coïncidence les fragments produits de la collision : le fragment ionique est détecté par un détecteur à anode résistive, alors que les fragments neutres sont reçus sur un détecteur à lignes à retard (type RoentDeck) ayant un temps mort de l'ordre de 40 ns.

La figure I.2 montre la distribution des différences de temps d'arrivée des fragments neutres. Comme nous pouvons le remarquer, aucun fragment n'est détecté avec une différence de temps d'arrivée inférieure à 40ns le temps mort de ce détecteur. Par la suite, nous allons montrer quelques effets de ce

I. Introduction

temps mort sur la compréhension du comportement physique du système étudié.

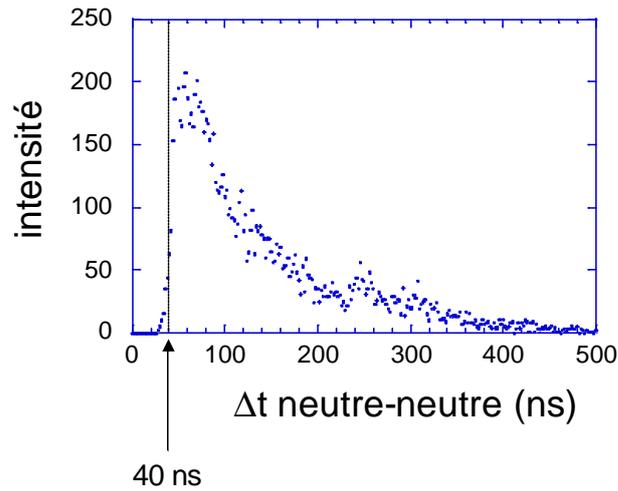


FIG. I.2.: distribution des différences de temps d'arrivée des fragments neutres mesurés avec un détecteur à lignes à retard pour le système collisionnel $\text{Na}_3^+ + \text{He} \rightarrow \text{Na}^+ + \text{Na} + \text{Na} + \text{He}$.

Une première manifestation est observée sur la distribution de l'angle α_p , angle entre la normale au plan de dissociation des fragments et l'axe de diffusion (fig. I.3). Cette distribution montre une perte d'intensité pour les angles α_p proche de zéro : on perd, et d'une façon systématique, tous les événements pour lesquels la normale au plan de dissociation est parallèle à l'axe de diffusion. En effet, pour ces événements les deux fragments arrivent simultanément sur le détecteur.

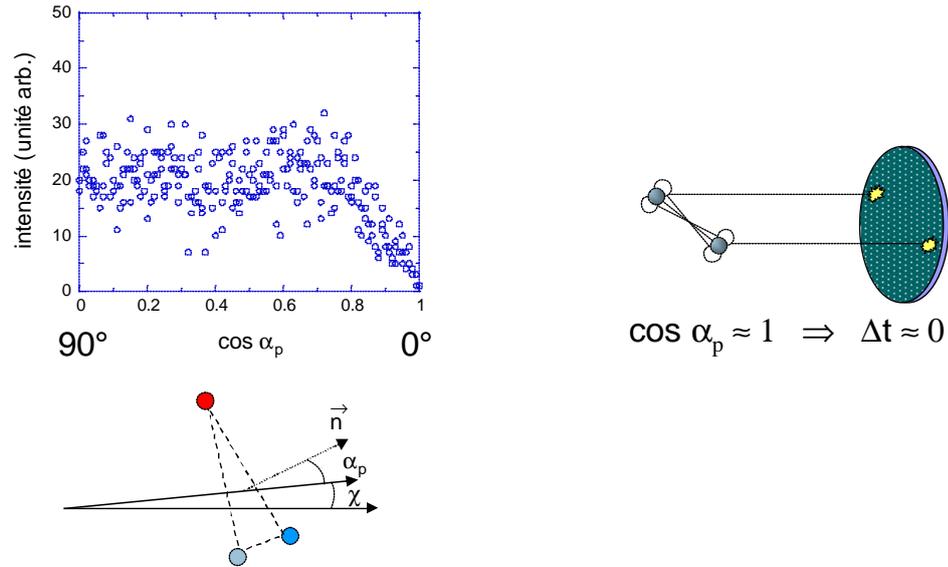


FIG. I.3.: Distribution de l'angle α_p entre la normale au plan de dissociation et l'axe de diffusion pour le système collisionnel $\text{Na}_3^+ + \text{He} \rightarrow \text{Na}^+ + \text{Na} + \text{Na} + \text{He}$.

La deuxième manifestation, énergétique cette fois, est présentée à l'aide d'un diagramme de Dalitz¹. Ce diagramme présente la distribution de l'énergie cinétique des fragments (les deux fragments neutres et le fragment ionique) dans le référentiel de leur centre de masse. La figure I.4 montre une comparaison entre deux diagrammes de Dalitz : le premier obtenu expérimentalement et deuxième issu d'un calcul de dynamique moléculaire effectué par Babikov *et al.* [30]. Le diagramme théorique montre deux maxima I et III alors que le maximum III est quasiment absent du diagramme expérimental. Cette absence est due au temps mort du détecteur : la zone III correspond à deux fragments neutres ayant une énergie cinétique relative très faible, donc la même vitesse. Par conséquent, ces fragments arrivent en même temps sur le détecteur et donc ces événements sont perdus à cause du temps mort.

On peut conclure, que la perte de données causée par le temps mort n'est pas aléatoire, en fait c'est une perte **systematique** de configurations physiques bien particulières. Le gain apporté par le développement d'un détecteur sans temps mort n'est pas juste une amélioration de l'efficacité de la détection (en augmentant le nombre de particules détectées). En fait, un détecteur sans temps mort donne une image complète des processus physiques

¹voir chapitre II pour sa définition

I. Introduction

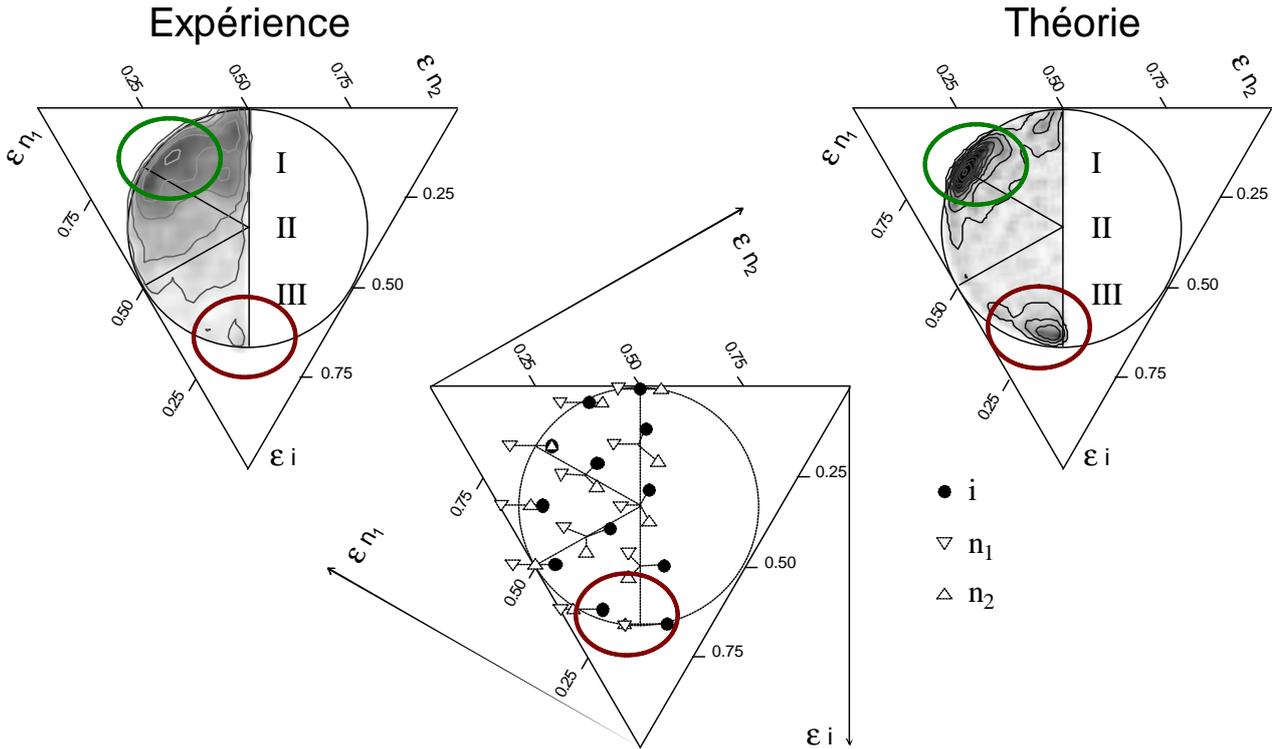


FIG. I.4.: Diagrammes de Dalitz théorique et expérimental pour un système $\text{Na}_3^+ + \text{He} \rightarrow \text{Na} + \text{Na} + \text{Na}^+ + \text{He}$

en jeu, et permet une meilleure compréhension.

Systèmes de détection temps-position basés sur les galettes de microcanaux

Les galettes de microcanaux sont utilisées pour la détection et la localisation de divers types de particules (ions, atomes, neutres, photons, électrons) pourvu que l'énergie cinétique soit suffisante (typiquement quelques centaines d'eV). Il existe plusieurs techniques de détermination des positions et des temps d'arrivée des particules (ReadOut) .

Une des premières techniques largement utilisée depuis les années 80 consiste à placer une anode derrière les galettes de microcanaux. Un premier type utilise une anode dite WSA² composée de trois anodes entre croisées. La position d'impact est déterminée par la mesure des charges sur les trois anodes [37, 38], ce qui permet d'atteindre une résolution spatiale de l'ordre de 300 μm . Le fait d'effectuer des mesures de charges implique un

²Wedge and Strip Anode

temps mort de l'ordre de microseconde.

Une deuxième type d'anode, dite résistive est constituée d'une surface de résistivité homogène qui permet de localiser la position en mesurant les quatre charges reçues sur les quatre sommets de l'anode résistive [39, 40]. Ce système a une très bonne résolution spatiale (60 μm). Cependant le temps mort reste de l'ordre de la microseconde.

Il est important de souligner que ces deux systèmes n'ont besoin que d'une électronique relativement simple, une voie pour coder le temps, et quatre (trois) amplificateurs de charge et de mise en forme suivis par quatre (trois) codeurs de charge.

Durant les dix dernières années de nouvelles techniques de détection de position résolue en temps ont été mises au point afin de réduire le temps mort de la détection.

Un premier type diffère de la technique précédemment décrite par l'utilisation d'anodes discrètes [24, 22, 41, 42, 43]. Le collecteur de charge est composé de plusieurs anodes indépendantes [41, 42] : chacune est reliée à sa propre voie électronique (CFD³+TDC⁴). Ce système a un temps mort nul à condition que les particules arrivent sur des anodes différentes. La résolution spatiale est limitée par la taille des anodes. Pour une surface de détection donnée, améliorer la résolution signifie augmenter le nombre d'anodes et par conséquent, le nombre de voies électroniques utilisées (1 anode = 1 voie). Finalement, la résolution spatiale est conditionnée par le nombre d'anodes qu'on se permet d'utiliser. Une résolution de 2,18 mm a été atteinte en utilisant 256 anodes [41].

Afin de réduire le nombre de voies électroniques, M. Lavollée a proposé de relier les anodes se trouvant sur une même ligne verticale (et horizontale) [43]. Ainsi une seule voie électronique est nécessaire par ligne (et par colonne) et non plus par anode. Le nombre de voies électroniques passe donc de $n \times n$ voies (le cas précédent) à $2n$ voies, n étant le nombre de lignes (et de colonnes). Cette économie de voies électroniques a permis d'augmenter le nombre d'anodes et d'obtenir une résolution spatiale de 0,625 mm. En revanche, cette fois pour que les particules soient détectées avec un temps mort nul il ne faut pas qu'elles arrivent sur des anodes reliées entre elles.

³CFD : discriminateur à fraction constant voir III.3.3.

⁴CFD : convertisseur temps numérique voir III.3.3

I. Introduction

Les multiples impacts sur la même anode, ou sur des anodes reliées, ont un temps mort de 10 ns.

Un deuxième type de détecteur est le système de localisation par lignes à retard. Ce système proposé par H. Schmidt -Böcking et ses collègues [44] est constitué en deux lignes de transmission (lignes à retard) croisées perpendiculairement. Chaque ligne, formée de deux fils conducteurs bobinés autour d'une plaque métallique, définit une des directions du plan de détection (x ou y). La position est déterminée par la mesure de la différence de temps d'arrivée des signaux aux deux extrémités de chaque ligne. Une résolution spatiale de 100 μm et temporelle < 1 ns ont été reportées[45]. Ce système souffre d'un temps mort et d'une zone morte significatifs qui sont discutés au chapitre III (voir aussi [46]). Une nouvelle version "Hexanode" utilisant une troisième ligne à retard a permis d'améliorer les performances en multi-hits, et de réduire la zone morte à $16 \times 16 \text{ mm}^2$ [47].

Une troisième technique utilise des caméras CCD comme système de localisation. Les électrons issus des galettes de microcanaux frappent un écran phosphore et génèrent un spot lumineux qui peut alors être enregistré par une caméra CCD. La caméra a l'avantage de permettre la mesure des positions d'impact de particules avec une très bonne résolution spatiale et sans temps mort. Leur inconvénient est que seule elle est incapable de donner une mesure de temps d'arrivée des particules. De plus, au contraire des systèmes décrits jusqu'à présent, les systèmes basés sur des caméra CCD ont un taux de répétition limité par celui de la caméra CCD.

Plusieurs solutions ont été proposées pour coupler une caméra CCD avec un système auxiliaire capable à fournir une information position grossière (partielle, et peu précise) et un temps d'arrivée précis. En couplant l'information position de la caméra CCD avec celle du système auxiliaire on peut associer la position fournie par la caméra avec le temps d'arrivée donné par le système auxiliaire.

Une première solution utilise un tube photo-multiplicateur multi-anodes (PMT) comme système auxiliaire [49]. Cette solution permet d'obtenir une résolution temporelle de 100 ps et spatiale de 100 μm . En revanche, quand deux particules arrivent sur la même anode le temps d'arrivée est perdu. Pour résoudre cette limitation, on pourrait penser à utiliser deux PMTs (horizontal et vertical) , mais même cette solution trouvera ces limites dans la détec-

tion de trois particules ou plus. Un système similaire, utilise une matrice de fils placée entre les galettes de microcanaux et l'écran phosphore [50], ou noyée dans l'écran phosphore [35]. Ces détecteurs partagent les mêmes performances mais nécessitent une électronique assez complexe. Le rapport de nombre de voies électroniques sur le pouvoir de discrimination de multiples impacts est assez défavorable. Par exemple, avec un PMT 16×16 anodes, on dispose d'une distance minimale entre deux particules de 1,8 mm au-dessous de laquelle la mesure du temps d'arrivée est impossible. Un nombre important de voies électroniques (16×16 voies) est nécessaire pour coder les informations provenant du PMT.

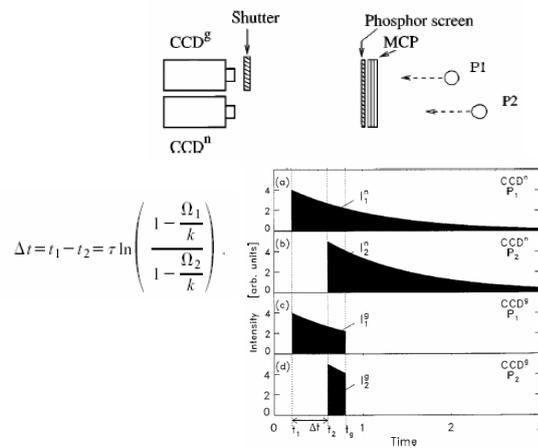


FIG. I.5.: Système de localisation à deux caméras. En bas, la variation de l'intensité enregistrée par chacune des deux caméras en fonction du temps.[48]

Une approche différente utilise deux caméras CCD, dont une n'est ouverte que pendant un intervalle de temps réduit t_g [48]. La stabilité du temps de réponse de l'écran phosphore a permis d'utiliser le rapport d'intensités des deux caméras pour extraire l'information temps d'arrivée (fig. I.5). Une résolution spatiale de l'ordre de 50 μm a été obtenue. Une particularité de ce système est sa résolution temporelle variant avec la différence de temps d'arrivée des particules détectées. Elle varie de 0.4 ns à 2 ns pour des différences de temps de 2 ns et 30 ns respectivement. Cette résolution continue à se dégrader pour des valeurs de différences de temps d'arrivée plus grandes. Une deuxième limitation est due à la superposition des spots quand les deux particules arrivent proche l'une de l'autre, la détermination du temps est alors

I. Introduction

impossible.

Le principe de notre détecteur est d'une part de coupler deux systèmes de détection indépendants qui observent le même phénomène et d'autre part de se servir de la complémentarité des informations fournies pour aboutir à une mesure de la localisation des événements avec un temps mort nul. Le premier système est constitué d'une caméra-CCD capable de fournir, sans temps mort, l'information de position avec précision. Le deuxième système est constitué d'une carte de numérisation qui enregistre le signal temps issu des galettes de micro-canaux pour obtenir une information temps précise et sans temps mort. Le lien entre ces deux systèmes est assuré par une anode constituée de deux lignes à retard, placées derrière les galettes de micro-canaux, capable de fournir les deux informations temps et position mais d'une façon moins précise que les deux autres systèmes.

Le mémoire est composé de quatre chapitres :

Ce présent chapitre est une introduction dans lequel nous présentons les motivations et les domaines d'application de ce travail. Nous faisons un résumé exhaustif des différents types de détecteurs multi-particules sensible en temps et position.

Le deuxième chapitre est dédié la présentation détaillée du dispositif expérimental employé dans notre travail : la source d'agrégats, le filtre de Wien, l'analyseur électrostatique, le puits de collection des ions de recul et les deux détecteurs d'ions. Nous présentons à la fin de ce chapitre un rappel sur les mécanismes de dissociation des agrégats. Nous définissons les différentes observables qui seront utilisées par la suite.

Le troisième chapitre est consacré à la description détaillée de notre nouveau système de détection *sans temps mort*. Nous y présentons le principe, les caractéristiques de chacun de ses éléments, la chaîne de détection électronique d'acquisition ainsi que les résultats d'une série de tests montrant ses performances.

Le quatrième chapitre est réservé à la présentation et à l'interprétation des résultats expérimentaux. Tous les canaux de dissociation des deux systèmes collisionnels Ar_2^+ - Ar et Ar_3^+ - Ar sont analysés et discutés.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] K. Vekey, A. Brenton and J. Beynon, *J. Phys. Chem*, 90, 3569 (1986)
- [2] C. Bréchnignac, Ph. Cahuzac, B. Concina, J. Leygnier and I. Tignères, *Eur. Phys. J. D*, 12, 185 (2000)
- [3] C. Bréchnignac, Ph. Cahuzac, J. Leygnier, R. Pflaum and J. Weiner, *Physical Review Letters*, 61, 314 (1988)
- [4] C. Bréchnignac, Ph. Cahuzac, B. Concina, J. Leygnier, L.F. Ruiz, B. Zarour, P.A. Hervieux, J. Hanssen, M.F. Politis, F. Martin *Phys. Rev. Lett.*, 89, 183402 (2002)
- [5] P. Hvelplund et *al.*, *Eur. Phys. J. D*, 22, 75 (2003)
- [6] S. Brøndsted Nielsen, J. U. Andersen, B. Liu and S. Tomita, *J. Phys B : At. Mol. Opt. Phys.* 37, R25 (2004)
- [7] Knut J. Brove and Jan Petter Hansen, *Z. Phys. D*, 25, 247 (1993)
- [8] M. F. Politis, P. A. Hervieux, J. Hanssen and M. E. Madjet, *Physical Review A*, 58, 367 (1998)
- [9] M. Guissani and V. Sidis, *J. Chem. Phys.* 102, 1288 (1995)
- [10] F. Martin and M. F. Politis, B. Zarour, P. A. Hervieux, J. Hanssen and M. E. Madjet, *Physical Review A*, 60, 4701 (1999)
- [11] B. Zarour et *al.*, *J. Phys. B : At. Opt. Phys.*, 33, L707 (2000)

Bibliographie

- [12] O. Knospe et *al.*, Physical Review A. 61, 022715 (2000)
- [13] O. Knospe et *al.*, Eur. Phys. J. D, 5, 1 (1999)
- [14] P. A. Hervieux, B. Zarour, J. Hanssen, M. F. Politis and F. Martin, J. Phys. B : At Mol. Opt. Phys., 34, 3331 (2001)
- [15] Z. Roller-Lutz, Y. Wang, H. O. Lutz, U. Saalman and R. Schmidt, Physical Review A, 56, R2555 (1999)
- [16] A. Huetz and J. Mazeau. Physical Review Letters,85, 530-533 (2000).
- [17] A. Dorn, A. Kheifets, C.D. Schröter, B. Najjari, C. Höher, R. Moshhammer and J.Ullrich.Physical Review A, 65, 032709 (2002).
- [18] J.Ullrich, R. Moshhammer, A. Dorn, R. Dörner, L Ph H Schmidt and H Schmidt-Böcking. Rep.Prog. Phys. 66, 1463-1545 (2003).
- [19] W. Wu and M. H. Prior. Physical Review A,57, R5 (1998).
- [20] R. Dörner et *al.*, Physical Review Letters,81, 5776 (1998).
- [21] L. Adoui et *al.*, Physica Scripta, T92, 89-95 (2001).
- [22] Alexandra A. Hoops, Ryan T. Bise, Hyeon Choi, Daniel M. Neumark. Chemical Physics Letters, 346, 89-96 (2001).
- [23] M. Barat, J.C. Brenot, J.A. Fayeton and Y.J. Picard, J. Chem. Phys., 117, 1497 (2002).
- [24] J-C Brenot, J.A. Fayeton et J-C Houver, Rev. Sci. Intsrum., 51, 1623-29 (1980)
- [25] B. Siegmann, U. Werner, H. O. Lutz and R Mann. J. Phys. B., 35, 3755-3765 (2002).
- [26] L. Chen, S. Martin, R. Bredy, J. Bernard and J. Désesquelles., Europhys. Lett., 58, 357-381(2002).
- [27] Todd G. Clements and Robert E. Continetti, Physical Review Letters, 89, 033005 (2002).
- [28] Tina S. Einfeld, Christof Maul, Karl-Heinz Gericke and Alexei Chichinin. , J. Chem. Phys.,117, 4214 (2002).
- [29] D. Strasser, L. Lammich, H. Kreckel, M. Lange, S. Krohn, D. Schwalm, A. Wolf and D.Zajfman, Physical Review A, 69, 064702 (2004).

- [30] D. Babikova, E. A. Gislason, M. Sizun, F. Aguilon, V. Sidis, M. Barat, J. C. Brenot, J. A. Fayeton, and Y. J. Picard, , J. Chem. Phys., 116, 4871 (2002)
- [31] N. Saito, A. De Fanis, I. Koyano and K. Ueda, Physica Scripta, 110, 90-95 (2004).
- [32] A. Cerezo, J.M. Hyde, M.K. Miller, G. Beverini, R.P. Setna, P.J. Warren and G.D.W. Smith, Surface Science, 266, 481-493 (1992).
- [33] D. Blavette, A. Bostel, J. M. Sarrau, B. Deconihout and A. Menand, Letters to Nature, 363, 432 (1993).
- [34] D. Blavette, B. Deconihout, A. Bostel, J. M. Sarrau, M. Bouet and A. Menand, Rev. Sci. Instrum, 64, 2911 (1993).
- [35] B. Deconihout, L. Renaud, G. Da Costa, M. Bouet and D. Blavette, Ultramicroscopy Rev. Sci. Instrum, 73, 253-260 (1998).
- [36] M. Barat, J.C. Brenot, J.A. Fayeton, Y.J. Picard, D. Babikov and M. Sizun, Chemical Physics Letters, 306, 233-238 (1999).
- [37] O. H. W. Siegmund, R. F. Malina, K. Coburn and W. Werthimer, IEEE Trans. Nucl. Sci. Vol. NS-31, p. 776, (1984)
- [38] H.E. Schwarz and J. S. Lapington, IEEE Trans. Nucl. Sci., Vol NS-32, p. 433, (1985)
- [39] M. Lampton and C. Carlson, Rev. Sci. Instrum., 50, 1093 (1979)
- [40] G. Chauvet, A. Brenac and R. Baptist, Rev. Sci. Instrum., 58, 197 (1987)
- [41] S. Bouneau, P. Cohen, S. Della Negra, D. Jacquet, Y. Le Beyec, J. Le Bris, M. Pautrat and R. Sellem, Rev. Sci. Instrum., 74, 57 (2003)
- [42] S. Martin, L. Chen, A. Denis, R. Bredy, J. Bernard and J. Désesquelles, Phys. Rev. A, 62, 022707 (2000).
- [43] M. Lavollée, Rev. Sci. Instrum., 70, 2968 (1999)
- [44] R. Dörner, H. Khemliche, M.H. Prior, C.L. Cocke, J.A. Gray ; R.E Olson, V. Mergel, J. Ullrich and H. Schmidt-Böcking, Phys. Rev. Lett. 77, 4520 (1996)
- [45] O. Jagutzki, J.S Lapington, L.B.C Worth, U. Spillmann, V. Mergel, H. Schmidt-Böcking, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 477 (2002) 256-261

Bibliographie

- [46] O. Jagutzki, V. Mergel, K. Ullmann-Pfleger, L. Spielberger, U. Spillmann, R. Dörner, H. Schmidt-Böcking, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 477 (2002) 244-249.
- [47] O. Jagutzki, A. Cerezo, A. Czasch, R. Dörner, M. Hattab, M. Huang, V. Mergel, U. Spillmann, K. Ullmann-Pfleger, T. Weber, H. Schmidt-Böcking and G.W. Smith, IEEE Transactions on Nuclear Science, 49, No. 5, page 2477.
- [48] D. Strasser, X. Urbain, H.B. Pedersen, N. Altstein, O. Heber, R. Wester, K .G Bhushan and D. Zajfman, Rev. Sci. Instum, 71, 3092 (2000)
- [49] Z. Amitay and D. Zajfman, Rev. Sci. Instum, 68, 1387 (1997).
- [50] O. Heber, D. Zajfman, D. Kella, Z. Vager, R.L. Watson, V. Horvat, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B 99 (1995) 90-93.
- [51] M. Barat, J.C. Brenot, H. Dunet, J.A. Fayeton and Y.J. Picard, J. Chem. Phys., 113, 1061 (2000) .

CHAPITRE

II

Dispositif expérimental

Sommaire

II.1. Description générale de l'expérience	22
II.2. Source d'agrégats ionisés	23
II.3. Sélection en masse	27
II.4. La cible : jet supersonique	29
II.5. Analyseur électrostatique	35
II.6. Le puits de collection des ions de recul : spec- tromètre de vitesse	36
II.7. Détecteur des neutres : résolution sur les me- sures des vitesses	52
II.8. Traitement de données et observables	54
II.9. Généralités sur les mécanismes de dissociation d'un agrégat	59

II.1. Description générale de l'expérience

LE schéma d'ensemble du dispositif expérimental est présenté sur la figure II.1. Les agrégats d'argon produits lors d'une détente libre sont ionisés par impact électronique, accélérés à une énergie de 2.4 keV et sélectionnés en masse avec un filtre de Wien. Le faisceau peut être haché temporellement afin de mesurer le temps de vol des particules dans certaines expériences. Après une ré-accelération jusqu'à des énergies de 5 keV, le faisceau entre en collision avec une cible issue d'un jet supersonique. Les fragments chargés (rapides) sont sélectionnés en énergie (donc en masse) par un analyseur électrostatique et sont reçus sur un détecteur sensible en temps et en position. Les fragments neutres (rapides également) sont reçus dans la direction du faisceau incident sur un deuxième détecteur multi-particules sensible en temps et en position. Les particules cibles chargées produites après un échange de charge sont extraites par un puits électrostatique et détectées avec un troisième détecteur sensible en temps et en position. La mesure en coïncidence des données temporelles et spatiales des fragments (fragments neutres et ionique ou fragments neutres et particule cible de recul) permet de remonter à la cinématique de la dissociation.

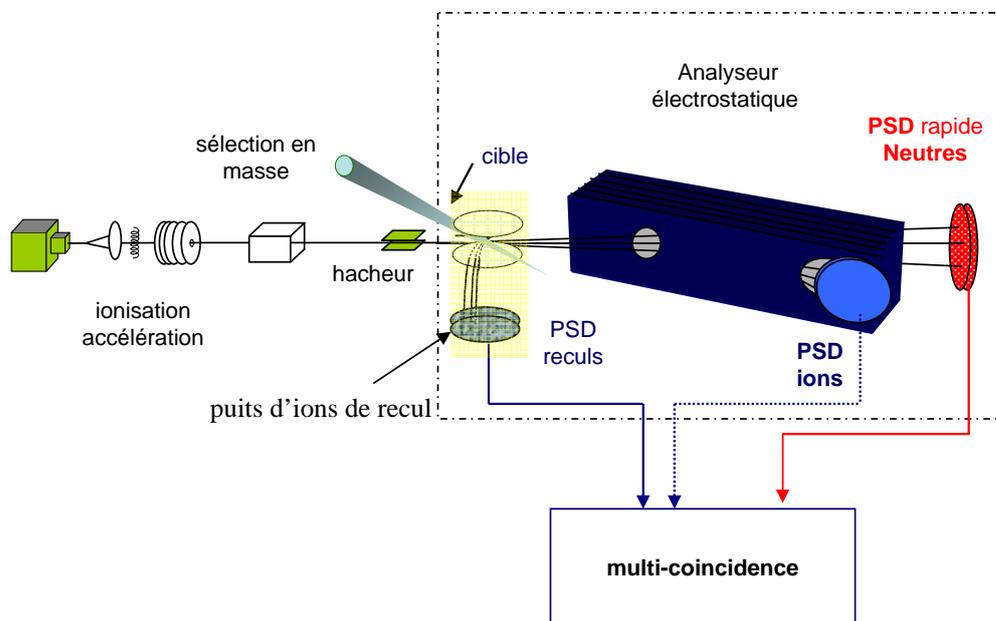


FIG. II.1.: Schéma d'ensemble du dispositif expérimental

L'ensemble du dispositif est maintenu à un vide secondaire de 10^{-7} torr. Le vide dans la source d'agrégats et la zone de collision est assuré par des pompes à diffusion d'huile d'un débit de 2000 l s^{-1} . Des pompes à diffusion d'huile plus petites (700 l s^{-1}) maintiennent le vide dans les autres parties du dispositif [1].

II.2. Source d'agrégats ionisés

Les agrégats d'argon sont produits lors d'une détente libre continue d'argon entre une haute pression appelée pression de stagnation et une zone de basse pression à travers une buse refroidie à l'azote liquide. L'état thermodynamique du gaz et la dimension de la buse déterminent la possibilité de la formation d'agrégats. Cette formation est favorisée en augmentant la densité du gaz au niveau de la buse (*i.e.* la pression de stagnation p_0) et en diminuant la température T et augmentant le diamètre d de la buse [2, 3].

En 1987, Hagena a introduit un paramètre Γ^* reliant les caractéristiques du gaz et les conditions de détente. Ce paramètre donne, pour une condition de détente et un gaz donnés, un critère d'agrégation. Différentes détentes du même gaz, ayant un même Γ^* , ont donc un comportement similaire en vue de la formation d'agrégats. Pour l'argon, Γ^* a l'expression suivante [4] :

$$\Gamma^* = \frac{p_0 d^{0.85}}{T^{2.2875}} K_{ch} \quad (\text{II.1})$$

K_{ch} contient les caractéristiques du gaz : pour l'argon $K_{ch} = 1646$ avec p_0 en mbar, la température T en K et le diamètre d_0 en μm .

Dix ans plus tard, Buck *et al.* [5] ont estimé la taille moyenne des agrégats, par une méthode de diffusion d'agrégats d'argon produits par une détente adiabatique sur une cible d'hélium atomique. Ils ont ensuite relié la taille moyenne de ces agrégats \bar{n} au paramètre Γ^* donné pour différentes conditions de source. Ils en ont déduit une loi d'échelle :

$$\bar{n} = 38.4 \times \left(\frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{1.64} \quad \text{pour } 350 \leq \Gamma^* \leq 1800 \quad (\text{II.2})$$

La largeur de la distribution gaussienne a été estimée à $\Delta n = \bar{n}/2$.

II. Dispositif expérimental

Dans notre cas, nous avons tracé (figure II.2) la variation \bar{n} en fonction de la pression de stagnation p_0 pour $T_0 = 170$ K et $d_0 = 20$ μm .

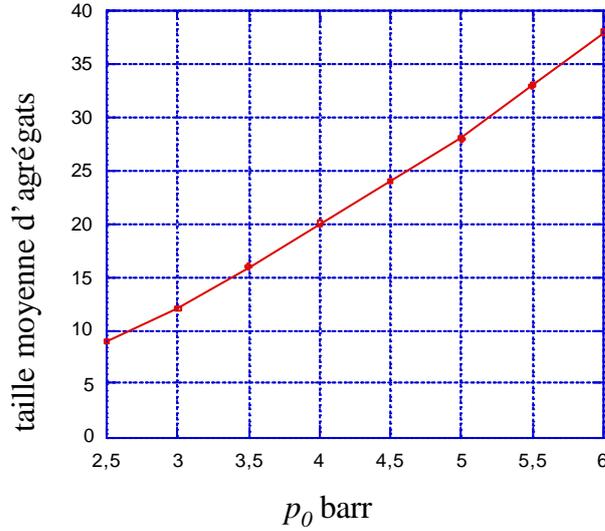


FIG. II.2.: Distribution de la taille moyenne des agrégats d'argon en fonction de la pression de stagnation donnée par la formule II.2 [5] pour $T_0 = 170$ K et $d_0 = 20$ μm

Choix des paramètres de la source La source est pompée par une pompe à diffusion de débit de 2000 l/s couplée à une pompe primaire de débit 40 m^3/h . Cette vitesse du pompage impose une contrainte sur le débit du gaz. Le débit de particules émis par la source vaut :

$$\frac{dN}{dt} = C \frac{T_c}{T_0} \sqrt{\frac{300}{T_0}} (p_0 d_0) d_0$$

où C est une constante qui dépend du gaz, pour l'argon $C = 14$ l/cm².s. T_c et T_0 sont, respectivement, les températures en kelvin de l'enceinte et de la buse. p_0 la pression de stagnation en bar et d_0 est le diamètre de la buse en cm.

Ce débit doit être absorbé par la pompe, on doit donc avoir

$$\hat{T} = S \times P_b = C \frac{T_c}{T_0} \sqrt{\frac{300}{T_0}} (p_0 d_0) d_0$$

\hat{T} (torr l/s) est le paramètre de pompage défini comme le produit de la vi-

tesse de pompage S (l/s) par la pression de l'enceinte p_b (torr), ce qui impose une contrainte sur le produit $p_0 \times d_0$. Dans l'expérience nous utilisons une buse de 20 μm ce qui permet d'atteindre une pression de stagnation maximale de 6 bars. La taille moyenne des agrégats neutres formés dans de telles conditions et à température ambiante est de 4. Un refroidissement de la buse à l'azote liquide (170 K) permet d'augmenter la taille des agrégats pour atteindre une taille moyenne de 38.

II.2.1. Ionisation et accélération

Les agrégats sont ionisés par impact d'électrons d'énergie 70 eV émis par un filament annulaire en tungstène thorié. Une fois ionisés, les agrégats sont accélérés et guidés par une optique électrostatique. *A priori*, on ignore l'énergie interne initiale des agrégats ainsi formés.

Une estimation de l'énergie vibrationnelle des ions Ar_2^+ a été obtenue par Yu-Chiu *et al.* [6]. Dans leur expérience, les ions Ar_2^+ sont formés par impact d'électrons d'énergie de 40 eV à partir d'un faisceau d'agrégats neutres de taille moyenne 200. La distribution de l'énergie interne des ions varie en fonction de la distance buse - point d'ionisation. Pour une distance buse - point d'ionisation de 0,5 mm on forme un Ar_2^+ "froid" dont la valeur moyenne de l'énergie interne est très faible. Au contraire, pour une distance de 5 mm on forme un Ar_2^+ "chaud" possédant une énergie interne de 1 eV. Cette valeur est proche de la valeur du puits de Ar_2^+ (1,3 eV).

Les agrégats ionisés Ar_n^+ sont produits de deux façons différentes (par exemple Ar_2^+ [7]) : soit par ionisation directe d'un agrégat neutre Ar_n , soit par ionisation d'un agrégat de masse supérieure Ar_m^+ suivie par de l'évaporation de $(m - n)$ atomes neutres, ce qui a pour effet de diminuer son énergie interne. Ceci implique que la taille moyenne des agrégats ionisés n'est pas la même que celle des agrégats neutres.

Nous avons mesuré par spectroscopie à temps de vol l'évolution de la taille d'agrégats ionisés en fonction de la pression de stagnation. Dans cette expérience le filtre de Wien a été désactivé et on détecte ainsi tous les agrégats ionisés sur le détecteur d'ions. La mesure du temps de vol donne accès à la distribution en taille des agrégats. L'évolution de cette distribution en fonction de p_0 est présentée sur la figure II.3.

II. Dispositif expérimental

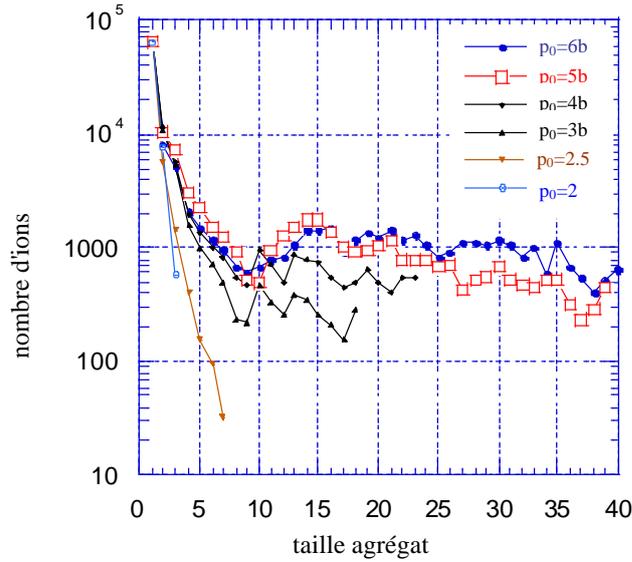


FIG. II.3.: Distribution de la taille des agrégats ionisés en fonction de la pression de stagnation ($T_0=170$ K)

Notons d'abord que la taille moyenne des agrégats ionisés est inférieure à celle prévue par la relation II.2 pour les agrégats neutres. Pour essayer de comprendre cette différence nous présentons un modèle assez simple dans lequel on considère que les agrégats ionisés d'argon ont la structure d'un dimère chargé et d'atomes neutres périphériques peu liés [12, 13] :

Un modèle, proposé par Haberland [8, 11] basé sur la localisation de la charge dans l'agrégat, donne une explication du processus d'ionisation- fragmentation d'agrégats d'argon par impact électronique :

L'ionisation est suffisamment rapide pour que le coeur ionique Ar_2^+ soit formé par une transition de type Franck-Condon (fig. II.4) à partir d'agrégat neutre. La grande différence entre les distances d'équilibre de Ar_2 et Ar_2^+ implique que le dimère "coeur" possède d'une énergie vibrationnelle de 1,2 eV. Cette énergie est ensuite redistribuée par couplage vibrationnel à tous les modes de vibration de l'agrégat.

Le profondeur du puits Ar_2^+ est de 1,3 eV. L'énergie de liaison des Ar périphériques dans un Ar_n^+ est de l'ordre de 0,06 eV excepté pour Ar_3^+ où l'atome neutre est lié par 0,2 eV au coeur ionique [14].

Avec une énergie interne de 1,2 eV, on peut s'attendre à évaporer environ 18 atomes ($18 \times 0,065 = 1,2$ eV) sauf si on atteint Ar_3^+ avec moins de

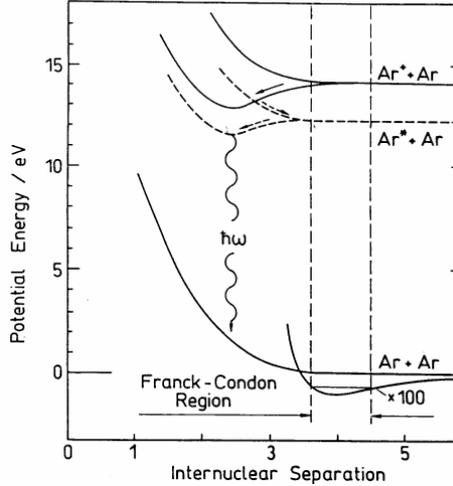


FIG. II.4.: Courbes d'énergie potentielle de Ar_2 et Ar_2^+ [18]

0,2 eV d'énergie interne dans ce cas on obtient des ions Ar_3^+ .

Avec les conditions de l'expérience ($p_0 = 6$ bars, $T = 170$ K, $d = 20 \mu\text{m}$) la taille moyenne prévue par la relation II.2 est de **38**. Supposons que la distribution de la taille d'agrégats neutres soit une gaussienne centrée à 38 avec une largeur de 19 ($\Delta n = \bar{n}/2$). La distribution des agrégats ionisés est différente de celle avant l'ionisation. Elle est décalée de 18 (le nombre d'atomes perdus lors de l'impact) avec accumulation sur les tailles 2 et 3. On obtient la courbe (en trait plein) présentée sur la figure II.5. Cette courbe donnée par ce modèle simple reproduit assez bien la tendance expérimentale.

II.3. Sélection en masse

La sélection en masse est assurée par un filtre de Wien (Colutron velocity filter model 300) [15]. Le principe est d'appliquer un champ électrique E et un champ magnétique B orthogonaux et transverses par rapport à l'axe d'incidence du faisceau. L'ion est donc soumis à une force électromagnétique selon la direction perpendiculaire à l'axe d'incidence.

$$\vec{F} = q \vec{E} + q \vec{v} \wedge \vec{B}$$

q , v sont la charge et la vitesse de la particule respectivement.

II. Dispositif expérimental

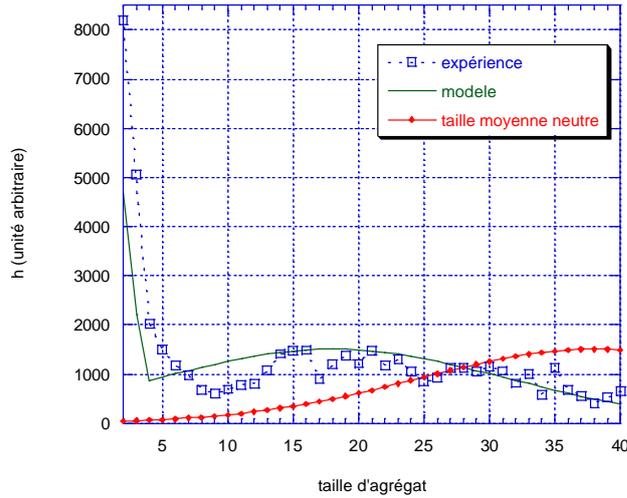


FIG. II.5.: Distribution de taille d'agrégats avec $T = 170$ K, $p_0 = 6$ bars, $d = 20 \mu\text{m}$. points pleins : distribution donnée par la formule II.2, carrés ouverts : points expérimentaux et trait continu : distribution tracée avec le modèle (voir texte II.2.1)

Les valeurs des champs sont choisies telles que la force résultante est nulle pour une vitesse de particule donnée ($v = \frac{E}{B}$). Les particules ayant des vitesses différentes v sont déviées par la force F . La résolution en masse est donnée par la relation :

$$\frac{\Delta M}{M} = 4 \frac{U_0}{U_{Wien}} \frac{D.l}{a.L} \quad (\text{II.3})$$

Avec $U_0 = 2400$ V tension d'accélération des particules incidentes, $D = 2$ mm diamètre du diaphragme de sortie du filtre de Wien, $a = 150$ mm est la longueur du filtre, $L = 1$ m la distance entre le milieu du sélecteur et le diaphragme, $l = 19$ mm distance entre les deux plaques défectrices, U_{Wien} la tension appliquée sur les deux plaques défectrices (fig. II.6).

Le champ magnétique est créé à l'aide d'un solénoïde parcouru par un courant de 7 A produisant ainsi un champ de 0,1384 tesla. Le dispositif est maintenu à une température de 20°C par un circuit de refroidissement.

La résolution en énergie est donnée par relation suivante :

$$\Delta E = (2E)^{\frac{3}{2}} \frac{D}{L.a} \frac{1}{B} \sqrt{M}$$

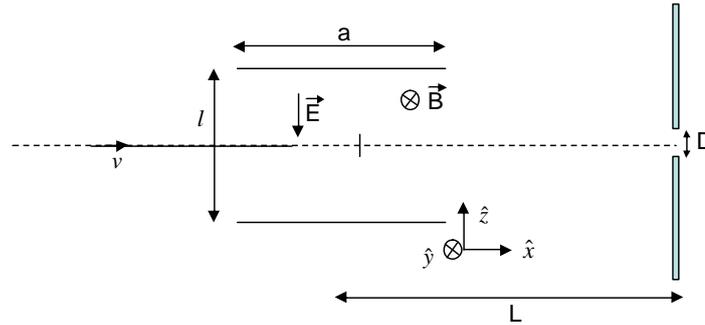


FIG. II.6.: Illustration schématique du filtre de Wien

Le tableau ci-dessous résume les valeurs de la résolution en masse et la sélection en énergie pour Ar_2^+ et Ar_3^+ .

	$\Delta M/M$	$\Delta E(\text{ev})$
Ar^+	8.10^{-3}	20
Ar_2^+	12.10^{-3}	28
Ar_3^+	15.10^{-3}	35

II.4. La cible : jet supersonique

La cible d'argon est produite par un deuxième jet supersonique dont la direction est perpendiculaire au faisceau incident. Ce jet réalisé par R. Campargue [17] (fig. II.7) a l'avantage d'être continu, à haute densité et de faible ouverture angulaire ($1,3^\circ$). *Le jet supersonique a une faible vitesse transverse ce qui permet d'atténuer la dispersion en vitesse du faisceau diffusé, paramètre qui est particulièrement important dans les collisions d'un projectile lourd sur une cible légère.* Dans ce paragraphe nous présentons un résumé sur ce type de jet supersonique. Des informations plus détaillées peuvent être trouvées dans la référence [16].

En principe, le jet supersonique est obtenu par une détente dans le vide d'un gaz maintenu à une haute pression p_0 . Cette détente est faite à travers une buse dont le diamètre d_0 est telle que $d_0 \gg \lambda_0$, λ_0 est le libre parcours moyen d'une molécule du gaz sous la pression p_0 . L'écoulement à travers la buse transforme le mouvement désordonné initial en un mouvement de

II. Dispositif expérimental

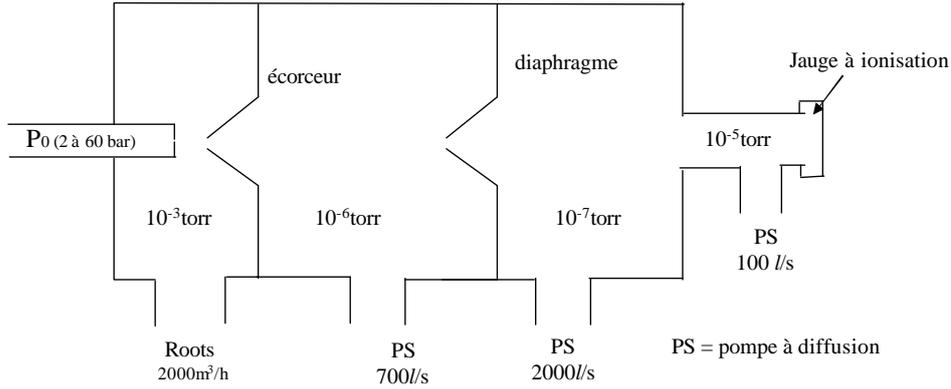


FIG. II.7.: Un schéma du système de pompage du jet supersonique

translation dans l'axe de la buse. Ceci implique la réduction des composantes transverses en faveur de la composante axiale de la vitesse, on note aussi une forte réduction de la dispersion de la vitesse axiale.

Un schéma général est présenté sur la fig. II.8. Le jet est produit lors d'une détente d'un gaz maintenu à une haute pression p_0 dite pression de stagnation vers une zone de basse pression p_b à travers une buse de diamètre d_0 . Le flux peut atteindre la vitesse sonique (la vitesse moyenne égale à la vitesse locale du son *i.e.* un nombre de Mach égal à 1) à la sortie de la buse à condition que le rapport $\frac{p_0}{p_b}$ dépasse un certain seuil critique $G = ((\gamma + 1)/2)^{\gamma/(\gamma-1)}$ qui est inférieur à 2,1 pour tous les gaz. Si le rapport $\frac{p_0}{p_b}$ est inférieur à G le flux est sub-sonique et la pression à la sortie de la buse est proche de p_b . Au contraire pour les valeurs de $\frac{p_0}{p_b}$ supérieures à G le jet devient supersonique et la pression à la sortie de la buse est indépendante de p_b et vaut p_0/G . Toutefois, la pénétration du jet dans l'enceinte où règne une pression résiduelle p_b provoque la création d'un système d'ondes de choc caractérisé par une enveloppe latérale et un disque de Mach, formant ainsi un volume appelé zone de silence. A l'intérieur de cette zone de silence (fig. II.8), les atomes du jet ayant une vitesse supersonique n'ont pas le temps de sentir les conditions aux limites (l'existence du gaz résiduel) puisque l'information se propage à la vitesse du son. Autrement dit, l'écoulement est identique à celui qu'on observait avec une détente dans le vide.

La partie centrale du jet est extraite par l'intermédiaire d'un cône percé

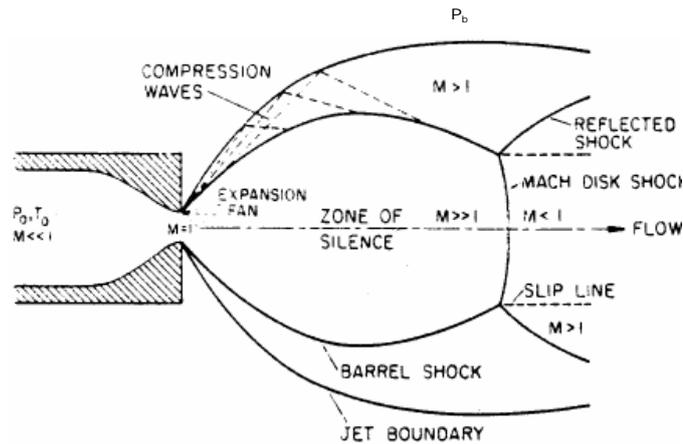


FIG. II.8.: Un schéma général du jet supersonique

en son sommet appelé écorceur¹, conçu de façon à minimiser les perturbations de l'écoulement dans la chambre en aval de la détente. La distance entre l'écorceur et la buse est un paramètre important dans l'optimisation de l'intensité du jet à la sortie. En outre, un diaphragme, monté en aval de l'écorceur, est utilisé afin de limiter la divergence angulaire du jet (voir fig II.9).

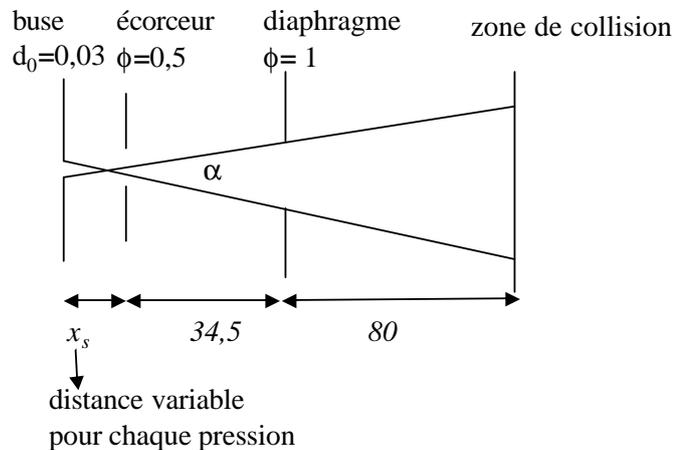


FIG. II.9.: Un schéma géométrique du jet supersonique (les distances sont en mm)

Dans la suite nous allons présenter un calcul détaillé des différents para-

¹skimmer en anglais

II. Dispositif expérimental

mètres du jet dans les conditions de l'expérience :

$$d_0 = 3.10^{-3} \text{ cm}, T_0 = 300 \text{ K}, p_0 = 4 \text{ bars}, p_b = 5.10^{-3} \text{ torr}, \gamma = 5/3$$

Le but est avant tout de former un jet d'argon atomique. Ceci impose une contrainte sur la valeur maximale de la pression de stagnation. Au dessus de cette valeur d'éventuelles agrégations peuvent avoir lieu dans le jet. Le taux d'agrégation est estimé à l'aide du paramètre D^* [16].

$$D^* = \frac{p_0}{(\varepsilon/\sigma^3)} \left(\frac{d_0}{\sigma} \right)^{0,4} \left(\frac{T_0}{(\varepsilon/k)} \right)^{-2,4} < 0,1$$

avec pour l'argon : $\sigma = 3,33.10^{-8} \text{ cm}$, $d_0 = 3.10^{-3} \text{ cm}$, $\varepsilon/k = 144,4 \text{ K}$, $k = 1,38.10^{-16} \text{ erg/K}$

Le taux d'agrégation reste inférieur à 1% tant que D^* est en dessous de 0,1. La valeur maximale de la pression de stagnation correspondante est donc de $p_0 = 3,3 \text{ bars}$. En fait, dans notre expérience la pression de stagnation choisie est un peu supérieure $p_0 = 4,5 \text{ bars}$, ce qui augmente très peu le taux d'agrégation qui reste ainsi négligeable (2%).

La distance de formation du disque de Mach X_{Mach} par rapport à la buse est donnée par :

$$X_{Mach} = 0,67 d_0 \sqrt{\frac{p_0}{p_b}} = 1,65 \text{ cm} \quad (\text{II.4})$$

Le nombre de Mach à la distance $x = X_{Mach}$:

$$M < A \left(\frac{X_{Mach} - x_0}{d_0} \right)^{\gamma-1} = 210$$

avec les constants données pour l'argon : $x_0/d_0 = 0,075$ et $A = 3,29$.

Après avoir calculé le nombre de Mach, nous pouvons trouver tous les paramètres thermodynamiques du jet.

$$\frac{T}{T_0|_{x=x_{Mach}}} = \left(1 + \frac{\gamma-1}{2} M^2 \right)^{-1} = 6,8.10^{-5} \quad (\text{II.5})$$

$$\frac{n}{n_0|_{x=x_{Mach}}} = \left(\frac{T}{T_0} \right)^{1/(\gamma-1)} = 4,9.10^{-7}$$

où n , T sont, respectivement, la densité et la température du jet à $x = x_{Mach}$

et n_0, T_0 la densité et la température du jet en amont de la buse.

La position optimale du skimmer peut être calculée par :

$$x_s = 0,125 \left[\frac{d_0 p_0}{\lambda_0 p_b} \right]^{1/3} \quad d_0 = 0,44 \text{ cm}$$

λ_0 est le libre parcours moyen dans la source :

$$\lambda_0 = \left[5,3.n_0 \left(\frac{C_6}{kT_0} \right)^{1/3} \right]^{-1} = 1,26.10^{-6} \text{ cm}$$

avec $C_6/k = 7,88.10^{-43} \text{ K.cm}^6$

L'intensité du jet est sensible à la position du skimmer, nous avons donc tracé sur la figure II.10, la variation de la pression donnée par une jauge à ionisation montée dans l'enceinte sur l'axe du jet en fonction de la position de l'écorceur. La mesure de pression est proportionnelle à l'intensité du jet. La position optimale du skimmer correspondant à l'intensité maximale est de 4.5 mm.

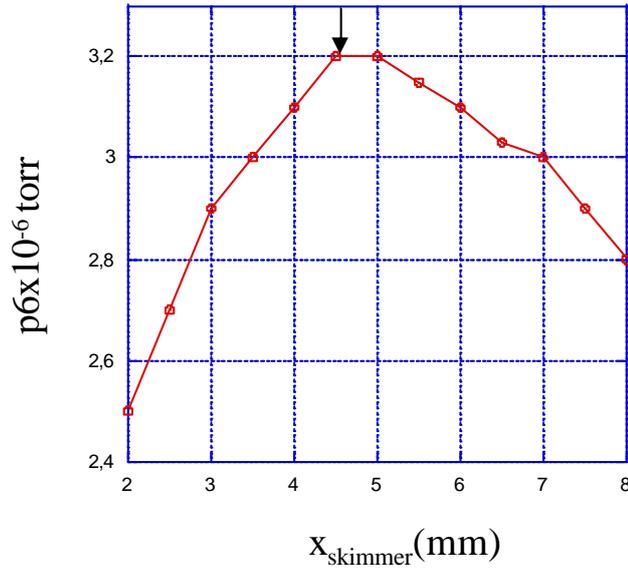


FIG. II.10.: Variation de la pression (p_6) donnée par une jauge à ionisation montée dans l'enceinte sur l'axe du jet en fonction de la position de l'écorceur.

Dans la cas ou l'écorceur est à la position x_s l'intensité du jet en aval de

II. Dispositif expérimental

l'écorceur est donnée par :

$$I = I_0 q_1 \exp(-q_2 \frac{d_s}{\lambda_s}) = 3.10^{18} \text{ molcules.s}^{-1}.\text{sr}^{-1}$$

avec :

- I_0 l'intensité du jet dans le cas idéal en absence de l'écorceur $I_0 = \kappa F n_0 (2 \frac{RT_0}{W})^{1/2} \frac{d_0^2}{4} = 8,77.10^{18} \text{ molcules.s}^{-1}.\text{sr}^{-1}$.
- λ_s libre parcours moyen à l'écorceur $\lambda_s = \left[\lambda \left(\frac{n_0}{n} \right) \left(\frac{T}{T_0} \right)^{1/3} \right]_{|x=x_s} = 1,33.10^{-2} \text{ cm}$.
- n densité de jet à $x = x_s$: $\frac{n}{n_0} = 6,96.10^{-6}$
- T température du jet à $x = x_s$: $\frac{T}{T_0} = 3,95.10^{-4}$
- d_s diamètre de l'écorceur : $d_s = 0,5 \text{ mm}$
- $\kappa = 1,98$.
- $F = 0,513$
- $W = 40$ ua masse atomique de l'argon

La vitesse d'entraînement pour les gaz rares (eg. pour l'argon) est donnée par :

$$\bar{V} = \sqrt{\frac{5kT_0}{m_{Ar}}} = 558,4 \text{ m.s}^{-1} \quad (\text{II.6})$$

avec $T_0 = 300 \text{ K}$ la température de la buse.

La distribution de la vitesse de translation est donnée par [18] :

$$f(v) = \left(\frac{v}{\alpha} \right)^3 \exp \left[- \left(\frac{\bar{V} - v}{\alpha} \right)^2 \right] \quad (\text{II.7})$$

avec $\alpha = \sqrt{\frac{2kT}{m}}$.

L'équation II.7 donne un critère d'estimation de la température (T) du jet.

Finalement la densité du jet dans la zone de collision dépend de l'intensité du jet, et de l'ouverture angulaire du jet ($\alpha = 1,3^\circ$).

$$n = \frac{I \Omega}{\bar{V} \cdot S} = 8,42.10^{17} \text{ atomes.m}^{-3}$$

avec $\Omega = 4.10^{-4} \text{ sr}$ l'ouverture du jet, $d_{col} = 80 \text{ mm}$ est la distance entre l'écorceur et la zone de collision, S est la surface du jet dans la zone de collision $S = \pi \alpha^2 d_{col}^2 / 4 = 2,59.10^{-6} \text{ m}^2$.

Le jet supersonique est aussi un moyen efficace pour former des molécules à des températures transverses très faibles (voir eq. II.5). Par exemple, dans la cas d'une cible moléculaire H_2 une température de 0,2 K est atteinte, et ainsi seuls les états vibrationnels $v = 0$ et rotationnels $J = 0, J = 1$ sont peuplés [9]. Toutefois, les "gros" agrégats ($n > 6$), formés dans un jet supersonique, possèdent un excès en énergie interne dû à la procédure de condensation [10].

II.5. Analyseur électrostatique

Après la collision, les fragments neutres et ionique sont séparés par un analyseur électrostatique à plaques parallèles faisant un angle de 30° avec la direction du faisceau incident, et sont reçus sur un détecteur sensible en temps et en position. La figure II.11 schématise la trajectoire d'un ion dont la direction initiale fait un angle β avec l'analyseur. La position de l'ion sur le détecteur est directement reliée à son énergie cinétique.

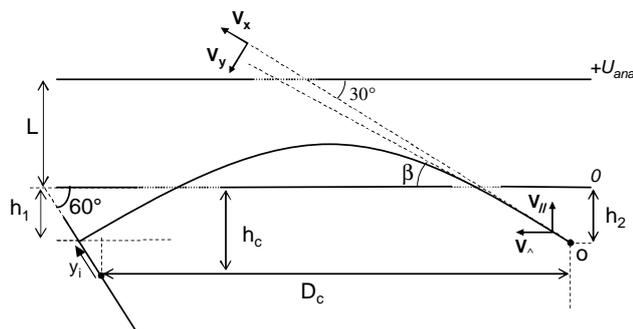


FIG. II.11.: Trajectoire schématisée d'un ion dans l'analyseur électrostatique de champ $\frac{U_{ana}}{L}$. h_2 est la distance entre o le centre de la zone de collision et l'analyseur. h_c et D_c sont les distances entre le centre du détecteur et respectivement l'analyseur et la zone de collision. h_1 est la distance entre le point d'impact sur le détecteur et l'analyseur .

Le vecteur vitesse d'un ion (de charge q et de masse m) est déterminé à partir de sa position d'arrivée (y_i, z_i) sur le détecteur et de son temps de vol t_i entre la zone de collision et le détecteur.

La composante de vitesse V_z suivant l'axe du détecteur perpendiculaire au

II. Dispositif expérimental

plan de la trajectoire de l'ion est donnée simplement par :

$$V_z = \frac{z_i}{t_i} \quad (\text{II.8})$$

Les composantes de vitesse V_x et V_y (fig. II.11) sont exprimées *via* un changement de repère correspondant à une rotation d'un angle de 30° dans le plan de l'analyseur. Nous notons V_\perp et V_\parallel (fig. II.11) les composantes dans les directions perpendiculaire et parallèle au champ électrique (U_{Ana}/L) de l'analyseur produit par une tension U_{Ana} . On obtient donc :

$$V_\perp = \frac{D_c + y_i \cos(60)}{t_i} \quad (\text{II.9})$$

$$V_\parallel = t_i \frac{qU_{Ana}}{4mL} + \sqrt{\left(t_i \frac{qU_{Ana}}{4mL}\right)^2 - \frac{qU_{Ana}}{2mL}(h_2 + h_c - y_i \sin(60))} \quad (\text{II.10})$$

et

$$\begin{pmatrix} V_x \\ V_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sin(30) & \cos(30) \\ -\cos(30) & \sin(30) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} V_\parallel \\ V_\perp \end{pmatrix} \quad (\text{II.11})$$

Une calibration de l'analyseur électrostatique est nécessaire pour corriger les effets des champs de fuite. Cette calibration a été effectuée en utilisant l'échange de charge résonnant lors de la collision $Ar^+ + Ar$ [1]. Seule la composante parallèle de la vitesse est sensible aux champs de fuites. Les corrections obtenues sont optimisées pour chaque expérience en vérifiant la symétrie cylindrique du cône de diffusion des vecteurs vitesses (V_x, V_y) des fragments.

II.6. Le puits de collection des ions de recul : spectromètre de vitesse

Ce spectromètre est utilisé pour extraire et détecter l'ion de recul produit lors du transfert de charge entre la cible et l'ion projectile. L'ion de recul est extrait de la zone de collision par un champ électrostatique uniforme E transverse au plan macroscopique de collision (fig II.12), il traverse ensuite un espace de vol libre et atteint une zone dite de post-accélération où l'ion est

II.6. Le puits de collection des ions de recul : spectromètre de vitesse

accélééré par une tension de 2,8 kV afin de pouvoir être détecté par un détecteur sensible en temps et en position basé sur des galettes de microcanaux. Le temps de vol et les coordonnées d'impact sont mesurés ce qui permet de déterminer le vecteur vitesse de l'ion de recul.

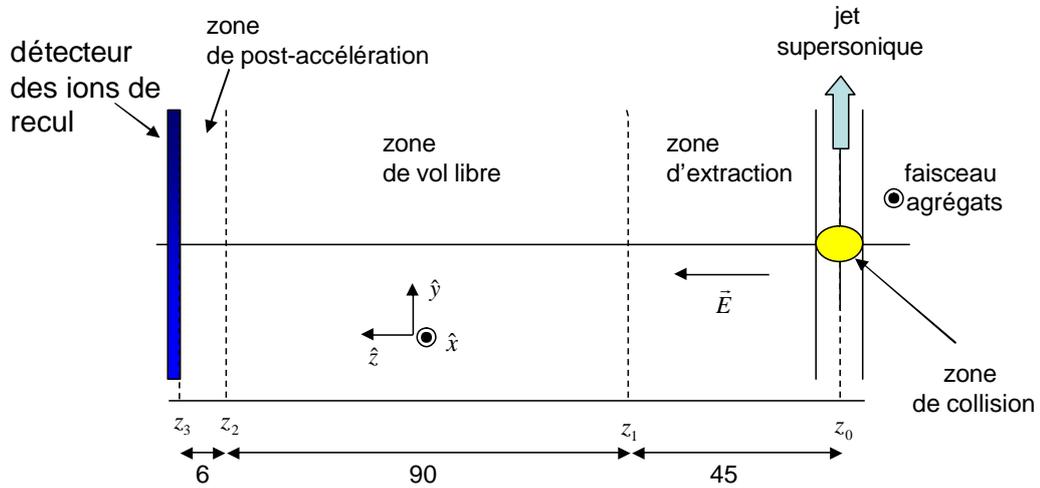


FIG. II.12.: schéma simplifié du puits des ions de recul

La figure II.12 montre un schéma simplifié du dispositif. Le champ électrique étant appliqué selon la direction \hat{z} , les composantes du vecteur vitesse selon \hat{x} et \hat{y} (V_X , V_Y) se déduisent simplement de la position d'impact sur le détecteur et du temps de vol de l'ion de recul. Elles sont données par :

$$V_X = \frac{x - x_0}{T} \quad (\text{II.12})$$

$$V_Y = \frac{y - y_0}{T} \quad (\text{II.13})$$

où T est le temps de vol de la particule (x_0 , y_0) et (x , y) sont, respectivement, les coordonnées du point de départ dans la zone de collision et du point d'impact sur le détecteur.

II.6.1. Le temps de vol

Pour trouver l'expression du temps de vol on applique les équations de la dynamique avec les notations de la figure II.12. Le temps de vol est donc

II. Dispositif expérimental

donné par la relation :

$$T = \frac{m}{qE} \left(\sqrt{V_z^2 + \frac{2qE}{m}(z_1 - z)} - V_z \right) + \frac{z_2 - z_1}{\sqrt{V_z^2 + \frac{2qE}{m}(z_1 - z)}} \quad (\text{II.14})$$

avec m la masse de la particule, z la coordonnée du point de départ de la particule et V_z la composante suivant \hat{z} de vitesse initiale de la particule dans la zone de collision.

Dans cette expression on a négligé le temps de vol dans la zone de post-accélération. En effet dans cette zone dont la longueur est de 6 mm on applique un champ de 4667 V/cm donc le temps nécessaire pour la traverser est de l'ordre de 50 ns négligeable devant le temps de vol total (environ 10 μ s). Toutefois, ce terme est pris en compte dans le traitement des données.

D'après l'équation II.14 le temps de vol d'un ion dépend de sa vitesse initiale V_z , du rapport $\frac{m}{q}$ et de sa position initiale z autrement dit de la localisation de la collision. La zone de collision présente une largeur déterminée par le recouvrement du faisceau d'agrégats et du jet supersonique. Ceci implique que deux particules ayant la même vitesse initiale et le même rapport masse/charge peuvent avoir des temps de vol différents en fonction de leur position initiale. Dans la suite on va montrer que pour certaines conditions on peut négliger au premier ordre cette dépendance (condition de Wiley-McLaren).

Un développement limité de T au voisinage de z_0 le centre de la zone de collision donne.

$$T = T(z_0) + \frac{dT}{dz} \Big|_{z=z_0} (z - z_0) + O((z - z_0)^2) \quad (\text{II.15})$$

Or

$$\frac{dT}{dz} \Big|_{z=z_0} = \frac{1}{\sqrt{V_z^2 + \frac{2qE}{m}(z_1 - z_0)}} - \frac{qE}{m} \frac{z_2 - z_1}{\left(\sqrt{V_z^2 + \frac{2qE}{m}(z_1 - z_0)} \right)^3} \quad (\text{II.16})$$

Étant donné que l'énergie initiale de l'ion $\frac{1}{2}mV_z^2$ de l'ordre de l'électronvolt, est négligeable devant l'énergie acquise par l'extraction $qE(z_1 - z)$ qui est de l'ordre de 100 eV, un développement limité de l'équation II.16 permet de simplifier l'expression du temps de vol. Pour cela, on introduit le terme :

II.6. Le puits de collection des ions de recul : spectromètre de vitesse

$$u = \frac{\frac{1}{2}mV_Z^2}{qE(z_1 - z)} \ll 1 \quad (\text{II.17})$$

L'équation II.16 s'écrit alors :

$$\frac{dT}{dz} \Big|_{z=z_0} = \frac{1}{\left(\sqrt{\frac{2qE}{m}(z_1 - z_0)}\right)} \left[\frac{qE}{m} [2(z_1 - z_0) - (z_2 - z_1)] + u \frac{2qE}{m}(z_1 - z_0) \right] + O(u^2) \quad (\text{II.18})$$

Il suffit donc de satisfaire la condition II.19 dite de Wiley-McLaren [19] pour annuler, au premier ordre, la dépendance de l'étendue de la zone de collision selon \hat{z} sur le temps de vol.

$$(z_2 - z_1) = 2(z_1 - z_0) \quad (\text{II.19})$$

On notera par la suite $L_1 = z_1 - z_0$ et $L_2 = z_2 - z_1$

En introduisant cette égalité dans la relation II.14 on obtient :

$$T = T(z_0) + O(z^2) \quad (\text{II.20})$$

Comme $u = \frac{\frac{1}{2}mV_Z^2}{qE(z_1 - z)} \ll 1$, la relation précédente peut être simplifiée

$$T = 2L_1 \sqrt{\frac{2m}{qU_{ext}}} - \frac{mL_1}{qU_{ext}} V_z \quad (\text{II.21})$$

ou bien

$$T = T_0 - \frac{mL_1}{qU_{ext}} V_z \quad (\text{II.22})$$

U_{ext} est la tension d'extraction $U_{ext} = E.L_1$

Le premier terme T_0 est le temps de vol des ions ayant une vitesse initiale nulle. La symétrie cylindrique du problème implique une symétrie du spectre du temps de vol autour de T_0 . En effet, la valeur de T_0 est la moyenne du spectre de temps de vol.

La vitesse initiale V_Z est calculée donc par l'écart $T - T_0$ soit :

$$V_z = \frac{qE}{m} (T_0 - T) \quad (\text{II.23})$$

II. Dispositif expérimental

II.6.2. Les valeurs mesurables des vitesses

Le système de détection a une surface utile finie ($\phi = 40$ mm). La dimension de cette surface impose, avec la géométrie du spectromètre et la valeur du champ d'extraction, une limite aux valeurs de vitesses de recul mesurables par le système. En particulier, si la composante V_Z atteint une certaine valeur "négative" (trajectoire (2) fig II.13) la particule peut traverser la grille définissant la limite inférieure de la zone d'extraction, *i.e.* passer au-delà de la zone homogène du champ ; dans ce cas cette particule est perdue. Pour une valeur du champ d'extraction donnée, la valeur maximale de vitesse détectable par le système est déterminée par la relation :

$$V_{Zmax} = \sqrt{\frac{q}{m} \frac{2L_3}{L_1} U_{ext}} \quad (\text{II.24})$$

q et m sont respectivement la charge et la masse de la particule. Pour une tension entre la collision et la limite supérieur de la zone d'extraction ($U_{ext} = 65$ V), un ion de recul Ar^+ est détecté si $V_Z < V_{Zmax} = 8.10^3$ m/s c'est à dire si son énergie $E < 13$ eV.

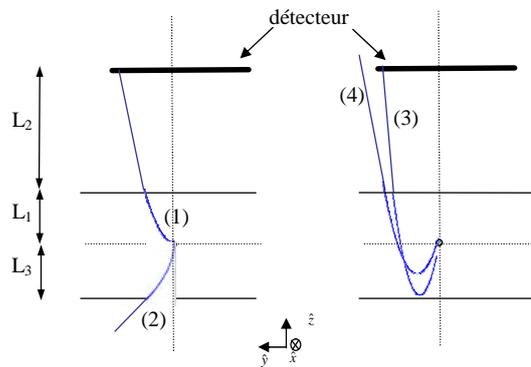


FIG. II.13.: Illustration de quatre trajectoires types de particules de recul selon leur vitesse initiale. Dans les cas (2) et (4) les particules de recul ne sont pas détectées soit parce que le champ d'extraction est insuffisant (cas 2) soit parce que les dimensions du détecteur sont insuffisantes

Compte-tenu de la géométrie du spectromètre les valeurs maximales mesurables pour les deux composantes V_X , V_Y sont les mêmes. Dans la suite on ne discutera que le cas de V_X . Si on suppose que la collision est centrée

II.6. Le puits de collection des ions de recul : spectromètre de vitesse

par rapport au détecteur, la valeur maximale de V_X que l'on peut mesurer est déduite directement de l'équation II.12 avec $x - x_0|_{max} = \phi/2 = 20 \text{ mm}$ et $T \approx T_0$

$$V_{Xmax} = \frac{\phi/2}{T_0} = \frac{\phi}{4 L_1 \sqrt{\frac{2m}{qU_{ext}}}} \approx 1,4 \cdot 10^3 \text{ m/s} \quad (\text{II.25})$$

De telles limitations de la détection des ions de recul se répercuteront sur les distributions de certains grandeurs physiques, ce point sera discuté plus loin (cf II.8.3).

II.6.3. Résolution sur la mesure des vitesses

Reprenons les équations II.12, II.13 et II.23. La résolution sur les mesures des coordonnées du vecteur vitesse est donnée par² :

$$\begin{aligned} \Delta V_x &= \sqrt{\left(\frac{\Delta x}{T}\right)^2 + \left(\frac{\Delta x_0}{T}\right)^2 + \left(V_x \frac{\Delta T}{T}\right)^2} \\ \Delta V_y &= \sqrt{\left(\frac{\Delta y}{T}\right)^2 + \left(\frac{\Delta y_0}{T}\right)^2 + \left(V_y \frac{\Delta T}{T}\right)^2} \\ \Delta V_z &= \frac{qE}{m} \Delta T \end{aligned}$$

où $2 \Delta x_0$, $2 \Delta y_0$ définissent la taille de la zone de collision, ΔT , Δx , Δy représentent respectivement les résolutions temporelle et spatiale du détecteur. Dans notre cas (cf. II.6.7.4) $\Delta x_0 \approx \mp 1,5 \text{ mm}$, $\Delta y_0 \approx \mp 0,1 \text{ mm}$. La résolution temporelle du détecteur est de 250 ps quant à la résolution spatiale elle est de $\simeq 0,1 \text{ mm}$. Donc la résolution sur les coordonnées (V_x, V_y) est principalement limitée par l'étendue de la zone de collision. Le temps de vol est de l'ordre de 10 μs , on peut donc estimer la résolution sur (V_x, V_y) par :

$$\Delta V_x = \left(\frac{\Delta x_0}{T}\right) = 1,5 \cdot 10^2 \text{ m.s}^{-1} \quad (\text{II.26})$$

$$\Delta V_y = \sqrt{\left(\frac{\Delta y}{T}\right)^2 + \left(\frac{\Delta y_0}{T}\right)^2} = 14 \text{ m.s}^{-1} \quad (\text{II.27})$$

²en négligeant les incertitudes dues au champ électrique.

II. Dispositif expérimental

Nous montrerons plus loin que les informations redondantes sur les vecteurs vitesses des fragments neutres et de l'ion de recul, obtenues en coïncidence, nous permettent de remonter à la position initiale de chaque événement collisionnel lors du traitement des données. Ceci permet d'améliorer nettement la résolution en vitesse.

Quant à la résolution dans la direction \hat{z} , grâce à la condition de focalisation de Willey-McLaren (eq II.19) les dimensions de la zone de collision n'ont aucun effet sur la résolution de V_z , puisque cette dernière ne dépend que de la précision sur la mesure du temps de vol.

II.6.3.1. Le choix de la tension d'extraction

La tension d'extraction affecte trois facteurs déterminants au niveau performances du spectromètre :

1. La résolution en vitesse de l'ion de recul qui est en $\Delta V_x \sim \frac{1}{T} \sim \frac{1}{\sqrt{U_{ext}}}$.
2. Le domaine de vitesse accessible à l'extraction $V_{max} \sim \sqrt{U_{ext}}$. Un champ d'extraction intense permet de maximiser l'efficacité d'extraction.
3. Le champ d'extraction dévie le faisceau incident et donc le cône de diffusion des neutres produits lors de la collision. Pour une valeur importante de la tension d'extraction le cône de diffusion peut être dévié hors de la zone sensible du détecteur neutre.

Une valeur de la tension de $U_{ext} = 65 \text{ V}$ est un compromis : elle permet une efficacité de collection maximale, avec une déviation du faisceau d'ion corrigible, sans pour cela dégrader la résolution. Un déflecteur monté à l'entrée du spectromètre permet de dévier le faisceau d'ions avant collision et ainsi corriger la déviation (cf. II.6.7.2).

II.6.4. Montage mécanique

Le schéma mécanique du spectromètre des ions de recul est représenté sur la figure II.14. L'ensemble est blindé par une grille en cuivre, qui peut être portée à une tension flottante. La grille permet d'isoler le spectromètre des effets éventuels des champs parasites externes.

Le champ électrique statique uniforme régnant dans la zone de collision est produit par neuf électrodes réalisées en inox en forme d'anneau de 0,5 mm

II.6. Le puits de collection des ions de recul : spectromètre de vitesse

d'épaisseur et de 60 mm de diamètre extérieur et de diamètre interne variable (fig. II.14).

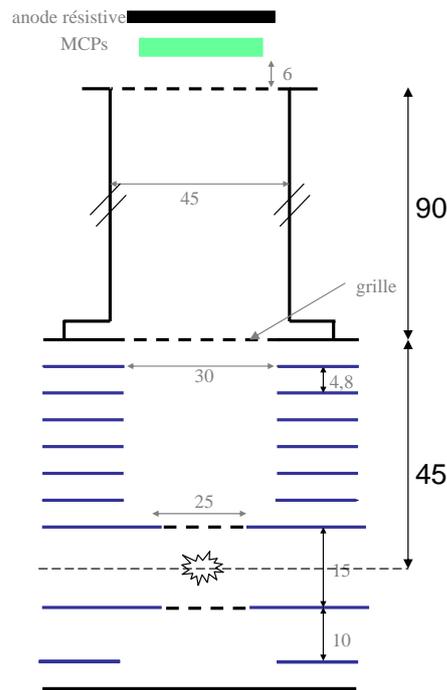


FIG. II.14.: Montage mécanique du spectromètre

La distance entre la zone de collision et la zone de vol libre est de 45 mm. Quant à la longueur de la zone de vol libre elle est de 90 mm ce qui satisfait la condition de Wiley-McLaren discutée précédemment. La zone de post-accélération se situe entre la grille limitant l'extrémité de la zone de vol libre et la surface du détecteur, elle mesure 6 mm de longueur.

II.6.5. Montage électrique

La figure II.15 montre un schéma du montage électrique du spectromètre d'ions de recul. Dans le but de réaccélérer (avant la zone de collision) le faisceau incident, l'ensemble du dispositif peut être porté à une tension de re-accélération de plusieurs kV. Pour cela, tout le dispositif est isolé électriquement par rapport à la masse. Il est nécessaire de transmettre les signaux électroniques de la partie haute-tension vers l'électronique d'acquisition, ceci est réalisé à l'aide d'une capacité de découplage. La capacité de découplage

II. Dispositif expérimental

forme avec la résistance d'entrée des amplificateurs un filtre passe-haut du premier ordre. Ce filtre, comme son nom l'indique, laisse passer les signaux rapides (le cas des signaux temps et charges utiles) et bloque les signaux lents en particulier les hautes tensions statiques. L'électronique en aval du filtre est découplée et donc protégée par rapport aux hautes tensions statiques. Cette protection est loin d'être parfaite car au moment d'application de la haute tension (régime transitoire) un signal rapide de haute amplitude est produit. La fréquence maximale du signal transitoire dépend du temps de montée de la tension appliquée τ ($f_{max} = 1/\tau$). Les composantes fréquentielles du signal transitoire dont la valeur est supérieure au seuil du filtre f_c , traversent le filtre passe-haut (les capacités de découplage) ce qui risque d'endommager l'électronique. Pour éviter ce genre de problème on peut envisager deux solutions : la première consiste à monter la tension très lentement afin de minimiser la valeur de f_{max} au dessous du seuil du filtre passe-haut. La deuxième solution est beaucoup plus simple, il s'agit de court-circuiter les entrées de l'électronique par des résistances de 50 ohms au moment de la montée et de la descente de la haute tension.

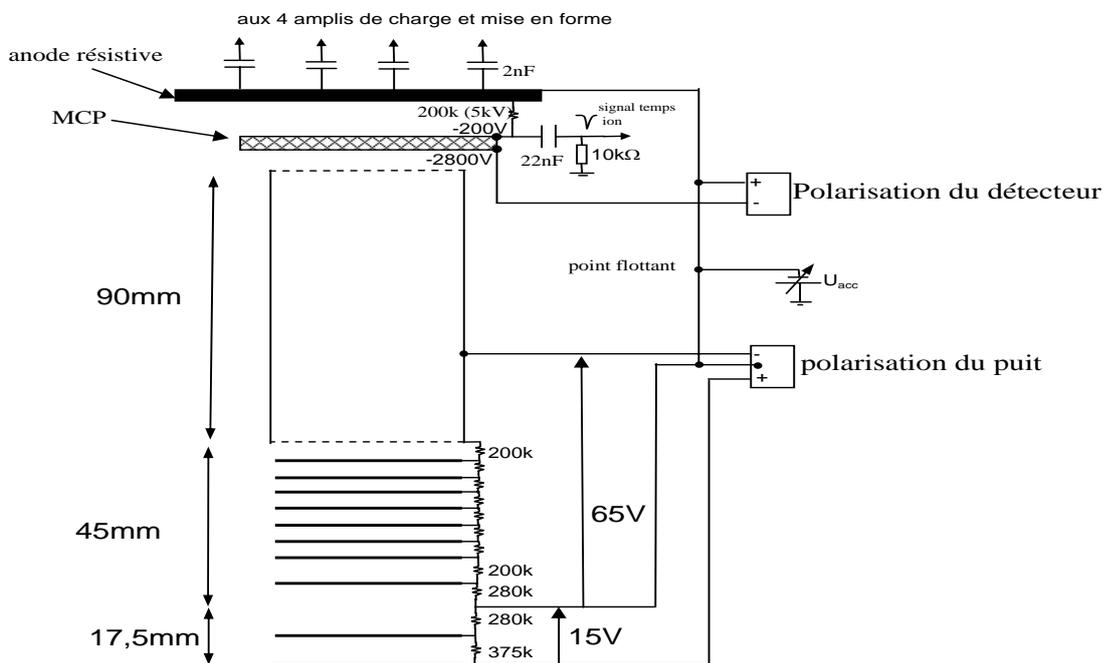


FIG. II.15.: Schéma du montage électrique du spectromètre

II.6. Le puits de collection des ions de recul : spectromètre de vitesse

Nous utilisons deux générateurs de tension montés sur un secteur isolé par un transformateur, ce qui permet de générer des tensions (flottantes) par rapport à un point dit “point flottant”. Pour porter le dispositif à la tension de réaccélération il suffit de relier le point flottant à la haute tension. Dans la suite toutes les tensions sont exprimées par rapport à la tension de ce point flottant.

Les électrodes alimentées par une chaîne de résistances assurent la création dans la zone d'extraction d'un champ statique uniforme de 1,4 V/mm. La zone de vol libre est maintenue à une tension de 65 V. La face avant des galettes de microcanaux est portée à une tension négative de -2,8 kV, quant à la face arrière elle est reliée à une tension de -200 V. L'anode résistive est reliée au point flottant.

II.6.6. Détecteurs temps-position des fragments chargés rapides et des ions de recul : anode résistive

Les deux détecteurs d'ions (fragments rapides diffusés et ions de recul) sont identiques. La description ci-dessous s'applique aux deux montages.

Chaque détecteur est constitué (fig. II.16) de trois galettes de microcanaux (Hamamatsu F 1217, $\phi = 40\text{mm}$), montées en configuration Z, permettant d'atteindre un gain total de l'ordre de 10^7 à 10^8 . Le codage de la position est réalisé par une anode résistive. Ce système permet d'atteindre une très bonne résolution spatiale, mais au coût d'un temps mort de l'ordre de quelques microsecondes ce qui est largement suffisant pour les ions de recul et les fragments chargés rapides qui ne donnent qu'un impact par événement physique.

Le principe de fonctionnement consiste à mesurer les charges reçues sur l'anode et qui diffusent vers les quatre sommets (fig. II.17). Pour cela, les quatre charges passent par un étape d'amplification (PAC-03 IPN Orsay) et de mise en forme (AFP-6 IPN Orsay), elles sont ensuite codées par une carte de numérisation quatre voies Ad-Link PCI-9812 (4-voies, 12-bits, 20 MS/s, Simultaneous-Sampling Analog Input). Cette mesure permet, en modélisant l'anode résistive comme un réseau de résistances selon les coordonnées x et y, de déterminer les coordonnées de l'impact de la gerbe d'électrons issue des galettes de microcanaux.

II. Dispositif expérimental

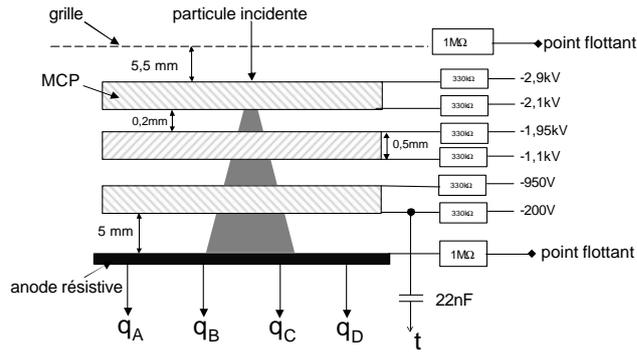


FIG. II.16.: Schéma du détecteur des ions

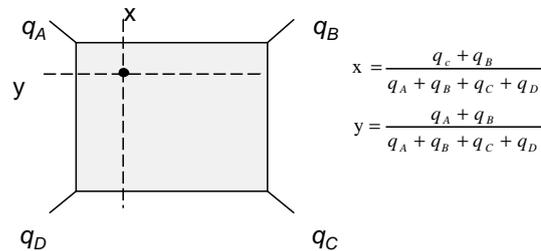


FIG. II.17.: Schéma de principe de l'anode résistive

L'arrivée d'une particule sur la face d'entrée de l'ensemble de galettes provoque la production d'une gerbe d'électrons, cette production est vue comme un appel de courant dans la chaîne d'alimentation des galettes autrement dit comme un signal électrique positif à la sortie. Ce signal de prise de temps est traduit en signal logique d'une durée de 15 ns après un passage par un discriminateur à niveau et un deuxième discriminateur à fraction constant (DGM-O, IPN Orsay). Ce signal logique est, par la suite, envoyé sur une des voies d'un convertisseur temps numérique multi-voies (CTNM3, IPN Orsay, pas de 250 ps) et en même temps utilisé pour déclencher une carte "mono-stable" (fig II.18) nécessaire pour la mesure des signaux charges. Cette carte répond par un train d'impulsions à 10 MHz d'une durée de 14 μ s choisi pour être égale à la largeur du signal charge. Ce train d'impulsions déclenche, en mode clock externe, la carte de numérisation Ad-Link PCI-9812. Ce système permet d'échantillonner simultanément les quatre signaux charges recueillies aux quatre coins de l'anode résistive. La position de la particule est ainsi co-

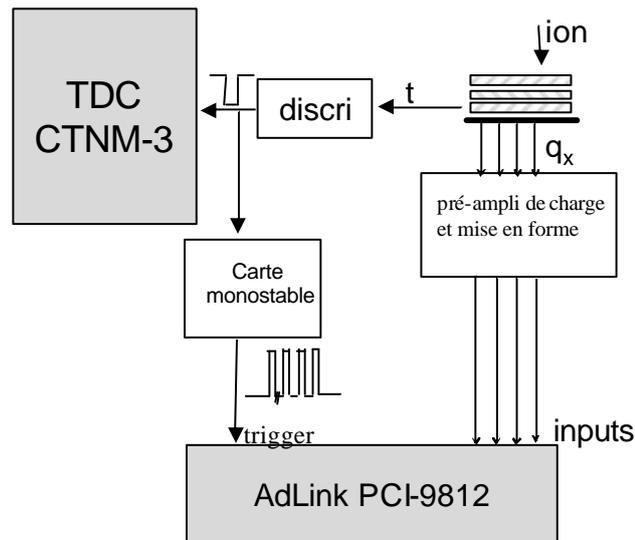


FIG. II.18.: Schéma simplifié de l'électronique d'acquisition du détecteur des ions

dée en 4096×4096 pixels.

La résolution spatiale de ce système est de l'ordre de 0,1 mm. A titre d'illustration, la figure II.19 montre l'image d'un faisceau d'ions à travers une grille située à 5 mm devant la face avant des galettes portée à une tension de -2,9 kV. La grille est reliée électriquement à la masse. La focalisation du faisceau d'ion due au passage par la grille reflète le pas de cette grille valant 0,27 mm.

II.6.7. Tests & Calibration

Nous avons testé les performances du système de détection d'ions de recul en analysant la collision d'échange de charge $Ar^+ - Ar$. Dans un tel système résonnant la réaction a lieu principalement à angle de diffusion quasi-nul, de sorte que l'on peut considérer que le transfert de quantité de mouvement sur la cible de recul est négligeable. Donc la distribution de vitesse en particulier des ions de recul est peu perturbée par la collision.

II. Dispositif expérimental

II.6.7.1. Calibration du détecteur des ions de recul

Nous avons utilisé deux méthodes pour calibrer la position d'impact sur le détecteur des ions de recul :

On a placé une plaque perforée de trous calibrés et de position déterminée devant le détecteur. On a éclairé les galettes uniformément (rayonnement délivré par une jauge à ionisation). On a obtenu ainsi un facteur de calibration de 89,1 pixels/ mm.

Dans un deuxième temps, nous avons mis une grille reliée à la masse à 5 mm devant la face avant des galettes. L'image formée (fig II.19) montre la focalisation du faisceau d'ions due à leur passage à travers la grille. Cette focalisation reflète le pas de la grille (300 μm). On a obtenu donc un facteur de 91 pixels/mm.

Finalement, nous avons opté pour une valeur une valeur moyenne entre les deux méthodes utilisées de 90 pixels/ mm.

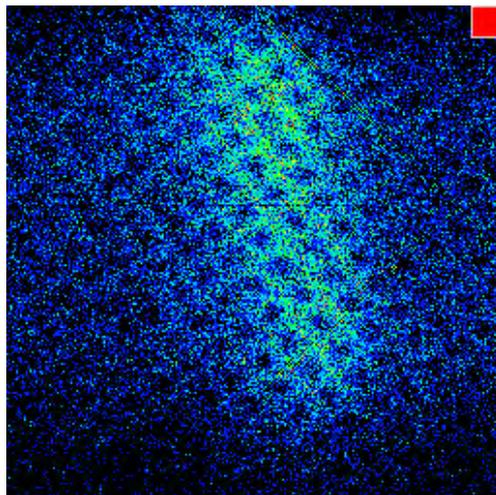


FIG. II.19.: la focalisation du faisceau d'ions due à leur passage à travers une grille de pas 300 μm .

II.6.7.2. Déviation du faisceau incident par le champ d'extraction

La collision a lieu dans un champ électrique. le faisceau incident est donc dévié par ce champ d'extraction. Cette déviation dépend, de la distance parcourue par la particule dans la zone d'extraction avant la collision, de la

II.6. Le puits de collection des ions de recul : spectromètre de vitesse

valeur du champ, du rapport charge/masse et de l'énergie des particules incidentes.

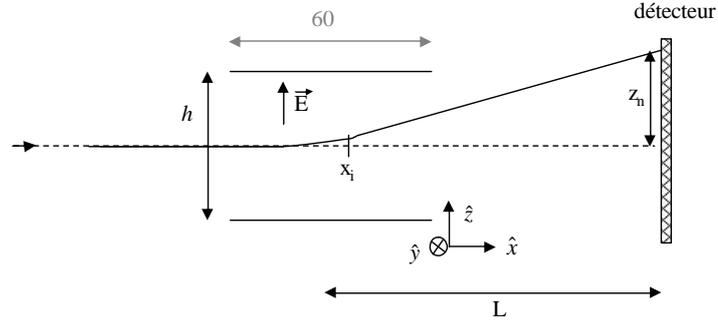


FIG. II.20.: Schéma montrant la déviation du faisceau incident par le champ d'extraction

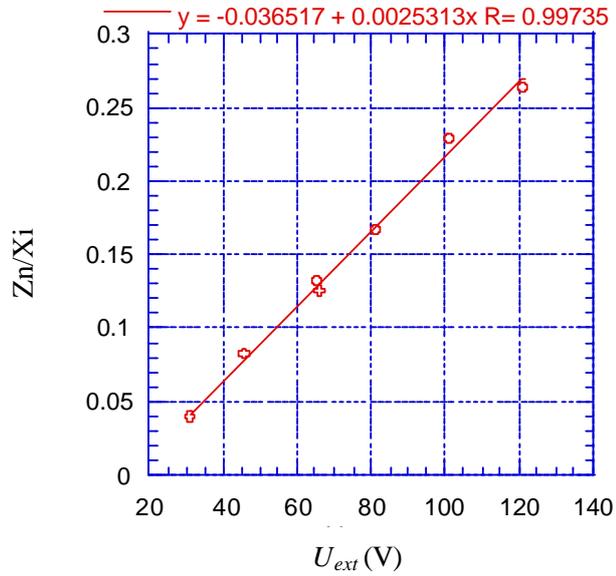


FIG. II.21.: $\frac{Z_n}{X_i}$ en fonction de U_{ext}

Une relation entre la déviation Z_n et X_i (la coordonnée selon \hat{x} de l'ion de recul définissant le lieu de la collision) est donnée par les notations indiquées sur la figure II.20 :

$$\frac{Z_n}{X_i} = \left(\frac{1}{2} \frac{L}{h} \frac{1}{E_0} \right) U_{ext}$$

II. Dispositif expérimental

E_0 est l'énergie des particules incidentes ($E_0 = 2400$ eV), $L = 554$ mm est la distance entre le centre de la zone de collision et le détecteur des neutres, $h = 45$ mm est la longueur de la zone d'extraction.

$$\text{soit : } \frac{Z_n}{X_i} = 2,57.10^{-3} U_{ext}$$

Expérimentalement, nous avons mesuré en coïncidence la particule neutre Ar et l'ion de recul Ar^+ . Nous avons tracé ainsi (figure II.21) $\frac{Z_n}{X_i}$ en fonction de différentes valeurs de tension d'extraction U_{ext} . La pente ($2,53.10^{-3} \text{ V}^{-1}$) reproduit bien la valeur théorique, ce qui nous indique une bonne homogénéité du champ d'extraction.

Nous pouvons remarquer que le rapport $\frac{Z_n}{X_i}$ ne dépend que de E_0 et U_{ext} et non de la masse du projectile donc les calibrations faites pour Ar^+ sont aussi valable pour Ar_n^+ . Afin de ramener le cône de diffusion au centre du détecteur des neutres nous avons mis en place un déflecteur suffisamment en amont de la zone d'extraction pour ne pas le perturber le champ d'extraction. Par la suite dans le traitement, la déviation qui subsiste est corrigée pour chaque événement en fonction de la position de l'ion de recul.

II.6.7.3. Vitesse du jet supersonique

Nous avons vu (cf. II.6) que la vitesse transverse V_Y des ions de recul est donnée par la relation

$$V_Y = \frac{y - y_0}{T} \quad (\text{II.28})$$

Nous avons tracé (fig II.22) pour des différentes valeurs de la tension d'extraction U_{ext} la dépendance de l'ordonnée de l'ion de recul y en fonction de son temps de vol T .

Ceci donne une valeur de la vitesse de jet de

$$V_{jet} = 515 \text{ m.s}^{-1}$$

Cette valeur est comparable à la vitesse théorique ($558,4 \text{ m.s}^{-1}$) donnée la relation II.6. L'ordonnée à l'origine donne la position moyenne de la zone de

collision $y_0 = 21.9$ mm

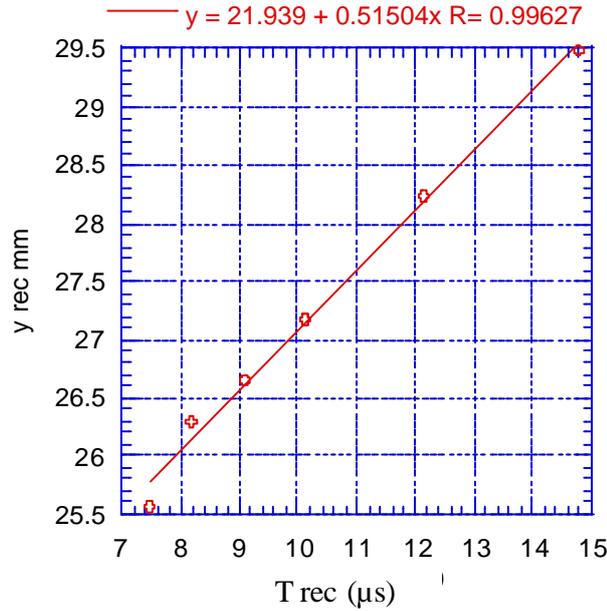


FIG. II.22.: L'ordonnée de l'ion de recul y en fonction de son temps de vol T

II.6.7.4. Dimensions de la zone de collision

Le volume de collision est par définition la zone limitée par l'intersection du jet supersonique avec le faisceau d'agrégats incidents (fig. II.23). L'ouverture angulaire du jet supersonique (fig II.24) vaut environ $\theta/2 = 0,7^\circ$. Elle impose une largeur du jet au niveau de la zone de collision de $\Delta x = 3,12$ mm.

Expérimentalement, nous avons sélectionné les événements où les particules de recul issues de la collision partent, dans la référentiel du centre de masse, parallèlement à l'axe \hat{z} , *i.e.* avec une vitesse quasi-nulle selon \hat{x} et \hat{y} . Ceci revient à appliquer une sélection angulaire selon ϕ ($80^\circ < \phi < 100^\circ$) et selon χ ($0^\circ < \chi < 0,1^\circ$)³. Dans ce cas le tracé du faisceau sur le détecteur des ions reflète l'image de la zone de collision peu perturbée par la physique. Ce tracé est présenté sur la figure II.25. On peut ainsi constater que la zone de collision présente selon \hat{y} une largeur $\Delta y = 0,2$ mm correspondant à la largeur du faisceau incident et selon \hat{x} une largeur $\Delta x = 3$ mm qui n'est rien d'autre que la largeur du jet supersonique. Du fait de la géométrie cylindrique du

³voir II.8.1 pour les définition de ϕ et χ .

II. Dispositif expérimental

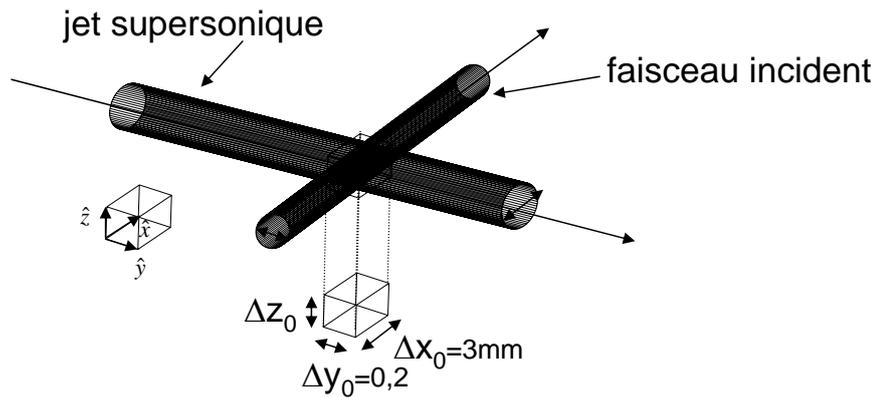


FIG. II.23.: La zone de collision. Les dimensions de cette zone sont déterminées par celles du jet supersonique et du faisceau incident. La largeur du jet supersonique affecte celle de la zone de collision selon \hat{x} .

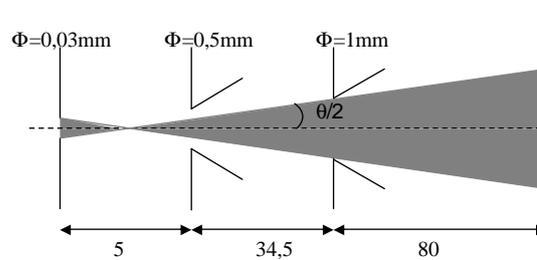


FIG. II.24.: Illustration schématique montrant l'ouverture angulaire du jet supersonique

faisceau incident, la largeur de la zone de collision selon \hat{z} est la même que celle selon \hat{y} (voir fig. II.25).

II.7. Détecteur des neutres : résolution sur les mesures des vitesses

La construction et la mise au point du détecteur des neutres, constituant une grande partie de ce travail de thèse, est traitée en détail au chapitre III. Nous ne discuterons ici que la précision sur les mesures des vecteurs vitesse.

La surface sensible du détecteur se situe à une distance $L = 554$ mm du centre de la zone de collision. Les produits neutres de la collision insensibles

II.7. Détecteur des neutres : résolution sur les mesures des vitesses

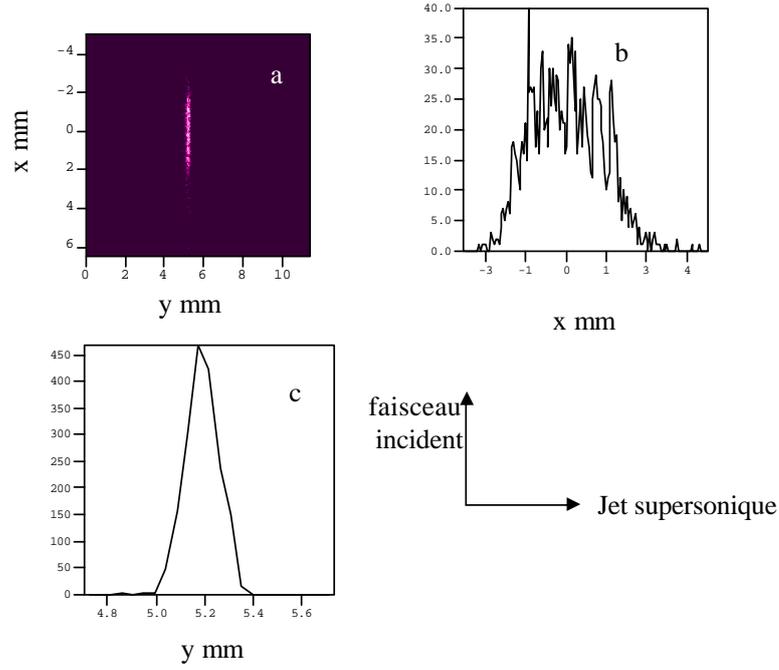


FIG. II.25.: (a) Histogramme de positions des particules reçues sur le détecteur d'ions de recul, en appliquant un filtre ($80^\circ < \phi < 100^\circ$) et ($0^\circ < \chi < 0,1^\circ$), ceci donne l'image de la zone de collision. Les projections montrent les dimensions de la zone de collision (b) selon x. (c) selon y.

aux champs électriques parcourent des trajectoires rectilignes à une vitesse constante vers le détecteur. Les composantes du vecteur vitesse sont alors données par (avec les mêmes notations que celles de la section II.6)

$$V_X = \frac{L - x_0}{T_N} \quad (\text{II.29})$$

$$V_Y = \frac{y - y_0}{T_N} \quad (\text{II.30})$$

$$V_Z = \frac{z - z_0}{T_N} \quad (\text{II.31})$$

T_N est le temps de vol de la particule neutre, il est de quelques microsecondes ($T_N \approx 5 \mu\text{s}$).

Comme c'était le cas pour le détecteur des ions de recul, les dimensions de la zone de collision (§. II.6.7.4) jouent un rôle essentiel pour déterminer la résolution en vitesse des particules neutres. La résolution spatiale du détec-

II. Dispositif expérimental

teur neutre est de $\Delta z = \Delta y = 100 \mu\text{m}$ (§. chapitre III). La résolution en vitesse pour les trois composantes est ainsi donnée par :

$$\Delta V_X = \frac{\Delta x_0}{T_N} = 300 \text{ m.s}^{-1} \quad (\text{II.32})$$

$$\Delta V_Y = \frac{\Delta y_0}{T_N} + \frac{\Delta y}{T_N} = 40 \text{ m.s}^{-1} \quad (\text{II.33})$$

$$\Delta V_Z = \frac{\Delta z_0}{T_N} + \frac{\Delta z}{T_N} = 40 \text{ m.s}^{-1} \quad (\text{II.34})$$

II.8. Traitement de données et observables

Nous avons utilisé pour l'étude de l'échange de charge la méthode de corrélation vectorielle des produits de la collision détectés en coïncidence. Cette méthode a été développée par l'équipe pour l'étude de la fragmentation induite par collision. Elle consiste à déterminer, à partir des temps d'arrivée et des positions de tous les produits de la collision obtenus en coïncidence, les vecteurs vitesse de chaque particule. L'analyse simultanée de tous les observables de la collision, événement par événement, permet de reconstituer la cinématique de la dissociation.

II.8.1. Les observables

Des nombreuses grandeurs peuvent être calculées à partir de la corrélation des vecteurs vitesses. Il convient donc de choisir, parmi ces grandeurs les observables les plus pertinentes pour caractériser le mécanisme physique. Ces grandeurs sont exprimées en fonction de paramètres qui sont les plus aptes à décrire le processus. Dans le cas de la dissociation en deux fragments induite par collision, le jeu de paramètres utilisés [20] est rappelé sur la figure II.26.

χ est l'angle de diffusion du centre de masse de l'agrégat : cet angle entre les vecteurs vitesses du centre de masse de l'agrégat avant et après la collision rend compte de la violence de la collision, autrement dit de l'importance du transfert de la quantité de mouvement.

α est l'angle entre l'axe de dissociation et l'axe de diffusion, il donne une indication sur la symétrie des états électroniques mis en jeu.

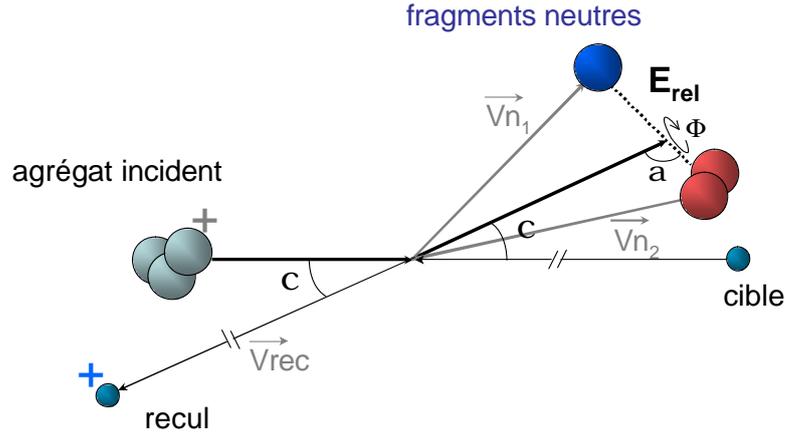


FIG. II.26.: Représentation schématique des grandeurs caractérisant la dissociation par échange de charge

Φ est défini dans le cas de fragmentation à deux corps comme l'angle dièdre entre le plan de dissociation⁴ et le plan de collision⁵. Cet angle est une signature du type de mécanisme : le mécanisme impulsionnel binaire direct [20] se passe à $\Phi = 0$ ou $\Phi = \pi$ car la dissociation a lieu dans le plan de collision.

E_{rel} (ou KER) l'énergie cinétique relative des fragments reflète la réponse du système à l'excitation. Par exemple dans un mécanisme impulsionnel on s'attend à ce qu'elle soit d'autant plus importante que le transfert de quantité de mouvement, et donc l'angle de diffusion χ , sont grands. Dans le cas d'un mécanisme électronique, E_{rel} reflète les états électroniques mis en jeu dans les processus collisionnels (fig II.27).

Dans le cas du système Ar^+/Ar où l'angle Φ n'est plus défini, on introduit l'angle ψ que fait le vecteur vitesse de l'ion de recul avec l'axe \hat{y} dans le plan (\hat{y}, \hat{z}) .

II.8.2. Comment procéder ?

Les temps d'arrivée des particules sont mesurés par rapport à un temps de référence quelconque t_{ref} . On ignore *a priori* le temps t_0 auquel la colli-

⁴Le plan de dissociation est défini, dans le cas de la fragmentation à deux corps, par l'axe de dissociation et l'axe de diffusion du centre de masse

⁵Le plan de collision est défini par les deux vecteurs vitesses de la cible dans le référentiel CM avant et après la collision

II. Dispositif expérimental

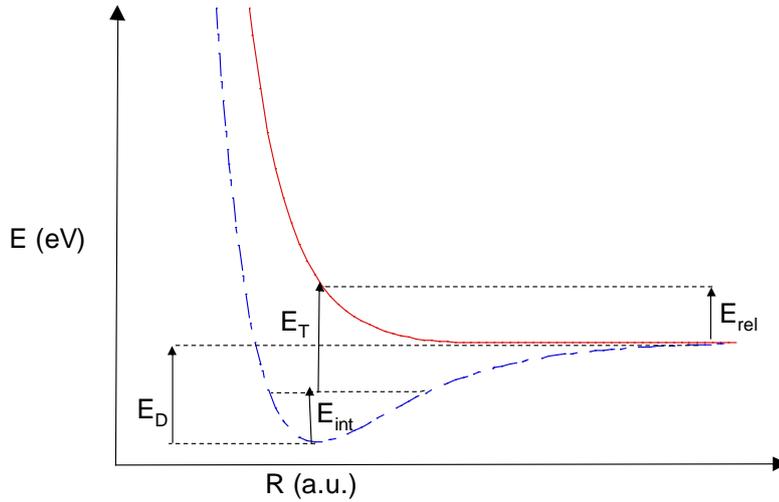


FIG. II.27.: Courbes d'énergie potentielle de deux états électroniques (liant et dissociatif) d'une molécule AB. L'énergie cinétique relative des fragments E_{rel} dépend de l'énergie transmise E_T , de l'énergie de liaison E_D et de l'énergie interne E_{int} de la molécule.

sion a eu lieu. De plus la position de la collision (x_0, y_0, z_0) n'est définie qu'à la largeur de la zone de collision près. La connaissance de la valeur de t_0 est indispensable pour calculer les vecteurs vitesse et ensuite les différentes grandeurs physiques. Une détermination précise de (x_0, y_0, z_0) permet d'améliorer nettement la résolution en vitesse du système. Ceci est possible si on exploite l'équation vectorielle de la conservation de la quantité de mouvement du système collisionnel.

Avant la collision, l'énergie du faisceau d'ions E_0 est connue (4800 eV). On peut donc calculer le vecteur quantité de mouvement du projectile en tenant compte de la déviation éventuelle du faisceau incident par rapport à l'axe \hat{x} . Cette déviation est déterminée en examinant la trace sur le détecteur des neutres de la neutralisation du faisceau incident par le gaz résiduel. On détermine ainsi l'axe incident et on calcule ensuite les trois composantes de la quantité de mouvement $\vec{P}_0^{projectile}$.

Comme le jet supersonique se caractérise par une faible vitesse transverse, on peut négliger les composantes de la quantité de mouvement selon \hat{x} et \hat{z} devant la composante selon \hat{y} . Le vecteur quantité de mouvement peut s'écrire alors comme $\vec{P}_0^{cible} = m V_{jet} \hat{y}$. Ainsi on peut calculer le vecteur quantité de mouvement totale du système avant la collision $\vec{P}_0^{total} = \vec{P}_0^{projectile} + \vec{P}_0^{cible}$.

Après la collision, on connaît les positions d'impact de **tous les produits** sur les détecteurs ainsi que leurs temps d'arrivée par rapport au temps de référence t_{ref} , en revanche, on ignore (t_0, x_0, y_0, z_0) . Dans la suite, nous montrerons comment on procède pour les trouver. Une illustration graphique de la procédure est présentée sur la figure II.28 :

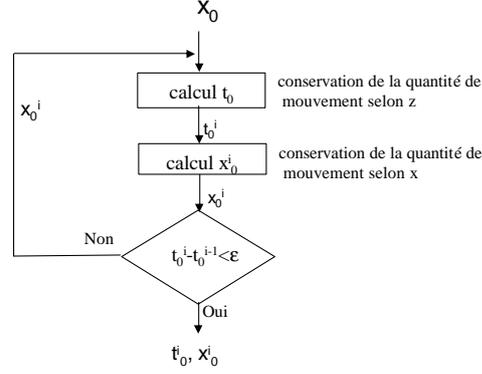


FIG. II.28.: Illustration graphique de la procédure de calcul de t_0 et x_0

Initialement on suppose que la collision se produit à $x_0 = 0$, et on fait varier t_0 dans un intervalle $[t_{min}, t_{max}]$. Les bornes de l'intervalle sont choisies en tenant compte de l'énergie cinétique du projectile et donc de l'ordre de grandeur des temps de vol après la collision. On calcule pour chaque t_0 la valeur de \vec{P}^{total} selon l'axe \hat{z} $\vec{P}_z^{total} = \vec{P}_z^{fragments} + \vec{P}_z^{recol}$. La meilleure valeur de t_0 est celle qui correspond à la valeur de P_z^{total} la plus proche de P_{z0}^{total} afin de satisfaire la conservation de quantité de mouvement selon l'axe \hat{z} .

Ensuite, avec l'équation de conservation de la quantité de mouvement selon \hat{x} , on calcule la valeur de x_0 en injectant la valeur de t_0 qu'on vient de trouver. On boucle la procédure en injectant cette fois la valeur de x_0 dans le calcul de t_0 et on répète ainsi de suite jusqu'à ce que la valeur de t_0 converge avec une erreur de $\frac{\Delta t}{t} < \epsilon$.

II.8.3. Limitations angulaires

Nous avons vu précédemment (cf. II.6.2) que les limitations géométriques de nos détecteurs impliquent des limitations dans la détermination des vecteurs vitesses. Ces limitations se répercutent sur les grandeurs angulaires telles que χ et Φ . Afin d'estimer les valeurs limites de ces angles, prenons le

II. Dispositif expérimental

cas d'une collision élastique entre une cible d'argon et un seul atome d'un agrégat d'argon de taille n (mécanisme impulsif binaire cf. II.9.1). En appliquant les lois de conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie cinétique on trouve, en tenant compte des valeurs des vitesses maximales mesurable avec le détecteur des ions de recul, les deux conditions que doivent vérifier χ et Φ :

$$-\sin\chi_1 \sin\Phi > -V_{Zmax} \frac{n+1}{n v_0} \quad (\text{II.35})$$

$$|\sin\chi_1 \cos\Phi| < V_{Ymax} \frac{n+1}{n v_0} \quad (\text{II.36})$$

avec v_0 la vitesse initiale du projectile $v_0 = 1.1 \cdot 10^5$ m/s pour $E_0 = 2400$ eV. V_{Zmax} et V_{Ymax} sont les valeurs maximales détectables de vitesse selon \hat{z} et \hat{y} . La relation entre l'angle χ et l'angle χ_1 est donnée par l'équation II.37.

Une autre limitation sur l'angle χ est due à la géométrie de la détection des neutres. Le détecteur correspondant ayant une surface sensible de 40 mm et se trouvant à une distance de 554 mm du centre de la zone de collision, impose une contrainte sur la valeur maximale mesurable de l'angle χ . Elle varie entre 8° et 4° pour des projectiles de Ar_3^+ et Ar^+ respectivement.

Une illustration graphique de la résolution des équations (II.35 et II.36) est présentée sur la figure II.29.b dans le cas d'une collision avec un atome cible d'argon d'un projectile Ar^+ ($n = 1, \chi = \chi_1$). Nous avons comparé ce diagramme (fig. II.29.a) avec celui obtenu expérimentalement.

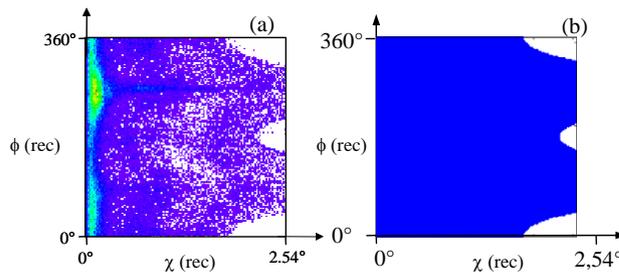


FIG. II.29.: Diagrammes de corrélation (χ, Φ) obtenus (a) expérimentalement, (b) par illustration graphique de la résolution des équations (II.35 et II.36)

II.9. Généralités sur les mécanismes de dissociation d'un agrégat

Lorsque un agrégat entre en collision avec une cible atomique deux types d'interaction peuvent se produire conduisant à la dissociation de l'agrégat. Le mécanisme impulsionnel (MI) dans lequel une quantité de mouvement est transférée aux atomes constituant l'agrégat dans un choc de type boules de billard. Il provoque une dissociation rovibrationnelle de l'agrégat. Dans le mécanisme électronique (ME) l'agrégat est porté dans un état excité dissociatif par perturbation de son nuage électronique

Alors que le premier mécanisme (MI) domine le régime des basses énergies de collision (<100 eV), le second régit les processus aux grandes énergies (MeV). Aux énergies intermédiaires (keV), la compétition entre ces deux mécanismes complique singulièrement l'analyse du processus d'interaction.

Un moyen efficace d'identification du type de mécanisme mis en jeu est χ l'angle de déviation du centre de masse de l'agrégat. Les mécanismes électroniques, ne nécessitant pas de rencontre proche entre la cible et les coeurs ioniques de l'agrégat, sont caractérisés par une faible déviation du centre de masse de l'agrégat après la collision (petit χ). En revanche, les mécanismes impulsionnels faisant appel à une rencontre proche et donc à un transfert de quantité de mouvement à l'agrégat plus ou moins important, conduisent à des angles de déviation du centre de masse relativement grands (grand χ).

II.9.1. Le modèle de collision binaire (mécanisme impulsionnel)

Dans ce modèle classique, on considère que la dissociation d'un agrégat de masse m se déroule en deux étapes successives :

1. Une diffusion élastique de la cible par **un seul atome** de l'agrégat, les autres atomes restent spectateurs.
2. Lorsque la cible s'éloigne, l'énergie est reçue par le transfert de quantité de mouvement à l'atome touché. Ce dernier est éjecté directement alors que les autres atomes restent spectateurs. La dissociation se produit si la somme de l'énergie transmise à l'agrégat et de l'énergie interne initiale de l'agrégat excède l'énergie de dissociation.

II. Dispositif expérimental

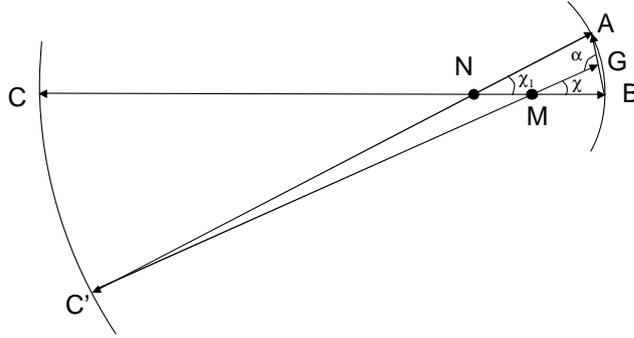


FIG. II.30.: Diagramme de Newton

La figure II.30 représente un diagramme de Newton associé à la collision d'une molécule AB par une cible C. La vitesse initiale V_0 dans le laboratoire $V_0(\overline{CB})$ de AB est très grande devant celle de la cible. En conséquence, la cible peut être considérée au repos et la vitesse relative entre les deux partenaires de la collision est assimilée à \vec{V}_0 .

\overline{MC} , \overline{MB} et \overline{MC}' , \overline{MG} sont les vitesses de la cible et du centre de masse du projectile (AB) respectivement avant et après la collision dans le référentiel du centre de masse total de système collisionnel (AB + C).

\overline{NC} , \overline{NB} et \overline{NC}' , \overline{NA} sont, respectivement, les vitesses de la cible et de l'atome A avec lequel se fait le choc élastique, avant et après la collision dans le référentiel du centre de masse de (A + C).

Comme la diffusion de A sur C est élastique, la conservation de l'énergie cinétique conduit à $CB = C'A = V_0$

La conservation de la quantité de mouvement implique $NB = NA = \frac{m_C}{m_C + m_A}$. m_a , m_b et m_c sont les masses respectives de A, B et C.

Le corps B étant considéré comme spectateur, la vitesse relative de A et B est simplement la vitesse transmise à A heurté $\vec{v}_T = \overline{BA}$. On peut aisément déduire l'énergie transmise à l'agrégat pour un angle χ_1 de déviation de la cible dans le référentiel du centre de masse A + C.

$$E_T = \frac{1}{2} \mu v_T^2 = \frac{4 m_A^2 m_C^2}{(m_A + m_C)(m_A + m_B)^2} E_0 \sin^2(\chi_1/2)$$

L'énergie cinétique relative des fragments E_{rel} est alors déduite de l'énergie transmise au cours de la collision, de l'énergie de liaison E_D de la molécule (1,3 eV pour Ar_2^+) et d'une éventuelle énergie interne initiale E_{int} (fig II.27).

$$E_{\text{rel}} = E_{\text{T}} - E_{\text{D}} + E_{\text{int}}$$

Il convient de décrire E_{rel} en fonction de χ l'angle de diffusion du centre de masse de (A+B) dans le référentiel du laboratoire. Pour cela, en écrivant la relation géométrique reliant les deux angles χ et χ_1 :

$$\tan \chi = \frac{\sin \chi_1}{\left[\frac{(m_A + m_B)(m_A + m_C)}{m_A m_C} - 1 \right] + \cos \chi_1} \quad (\text{II.37})$$

on obtient la dépendance en χ de l'énergie cinétique relative E_{rel} des fragments. Nous l'avons tracé sur la figure II.31 (E_{rel}, χ) dans le cas de $Ar_2^+ + Ar \rightarrow Ar^+ + Ar + Ar$.

L'angle α peut s'exprimer en fonction des angles χ et χ_1 par la relation suivante

$$\alpha = \frac{\pi}{2} \mp \left(\chi - \frac{\chi_1}{2} \right)$$

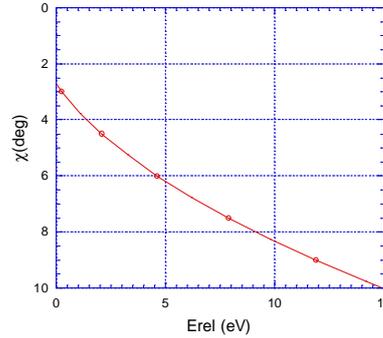


FIG. II.31.: (E_{rel}, χ) dans le cas de $Ar_2^+ + Ar \rightarrow Ar^+ + Ar + Ar$ avec $E_{\text{int}} = 0$ eV, $E_{\text{D}} = 1,2$ eV et une énergie cinétique initiale du projectile de 4800 eV.

On peut remarquer que jusqu'à présent nous n'avons pas utilisé le fait que A soit un seul atome. En effet, A peut très bien être composé de plusieurs atomes : Prenons un cas qui a été étudié par l'équipe [20] : la fragmentation induite par collision d'un système de $Ar_3^+ + He \rightarrow Ar_2^+ + Ar + He$. Le projectile Ar_3^+ peut être dans une configuration où deux atomes sont fortement liés (1,3 eV) et le troisième est faiblement lié (0,2 eV). Dans ce cas, on peut

II. Dispositif expérimental

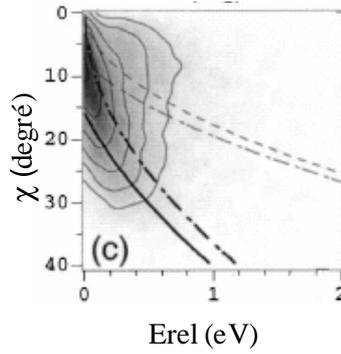


FIG. II.32.: (E_{rel}, χ) dans le cas de $Ar_3^+ + He \rightarrow Ar_2^+ + Ar + He$: le modèle diatome : trait-point et le trait plein avec $E_D=0$ eV et $E_D = 0,2$ eV respectivement. la ligne amincie trait et trait-point correspond au modèle binaire où la collision a lieu entre la cible et un atome d'argon.

imaginer que le coeur Ar_2^+ se comporte dans la collision comme si c'était un seul corps de masse deux fois la masse d'argon, c'est le principe du **modèle diatome**. La collision avec la cible est toujours de type binaire mais l'atome touché partage la quantité de mouvement avec le deuxième atome. En traçant (E_{rel}, χ) (fig II.32), pour $m_B = m_{\text{argon}}$ et $m_A = 2 m_{\text{argon}}$ et $m_C = m_{\text{He}}$, on peut remarquer que ce tracé reproduit bien les données expérimentales. Ces données ont été filtrées autour de $\Phi = 180 \mp 45$ deg, pour ne sélectionner que les événements pour lesquels le fragment chargé est plus dévié que le fragment neutre.

II.9.2. Corrélation ZZ

Les mécanismes de dissociation peuvent aussi être mis en évidence très simplement sans avoir recours à l'analyse complète de la cinématique de la dissociation [1, 20]. En effet, l'expérience possède un axe privilégié, l'axe z (fig. II.33), selon lequel le vol des particules est libre. La mesure de la déviation de chaque fragment dans cette direction est donc proportionnelle à sa composante de vitesse dans le référentiel du centre de masse total⁶ :

$$\frac{V_{z\text{ion}}}{V_{z\text{neutre}}} = \frac{t_{\text{neutre}}}{t_{\text{ion}}} \frac{Z_{\text{ion}}}{Z_{\text{neutre}}} \propto \frac{Z_{\text{ion}}}{Z_{\text{neutre}}}$$

⁶on considère, comme première approximation ici, que $t_{\text{neutre}}/t_{\text{ion}}$ est constant

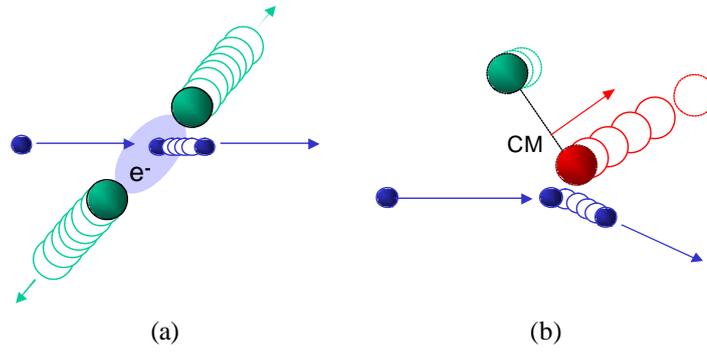


FIG. II.33.: Représentation schématique des mécanismes de base de dissociation induite par collision d'une molécule : (a) mécanisme électronique, (b) mécanisme impulsionnel.

La corrélation entre les déviations Z des fragments, que nous appellerons "corrélation ZZ ", peut donc donner une idée des mécanismes en jeu comme cela est suggéré sur la figure II.34. Sur cette figure, le mécanisme impulsionnel est représenté comme résultant d'une interaction binaire entre la cible et un seul des coeurs ioniques de la molécule. Le mécanisme électronique, quant à lui, correspond à la dissociation d'un système symétrique dont la signature, représentative du rapport de masses des fragments, a pour pente :

$$\frac{Z_{ion}}{Z_{neutre}} \propto -\frac{m_{neutre}}{m_{ion}} = -1$$

II.9.3. Diagramme de Dalitz

Le diagramme de Dalitz [21] est un moyen à la fois efficace et simple pour présenter le partage d'énergie cinétique dans un système à trois particules. Ces énergies sont exprimées dans le référentiel du centre de masse du système (fig. II.35).

En supposant que les trois particules ont la même masse m , la vitesse du centre de masse peut s'exprimer par :

$$\vec{V}_{cm} = \frac{\vec{V}_1 + \vec{V}_2 + \vec{V}_3}{3}$$

\vec{V}_1 , \vec{V}_2 , et \vec{V}_3 sont les vitesses des trois particules dans le référentiel du laboratoire. L'énergie cinétique dans le CM de chacune de trois particules est

II. Dispositif expérimental

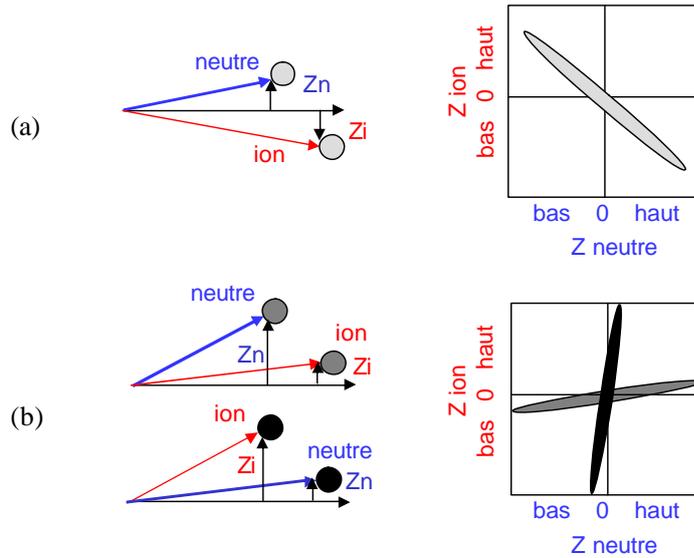


FIG. II.34.: Corrélations ZZ typiques des mécanismes de base : (a) mécanisme électronique, (b) mécanisme impulsif.

donnée par

$$E_i = 2m \left\| \vec{V}_i - \vec{V}_{cm} \right\|^2$$

On définit, l'énergie cinétique réduite de chaque particule dans le CM comme :

$$\epsilon_i = \frac{E_i}{\sum E_i}$$

Le diagramme de Dalitz est basé sur une propriété géométrique du triangle équilatéral : la somme des distances d'un point aux cotés d'un triangle équilatéral est une constante, égale à la hauteur du triangle. Prenons donc un triangle équilatéral (A1, A2, A3) dont la hauteur vaut 1.

Les sommets Ai sont à une distance 2/3 du centre du triangle. Les cotés sont à une distance 1/3. On peut introduire les vecteurs unitaires \hat{u}_i soit

$\hat{u}_1 = 1 \hat{y}$; $\hat{u}_2 = \sqrt{3}/2 \hat{x} - 1/2 \hat{y}$; $\hat{u}_3 = -\sqrt{3}/2 \hat{x} - 1/2 \hat{y}$ qui sont à 120 degrés l'un de l'autre.

On se place dans le repère cartésien défini par les trois axes \hat{u}_i , de telle façon que chaque ϵ_i soit présenté par un axe d'unité \hat{u}_i . Ainsi, sur le diagramme de Dalitz les trois valeurs ϵ_i d'un événement de fragmentation est représenté

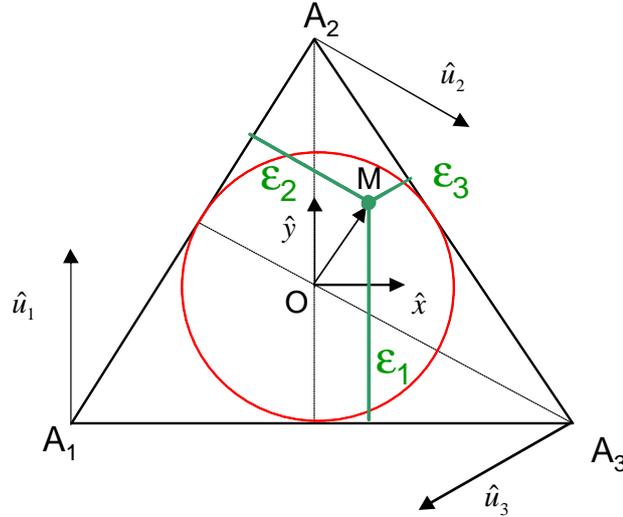


FIG. II.35.: Schéma de principe du diagramme de Dalitz

par un seul point $M(x, y)$ (fig. II.35). Le partage d'énergie est donné par :

$$\epsilon_i = 1/3 + \overrightarrow{OM} \cdot \hat{u}_i$$

La conservation d'énergie rend accessible tous les points du triangle. La conservation de la quantité de mouvement va limiter la zone accessible au cercle inscrit dans le triangle :

Pour un ϵ_1 donné, les particules 2 et 3 ont une quantité de mouvement égale et opposée à celle de la première particule $-\vec{p}_1$. Pour chacune de ces deux particules l'énergie cinétique réduite (ϵ_i) sera minimale quand \vec{p}_2 et \vec{p}_3 sont parallèles et dans le même sens, et maximale quand ils sont parallèles et de sens opposé. Dans les deux cas, les extrêmes sont donnés pour \vec{p}_2 et \vec{p}_3 parallèles. La condition nécessaire et suffisante pour que deux vecteurs soient parallèles est que leur déterminant de Gram ($g_{ij} = \langle \vec{p}_i, \vec{p}_j \rangle$) s'annule⁷.

$$g = \begin{vmatrix} p_2^2 & \vec{p}_2 \cdot \vec{p}_3 \\ \vec{p}_3 \cdot \vec{p}_2 & p_3^2 \end{vmatrix} = 0$$

La condition de conservation de la quantité de mouvement donne $\vec{p}_3 \cdot \vec{p}_2 = p_1^2 - p_2^2 - p_3^2$. Et avec la définition des vecteurs unitaires \hat{u}_i , on trouve facilement :

⁷on peut le démontrer avec l'inégalité de Schwartz

II. Dispositif expérimental

$$x^2 + y^2 = 1/9$$

Et donc l'ensemble de points $M(x,y)$, satisfaisant les deux conditions de conservation de quantité de mouvement et de l'énergie, est limité au cercle inscrit dans le triangle⁸.

Il convient de montrer la correspondance entre la configuration des vecteurs quantité de mouvement des fragments au moment de la fragmentation et la position sur le diagramme de Dalitz (fig.II.36).

⁸Dans le cas où les masses des particules ne sont pas identiques, le cercle devient une ellipse. On peut conserver un cercle quelque soient les masses de partenaires si on prend

$\epsilon_i = \frac{|p_i|^2}{\sum |p_i|^2}$ au lieu de $\epsilon_i = \frac{E_i}{\sum E_i}$.

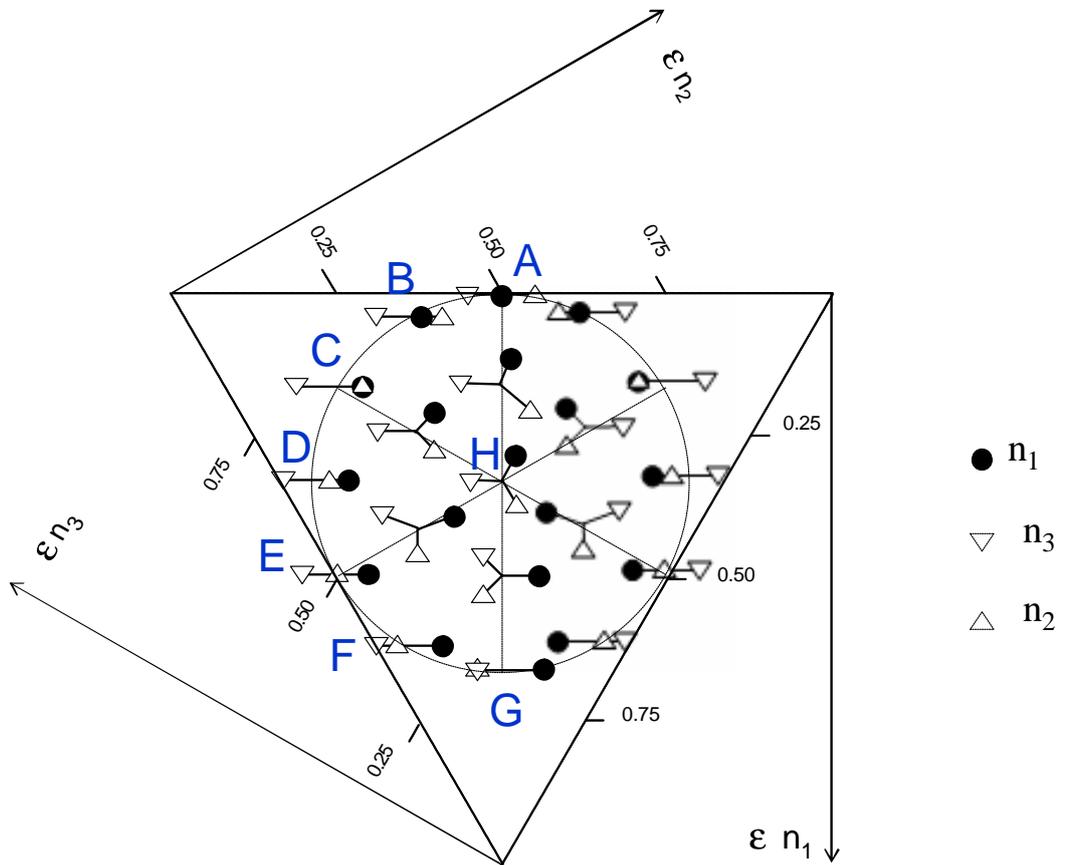


FIG. II.36.: la correspondance entre la configuration des vecteurs impulsions des fragments au moment de la fragmentation et la position sur le diagramme de Dalitz. Par exemple, le cas A correspond à une fragmentation alignée symétrique 2-1-3 ($\epsilon_1 = 0$, $\epsilon_2 = \epsilon_3 = 1/2$). Le cas H correspond à une configuration triangulaire équilatérale ($\epsilon_1 = \epsilon_2 = \epsilon_3$).

II. Dispositif expérimental

BIBLIOGRAPHIE

- [1] Yan Picard, thèse de doctorat Université Paris-Sud (1999).
- [2] Hagen, O.F : Surf. Sci. 106, 101 (1981)
- [3] Hagen, O.F., Obert, W. J. Chem. Phys. 56, 1793 (1972)
- [4] Hagen, O.F. : Z. Phys. D Atoms. Molecules and Clusters 4. 291-299 (1987)
- [5] Udo Buckner and Reinhard Krohne, J. Chem.Phys. 105, 5409 (1996)
- [6] Yu-hui Chiu *et al.*, J. Chem. Phys. 112, 10880 (2000)
- [7] C. A Woodward *et al.*, J. Chem . Soc., Faraday Trans. 86, 2069 (1990)
- [8] H. Haberland in electronic and atomic collisions
- [9] J. Marx, A. Lebehot and R. Campargue, J. Phys. 41, 1667 (1985)
- [10] H. Haberland, "Clusters of Atoms and Molecules", Springer Verlag, 1994, pp 216.
- [11] U. Buck and H. Meyer, J. Chem. Phys. 84, 4854 (1986)
- [12] H. Haberland, Surf. Sci. 156, 305 (1985)
- [13] D. Hrivnak and R. Kalus, Chem. Phys. 264, 319 (2001)
- [14] Tsutomu Ikegami and Tamotsu Kondow, J. Chem. Phys., 98, 3038 (1993)

Bibliographie

- [15] L. Wahlin, *Nuclear Instruments and Methods*, 27, 55 (1964)
- [16] D. Miller, "Free jet sources", from G. Scoles (ed.), "Atomic and Molecular Beam Methods I", Oxford University Press, NewYork, 1988, pp 14.
- [17] R. Campargue, *Rev. Sci. Instrum.* 35, (1964) 111
- [18] H. Haberland, "Clusters of Atoms and Molecules", Springer Verlag, 1994, pp 205.
- [19] W. C. Wiley and I. H. McLaren, *Rev. Sci. Instrum.* 26 (1955), 1150
- [20] M. Barat, J. C. Brenot, J. A. Fayeton, and Y. J. Picard. : *J. Chem. Phys.* 117, 1497 (2002)
- [21] R. H. Dalitz, *Philos. Mag.* 44, 1068 (1953)

CHAPITRE

III

Détecteur multi-particules sans temps mort

Sommaire

III.1 Introduction	72
III.2 Amplification : les galettes de microcanaux	74
III.3 Système de localisation par lignes à retard “modifié” (mDLA)	79
III.4 Système de mesure du temps : le numériseur	87
III.5 Localisation par une caméra-CCD	91
III.6 Interfaçage avec le PC	99
III.7 Acquisition de données	101
III.8 Pré-traitement de données	104
III.9 Traitement de l’image caméra	110
III.10 Séquence d’acquisition : diagramme en temps	115
III.11 Tests & performances	121

III.1. Introduction

LE principe de notre détecteur est de coupler deux systèmes de détection indépendants qui observent le même phénomène et de se servir de la complémentarité des informations fournies pour aboutir à une mesure de la localisation des événements avec un temps mort nul. Le premier système est constitué d'une caméra CCD capable de fournir, *sans temps mort, l'information de position avec précision*. Le deuxième système est constitué d'une carte de numérisation qui enregistre le signal temps issu des galettes de micro-canaux pour obtenir *une information temps précise et sans temps mort*. Le lien entre ces deux systèmes est assuré par une anode constituée de deux lignes à retard, placées derrière les galettes de micro-canaux, capable de fournir les deux informations temps et position mais d'une façon moins précise que les deux autres systèmes [1]. Comme on le verra un peu plus loin, dans le cas de détection en multi-particules, l'anode à ligne à retard possède un temps mort et une zone morte.

La figure III.1 présente le schéma du détecteur. Un assemblage de deux galettes de micro-canaux (MCPs) montées en chevron est utilisé comme amplificateur. Une particule arrivant sur la face d'entrée des MCPs engendre une gerbe d'électrons avec un gain de l'ordre de 10^7 électrons par particule. Cette gerbe va permettre aux trois systèmes de détection de fonctionner de la manière suivante :

1. le signal électronique engendré par la gerbe d'électrons à la sortie des MCPs est enregistré par une carte de numérisation donnant le temps d'arrivée de la particule,
2. la gerbe traverse ensuite l'anode à lignes à retard, permettant ainsi de localiser l'impact et de déterminer le temps d'arrivée de la particule,
3. la gerbe finit sa course sur un écran phosphore. Les photons émis sont enregistrés avec une caméra CCD via un intensificateur d'image donnant aussi la localisation 2D des impacts.

Dans la suite nous allons décrire séparément et en détail chacun de ces trois systèmes. Puis, nous montrerons comment ils sont couplés ensemble pour former le système global de détection.

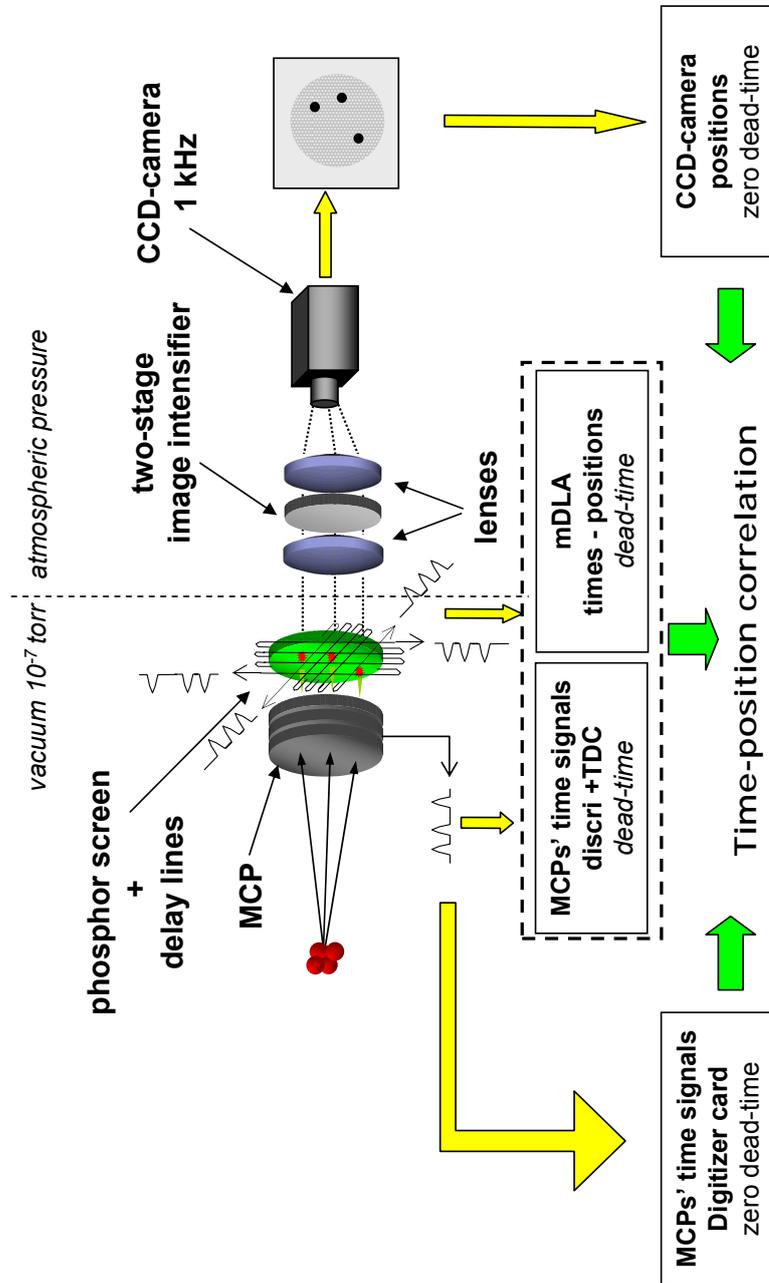


FIG. III.1.: Schéma du détecteur

III.2. Amplification : les galettes de microcanaux

Les galettes de micro-canaux sont utilisées pour la détection de divers types de particules (ions, neutres, photons, électrons) pourvu que leur énergie soit suffisante (typiquement quelques centaines d'eV pour les atomes neutres) pour éjecter un électron secondaire. Leurs caractéristiques se trouvent décrites en détail dans les notices des constructeurs [2, 3].

Une galette est formée d'une matrice des canaux élémentaires (d'un diamètre de l'ordre de $\phi=10 \mu\text{m}$). La surface interne de ces canaux est couverte d'une couche à haute résistivité et surtout à haut coefficient d'émission secondaire. Lorsque l'on applique une différence de potentiel entre les deux faces de la galette, chaque canal devient un amplificateur élémentaire (fig III.2). L'arrivée d'une particule sur la surface sensible de la galette provoque la génération dans un des canaux d'au moins un électron par émission secondaire. Cet électron est à son tour accéléré par la différence de potentiel appliquée et frappe la surface du canal pour générer de nouveaux électrons, qui eux mêmes, une fois accélérés, généreront des électrons et ainsi de suite. Ceci produit à la sortie d'une galette une gerbe d'environ 10^5 électrons par particule incidente. En assemblant deux ou trois galettes en cascade on peut obtenir des gains finals de l'ordre de 10^7 à 10^8 respectivement.

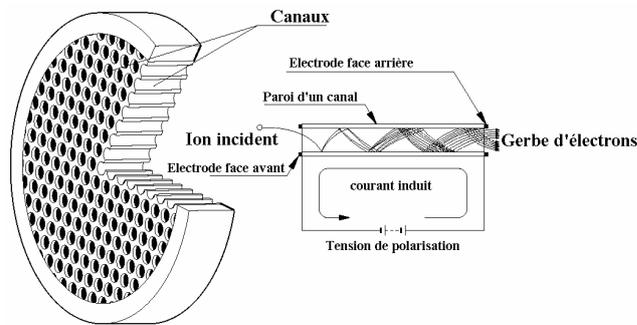


FIG. III.2.: Un canal comme amplificateur élémentaire dans une galette

III.2.1. Efficacité absolue de détection

La connaissance de l'efficacité absolue de détection des fragments neutres ainsi que celle de l'ion de recul est nécessaire pour la détermination des

probabilités de fragmentation ainsi que les rapports de branchement entre les différentes voies de fragmentation.

L'efficacité absolue de détection est donnée par la probabilité qu'une particule arrivant sur la surface d'entrée des galettes de microcanaux soit détectée.

Une méthode expérimentale basée sur la détection en coïncidence des fragments neutres et ionique résultant d'une fragmentation d'un agrégat M_n^+ sur une cible légère a été développée par l'équipe [6] pour déterminer l'efficacité absolue de détection pour les atomes neutres. Ce travail a montré que, d'une part dans le régime des énergies du keV, l'efficacité dépend principalement de l'énergie cinétique des particules incidentes, et d'autre part que l'efficacité absolue de détection des atomes neutres et ionisés ayant la même énergie cinétique est similaire.

L'efficacité de détection présente un seuil aux environs de 400 eV d'énergie cinétique et tend vers une valeur limite légèrement inférieure à 50 % pour des énergies cinétique des particules supérieures à 3 keV. Cette limite de 50% est fixée par l'efficacité géométrique des galettes et correspond à la proportion de la surface utile de la galette, *i.e.* le rapport de la surface que couvre l'ensemble de microcanaux sur la surface totale de la galette. Les éléments de surface entre les canaux sont émissifs mais l'électron émis suite à l'impact d'une particule n'est pas soumis au champ électrique et donc il ne donnera pas suite à une avalanche d'électrons ce qui rend cette surface "aveugle". L'efficacité de détection des atomes d'argon ayant une énergie cinétique de l'ordre de keV a été estimée de 20% [6].

B. Deconihout *et al.* [8] ont proposé d'ajouter un champ électrique créé par une tension entre une grille, placée devant les galettes, et la face d'entrée des galettes. Une valeur bien choisie de ce champ permet de ramener les électrons produits de la surface "aveugle" de la galette à l'intérieur du canal le plus proche permettant ainsi d'atteindre une efficacité absolue de détection de 72 %.

Il reste à souligner que le vieillissement des galettes entraîne une fluctuation dans le gain des galettes ce qui peut entraîner une fluctuation de l'efficacité de détection.

III.2.2. Le montage des galettes des microcanaux

Dans notre détecteur, nous avons choisi d'utiliser un montage comprenant deux galettes de microcanaux BURLE Long-Life-MCP d'un diamètre utile de 40 mm et d'épaisseur 1,5 mm montées en chevron.

Il est souvent souhaitable dans les montages contenant une anode à lignes à retard d'avoir une distance de quelques cm entre la face arrière des galettes et le plan des lignes à retard. Ceci permet à la gerbe d'électrons d'arroser plusieurs fils pour améliorer nettement la résolution en position. Au contraire dans les montages utilisant une caméra CCD, il est préférable de réduire la distance entre la face arrière des MCPs et l'écran phosphore pour focaliser au mieux la gerbe d'électrons sur l'écran phosphore. Dans notre cas, l'écran phosphore est inséré entre les deux plans des fils (fig. III.5) c'est pourquoi nous avons dû faire un compromis entre ces deux contraintes opposées en plaçant les fils et l'écran phosphore à une distance respectivement de 6 mm et 7 mm de la face arrière des MCPs (fig. III.3).

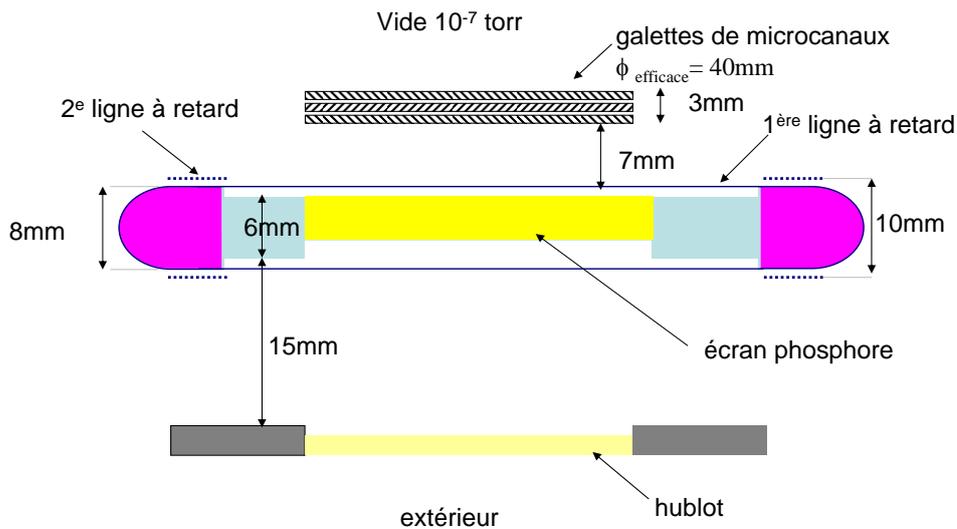


FIG. III.3.: Illustration montrant les dimensions du détecteur.

III.2.3. Montage électrique et prise du signal temps

Comme le montre la figure III.4, les galettes sont alimentées par un pont résistif utilisant un seul générateur de haute tension. L'avantage d'un tel

montage est d'assurer la montée et la descente de toutes les tensions simultanément ce qui minimise les risques de claquages.

Puisque le montage des galettes est suivi par un écran phosphore porté à une haute tension positive (+4 kV), nous avons choisi de porter la face arrière des MCPs au potentiel de la masse et celui de la face avant à la haute tension (-2,2 kV). Ceci ne perturbe pas la détection, en particulier la mesure du temps de vol des particules détectées, puisqu'il s'agit dans notre cas de particules neutres. Dans le cas contraire, une grille reliée à la masse peut être utilisée, mais celle-ci diminue l'efficacité de détection d'autant plus que sa transparence est faible.

La production de la gerbe d'électrons à la sortie des galettes des microcanaux est vue comme un appel de courant dans la chaîne d'alimentation des galettes autrement dit comme un signal électrique positif. C'est un signal bref (4 ns FWHM) qui par conséquent, contient des composantes hautes fréquences. Dans ce cas, il faut prendre garde aux réflexions et adapter les impédances afin d'obtenir un signal le plus propre possible (fig. III.4).

Le signal temps est pris sur la face arrière de la deuxième galette (face de sortie). La capacité de couplage ainsi que la résistance de protection sont placées - pour éviter toute réflexion- le plus près possible des galettes, *i.e.* directement sur l'anneau d'alimentation¹ de la face arrière des galettes.

¹Les galettes sont polarisées et séparées entre elles par des rondelles capton-cuivre d'épaisseur 120 μm

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

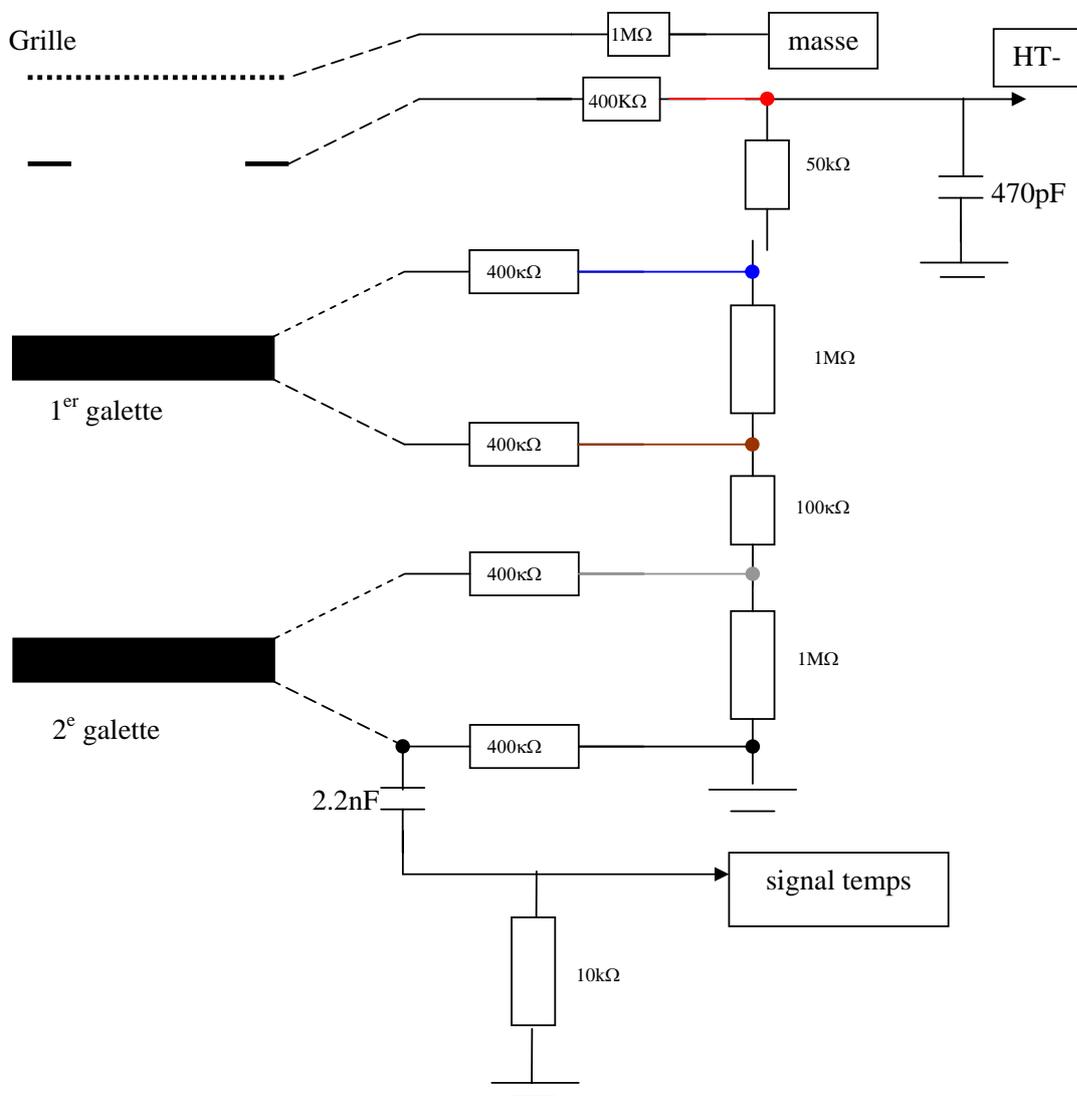


FIG. III.4.: Montage électrique des galettes

III.3. Système de localisation par lignes à retard “modifié” (mDLA)

Le système de localisation par lignes à retard a été proposé par D.M. Lee *et al* dans les années 70s [9] et ensuite par H. Keller *et al.* [10]. Plus tard, ce système a été repris par H. Schmid-Böcking et ses collègues en utilisant des discriminateur à fraction constant (CFD) [11]. Il est constitué de deux lignes de transmission (lignes à retard) croisées perpendiculairement (figure III.5). Chaque ligne, formée de deux fils conducteurs (cuivre- béryllium) de diamètre $\phi = 0,125$ mm, distants de 1 mm, bobinés autour d'un cadre métallique, définit une des directions du plan de détection (x ou y).



FIG. III.5.: Photographie du mDLA, montrant l'écran phosphore au centre des lignes à retard

III.3.1. Principe de la mDLA

Le passage de la gerbe d'électrons issue des galettes de microcanaux induit un signal électrique dans les deux lignes. Sur chaque ligne (associée à la direction x, par exemple) le signal se propage dans les deux sens opposés (droite - gauche par exemple). Étant donné que la vitesse de propagation v des signaux dans la ligne de transmission est constante, le temps mis par le signal pour arriver à une extrémité de la ligne est proportionnel à la distance parcourue par le signal depuis le point où il a été créé (le point d'impact). La coordonnée x est ainsi directement proportionnelle à la différence des temps

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

d'arrivée des deux signaux aux extrémités de la ligne, tandis que la somme de ces deux temps reste constante. C'est le temps pour parcourir toute la longueur de la ligne $T_{\text{sum}} = 40\text{ns}$.

La gerbe d'électrons arrose plusieurs portions de la ligne. Par conséquent, le signal global est la superposition des signaux générés aux niveaux des diverses portions touchées. Le traitement du profil de ce signal permet d'atteindre une résolution bien meilleure que le pas du bobinage. Nous appellerons par la suite signal "temps-position" ce signal délivrant la position par la mesure de son temps d'arrivée

III.3.2. Signaux « temps - position »

Une différence de potentiel de quelques centaines de volts est appliquée entre les deux fils de la ligne à retard. Le fil qui est porté à la tension la plus élevée est appelé collecteur, l'autre référence. Localement, la gerbe d'électrons sera déviée vers le collecteur, induisant un signal négatif d'amplitude plus importante que celle du signal induit dans le fil référence. Les fils collectent aussi des signaux parasites (bruit). Ces parasites peuvent être vus comme des signaux induits par l'environnement. Le fait que les fils soient proches et que le signal soit transporté à la sortie par des paires torsadées entraînent que ces signaux parasites sont identiques pour les deux fils. Par conséquent, il suffit de faire la différence des deux signaux pour éliminer le bruit et obtenir l'amplitude «utile». L'opération différence est effectuée avec un amplificateur différentiel (Roentdek DLA800). Le signal « temps- position » en sortie de l'amplificateur différentiel est un signal négatif de 10 ns de largeur à mi-hauteur. L'amplitude du signal dépend du gain des galettes, de la tension entre le collecteur et le fil référence ainsi que du potentiel appliqué sur l'écran phosphore.

III.3.3. Mise en niveau logique

Les quatre signaux « différence » temps- position (x_1, x_2, y_1, y_2) des lignes à retard ainsi que le signal temps mesuré sur les galettes des microcanaux sont codés et mémorisés par un convertisseur temps numérique (TDC) opérant avec le standard NIM. La transcription de ces signaux en niveau logique est réalisée par deux types de discriminateurs :

III.3. Système de localisation par lignes à retard “modifié” (mDLA)

1. Discriminateur à niveau : un module électronique qui répond seulement pour les impulsions dont le niveau dépasse un certain seuil. Si cette condition est validée, le discriminateur répondra, suivant son mode de fonctionnement, soit en transmettant le signal de l’entrée à la sortie, soit en générant un signal logique. Donc il permet d’éliminer les impulsions de faible amplitude (bruit électronique, réflexions).
2. Discriminateur à fraction constant (CFD) : ce module est un outil performant de prise de temps du signal indépendamment de son amplitude. Il génère un signal logique quand le signal d’entrée atteint un certain pourcentage de son amplitude. L’utilisation du CFD appliqué à l’enveloppe du signal temps- position qui est la superposition de plusieurs signaux permet d’atteindre une résolution bien meilleure que le pas du bobinage.

Les performances des discriminateurs utilisés² ainsi que celles du convertisseur temps - numérique sont des paramètres importants pour définir la résolution et le temps mort des lignes à retard. Le choix des valeurs du seuil des discriminateurs est discuté plus loin.

III.3.4. Modifications des lignes à retard

Nous avons apporté deux modifications par rapport à un système de lignes à retard standard. En effet, nous avons ajouté un écran phosphore au centre du cadre métallique qui les supporte (fig III.5). Cet écran permet de “photographier” la position de l’impact d’une particule et surtout les impacts de plusieurs particules simultanées grâce à une caméra CCD. L’ensemble (écran et lignes à retard) est porté à la haute tension afin d’accélérer les électrons issus des galettes des microcanaux à une énergie suffisamment élevée (de l’ordre de 4 keV) pour exciter le phosphore. Comme les fils des lignes à retard sont très proches de l’écran, ils ont aussi été portés à la haute tension pour éviter les claquages et les problèmes de focalisations d’électrons. La deuxième modification a consisté à augmenter la distance entre deux fils successifs (le pas de bobinage) afin d’améliorer la transparence optique de la grille formée par les deux lignes à retard.

² CFD : DGM-O (IPN Orsay) pour le signal temps et CF5201 (IPN Orsay) pour les signaux “temps-position”

III.3.5. Le choix de la polarisation des lignes et de l'écran phosphore

On notera V , V' et V_{ph} les potentiels du fil collecteur, de la référence et de l'écran phosphore par rapport à la masse. Le choix de ces tensions doit respecter certaines conditions et un compromis doit être trouvé :

1. La tension entre la face arrière des galettes et l'écran phosphore doit être la plus grande possible.
2. Pour éviter les claquages électriques dans un vide de 10^{-7} torr, le champ électrique ne doit jamais excéder plus de 1kV/ mm. La distance de 1 mm entre le plan des fils et l'écran phosphore et la distance de 1 mm séparant les deux fils de la ligne à retard, imposent des conditions sur les tensions : la différence de potentiels entre le collecteur, le référence et l'écran phosphore ne doit pas excéder 1 kV. Dans cette fourchette, les tensions V , V' ont été choisies pour avoir le meilleur signal temps-position (après l'amplificateur différentiel) et réduire les effets de focalisation.

Le meilleur jeu de valeurs, pour une tension (HT-) de 2.2 kV appliquée au pont de résistances alimentant les galettes, est : $V = 3,7$ kV, $V' = 3,9$ kV, $V_{ph} = 3,3$ kV.

III.3.6. Gain des galettes de microcanaux

Le gain des MCPs dépend fortement de la tension appliquée aux bornes des galettes V_g . La figure III.6 représente les amplitudes du signal temps issu des MCPs pour différentes valeurs de V_g et pour la même jeu de tensions lignes-écran phosphore.

Ce gain dépend aussi de la tension d'accélération de la gerbe d'électrons à la sortie des galettes qui sont dans notre cas les tensions des lignes à retard et de l'écran phosphore. La figure III.7 montre la distribution de l'amplitude des signaux temps issus des MCPs pour deux jeux de tensions écran phosphore-lignes à retard. Le fait de porter à la haute tension l'écran phosphore et les lignes à retard augmente notablement le gain des galettes.

III.3. Système de localisation par lignes à retard "modifié" (mDLA)

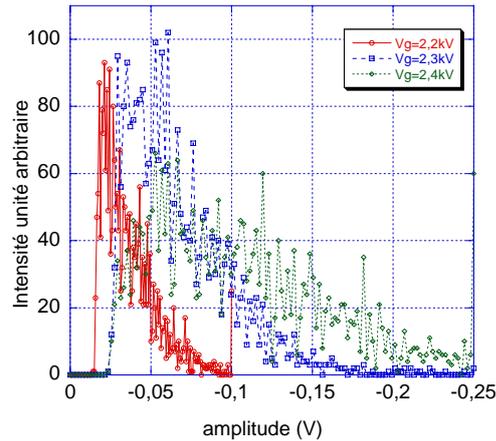


FIG. III.6.: Distribution de l'amplitude du signal temps issu des MCPs pour différentes valeurs de V_g (2,2 kV , 2,3kV et 2,4kV) et pour le même jeu de tensions lignes- écran phosphore ($V = 3,7$ kV, $V' = 3,9$ kV, $V_{ph} = 3,3$ kV).

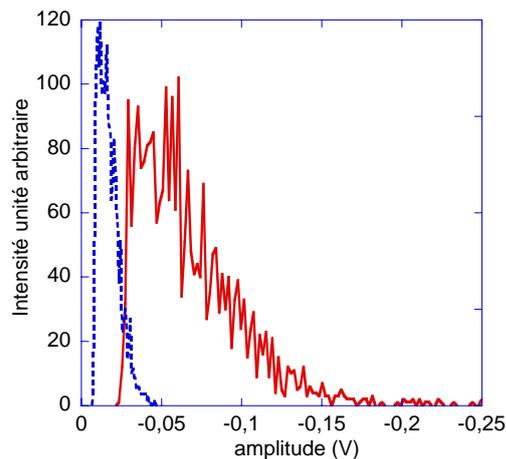


FIG. III.7.: Distribution de l'amplitude du signal temps issu des MCPs pour une tension $V_g=2,3$ kV : trait continu ($V = 3,7$ kV, $V' = 3,9$ kV, $V_{ph} = 3,3$ kV), pointillé ($V = V' = V_{ph} = 0$ V)

III.3.7. Réglage des seuils des discriminateurs à niveau sur les voies temps et temps-position :

La valeur du seuil doit être choisie de façon à éliminer les signaux parasites de faible amplitude (bruit électronique, réflexions) tout en conservant les impulsions physiques. Pour cela, on a enregistré la distribution d'amplitudes

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

du signal temps des galettes de microcanaux (fig III.8). Cet enregistrement a été effectué avec un faisceau d'ions directe et atténué, afin d'avoir une position d'impact sur les galettes quasi-constante. D'après cette distribution, une valeur du seuil de 15 mV a semblé un bon choix.

Le même travail a été fait pour les signaux temps-position. On montre sur la figure III.9 la distribution d'amplitude d'un de ces signaux.

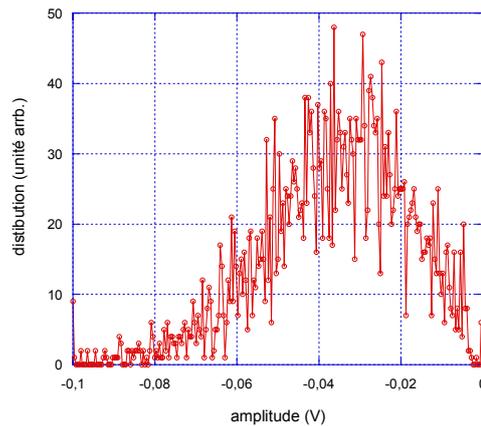


FIG. III.8.: Distribution de l'amplitude du signal temps

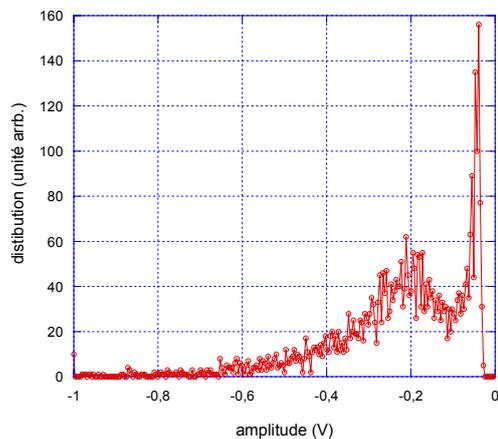


FIG. III.9.: Distribution de l'amplitude du signal temps-position

III.3.8. Performances en “multi-hits” : zone morte

Le système de localisation à lignes à retard s'impose comme un outil de détection très efficace disposant d'une résolution spatiale de 0,1 mm et une résolution temporelle sub-nanoseconde. Malheureusement, le temps mort de l'électronique de codage (convertisseur temps numérique TDC³, discriminateurs) ajouté à la largeur des signaux temps-position ne permet pas au système de détecter les particules arrivant dans un interval de temps assez bref (< 50ns).

On considère le cas où deux particules (p1, p2) arrivent sur le détecteur aux instants t_1 et t_2 , aux positions d'impact (x_1, y_1) (x_2, y_2) respectivement (fig III.10).

Les particules arrivant simultanément sur le détecteur peuvent être soit totalement ou partiellement détectées soit complètement perdues. Tout dépend de la différence des temps d'arrivée ainsi que de leurs positions relatives d'impact. Dans la suite nous montrerons le temps mort et la zone morte de ce système.

Pour simplifier le raisonnement on considère une seule des deux lignes (par exemple la ligne horizontale).

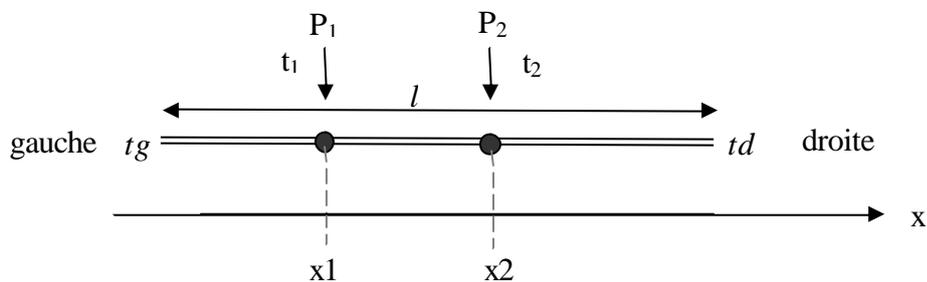


FIG. III.10.: Deux particules (p1, p2) arrivent sur le détecteur aux instants t_1 et t_2 , aux positions d'impact (x_1, y_1) (x_2, y_2) respectivement

Les temps d'arrivée du signal de la première particule aux extrémités gauche et droite de la ligne sont alors respectivement : $t_{g1} = \frac{x_1}{v} + t_1$ et $t_{d1} = \frac{l-x_1}{v} + t_1$, de même pour la deuxième particule : $t_{g2} = \frac{x_2}{v} + t_2$, $t_{d2} = \frac{l-x_2}{v} + t_2$ où v est la vitesse de propagation du signal dans la ligne ($v=3.10^8$ m/s) et l sa longueur.

³En anglais Time to Digital Converter

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

Le temps mort électronique T_{me} (temps mort des CFD et TDC utilisés) impose une condition limite sur $tg_2 - tg_1$ et $td_2 - td_1$. En effet aucune de ces deux grandeurs ne peut être inférieure au temps mort d'électronique sinon le deuxième signal est perdu. Ceci conduit aux deux conditions suivantes :

$$|dx/v + dt| > T_{me} \quad (\text{III.1})$$

$$|-dx/v + dt| > T_{me} \quad (\text{III.2})$$

avec $dx = x_1 - x_2$ et $dt = t_1 - t_2$.

La validation de ces conditions détermine le comportement du DLA en vue de la multi-détection. Ce comportement sera différent selon les cas que nous allons considérer par la suite :

1. Cas 1 : $dt > dx^{max}/v + T_{me}$: dans ce cas les deux conditions sont validées quelle que soit la valeur de dx , *i.e.* on détecte les deux particules quelles que soient leurs positions relatives même dans la cas limite où elles arrivent sur la même position ($dx = 0$).

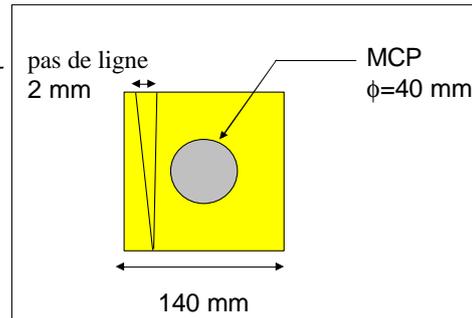
Exemple :

dx^{max} correspondant au diamètre des ga-
llettes de microcanaux(ϕ) :

$$dx^{max} = \phi \times l_{tour} = 40 \times 140 = 5,6 \cdot 10^3 \text{ mm}$$

et donc

$$dx^{max}/v + T_{me} \approx 18 + 42 = 60 \text{ ns}$$



2. Cas 2 : $dt < dx^{max}/v + T_{me}$:

La détection dépend de la position d'impact relative des particules et selon les cas, celle-ci peut être complète, partielle ou même ratée. La figure III.11 montre une illustration graphique de la solution des équations (III.1, III.2). On peut, sur la figure, distinguer deux "zones mortes" :

- a) Zone A : une seule condition est validée, dans ce cas on ne mesure qu'un seul temps-position néanmoins étant donné que $tg + td = T_{sum}$ on pourra, a priori, avec un traitement supplémentaire reconstituer l'événement et déterminer la coordonnée x . Ceci permettra de gagner environ 21 ns sur le temps mort.

- b) Zone B : Aucune des deux conditions n'est validée. Par conséquent la coordonnée de la particule est perdue.

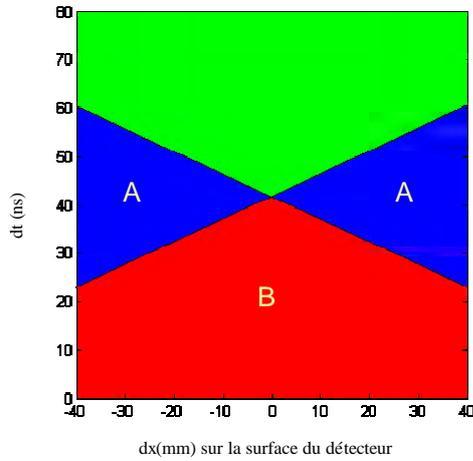


FIG. III.11.: Illustration graphique de la solution des équations (III.1, III.2). une distance de 1 mm sur le détecteur correspond à 125 mm de longueur de ligne.

Pour résumer, le temps mort du DLA est, rigoureusement, $dx^{max}/v + T_{me} \approx$ **60 ns ; en dessous de cette valeur, la détection de la particule dépend de sa position.** Ceci peut avoir comme effet de biaiser les résultats physiques comme on le verra plus tard.

Il reste à souligner qu'en utilisant un système électronique ayant un temps mort T_{me} plus faible, on peut réduire le temps mort du DLA, et atteindre un cas extrême où ce temps mort est seulement limité par le temps de propagation dx^{max}/v . En dessous de cette valeur la détection nécessitera un traitement plus complexe [12].

III.4. Système de mesure du temps : le numériseur

Le signal temps issu des galettes de microcanaux (fig III.1 et fig III.4) est enregistré par deux systèmes différents :

1. une chaîne constituée d'un CFD et une voie d'un convertisseur temps numérique multi-voies (CTNM3, IPN Orsay, pas de 250ps [4]).

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

2. Une carte de numérisation (numériseur) (Acqiris DP110 [5]) dont la bande passante est de 250 MHz échantillonnant à raison de 1 G échantillons/s).

L'utilisation de ces deux systèmes en enregistrement simultané a pour but d'assurer la synchronisation du temps enregistré par le numériseur avec celui du mDLA. Les informations "temps-positions" du mDLA et "temps" des galettes sont codées avec le même TDC. La référence de temps du numériseur est déclenchée par le "soft" et donc cette référence est différente de celle du TDC. Afin de raccorder ces deux références de temps on s'assure que la première particule est vue à la fois par le numériseur et le TDC.

III.4.1. La mesure du temps d'arrivée à temps mort nul

Le principe est simple : le numériseur, déclenché par l'arrivée du signal temps d'une première particule, enregistre pendant une fenêtre temporelle programmable et avec un pas d'une nanoseconde tous les signaux temps issus des galettes. Une analyse "off-line" de tous les signaux enregistrés permet ainsi de déterminer le temps d'arrivée des particules sans temps mort.

III.4.2. Reconstitution du signal réel :

A partir des mesures enregistrées avec un pas de 1 ns est-il possible de reconstituer *a posteriori* le signal original? la réponse est : «oui mais sous une condition».

III.4.2.1. Rappel de la théorie du traitement de signal

Soit $\delta(t-t_0)$ une impulsion de Dirac au temps centré à $t = t_0$. La transformée de Fourier (TF) de cette impulsion est :

$$\begin{aligned} TF(\delta(t-t_0)) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \delta(t-t_0) e^{-j\omega t} dt \\ &= e^{-j\omega t_0} = 1 \quad \text{si } (t_0 = 0) \end{aligned}$$

Considérons une suite infinie d'impulsions de Dirac de période T_e (peigne de Dirac en temps) $\sum_{-\infty}^{+\infty} \delta(t - iT_e)$, sa transformée de Fourier est donnée par

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \sum_i \delta(t - iT_e) e^{-j\omega t} dt = \sum_i e^{-j\omega iT_e}$$

Pour toutes les fréquences telles que $\omega T_e \neq 2\pi n$ cette somme s'annule. Ces vecteurs s'ajoutent à l'infini pour les fréquences $n F_e$ où F_e est la fréquence d'échantillonnage ($\omega T_e = 2\pi$). La TF d'un peigne de Dirac en temps est donc un peigne de Dirac en fréquence : $TF = \sum_n (f - nF_e)$ (fig. III.12).

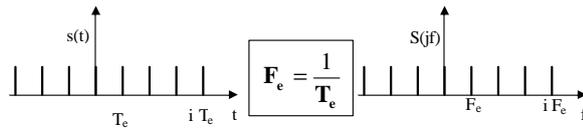


FIG. III.12.: la TF d'un Peigne de Dirac en temps est un peigne de Dirac en fréquence

Un signal analogique $e(t)$ échantillonné à la période T_e peut se réduire à une suite infinie des valeurs $e(iT_e)$ que l'on peut écrire :

$$p(t) = \sum_{-\infty}^{\infty} e(t - iT_e) \delta(t - iT_e) = e(t) \sum_{-\infty}^{\infty} \delta(t - iT_e)$$

un signal échantillonné $p(t)$ est donc le produit du signal avec le peigne de Dirac. Par conséquent, la TF du signal échantillonné est la convolution du peigne de Dirac (en fréquence) et du spectre $E(j\omega)$.

Peut-on retrouver $e(t)$ à partir de $e(t) p(t)$? Évidemment oui si on sait revenir au spectre $E(jf)$ à partir du spectre du signal échantillonné.

Comme on peut le voir sur la figure III.14, ceci est possible en appliquant un filtre de gain 1 dans l'intervalle (contenant le spectre du signal $e(t)$) et nul en dehors. La seule condition pour reconstituer le signal analogique est donc que le spectre initial $E(jf)$ soit nul en dehors de l'intervalle sinon, il y a recouvrement (aliasing). **C'est le théorème de Shannon.**

Normalement pour s'assurer que la condition de Shannon est bien respectée on ajoute avant le numériseur un filtre «anti-aliasing» qui ne laisse passer que les fréquences inférieures à la moitié de la fréquence d'échantillonnage $f < \frac{F_e}{2}$.

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

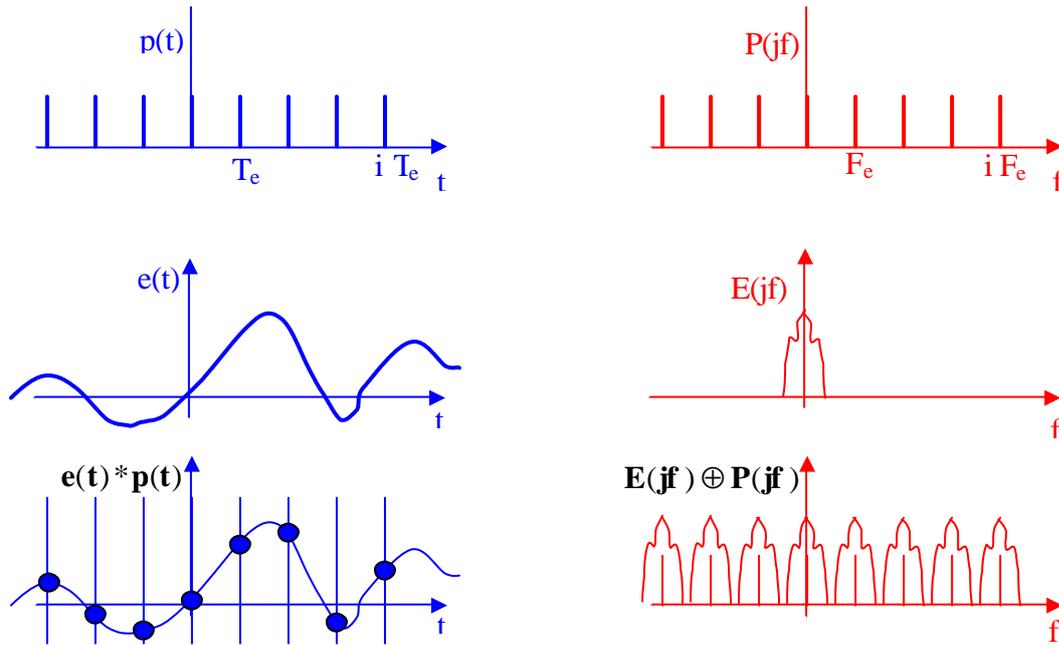


FIG. III.13.: La TF du signal échantillonné est la convolution du peigne de Dirac (en fréquence) et du spectre du signal continu $E(j\omega)$



FIG. III.14.: Reconstitution du signal analogique à partir du spectre du signal échantillonné en appliquant un filtre de gain 1

Dans notre cas nous utilisons un numériseur avec une bande passante de 250 MHz, échantillonnant à 1 GS/s ($F_e = 1$ GHz). Il n'y a donc pas de recouvrement et la condition de Shannon est respectée. L'algorithme de transformée de Fourier rapide⁴ (FFT) a été utilisé dans le calcul. La figure III.15 montre le signal échantillonné (avec un pas de 1ns) et le signal *sur-échantillonné* calculé avec un pas de 125 ps.

En principe, on peut re-construire le signal réel (continu), *i.e.* on peut choi-

⁴En anglais : Fast Fourier Transform

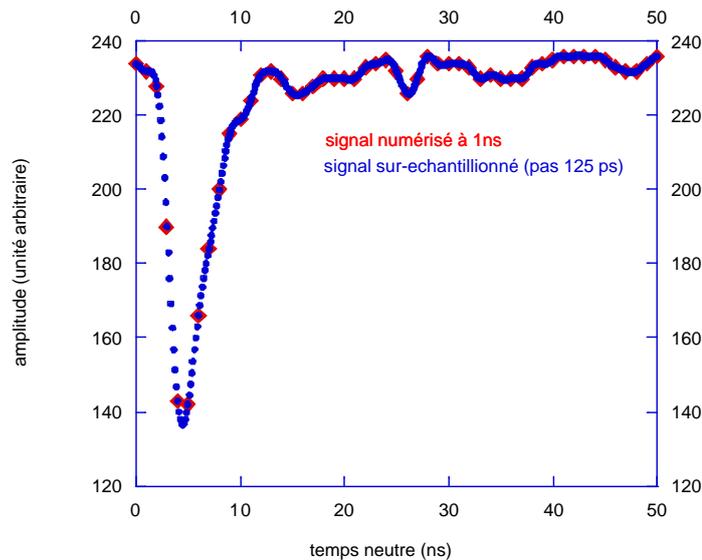


FIG. III.15.: points pleins : signal échantillonné (avec un pas de 1ns), points carrés : signal sur-échantillonné calculé avec un pas de 125 ps

Un pas de sur-échantillonnage le plus petit possible (inférieur à 125 ps, par exemple). La précision sur la mesure du temps n'est pas limitée par le pas de sur-échantillonnage, mais par la stabilité du numériseur qui est de 80 ps. On pourra donc s'attendre à une résolution en temps meilleure que 100 ps.

III.5. Localisation par une caméra-CCD

Le troisième système de localisation utilise une caméra CCD placée à l'arrière d'un écran phosphore. Lorsqu'une particule arrive sur les galettes, elle génère une gerbe d'électrons à la sortie des galettes. Par la suite, la gerbe est accélérée vers l'écran phosphore pour produire des photons. Ces photons sont focalisés sur le capteur de la caméra CCD. Les pixels de la caméra traduisent ces photons en charge électrique permettant à l'électronique de "développer la photo". L'analyse de l'image finale permet de trouver la position d'impact de la particule.

Avant d'exposer le principe et la mise au point du système nous commencerons par un rappel sur le principe de fonctionnement de la caméra CCD.

III.5.1. Lecture de l'image

La surface sensible de la caméra-CCD est constituée d'une matrice d'éléments photosensibles dits pixels. Quand un photon arrive sur un pixel, il est converti en une charge électrique (électrons), qui est accumulée dans le pixel même. La charge accumulée dans chaque pixel est proportionnelle à l'intensité lumineuse (nombre de photons) reçue par le pixel pendant le temps de l'exposition. A la fin de l'exposition, la charge accumulée dans tous les pixels est transférée par un dispositif CCD⁵.

L'élément photosensible est souvent comparé à un seau rempli d'eau. De cette analogie vient le terme "full well capacity" *i.e.* la charge maximale que le pixel peut stocker sans perte de charge vers les pixels adjacents.

Nous utilisons une caméra Dalsa CA-D6. Cette caméra a été choisie parce qu'elle dispose de la vitesse de répétition la plus élevée (955 images / seconde) qui soit disponible sur le marché en mode continu. La lecture de l'image pour cette caméra se fait par l'intermédiaire d'une zone dite de stockage. Cette dernière est tout à fait équivalente à la première zone photosensible avec la différence fondamentale que cette zone est protégée de la lumière. Ainsi chaque pixel photosensible est associé à son pixel clone non-photosensible. A la fin de la période d'exposition la lecture des données consiste d'abord à transférer le contenu de la zone sensible vers la zone de stockage. Ce transfert est relativement rapide (quelques μs) puisqu'il se fait en parallèle d'un pixel à l'autre. La deuxième étape de la lecture consiste à transférer l'image de la zone de stockage vers la carte d'acquisition. Ce transfert se fait par un dispositif CCD (ligne par ligne) sur les quatre registres de sortie. Ce deuxième temps de transfert *est relativement lent (1 ms) et c'est lui qui limite principalement la vitesse d'acquisition* de la caméra CCD en mode continu.

Il faut noter qu'une fois le premier transfert de la zone photosensible vers la zone de stockage établi, on peut redémarrer une nouvelle exposition (une nouvelle image) après quelques microsecondes ce qui est le temps nécessaire pour réarmer les pixels. Ainsi l'utilisation de la zone tampon permet, dans certains cas, de multiplier par deux la vitesse d'acquisition de la caméra. Ce système permet de plus d'avoir des temps d'exposition égaux pour tous les pixels.

⁵coupled charge device

On peut encore gagner sur la vitesse “effective” de la caméra en n’effectuant un transfert de l’image que si cela est justifié à l’aide de critères externes. On évite ainsi de transférer les images inutiles. On redémarre directement l’acquisition d’une nouvelle image sans être limité par le temps de transfert de l’image (cf. III.10.1).

III.5.2. Couplage optique “passif”

Pour que la caméra puisse enregistrer l’image, il faut que l’intensité lumineuse sur le capteur soit supérieure à une certaine valeur (la sensibilité de la caméra). Le choix du système de couplage doit donc tenir compte de cette condition.

Un couplage optique est utilisé pour former une image “détectable” de l’écran phosphore de diamètre utile de 40 mm, sur la matrice photosensible de la caméra CCD dont la taille est de 2,6mm × 2,6mm. Ce couplage doit fournir un facteur de réduction A de

$$A = \frac{\text{taille de la surface de detection}}{\text{taille de la matrice photosensible}} = 15,4$$

Le système de couplage doit avoir une ouverture numérique suffisante pour que l’intensité lumineuse transmise sur le capteur de la caméra soit supérieure à son seuil de sensibilité. Ceci introduit la notion de transmission du couplage qui en fait n’est que le rapport entre l’intensité de la lumière transmise (par rapport au système de couplage) et celle de la lumière incidente.

Deux systèmes de couplage peuvent a priori être utilisés : un couplage “classique” par des objectifs photographiques ou bien un cône réducteur à fibre optique. Le système à fibre optique possède un meilleur facteur de transmission mais la réduction accessible est limitée à un facteur 5.

Si on utilise un couplage avec des objectifs classiques, on peut estimer l’ouverture de l’objectif en fonction de la valeur de l’intensité lumineuse sur la matrice CCD. Considérons que le couplage est fait par un objectif photographique d’ouverture numérique F, de facteur d’atténuation f_{att} et ayant un facteur de réduction de A , le facteur de transmission est donné par la relation [13] :

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

$$T = \frac{f_{att}}{4 \times F (1 + A)^2}$$

L'arrivée d'une particule sur la surface des galettes de microcanaux engendre une bouffée de 10^6 à 10^7 électrons qui sont accélérés vers l'écran phosphore à une énergie de 3,3 keV. Le nombre de photons générés par électron dépend du type de matériaux phosphorescent utilisé, par exemple pour un écran phosphore P46⁶ ce rendement est de 20 photons. Finalement un impact donne entre $N = 2 \cdot 10^7$ à $2 \cdot 10^8$ photons à l'entrée du système et à sa sortie on a $T \times N$ photons. Dans le cas où l'ouverture numérique vaut 1, pour une réduction par 15 et un facteur d'atténuation de 0,7 on a $T = 7 \cdot 10^{-4}$. Alors le nombre des photons sur la matrice photosensible de la caméra est de $14 \cdot 10^3$ à $14 \cdot 10^4$ photons. Ces photons sont émis dans le vert ($\lambda = 550 \text{ nm}$). Chaque photon a une énergie $h\nu = 3,6 \cdot 10^{-19} \text{ J}$ soit une intensité lumineuse arrivant sur la caméra de $5 \cdot 10^{-4}$ à $5 \cdot 10^{-5} \text{ nJ}$. Finalement, compte tenu de la taille des spots sur l'écran phosphore, on peut supposer que l'intensité arrive sur une centaine de pixels (taille de pixel $10 \times 10 \mu\text{m}^2$) de la matrice. La surface qui reçoit de la lumière est de $1 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2$. Donc l'énergie reçue par unité de surface est de $5 \cdot 10^{-2}$ et $5 \cdot 10^{-1} \text{ nJ/cm}^2$. Etant donnée que la sensibilité de la caméra "responsivity" est de $1,34 \text{ DN}/(\text{nJ/cm}^2)$ ⁷, la réponse de la caméra est

$$1,34 \times 5 \cdot 10^{-1} = 0,67 \text{ DN}$$

Ainsi avec un couplage classique le niveau des signaux est tellement faible qu'ils sont noyés dans le bruit propre de la caméra (0,45 DN). Une étape amplificatrice est indispensable afin de rendre l'intensité lumineuse mesurable par la caméra CCD.

III.5.3. Intensificateur d'image

Afin d'amplifier l'intensité lumineuse nous utilisons un intensificateur d'image de deuxième génération, constitué d'une photo-cathode suivie d'un amplificateur d'électrons (un assemblage de galettes de microcanaux) et d'un écran

⁶voir fig. III.19 pour les critères de choix de l'écran phosphore

⁷DN : nombre digital (niveau) (0-255 pour un système à 8-bits)

phosphore (figure III.16).

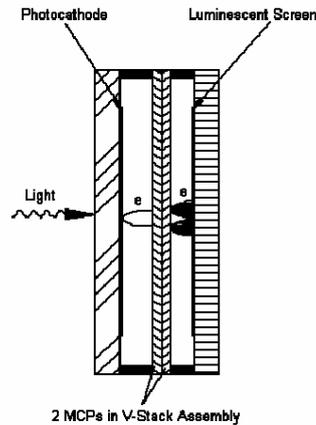
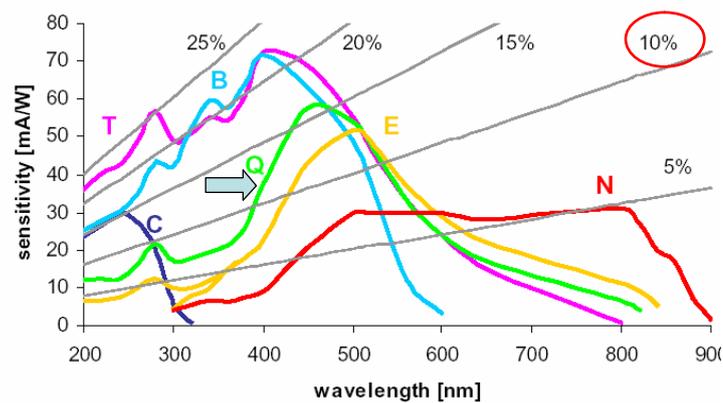


FIG. III.16.: Intensificateur d'image



Photocathode / Substrate	Code	Composition	Dark Emission Rate (Electrons/cm ² /sec)
Advanced Solar Blind / Quartz	C	CsTe	3
Bialkali / Quartz	B	K ₂ SbCs	15
UV Enhanced S 20 / Quartz	T	(Na ₂ KSb)Cs	500
S 20 / Quartz	Q	(Na ₂ KSb)Cs	1500
S 20 / Clear Glass	M	(Na ₂ KSb)Cs	1500
S 25 / Quartz	F	(Na ₂ KSb)Cs	10000
S 25 / Clear Glass	E	(Na ₂ KSb)Cs	10000
Red Enhanced S 25 / Clear Glass	N	(Na ₂ KSb)Cs	30000

FIG. III.17.: La distribution spectrale de la sensibilité et du rendement quantique pour différents types de photo-cathode [15]

Les photons incidents sur la surface de la photo-cathode provoquent l'émission d'électrons par effet photoélectrique. Le nombre d'électrons émis par

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

photon définit le rendement quantique Q . La figure III.17 montre une distribution du rendement quantique et la sensibilité pour différents types de photo-cathode. La longueur d'onde des photons émis par l'écran phosphore P46 étant de 550 nm nous avons choisi une photo-cathode type S 20/ Q. Cette photo-cathode a un rendement quantique de 10 et un bruit de fond de 1500 électrons/cm²/s.

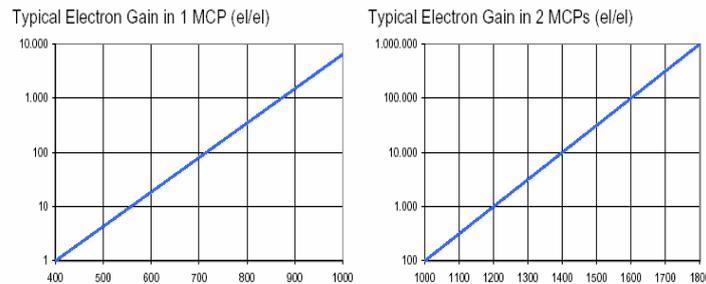


FIG. III.18.: La variation du gain de l'assemblage des galettes de l'intensificateur en fonction de la tension appliquée [15]

A la sortie de la photo-cathode les électrons sont accélérés vers un assemblage de galettes de microcanaux. En fonction du gain demandé, cet assemblage peut contenir un, deux ou éventuellement trois galettes de microcanaux. La figure III.18 montre la variation du gain de l'assemblage des galettes en fonction de la tension appliquée.

Les électrons générés cette fois par l'assemblage des galettes de microcanaux sont accélérés à leur tour vers l'écran phosphore. Le choix de l'écran phosphore a été conditionné principalement par la longueur d'onde optimale pour avoir un meilleur rendement sur la caméra CCD (500 nm à 800 nm), un deuxième facteur était son temps de rémanence et son efficacité. L'idéal serait un écran phosphore ayant un temps de rémanence minimal et une efficacité maximale. Parmi la gamme d'écrans phosphore dont les caractéristiques sont présentées sur la figure III.19, notre choix s'est porté sur un écran phosphore type P46, ayant un temps de rémanence de l'ordre de 300 ns.

III.5.4. Couplage optique "actif"

Deux objectifs photographiques sont placés de part et d'autre de l'intensificateur d'image (fig III.20). Le premier objectif de focale 25 mm et d'ouverture

III.5. Localisation par une caméra-CCD

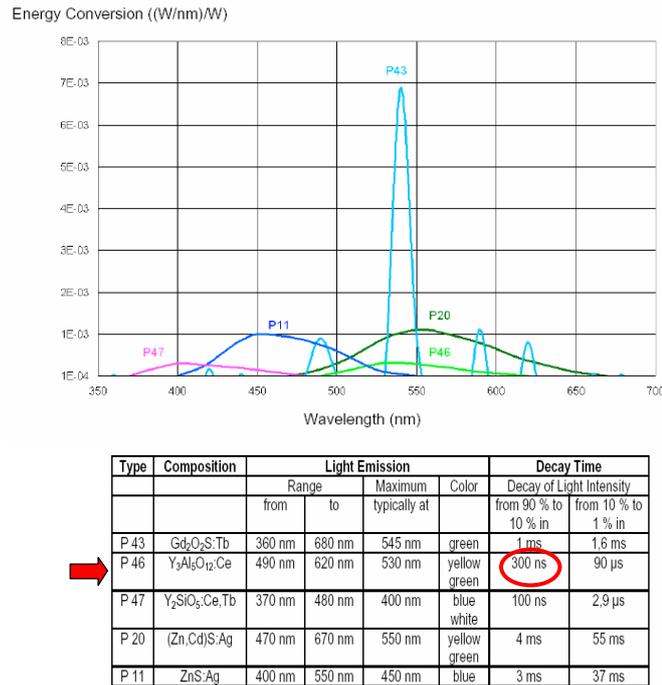


FIG. III.19.: Caractéristiques de différents types d'écran phosphore [15].

numérique $F = 0,95$ forme l'image de l'écran phosphore ($\phi = 40$ mm) sur l'entrée de intensificateur ($\phi = 25$ mm). Le deuxième objectif de focale 4,5 mm et d'ouverture numérique $F = 1,4$ est utilisé pour former l'image à la sortie de l'intensificateur ($\phi = 25$ mm) sur la surface sensible de la caméra CCD. Le gain (minimal) de l'intensificateur G est calculé pour avoir un niveau correct du signal lumineux sur la caméra.

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

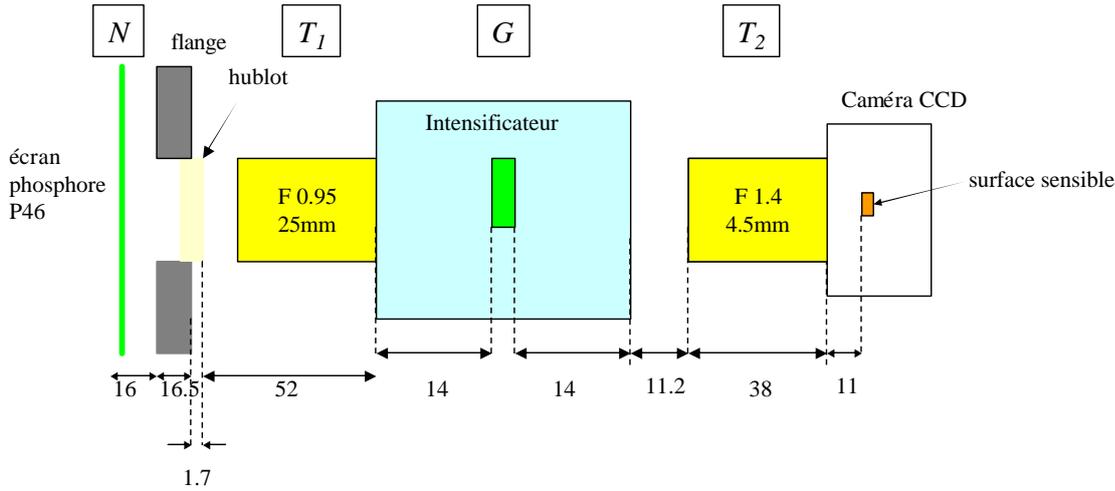


FIG. III.20.: Illustration du couplage optique utilisé (les longueurs sont en mm).

Les deux objectifs ont un facteur d'atténuation $f_{att} = 0,7$. Les coefficients de transmission (T_1, T_2) du premier et deuxième objectif sont donnés respectivement par (avec la notation de §. III.5.2) :

$$T_1 = \frac{f_{att}}{4 \times F (1 + A_1)^2} = 2,87 \cdot 10^{-2}$$

$$T_2 = \frac{f_{att}}{4 \times F_2 (1 + A_2)^2} = 7,92 \cdot 10^{-4}$$

Si on reprend le calcul (cf. III.5.2) avec le coefficient de transmission du système de couplage est $T = T_1 \times G \times T_2 = 2,27 \cdot 10^{-5} \times G$.

L'arrivée d'une particule sur la surface des galettes de microcanaux (avec les valeurs des tensions données auparavant) engendre approximativement $5 \cdot 10^6$ électrons. Ces électrons sont par la suite accélérés et arrivent sur l'écran phosphore avec une énergie de 3,2 keV. Pour l'écran utilisé (P46) chaque électron incident crée 20 photons.

Ainsi un impact donne environ 10^8 photons à l'entrée du système de couplage. A sa sortie on récupère, compte-tenu du facteur de transmission T , un nombre de photons sur la matrice photosensible de la caméra de $2,2 \cdot 10^3 \times G$ photons. Ces photons sont émis dans le vert ($\lambda=550\text{nm}$) *i.e.* chaque photon dispose d'une énergie $h\nu = 3,6 \cdot 10^{-19}$ J. L'intensité lumineuse arrivant sur la

caméra est alors de $8.10^{-7} \times G$ nJ. Finalement, compte-tenu de la taille des spots sur l'écran phosphore, supposons que toute l'intensité arrive sur une centaine de pixels (la taille de pixel est $10 \times 10 \mu\text{m}^2$) de la matrice, la surface recevant de la lumière est de 1.10^{-4}cm^2 . L'énergie reçue par unité de surface est donc de $8.10^{-3} \times G$ nJ/cm². Étant donné que la réponse de la caméra est de 1,34 DN/(nJ/cm²), la réponse de la caméra est

$$1,34 \times 8.10^{-3} \times G = 10^{-2} \times G \text{ (DN)}$$

Pour avoir en moyenne un niveau proche de 255 DN une valeur du gain $G = 10^4$ est nécessaire. Compte-tenu du gain demandé, du type de la photocathode et des courbes du gain (cf. III.5.3) nous avons choisi d'utiliser un intensificateur à deux galettes (Proxitronic BV 2561 EX-V [15]) ce qui assure une détection des spots lumineux avec une bonne dynamique de mesure.

III.6. Interfaçage avec le PC

Par l'intermédiaire de différentes cartes PCI, un PC opérant sous environnement Windows 2000 assure la commande et la lecture des différents éléments du système. Le CTNM3 (codeur temps numérique multi-voies) est interfacé par une carte PCI "maison" basée sur une carte "Kolter PROTO-3 PCI"⁸[14]. La bibliothèque (TVicHW32)⁹ associée à la carte Kolter permet à un programme en langage C++ de communiquer avec la carte. La figure III.21 montre un schéma simplifié de la carte "maison", pour plus de détails voir l'annexe A. Cette carte "maison" associant un registre de données (Data Register) permettant la lecture des données acquises par le CTNM3, et de deux

⁸La carte Kolter est une carte PCI d'entrée/sortie 16 bits émulant l'ancienne et populaire interface ISA

⁹Exemples de cette bibliothèque :

1. Initialiser la carte : on récupère un "handler" (HW32) qui permet aux autres fonctions de communiquer avec la carte :
HW32= OpenTVicHW32 (HW32, "TVICCH32", "TVicDevice0");
2. Écrire un mot (start) à une adresse (DataRegister) : SetPortWord (HW32, DataRegister, Start);
3. Lire un mot (datah) d'une adresse (StatusRegister) : datah = ~GetPortWord (HW32, StatusRegister)

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

registres permettant de piloter par un programme l'ensemble des instruments : en entrée un registre de tests (Status Register) et en sortie un registre de contrôle (Control Register).

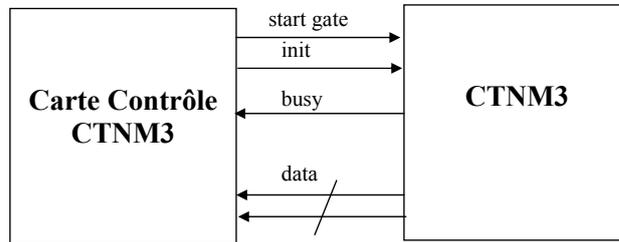


FIG. III.21.: Schéma simplifiée de la carte de contrôle CTNM3

La carte permet à travers une commande “soft” d’initialiser le CTNM3, puis de lancer une acquisition. Elle assure aussi le transfert des données acquises vers le PC. Quand le CTNM3 est en état de “mesure” il délivre un signal de sortie “busy” maintenu à un niveau haut. Ce signal “busy” est utilisé pour empêcher un re-démarrage accidentel du système d’acquisition. Il est aussi utilisé en parallèle pour définir la période d’ouverture de la caméra CCD.

Initialement, une carte commerciale (PC-DiG) assurait à la fois le contrôle et la lecture des données de la caméra-CCD. Nous avons mentionné en bref (cf. III.5.1) qu’une gestion “intelligente” du transfert d’image permet de gagner sur la vitesse de la caméra (cela sera discuté plus tard dans ce chapitre). Malheureusement, la carte PC-DiG ne permet pas une telle gestion non-standard, ceci nous a conduit à ajouter une deuxième carte “maison” assurant cette gestion. La carte PC-DiG sert toujours à assurer le transfert de données de la carte vers le PC.

III.7. Acquisition de données

Un schéma électronique du système de détection est présenté sur la figure III.22. Les données du mDLA, de la caméra CCD et du numériseur sont toutes prises en charge par un programme C++ que nous avons développé. Le programme assure le contrôle “en ligne” de l’expérience ainsi que l’acquisition et le stockage des données. Ce programme gère aussi les données provenant du détecteur d’ions décrit au chapitre II. Le logigramme est présenté sur la figure III.23.

Le programme commence par initialiser toutes les cartes, puis il envoie à chaque carte un signal autorisant le début de l’acquisition. Ensuite il lance le CTNM3 (envoi du signal “start gate”). Le CTNM3 joue le rôle du “maestro” pour synchroniser tous les éléments du système et donc aucun événement ne peut être enregistré avant que le CTNM3 ne se mette en route et ne délivre le signal BUSY=1. Ainsi tous les sous-systèmes sont ouverts pendant une période dite “temps d’ouverture” programmable par le logiciel. Le temps d’ouverture peut être choisi indépendamment de la vitesse de répétition de la caméra (l’élément le plus lent du système). A la fin du temps d’ouverture, un ensemble de critères : la présence d’un temps neutre, d’un temps ion et la présence simultanée d’une image caméra (Transfer Ok) entraîne la décision de transférer les données des cartes vers le PC, dans le cas où les données acquises sont jugées valides. Sinon les (ou certaines) cartes sont re-initialisées, ce qui est plus rapide que le transfert. Le programme envoie ensuite un nouveau signal “start gate” pour démarrer une nouvelle acquisition. Le stockage des données d’un cycle est fait pendant le cycle d’acquisition suivant.

Pendant un cycle d’acquisition le système est indépendant du PC qui, ainsi libéré, est utilisé pour effectuer un pré-traitement des données du cycle précédent. Ce traitement rapide permet de contrôler l’expérience “en ligne” et de visualiser les positions d’impact et les temps d’arrivée des particules et de construire certaines corrélations entre ces grandeurs. C’est aussi pendant ce temps que les données sont enregistrées dans des fichiers *.i03 de 1 MO. La structure de ces fichiers est détaillée dans l’annexe B.

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

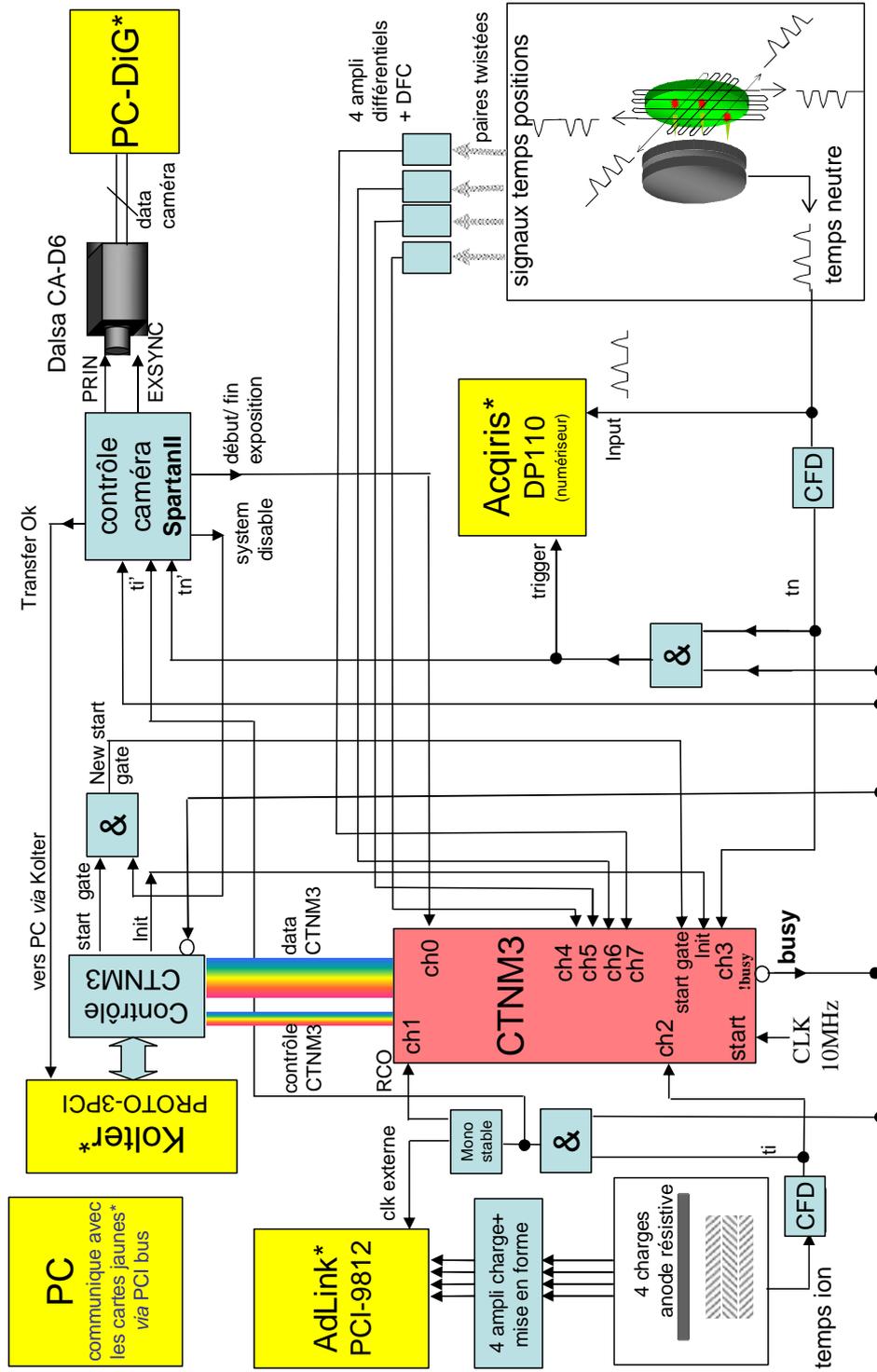


FIG. III.22.: schéma électronique du système de détection.

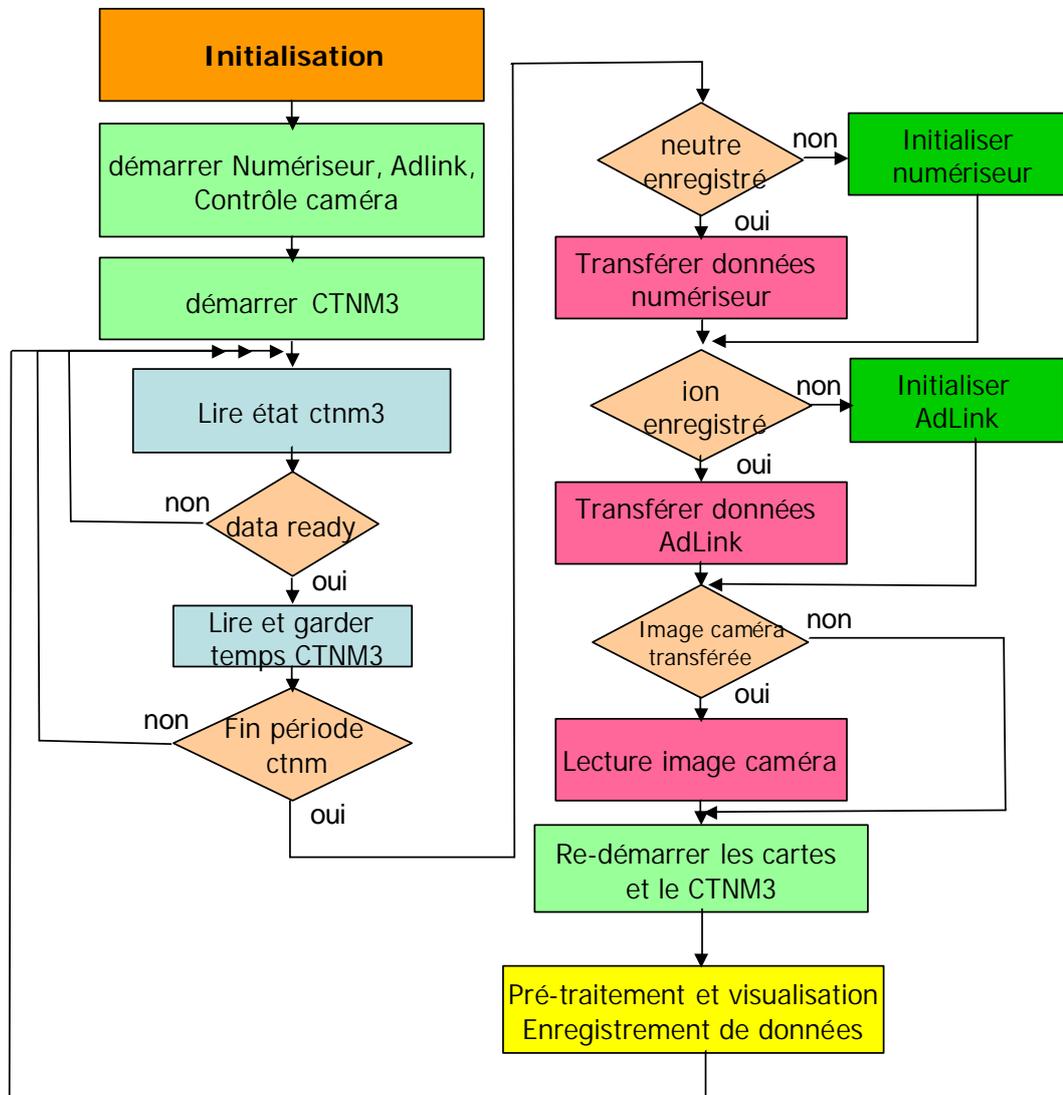


FIG. III.23.: Logigramme du programme d'acquisition.

III.8. Pré-traitement de données

Nous avons développé un deuxième programme appelé “Tahoun¹⁰” dont le but est d’exploiter les données “brutes” provenant de tous les éléments du détecteur (fichiers *.i03) pour déterminer les positions d’impact et les temps d’arrivée des particules. Ceci est réalisé en effectuant la corrélation des positions (précise et sans temps mort) données par la caméra avec les temps (précis et sans temps mort) donnés par le numériseur. Cette corrélation, détaillée dans le paragraphe suivant, est assurée grâce aux informations positions résolues en temps fournies par les lignes à retard.

III.8.1. Corrélation temps-position

Rappelons que le but est de corréler la position des particules donnée par la caméra avec leur temps d’arrivée donné par le numériseur grâce aux informations “temps-position”, certes moins précises, données par les lignes à retard.

Pour expliquer le principe de cette corrélation, considérons le cas où deux particules arrivent sur le détecteur à des temps t_1 et t_2 à deux différents points d’impacts. Soit T la somme du temps nécessaire pour qu’un signal se propage sur toute la longueur de la ligne à retard et du temps mort d’électronique, dans notre cas $T=60$ ns. Suivant la différence des temps d’arrivée $dt = t_2 - t_1$, les signaux temps-positions peuvent se superposer ou se mélanger pendant leur propagation sur les lignes à retard (cf. III.3.8). Examinons les différents cas :

1. $dt = (t_2 - t_1) > T$: les signaux ne se mélangent pas. Le mDLA fournit l’information temps et position pour les deux particules (fig. III.24). Ceci permet de corréler les deux positions mesurées par la caméra avec les temps galettes enregistrés par le numériseur. La résolution spatiale de la caméra étant bien meilleure que celle du mDLA, les positions caméra seront choisies préférentiellement.
2. $dt < T$: Dans ce cas, en fonction de la différence des temps d’arrivée et de la position d’impact relative des deux particules on peut distinguer trois cas :

¹⁰mot arabe = moulin, moulinette

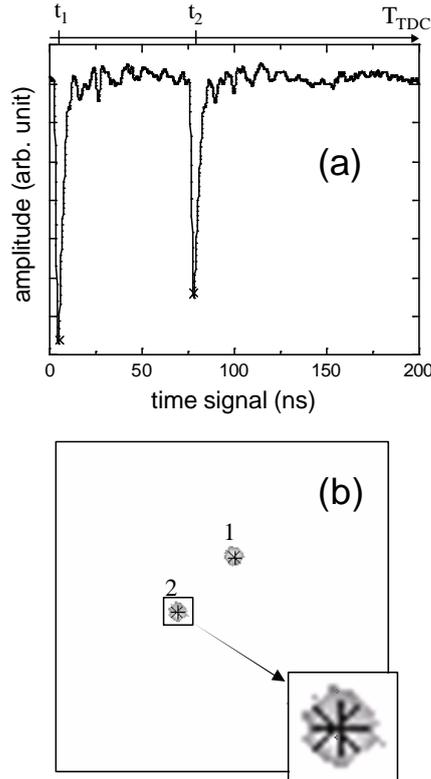


FIG. III.24.: Exemple d'un cas montrant deux impacts éloignés temporellement (a) et spatialement (b), un zoom du spot montre (+) le centroïde du spot trouvé par le soft et (x) la position trouvée par le DLA.

- a) Le mDLA détecte correctement les deux particules, et donc la même logique que celle du cas 1 est appliquée (fig. III.24).
- b) Le mDLA est capable de déterminer le temps d'arrivée et les deux coordonnées (x, y) de la première particule. Par contre, seul le temps d'arrivée de la deuxième particule (avec peut-être une coordonnée) est mesuré. Il est clair que dans ce cas (fig III.25), on peut corrélérer la position donnée par la caméra de la première particule avec celle donnée par le mDLA. Quant à la deuxième particule, on corrèle son temps numériseur (après la corrélation pour la première particule) avec la position caméra restante. Cette corrélation peut être confirmée par la connaissance de la position partielle de la deuxième particule (si elle existe).

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

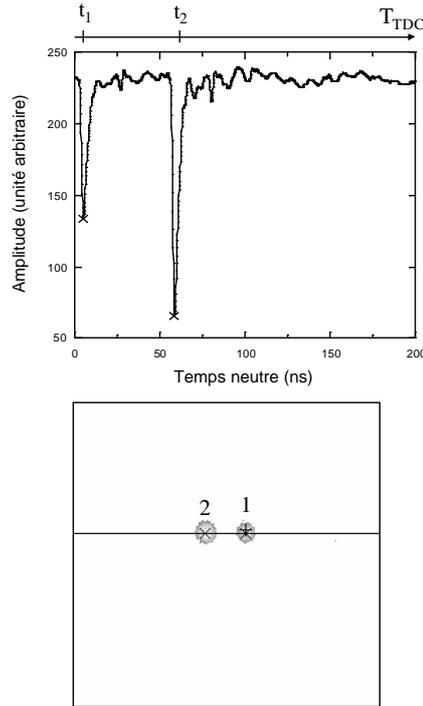


FIG. III.25.: Exemple d'un cas montrant deux impacts. La caméra a enregistré deux spots quand le DLA a enregistré une position complète et une partielle. La corrélation temps-position est toujours assurée dans ce cas.

c) Le mDLA est incapable de détecter la deuxième particule (aussi bien son temps que sa position) alors que les deux informations “position caméra” et “temps numériseur” sont disponibles (fig. III.26), néanmoins le lien n'est pas assuré par le mDLA. Bien que l'on ne puisse pas corréler correctement les temps à leurs positions, l'événement n'est pas perdu. On peut toujours calculer les différences de temps d'arrivée et la position relative ce qui permet de déterminer des grandeurs physiques relatives telles que l'énergie relative des fragments, les angles de dissociation et de diffusion qui sont des principales observables permettant l'analyse de la fragmentation des systèmes que nous étudions (§.II.8.1). D'un autre côté, on peut utiliser les lois de conservation de la physique (les équations de conservation de la quantité de mouvement des fragments neutres et de la particule de recul par exemple) pour confirmer le choix d'une

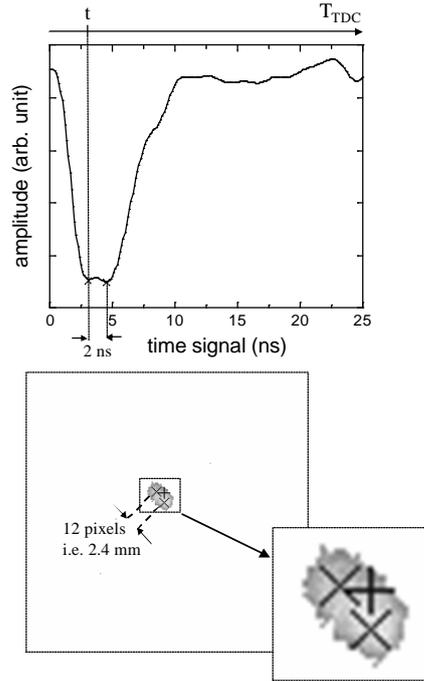


FIG. III.26.: Exemple d'un cas montrant deux impacts séparés temporellement de 2 ns et spatialement de 2,4 mm. La caméra a enregistré deux spots (x) quand le DLA a enregistré (+) une seule position complète.

corrélation temps-position parmi les différentes combinaisons possibles. La corrélation entre l'amplitude des signaux temps et l'intégrale des spots caméra peut aussi résoudre cette ambiguïté de corrélation.

III.8.2. Prise en compte des intégrales des pics vus sur le signal temps et mesurés la caméra

Comme la forme des signaux temporels des galettes est très reproductible, leur amplitude maximale est proportionnelle à leur intégrale. Cette intégrale est une mesure du nombre d'électrons générés par les galettes. Ces électrons génèrent des photons, par impact sur l'écran phosphore, dont le nombre est proportionnel au nombre d'électrons initialement créés. Ces photons sont ensuite amplifiés par un intensificateur d'image. L'intensificateur est constitué

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

de galettes de microcanaux dont le gain fluctue de manière non négligeable. A la sortie de l'intensificateur, les photons sont reçus par la caméra. La mesure de l'intégrale du spot enregistré par la caméra est en effet une mesure de nombre de photons acquis.

L'idéal serait donc d'avoir une relation "linéaire" entre l'intégrale du signal temps et celle du spot de la caméra, autrement dit entre le nombre d'électrons émis par les galettes et le nombre de photons reçus par la caméra. Ceci permet de corrélérer les positions caméra avec les temps numériseur en s'affranchissant du mDLA. La fluctuation du gain de l'intensificateur ajoutée à la fluctuation du gain de l'écran phosphore et du capteur CCD limite cette corrélation.

Pour montrer cette linéarité nous avons tracé l'histogramme de l'amplitude du signal temps en fonction de l'intégrale du spot (fig III.27.a) pour tout les événements correspondant à un spot caméra unique et le temps numériseur correspondant validés par les données corrélés du mDLA. Un deuxième histogramme (fig III.27.b), correspond aux événements où deux spots caméra et deux temps numériseur ont été enregistrés et corrélées par le mDLA. Ce deuxième histogramme montre le rapport de l'amplitude des deux signaux temps en fonction du rapport de l'intégrale des spots vus par la caméra.

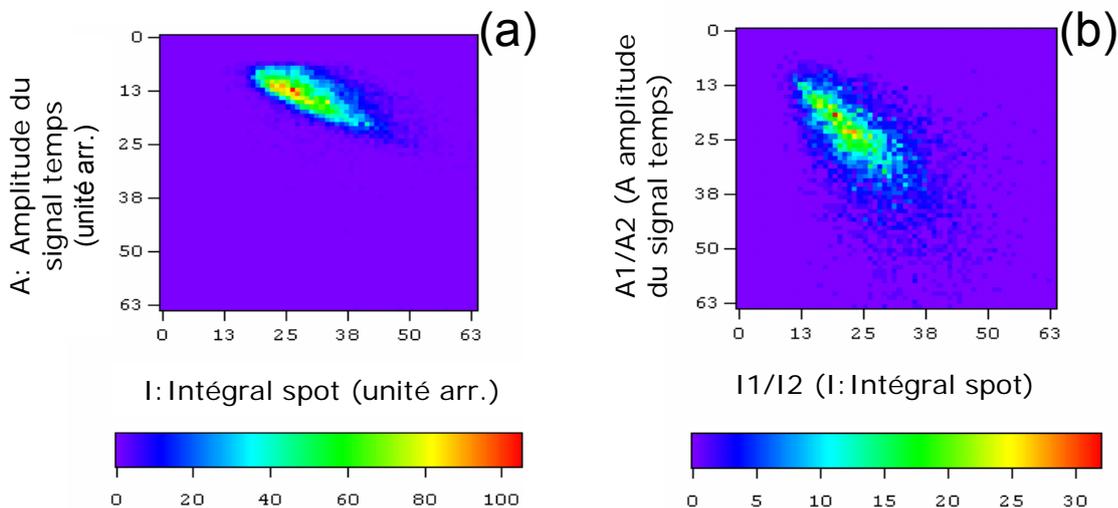


FIG. III.27.: (a) L'histogramme de l'amplitude du signal temps en fonction de l'intégrale du spot vu par la caméra. (b) L'histogramme montre le rapport d'amplitude des signaux temps en fonction du rapport d'intégrale des spots vus par la caméra

Afin d'améliorer la linéarité il faut supprimer l'intensificateur d'image, ce qui impliquerait l'utilisation d'une caméra plus sensible (cf III.5.2).

III.8.3. Limite de séparation temporelle et spatiale

La figure III.26 montre la limite de séparation obtenue par le logiciel que nous avons développé. La forme reproductible des signaux temporels permet d'isoler les impulsions élémentaires lorsqu'elles se superposent. En principe, ceci est possible en recherchant la projection d'un signal temps complexe sur une base d'impulsions élémentaires. Malheureusement, l'amplitude de ces signaux varie beaucoup ce qui complique le problème : par exemple, pour trouver les minima de deux signaux il faut résoudre un problème à trois paramètres (les deux amplitudes des signaux et l'écart entre les minima).

Quand deux particules arrivent avec des différences de temps d'arrivée inférieures à 2 ns le logiciel ne distingue qu'un seul temps (fig III.28). Dans ce cas on corrèle les deux positions obtenues par la caméra avec le même temps.

Quant à la séparation spatiale, le système est capable de séparer deux spots dont les centres sont espacés de 12 pixels soit 2,4 mm sur la surface des galettes.

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

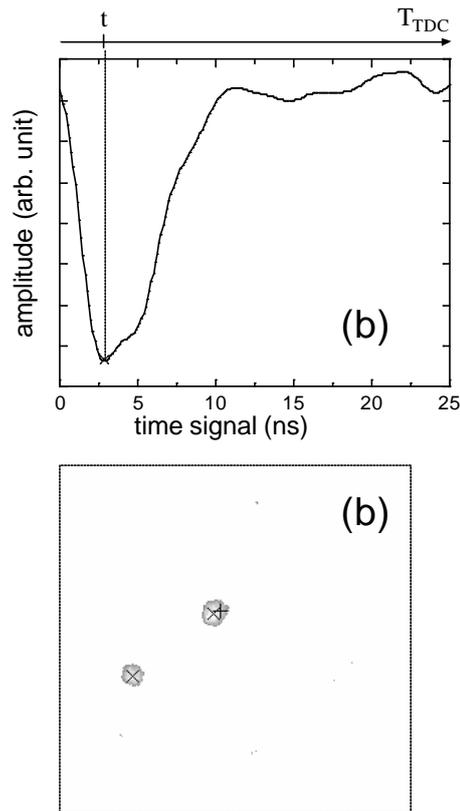


FIG. III.28.: Exemple d'un cas montrant deux impacts séparés temporellement de moins de 2 ns .

Cette limite de séparation se répercute sur l'énergie relative des fragments (Ar arrivant à une énergie cinétique de 4800 eV) par une limite de 0,02 eV dans le cas où les deux particules arrivent simultanément sur le détecteur (limite spatiale), et $2 \cdot 10^{-4}$ eV quand les particules arrivent en même position (limite temporelle).

III.9. Traitement de l'image caméra

L'image acquise par la caméra est transférée par la carte PC-DiG vers la mémoire du PC. Il s'agit d'une image de 256×256 pixels codés sur 8-bits. Ce qui nécessite une allocation mémoire de $256 \times 256 = 65$ k-octets pour stocker l'image. Compte-tenu de cette taille mémoire relativement élevée, du temps de calcul nécessaire, un traitement "en ligne" pendant l'acquisition n'est pas envisageable, ce qui n'est pas un handicap dans nos expériences.

Généralement, sur les 65 k-pixels formant l'image, quelques centaines seulement dépassent le seuil du bruit. Nous pourrions donc ne conserver que leurs coordonnées et leur contenu. Comme de plus les spots s'étalent sur plusieurs dizaines de pixels, ils forment des suites majoritairement adjacentes, ce qui permet de compresser l'information. Pour cela, nous avons écrit une procédure de compression d'image s'appliquant "en ligne" sur les images avant de les stocker.

Le principe de l'algorithme est le suivant : on analyse l'image pixel par pixel. Quand l'intensité d'un pixel est supérieure au seuil on mémorise ce pixel *i.e.* sa position (i, j) et son intensité $P[i][j]$. Pour coder ces informations, on introduit une clé (l'octet de valeur 0). Après cette clé on écrit, systématiquement i, j et $P[i][j]$. Si le pixel est précédé par un pixel voisin $P[i][j-1]$ dont la valeur dépasse aussi le seuil (*i.e.* il a été stocké), l'idée est de gagner la place nécessaire pour enregistrer la position (i, j) du pixel d'intensité $P[i][j]$ car on sait qu'il est à la position "j-1"+1 donc on enregistre sa valeur dans le buffer de sortie.

Cette compression n'introduit aucune perte d'information à la relecture. Celle-ci est réalisée "off line" de la façon suivante :

On analyse l'image "compressée" octet par octet, lorsque la valeur d'un octet vaut zéro (la clé) on sait qu'il est suivi par un pixel *i.e.* "i, j, $P[i][j]$ " et donc on lit ces trois valeurs (trois octets). Ensuite on lit tous les octets qui suivent que l'on attribue à l'intensité des pixels voisins $P[i][j+1]$ sauf si l'octet qui suit vaut zéro (la clé). Dans ce dernier cas on lit les valeurs de "i, j, $P[i][j]$ " et on recommence une deuxième séquence.

Le traitement des images stockées se fait ensuite "hors ligne", cela consiste à :

1. reconnaître et isoler les spots c'est à dire identifier les pixels appartenant au même spot.
2. Calculer le centroïde des spots ainsi identifiés.

III.9.1. Identification des spots :

L'arrivée d'une particule sur le détecteur active plusieurs pixels (un spot) sur la caméra. Le but est de regrouper chaque ensemble de pixels appartenant au même spot. Un spot c'est un ensemble de pixels "éclairés" adjacents dans les deux directions (x, y). On note les cas particuliers suivants :

1. Un spot peut contenir, surtout proche de ses bords, un ou plusieurs pixels dont la valeur est inférieure au seuil.
2. Un spot, trouvé par le critère de la continuité des spots lumineux adjacents, peut être en fait le résultat du chevauchement de deux (voir trois)

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

spots proches par rapport à la taille du spot. Ce cas est d'autant plus fréquent que les taux de comptage sont forts.

3. Un spot peut aussi être simplement dû au bruit (de l'intensificateur d'image par exemple).

Une analyse plus approfondie a été mise au point pour résoudre ces différents cas. Cette analyse consiste à :

- effectuer un premier balayage de l'image pour isoler et dénombrer les spots par le critère de continuité en tenant compte des pixels non-lumineux qui peuvent être à l'intérieur du spot. Simultanément on calcule le centroïde¹¹ des spots trouvés.
- valider le spot si son intégrale est plus grande qu'un certain seuil, sinon il est considéré comme du bruit.
- tracer pour chaque spot son rayon r en fonction de l'angle ϕ (coordonnées polaires, le centroïde étant le centre du repère polaire). L'analyse de cette courbe indique si le spot est simple ou complexe. Deux types d'analyses sont effectués :
 - * Une version "light" est adaptée à l'identification des spots doubles. Elle consiste à trouver le maximum r_{max} et le minimum r_{min} de la courbe $r(\phi)$ (fig. III.29). Si $r_{max}/r_{min} \approx 1$ il s'agit alors d'un spot simple, sinon on a un spot double qu'il faut décomposer en deux. Pour cela, on définit comme limite de séparation la droite tracée entre le centroïde du spot complexe et le point correspondant à r_{min} . Puis, on applique à nouveau le calcul de centroïde aux deux spots ainsi séparés.
 - * Une deuxième version pour les spots "triples" ou de multiplicité supérieure : consiste à analyser tous les maxima et minima et de définir ainsi plusieurs limites de séparation. Il suffit de diviser le spot en n -spots correspondant au nombre de minima trouvés.

III.9.2. Le calcul du centroïde

Il existe plusieurs méthodes de calcul du centroïde. Une première méthode (fig III.30) consiste à limiter le spot par un contour (rectangulaire pour simplifier) le centre du spot est assimilé au centre géométrique du rectangle-contour dont les coordonnées sont données par :

¹¹ discuté dans le paragraphe suivant

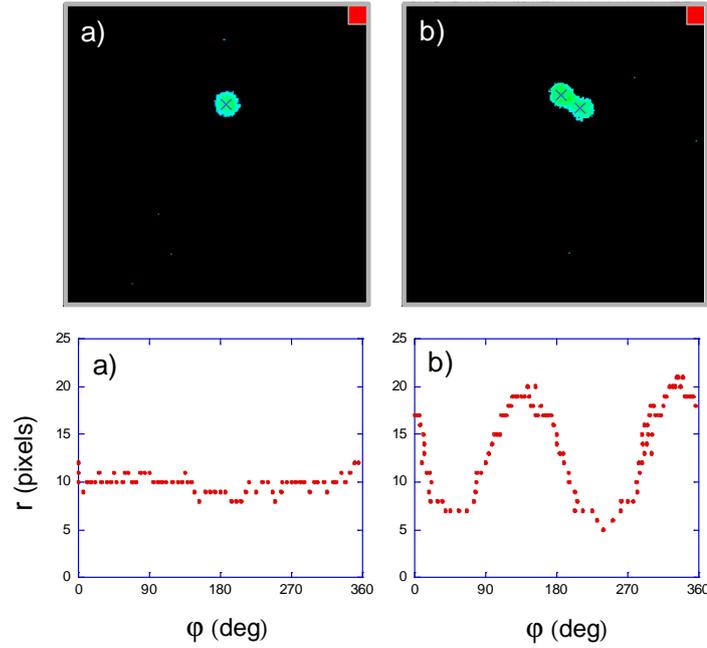


FIG. III.29.: L'image caméra (en haut) et la courbe $r(\varphi)$ correspondant (en bas) pour : (a) un spot simple. (b) un spot double. (×) sont les centroïdes des spots trouvés par cette méthode.

$$X = \frac{X_{max} + X_{min}}{2}, \quad Y = \frac{Y_{max} + Y_{min}}{2}$$

Cette méthode, n'utilisant que la forme géométrique des spots, permet d'atteindre une résolution de 0,5 pixel. Mais elle nécessite des formes quasi-circulaires (voire répétitives). Une méthode plus raffinée consiste à utiliser les valeurs des intensités lumineuses des pixels pour calculer les coordonnées exactes du barycentre de spot. Si on présente l'image de la caméra sous forme matricielle (P_{ij}) dans un repère orthonormé lié aux coordonnées x et y respectivement, l'élément P_{ij} est l'intensité lumineuse du pixel (i, j).

Les coordonnées X, Y du centroïde d'un spot S_n sont alors données par :

$$X = \frac{\sum_{i \in S_n} i \sum_{j \in S_n} P_{ij}}{\sum_{i, j \in S_n} P_{ij}}, \quad Y = \frac{\sum_{j \in S_n} j \sum_{i \in S_n} P_{ij}}{\sum_{i, j \in S_n} P_{ij}}$$

La résolution obtenue avec cette méthode dépend des intensités des spots (saturation) mais dans tous les cas elle reste meilleure que 0,5 pixel. La taille d'un pixel rapportée sur la surface de détection est de $200 \times 200 \mu\text{m}^2$. Par conséquent, la résolution obtenue est meilleure que $100 \mu\text{m}$. La figure

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

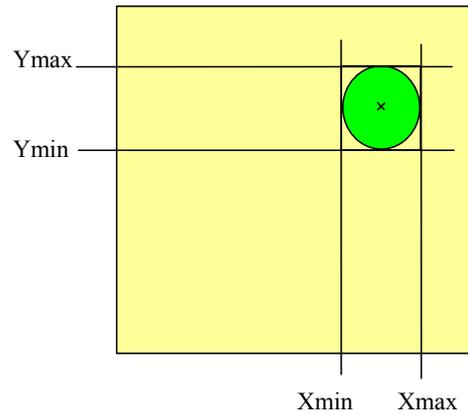


FIG. III.30.: Centroïde simple

III.31 montre l'image d'un faisceau d'ions Ar^+ d'énergie 2,4 keV reçu sur le détecteur après la traversée d'une grille de pas $300 \mu\text{m}$. Le fait qu'on puisse observer des structures espacées de $300 \mu\text{m}$ prouve que la résolution spatiale est largement meilleure que $300 \mu\text{m}$. Ces structures sont dues à la focalisation des ions par la tension entre la grille et les galettes de micro-canaux.

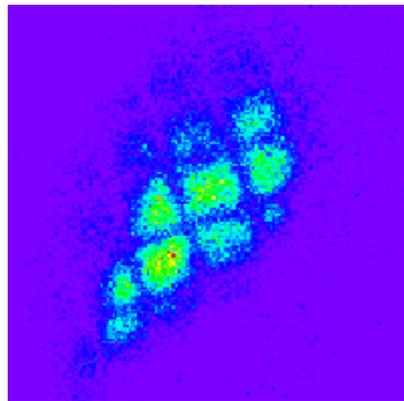


FIG. III.31.: Image d'un faisceau d'ions Ar^+ d'énergie de 2,4 keV vue à travers une grille de $300 \mu\text{m}$

III.10. Séquence d'acquisition : diagramme en temps

La gestion de la caméra CCD est l'élément le plus délicat dans la séquence d'acquisition. En effet, la caméra étant l'élément le plus lent, elle impose sa vitesse au système d'acquisition. Ainsi le système est limité par la vitesse de la caméra (1 kHz) si on la fait fonctionner d'une manière "standard". Dans le paragraphe suivant nous montrons qu'une gestion adaptée à notre expérience a permis de "dépasser" les contraintes imposées par la caméra.

III.10.1. Gestion de la caméra

Deux signaux de contrôle (PRIN, EXSYNC) permettent de commander la caméra : le "reset" d'image (des pixels photosensibles), le début et la fin de l'exposition et finalement le transfert d'image. La figure III.32 montre le diagramme temporel des différents signaux de la caméra. PRIN doit être maintenu au niveau bas au moins pendant $6,5 \mu\text{s}$ ce qui représente le temps nécessaire pour réinitialiser (reset) les pixels photosensibles de la caméra. Sa remontée au niveau haut démarre l'exposition de la caméra. Le passage au niveau bas de EXSYNC provoque la fin d'exposition et le début du transfert. Celui-ci se fait en deux étapes. La première est le transfert rapide (environ $60 \mu\text{s}$) des pixels sensibles aux pixels aveugles (cf III.5.1), étape pendant laquelle la caméra est bloquée. Dans une seconde étape "lente", les charges des pixels aveugles sont transférées en parallèle vers quatre convertisseurs analogiques - numériques et leur codage sur 8 bits est stocké dans la carte d'acquisition PCI. La durée importante (1ms) de ce transfert conditionne le taux de répétition maximal de la caméra.

En effet, l'intervalle du temps entre deux *débuts* d'images doit être supérieur au temps de transfert : on ne peut transférer les données de la deuxième image avant que celles de la première ne l'aient été. Une utilisation standard consiste à transférer systématiquement toutes les images acquises sans examiner leur contenu. Ce mode limite la fréquence de l'acquisition d'image à 1 kHz.

La particularité de notre système permet de dépasser cette limite imposée par le temps de transfert. L'idée est basée sur le fait que l'on peut, par une voie électronique externe, savoir si l'image contient une information utile ou pas. Dans le cas où l'image ne contient pas de donnée valable on réinitialise

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

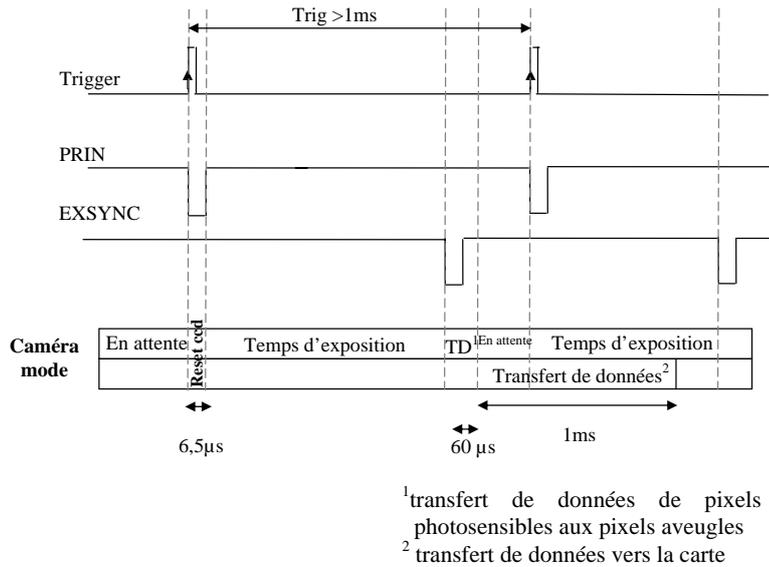


FIG. III.32.: Signaux de contrôle de la caméra

la caméra (étape ne nécessite que $7 \mu\text{s}$) ce qui permet de relancer immédiatement l'acquisition sans perdre la milliseconde nécessaire au transfert d'image.

La validation du critère de transfert provoque le transfert de l'image. Pendant le temps de transfert (1 ms) le système est maintenu en état d'attente.

Nous avons réalisé le module de contrôle avec un FPGA ¹² Xilinx Spartan II [16]. Le module (fig. III.33) génère en fonction de ses entrées une combinaison appropriée des signaux PRIN et EXSYNC (fig. III.35). La sortie "system disable" indique que la caméra est en train de transférer. Elle est donc utilisée, comme son nom l'indique, pour empêcher le système de démarrer une nouvelle acquisition avant que la caméra ne soit prête.

Les signaux de temps d'arrivée des particules neutres (t_n) et de recul (t_i) constituent le critère de transfert. Ce critère peut être choisi avec une grande flexibilité (en changeant des switches) comme une combinaison logique indiquant qu'une particule neutre est arrivée sur le détecteur des neutres et/ou une particule ionique est arrivée sur le détecteur des ions pendant la fenêtre d'exposition en cours. La possibilité de reprogrammer le FPGA rend le choix

¹²Un FPGA (Field-Programmable Gate Array) est un circuit intégré qui peut être reprogrammé après sa fabrication

III.10. Séquence d'acquisition : diagramme en temps

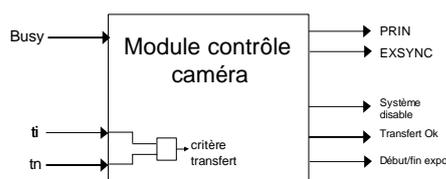


FIG. III.33.: Schéma de principe du module de contrôle de la caméra

du critère de transfert très modulaire. Ainsi le critère de transfert peut être choisi d'une façon encore plus complexe : comme par exemple l'arrivée de particules neutres successives dans un intervalle de temps programmable.

Un signal (début/fin expo) indiquant le début et la fin de chaque fenêtre d'exposition est envoyé sur la voie 0 du CTNM3. Ce qui permet de contrôler la synchronisation de la caméra avec le "maître" du système (le CTNM3). Le signal (transfert Ok) est envoyé sur la carte Kolter pour indiquer au programme s'il y a eu un transfert d'image.

III.10.2. Gestion du système : diagramme en temps

La figure III.35 montre le diagramme en temps du système. Le CTNM3 est démarré par le signal «new start gate» qui est le AND entre le "start gate" envoyé par le PC et le «system disable» qui sert à bloquer le système pendant le transfert d'une image. Comme son nom l'indique le signal "new start gate" ne déclenche rien, mais autorise la prise en compte du signal "start ctnm3". Ce signal permet de synchroniser le système dans le cas des expériences "chopées", mais dans notre cas ce signal est déclenché par une horloge 10 MHz. La mise en marche du CTNM3 fait basculer, pendant le temps d'ouverture, le signal Busy au niveau 1¹³. Ce dernier fait basculer start gate (new start gate) au niveau 0 (fig. III.34). Le Busy est envoyé aux trois sous-systèmes suivants :

- 1- A la carte de contrôle caméra : le signal PRIN est généré pour assurer

¹³Busy démarre avec l'acquisition et ne s'arrête que lorsque le buffer de sortie du CTNM3 est vidé (lecture du End of Time).

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

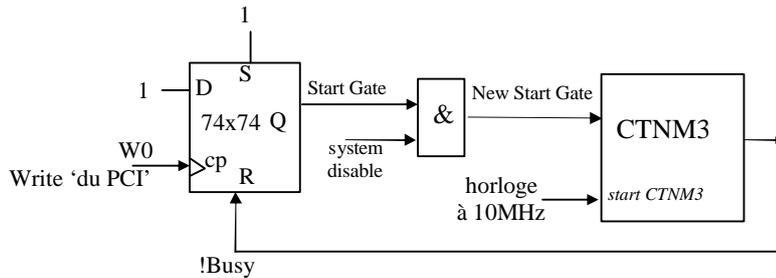


FIG. III.34.: Diagramme de démarrage du CTNM3

l'ouverture de la caméra pendant n-intervalles¹⁴ de durée (4)¹⁵.

2- Au numériseur : le trigger du numériseur est le AND entre le Busy et le temps d'arrivée neutre "tn".

3- A la carte AdLinK : le trigger de la carte AdLink est le AND entre le Busy et le temps d'arrivée ion "ti".

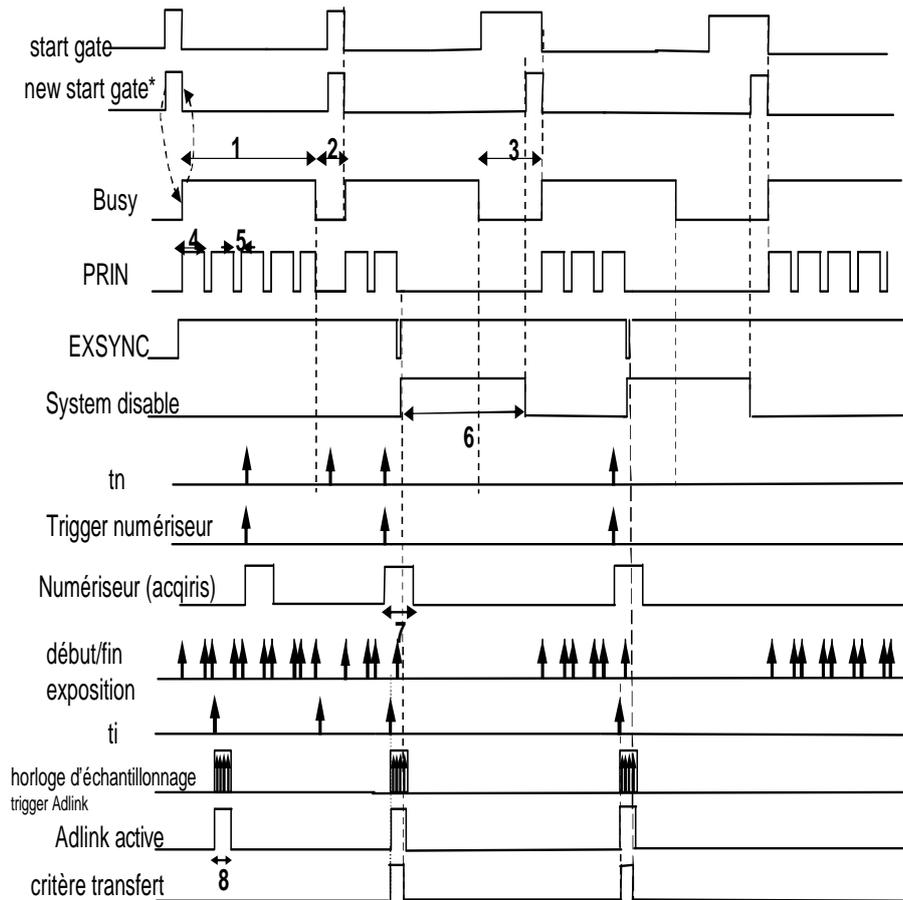
Le passage du signal « critère de transfert » au niveau 1 provoque la génération du signal EXSYNC à la fin de la période d'ouverture caméra (4) en cours. Ce qui démarre le transfert de l'image. Pendant le transfert, le signal «system disable» est maintenu au niveau 0. Le critère de transfert, tel qu'il est présenté, passe au niveau 1 quand un temps ion t_i et un temps neutre t_n arrivent dans le même intervalle d'exposition caméra(4).

Le signal début/fin exposition est généré par le front montant et descendant du PRIN. Il est envoyé sur une des voies du CNTM3 afin de synchroniser l'image transférée avec les données CTNM3 correspondantes (les temps enregistrés pendant l'intervalle d'exposition de l'image transférée).

¹⁴Lorsque la caméra est en exposition pendant toute la fenêtre d'ouverture du système (1) (2 ms), l'image contient beaucoup de spots parasites. Les particules provenant du même événement physique arrivent dans un intervalle de temps de quelques centaines de nanosecondes. Ceci permet de réduire le temps d'exposition de la caméra (une centaine de microsecondes) sans perte de données physiques. Dans l'optique de réduire le nombre de spots parasites, nous avons choisi d'ouvrir la caméra pendant n-intervalles, chacun de durée de $100\mu s$, couvrant la fenêtre (1). A la fin de chaque intervalle on teste le critère de transfert : s'il est validé on interrompte l'acquisition en ordonnant le transfert de l'image caméra ; sinon on re-initialise les pixels photosensibles de la caméra et on relance immédiatement un nouvel intervalle d'exposition caméra. Cette gestion a permis de réduire efficacement le nombre de spots parasites et d'alléger la tâche de la corrélation temps-position du programme de pré-traitement Tahoun.

¹⁵voir les numéros en bas de la figure III.35.

III.10. Séquence d'acquisition : diagramme en temps



- (1) fenêtre d'ouverture du système (en particulier du CTNM)
 - (2) temps pour transférer et re- armer les cartes (acqiris, Ad-link)
 - (4) temps d'ouverture de la caméra- CCD
 - (5) temps pour initialiser les pixels de la CCD
 - (6) le transfert de données caméra est en cours, le système est donc bloqué (interdit de démarrer surtout en (3)).
 - (7) fenêtre d'ouverture du numériseur
 - (8) fenêtre d'ouverture de Ad-Link, le trigger est un horloge généré par la carte monostable à 10 MHz et de durée de 14 μ s
- * new start gate ne déclenche rien, mais autorise la prise en compte du signal "start ctm3". Ce dernier est une horloge à 10 MHz (non présenté sur le diagramme).

FIG. III.35.: Diagramme en temps du système d'acquisition

III.10.3. Cadence de l'acquisition

La cadence du système dépend fortement du taux d'événements physiques à enregistrer. Nous appelons ici un événement l'arrivée d'une particule neutre et/ou une particule ionique selon le critère du transfert choisi dans le module contrôle caméra. Dans le cas de taux d'événements relativement élevés

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

(>1000 événements/s) un transfert d'image de la caméra est effectué pour chaque fenêtre d'acquisition. Par conséquent, la cadence du système est limitée par le temps nécessaire pour transférer l'image de la caméra (1 kHz). La gestion spécifique de la caméra devient intéressante pour les faibles taux de comptage (<1000 événement/s). Dans ce cas le système est redémarrable à une cadence supérieure à la fréquence nominale de la caméra : par exemple, pour des taux de 100 événements/s, on a en moyenne 1 événement toutes les 10 ms et donc un transfert d'image toutes les 10 ms. Étant donné que la fenêtre d'ouverture de la caméra est de 100 μ s (voir fig.III.35), le système peut démarrer, en attente d'un événement validé, environ 100 fois pendant les 10 ms soit une cadence de l'ordre de 10 kHz.

III.11. Tests & performances

Dans le but de montrer les performances du nouveau détecteur et sa capacité à détecter les impacts multiples, une série d'expériences de test a été menée sur le système d'échange de charge dissociatif :



La description de l'expérience est détaillée au chapitre II : les deux fragments neutres sont reçus sur le détecteur "sans temps mort" alors que l'ion de recul, extrait à l'aide d'un puits électrostatique, est détecté sur un détecteur à anode résistive. On ne s'intéressera dans ce paragraphe qu'aux performances du détecteur sans temps mort.

Nous comparerons les résultats obtenus par le nouveau détecteur avec ceux enregistrés par le système à lignes à retard (DLA) seul. En fait, le DLA n'est rien d'autre que les lignes à retard que contient le nouveau détecteur. Cette comparaison est possible grâce au programme de pré-traitement qui est capable de traiter, les mêmes données brutes soit en fonctionnement normal (en exploitant toutes les informations disponibles) soit en mode "ligne à retard" *i.e.* en ne considérant que les informations provenant des lignes à retard et en ignorant les autres informations (caméra, numériseur). Le traitement des données brutes avec ces deux modes permet de comparer certaines distributions de grandeurs physiques et donc de mettre en évidence le gain apporté par le nouveau détecteur. Cette comparaison est significative puisque il s'agit des *mêmes* données brutes traitées à l'entrée du programme de pré-traitement.

Le temps mort : Sur la figure III.36 on a représenté la différence de temps d'arrivée des deux fragments $\bar{\text{Ar}}$ rapides sur le détecteur pour les deux modes de fonctionnement : le "DLA seul" et le "nouveau détecteur". Un fragment est considéré détecté si son temps d'arrivée et sa position d'impact sont correctement mesurés. Dans le cas du DLA, aucun événement n'est enregistré avec une différence de temps d'arrivée inférieure à 50 ns alors que, avec le nouveau détecteur, la distribution s'étend jusqu'à $\Delta t=0$ ns démontrant l'absence de temps mort.

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

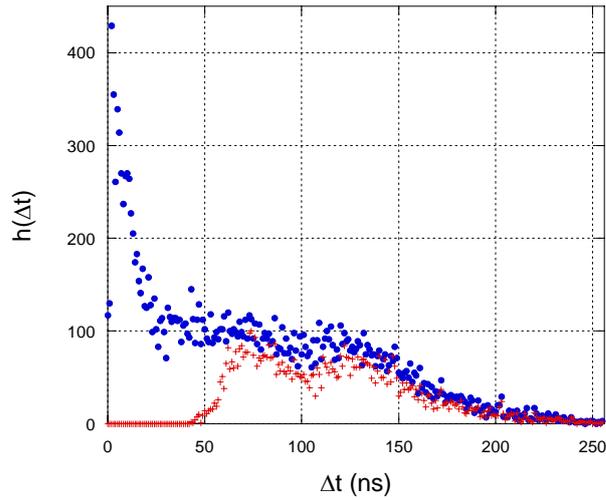


FIG. III.36.: Distributions de la différence de temps d'arrivée des deux fragments \bar{A}_r obtenues avec les deux systèmes de détection : les lignes à retard seules et le détecteur sans temps mort

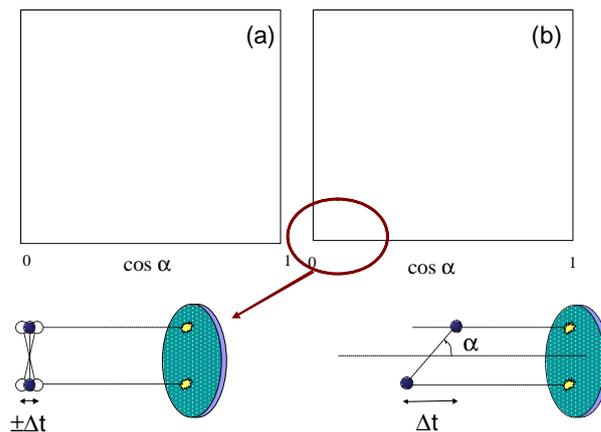


FIG. III.37.: Distribution de l'intensité des fragments \bar{A}_r détectés en coïncidence en fonction de l'angle α entre l'axe de dissociation des fragments et l'axe d'incidence. (a) avec le nouveau détecteur, (b) avec le DLA seul.

Distribution angulaire : Nous pouvons constater l'amélioration sur la figure III.37 apportée sur la mesure de la distribution angulaire en fonction de l'angle α entre l'axe de dissociation des fragments et l'axe d'incidence. Contrairement à celle obtenue avec le nouveau détecteur, la distribution obtenue avec le DLA présente un trou pour les angles $\alpha \approx 90$ degrés. En fait, cette

configuration angulaire correspond à des particules qui arrivent en même temps sur le détecteur, ainsi elles ne sont pas détectées à cause du temps mort du DLA. En utilisant le nouveau détecteur nous “récupérons” ainsi des configurations angulaires qu’on aurait perdues avec le DLA.

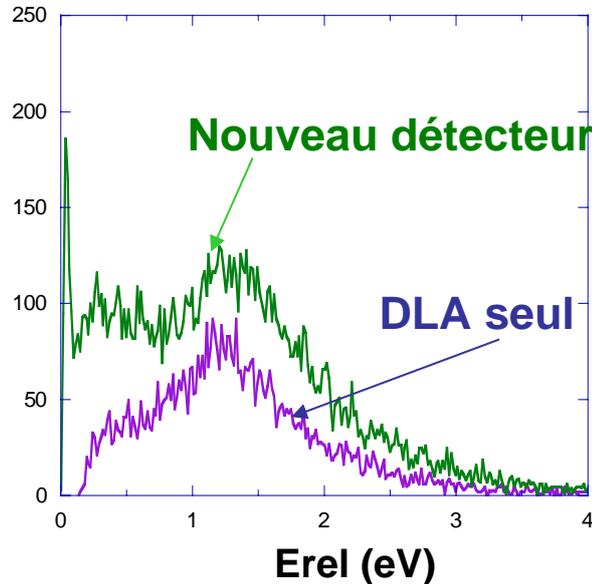


FIG. III.38.: Distribution de l'énergie cinétique relative des fragments

Energie cinétique relative : Une troisième grandeur perturbée par le temps mort est l'énergie cinétique relative E_{rel} des deux fragments. Les fragments ayant une faible E_{rel} vont atteindre le détecteur pendant un intervalle de temps assez bref. Elles risquent ainsi d'être perdues à cause du temps mort, comme c'est le cas pour la distribution de E_{rel} obtenue avec le DLA (fig.III.38). Sur cette figure on peut voir, outre la présence d'un trou à faible E_{rel} dans la distribution associée au DLA, une différence d'intensité entre les deux distributions, et ce même à grands E_{rel} en faveur de celle obtenue avec le nouveau détecteur. Ceci peut être expliqué par la perte d'événements pour lesquels les particules arrivent parallèlement au détecteur ($\alpha \approx 90$ degrés) (fig.III.39).

Distribution $I(E_{rel}, \alpha)$: La section efficace doublement différentielle en angle α et en énergie cinétique relative des fragments E_{rel} (fig.III.39) montre d'une

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

façon très pertinente, les améliorations apportées par le nouveau détecteur sur les deux aspects énergétique et angulaire. On peut constater l'absence de deux régions, à petit E_{rel} et pour $\alpha \approx 90^\circ$, sur la section obtenue avec le DLA par rapport à celle obtenue par le nouveau détecteur.

Ceci montre que l'utilisation d'un détecteur avec temps mort ne permet évidemment pas d'obtenir des distributions décrivant la fragmentation du système étudié. Mais surtout qu'il n'est pas possible sans détecteur à temps mort nul de connaître *a priori* la position et l'ampleur des déficits que présentent les distributions des grandeurs physiques mesurées. Par exemple, on voit bien sur la figure III.38 qu'avec la distribution en E_{rel} donnée par le DLA seul, on ne peut pas connaître les pertes d'intensités des composantes à haute et basse énergies dues au temps mort sans avoir la distribution angulaire complète de la fragmentation que donne le détecteur à temps mort nul.

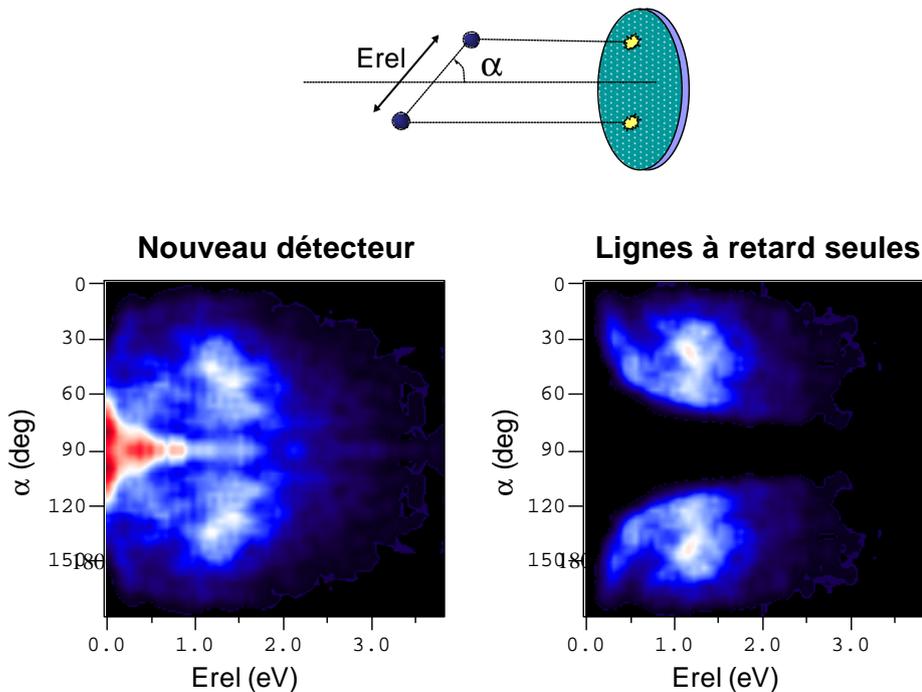


FIG. III.39.: Section efficace doublement différentielle en angle α et en énergie cinétique relative des fragments E_{rel}

Conclusion

Nous avons développé un détecteur, basé sur des galettes de microcanaux, sensible en temps et en position et *sans temps mort*. Les performances du détecteur ont été testées et en particulier la propriété de “zéro temps mort” a été prouvée. Les résolutions spatiale et temporelle sont, respectivement, de 100 μm et 100 ps.

Ce détecteur a été utilisé dans l'étude de l'échange de charge dissociatif Ar_n^+ sur Ar ($n = 2, 3$) et de la fragmentation induite par collision de Ar_n^+ sur Ar. Cette étude est présentée dans le chapitre suivant.

III. Détecteur multi-particules sans temps mort

BIBLIOGRAPHIE

- [1] I. M. Ismail, M. Barat, J.C. Brenot, J. A. Fayeton, V. Lepère and Y. J. Picard . Rev. Sci. Instrum. 76, 043304 (2005)
- [2] Joseph Ladislav Wiza, Nucl. Instrum. and Meth., 164, 587- 601 (1979)
- [3] <http://www.burle.com/longlifedet.htm>
- [4] http://ipnweb.in2p3.fr/activitech/frame_actech.html
- [5] <http://www.acqiris.com/Products/Digitizers/index.jsp?ptid=2&ProductId=200002&OpenProductFamilyId=0>
- [6] M. Barat *et al.*, RSI. 71, 2050 (2000)
- [7] B. Brehm *et al.*, Meas. Sci. Technol. 6. 953 (1995)
- [8] B. Deconihout *et al.*, RSI. 73. 1734 (2002)
- [9] D.M. Lee, S.E. Sobottka, H.A. Thiessen, Nucl. Instr. and Meth. 120, 153-156 (1974)
- [10] Horst Keller, Gstar Klingelhfer, and Egbert Kankeleit, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 258, 221 (1987).
- [11] R. Dörner, H. Khemliche, M.H. Prior, C.L. Cocke, J.A. Gray, R.E Olson, V. Mergel, J. Ullrich and H. Schmidt-Böcking, Phys. Rev. Lett. 77, 4520 (1996)

Bibliographie

- [12] O. Jagutzki, V. Mergel, K. Ullmann-Pfleger, L. Spielberger, U. Spillmann, R. Dörner, H. Schmidt-Böcking, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 477, 244-249 (2002)
- [13] Ludovic Renaud, Thèse de Doctorat, Université de Rouen (2001)
- [14] <http://www.pci-card.com/>
- [15] <http://www.proxitronic.de/>
- [16] <http://www.xilinx.com/>

CHAPITRE

IV

Collision $\text{Ar}_n^+ / \text{Ar}$

Sommaire

IV.1.Énergie interne Ar_2^+	130
IV.2.Énergie interne de Ar_3^+	134
IV.3.Collision $\text{Ar}_2^+ / \text{Ar}$	134
IV.4.Collision $\text{Ar}_3^+ / \text{Ar}$	151
IV.5.Conclusion	167

Dans ce chapitre nous présentons les résultats expérimentaux de la collision $\text{Ar}_n^+ + \text{Ar}$, $n = 2, 3$. Toutes les voies de réaction sont étudiées.

Rappel : les agrégats sont produits par une détente adiabatique d'argon à travers une buse de 20 microns refroidie à l'azote liquide. La température de la buse a été maintenue à 170 K pendant toutes les expériences. La pression de stagnation p_0 est un paramètre important qui conditionne la taille des agrégats neutres produits. Ces agrégats sont ensuite ionisés par impact d'électrons d'énergie 70 eV, accélérés à une tension de 2,4 keV, et sélectionnés en masse. Ils sont enfin ré-accelérés à une tension de 4,8 keV avant d'entrer en collision avec une cible d'argon atomique produit par un jet supersonique.

IV.1. Énergie interne Ar_2^+

L'énergie interne des agrégats Ar_n^+ joue un rôle déterminant dans les deux processus de fragmentation : fragmentation induite par collision (CID) et échange de charge dissociative (DCT). Cette énergie interne peut être soit sous forme d'énergie ro-vibrationnelle de l'état fondamental soit sous forme électronique et rovibrationnelle dans un état métastable¹.

IV.1.1. Source de Ar_2^+

Il existe *a priori* deux sources susceptibles de former Ar_2^+ par impact électronique à partir d'un agrégat d'argon neutre .

1. Soit par ionisation directe d'un Ar_2 : Whitaker *et al.* [1] ont montré que les Ar_2^+ formés par ionisation verticale sont peuplés non seulement dans l'état fondamental avec une énergie rovibrationnelle proche de la limite de dissociation, mais aussi dans l'état électronique métastable II(1/2)u (fig. IV.1).
2. Soit par ionisation d'un agrégat de masse supérieure Ar_m suivie par l'évaporation de $(m - 2)$ atomes, ce qui a pour effet de diminuer l'énergie interne de l'ion et de produire des Ar_2^+ ayant une énergie interne d'autant plus faible que m est grand.

¹on appelle état métastable un état dont la durée de vie $>10^{-7}$ s

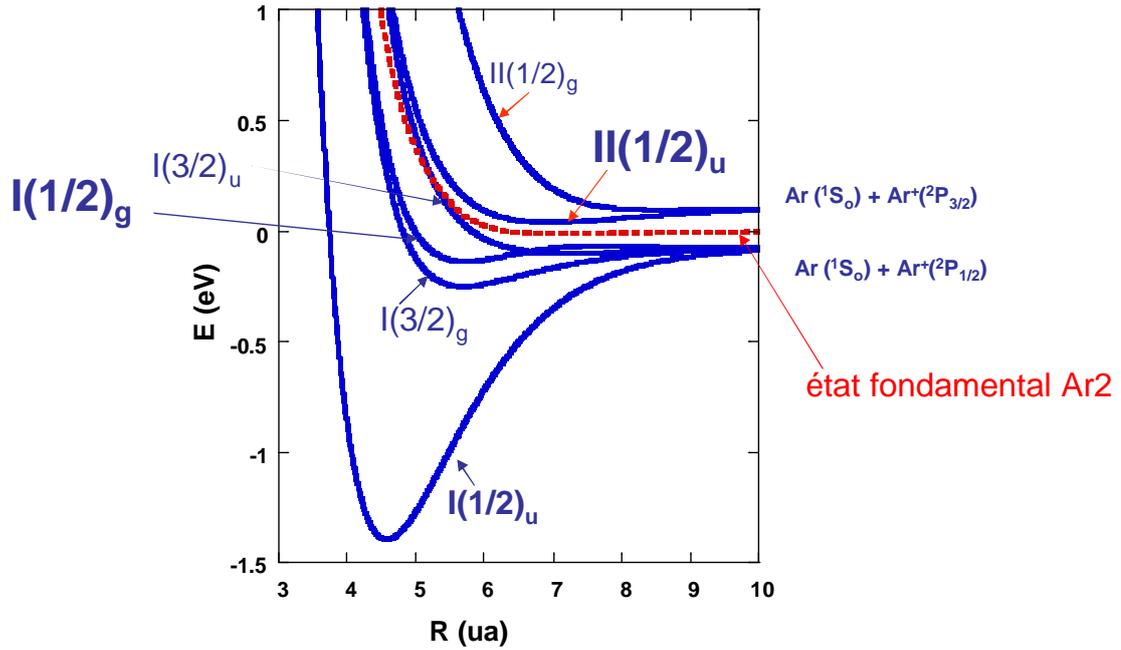


FIG. IV.1.: Courbes d'énergie potentielle de Ar_2 (pointillé) dans son état fondamental et des six premiers états électroniques de Ar_2^+ . Le potentiel de Ar_2 est décalé de 15,8 eV [14].

D'autre part, Chui *et al.* ont examiné l'excitation vibrationnelle de Ar_2^+ dans une expérience de photodissociation [2]. Ils en ont déduit que cette excitation dépend fortement des conditions d'ionisation des agrégats à la source, notamment de la distance entre la buse (sortie du jet supersonique) et le point d'ionisation par impact électronique. Une étude antérieure de notre groupe [3] menée sur la fragmentation induite par collision de Ar_n^+ sur He, avait mis en évidence la présence de Ar_2^+ «chaud» avec une énergie interne proche de la limite de dissociation (1 eV). Toutefois, cette information n'exclut pas la coformation de Ar_2^+ «froid» : les sections efficaces de CID pour les Ar_2^+ chauds (états vibrationnels à la limite de dissociation) plus importantes que celle de Ar_2^+ froid, pouvaient expliquer l'absence de la signature de Ar_2^+ « froid » dans les résultats obtenus.

IV.1.2. Ar_2^+ Métastable

La dissociation uni-moléculaire de Ar_2^+ a été observée depuis de nombreuses années [4, 5, 6, 7, 8, 9] dans des expériences de spectrométrie de masse, indiquant une durée de vie de cet état de l'ordre de quelques μs . L'existence d'un tel état métastable dans Ar_2^+ a été démontrée théoriquement par Whitaker *et al.* [6]. De nombreuses études ont été menées afin de caractériser cet état métastable (origine, durée de vie, production). La durée de vie de l'état métastable $\text{II}(1/2)_u$ a été estimée dans un intervalle de temps variant de quelques $10\mu\text{s}$ à quelques $100\mu\text{s}$. Dans notre expérience le temps entre la formation de Ar_2^+ et le point de collision est de $20\mu\text{s}$, ce qui indique que nous pourrions avoir une contribution de métastables dans le faisceau Ar_2^+ .

Stephan *et al.* [4, 5] et plus tard Fedor *et al.* [8, 9] ont mesuré pour une fenêtre temporelle de $7\mu\text{s}$ à $13\mu\text{s}$ le taux de dissociation uni-moléculaire $I(\text{Ar}^+/\text{Ar}_2^+) = 2 \cdot 10^{-4}$. D'autre part, Stace *et al.* [7] ont trouvé que le taux d'ions métastables détectés augmente proportionnellement avec la pression de stagnation du jet supersonique à partir d'un certain seuil. Ils ont interprété ce résultat par une formation de Ar_2^+ métastable à partir des gros agrégats. Ces mesures étaient en contradiction avec l'interprétation de Fedor *et al.* qui considèrent que le principal mécanisme de formation de métastable est l'ionisation directe de Ar_2 . Chiu *et al.* [2] après avoir déterminé l'énergie interne de Ar_2^+ dans l'état fondamental par photofragmentation ont trouvé qu'un taux de Ar_2^+ métastable de 35% était nécessaire pour reproduire les sections efficaces de dissociation induite par collision de Ar_2^+ au seuil.

Avec le spectromètre "Arc en Ciel" nous avons mesuré [10] le temps de vie de Ar_2^+ métastable produit avec une source similaire à la notre (taille de la buse, distance buse-écorceur, énergie des électrons). La figure IV.2 montre l'évolution du temps de vie avec la taille moyenne des agrégats neutres. Elle varie de 60 à $75\mu\text{s}$ avec les conditions de source. Alors que le taux d'ions métastables varie de 20 à 25% (fig. IV.3).

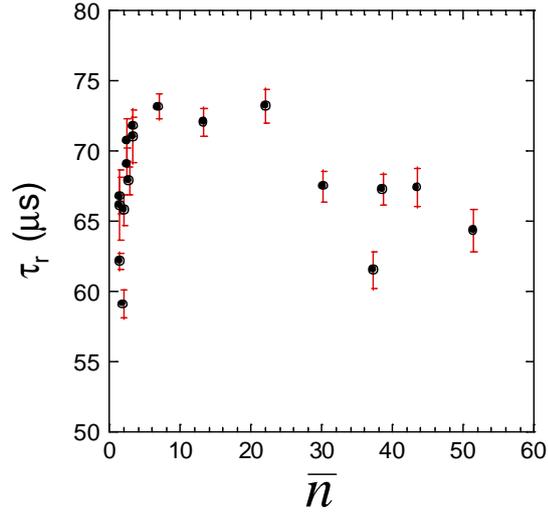


FIG. IV.2.: Evolution du temps de vie de Ar_2^+ métastable avec la taille moyenne des agrégats neutres.

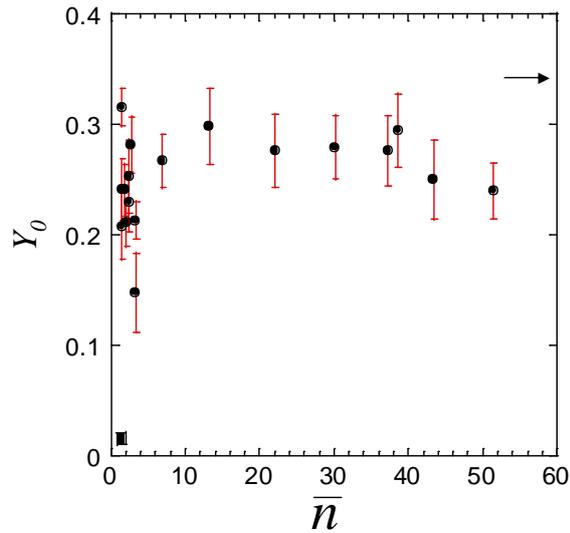


FIG. IV.3.: Evolution du taux de Ar_2^+ métastable avec la taille moyenne des agrégats neutres parents.

Pour conclure, notre faisceau de Ar_2^+ est constitué *a priori* suivant les conditions de source (pression de stagnation) de :

1. Ar_2^+ avec une grande excitation rovibrationnelle (ionisation directe).

IV. Collision Ar_n^+/Ar

2. Ar_2^+ produit par cascades d'évaporations donc faiblement excité rovibrationnellement.
3. Une partie de Ar_2^+ dans un état électronique métastable $\text{II}(1/2)u$.

IV.2. Énergie interne de Ar_3^+

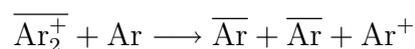
L'état fondamental de Ar_3^+ a une forme symétrique linéaire (appelée L) avec 0,5 eV d'énergie de liaison entre l'atome « coeur » et chacun des atomes périphériques. La charge est répartie sur les trois atomes : 50% sur le coeur et 25% sur chacun des atomes périphériques. Néanmoins, la surface de potentiel (PES) présente un deuxième minimum local à 120 meV au dessus de la forme L. Cette configuration correspond à un coeur Ar_2^+ fortement lié (1,2 eV) et un atome périphérique Ar faiblement lié (0,2 eV) (fig. IV.4). L'énergie interne de Ar_3^+ ne peut donc jamais excéder 200 meV [11, 12, 13].

Dans nos conditions expérimentales, on forme *au moins* 50% de Ar_3^+ dans la forme T. En effet, des expériences antérieures [3] de fragmentation induite par collision de Ar_3^+ sur He ont montré que la forme T est responsable du mécanisme de fragmentation de type « diatome »², alors que les deux formes T et L participent au mécanisme de fragmentation « direct ». De la proportion des deux mécanismes de fragmentation observée, Barat *et al.* avaient conclu qu'*au moins* 50% de Ar_3^+ est produit sous la forme T ou plus exactement sous forme d'un dimère chargé et d'un atome faiblement lié.

IV.3. Collision $\text{Ar}_2^+ / \text{Ar}$

Lors de la collision d'un agrégat d'argon Ar_2^+ avec une cible d'argon atomique on peut distinguer deux types de canaux dissociatifs (fig IV.5) :

1. L'échange de charge dissociatif (DCT), l'agrégat Ar_2^+ donne sa charge à la cible, en formant ainsi un Ar_2 neutre non stable qui se fragmente pour donner deux atomes Ar :



²§. II.9

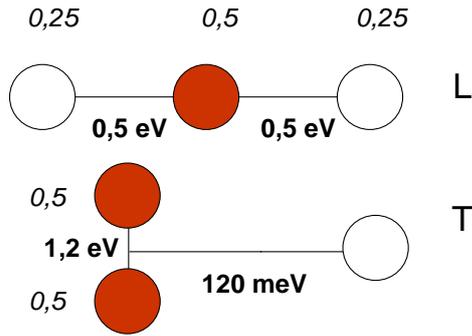
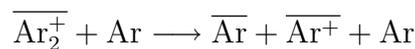


FIG. IV.4.: La forme des deux isomères de Ar_3^+ : linéaire “L” et triangulaire “T”. En italique sont présentées les répartitions de charges pour chaque isomère et en gras les énergies de liaison.

Le transfert de charge est suffisamment rapide pour que l’on puisse considérer que la transition se fait verticalement, les mouvements des noyaux étant “gelés”.

2. La fragmentation induite par collision (CID) : dans ce cas soit la cible transmet une quantité de mouvement à un des atomes de la molécule (l’agrégat) qui se fragmente à la suite de ce mécanisme impulsif, soit la cible excite le cortège électronique du projectile et le porte dans un état électronique dissociatif (mécanisme électronique). Ainsi le projectile se fragmente pour donner un Ar^+ et un Ar :



On peut encore considérer ici que la transition électronique est suffisamment rapide pour être verticale.

Nous avons mesuré les probabilités relatives des deux processus CID et DCT (P_{CID} et P_{DCT}) lors de la collision de Ar_2^+ sur Ar à une énergie dans le référentiel du laboratoire $E_{\text{Lab}} = 4800 \text{ eV}$. Pour ce faire, nous avons mesuré le taux de fragments Ar^+ détectés après l’analyseur N_{CID} induit par collision, et le taux de cibles ionisées induit par échange de charge N_{DCT} reçus par les détecteurs. Nous nous sommes assurés d’une part que le champ d’extraction était suffisamment grand pour que la quasi totalité des ions de recul soit détectée et que d’autre part l’ouverture angulaire permettait de recevoir

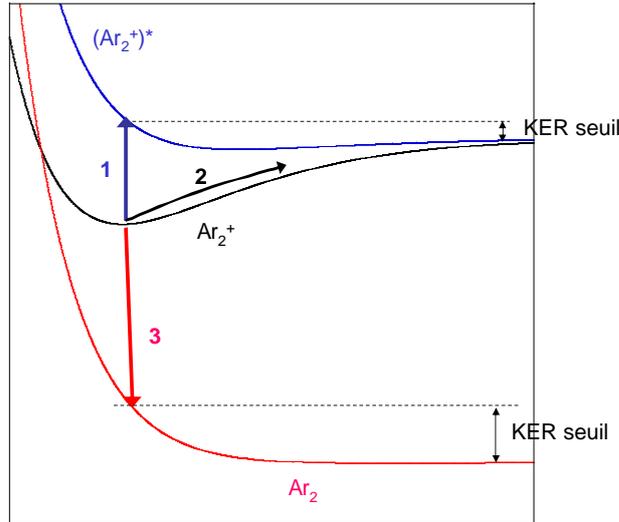


FIG. IV.5.: Les différents mécanismes de fragmentation : (1 et 2) la fragmentation induite par collision (CID) due aux mécanismes électronique ME, et impulsif MI respectivement. (3) L'échange de charge dissociatif DCT.

l'ensemble du cône de diffusion des fragments ionisés. Les vitesses d'arrivée des particules sur les détecteurs étant les mêmes, nous avons considéré que les efficacités de détection étaient identiques.

$$P_{CID} = \frac{N_{CID}}{N_{CID} + N_{DCT}} = 0,8$$

$$P_{DCT} = \frac{N_{DCT}}{N_{CID} + N_{DCT}} = 0,2$$

La mesure a été faite pour deux pressions de stagnation différentes 2 et 5 bars, dans les deux cas le rapport de branchement était de $P_{CID} = 0,8$.

IV.3.1. Échange de charge : $\overline{Ar}_2^+ + Ar \longrightarrow \overline{Ar} + \overline{Ar} + Ar^+$

Dans cette expérience tous les produits de la collision sont détectés (cible et fragments du projectile) en coïncidence avec deux détecteurs sensibles en temps et en position.

IV.3.1.1. $I(\text{KER}, \chi)$

La figure IV.6.a présente l'énergie cinétique relative des deux fragments neutres (KER) en fonction de l'angle de diffusion du centre de masse de l'agrégat (χ). Les projections de l'ensemble des événements selon les axes x et y sont présentées sur la figure IV.6.b et d respectivement. La pression de stagnation au niveau de la source est de 4 bars pour cette expérience.

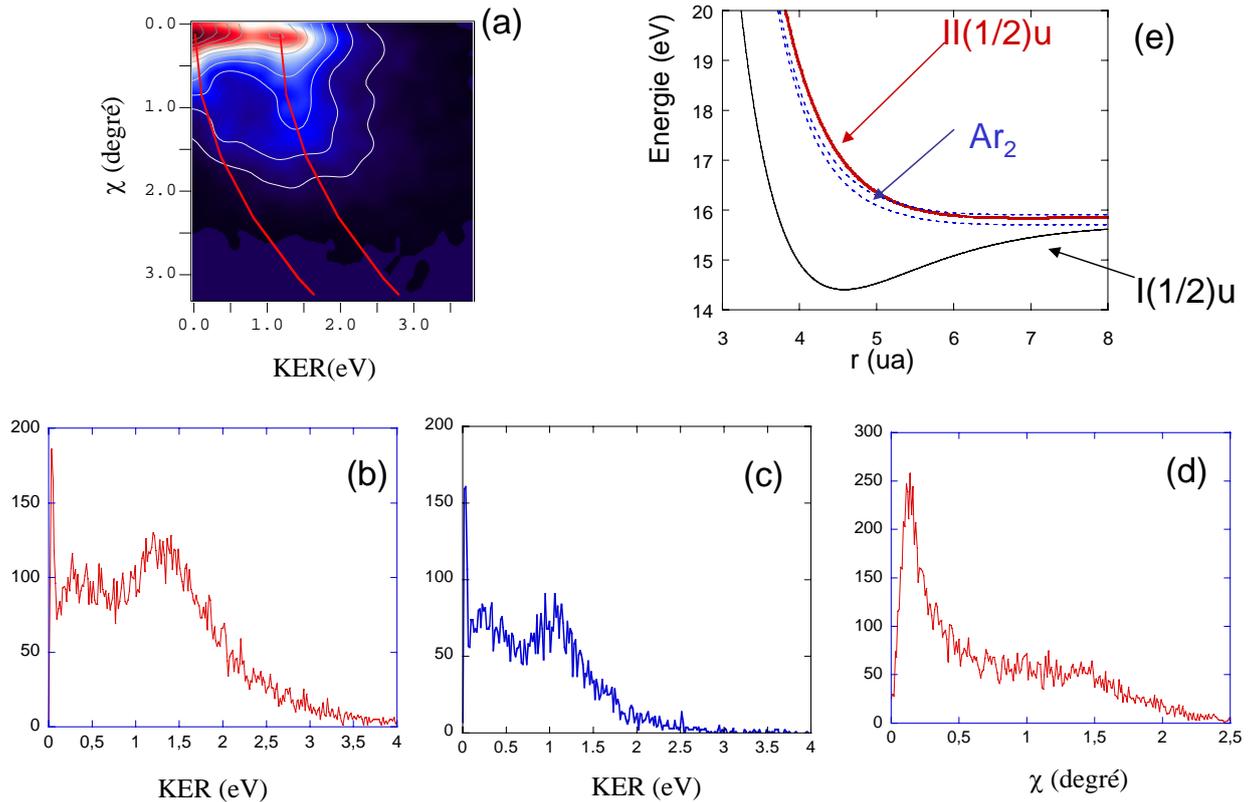


FIG. IV.6.: (a) Section efficace doublement différentielle en angle de diffusion du centre de masse de l'agrégat (χ) et en énergie cinétique relative des fragments (KER). Les deux courbes rouges sont les résultats du modèle binaire centrées sur 0 eV et 1 eV. (b) et (d) sont les projections selon les axes x et y. (c) est la projection de KER pour les événements sélectionnés à $\chi < 0,5$ degré. (e) Les courbes d'énergie potentielle de l'état fondamental, de l'état métastable de Ar_2^+ et de l'état fondamental de Ar_2 . La courbe de l'état fondamental de Ar_2 a été décalée de 15,7 et 15,9 eV (correspondant au système $\text{Ar}+\text{Ar}+\text{Ar}^+(1/2, 3/2)$).

L'angle de diffusion reflète le transfert de quantité de mouvement lors de la

IV. Collision Ar_n^+/Ar

collision, offrant ainsi une mesure de la violence du choc. La projection en χ (fig IV.6. d) montre un maximum autour $\chi \leq 0,15$ degré suivi d'un plateau qui chute à partir de $\chi \simeq 1,5$ degrés résultant de l'acceptance angulaire limitée du détecteur des ions de reculs. Cette distribution indique que le mécanisme d'échange de charge se produit préférentiellement à petits angles *i.e.* sans transfert d'impulsion.

Afin de s'affranchir du transfert d'impulsion qui accompagne les transitions électroniques quand l'angle de diffusion augmente, nous avons sélectionné les événements se produisant à des angles de diffusion $\chi < 0,5$ degré. La figure IV.6.c présente l'énergie cinétique relative des deux fragments neutres (KER) correspondant à ces événements. Trois pics apparaissent situés respectivement à 0,1, 0,3 et 1 eV.

Pour comprendre ce résultat nous utilisons les courbes d'énergie potentielle de deux états électroniques de Ar_2^+ calculés par Gadea *et al.* [14] (fig. IV.6) l'état fondamental I(1/2)u et l'état excité métastable II(1/2)u qui est peuplé, donc qui peut jouer un rôle dans le processus d'échange de charge³. Nous avons aussi représenté deux fois en pointillé la courbe de Ar_2 dans son état fondamental décalée de 15,7 et 15,9 eV pour ajuster à l'infini avec les courbes indiquées.

La transition à partir de l'état fondamental de Ar_2^+ donne une large distribution en KER dont le maximum dépend de l'état vibrationnel de Ar_2^+ (fig IV.6.e). Pour les plus petits niveaux vibrationnels, le KER correspondant est de l'ordre de 1 eV, tandis que, pour les états vibrationnels plus élevés, un faible KER est produit. La possibilité d'avoir un faible KER est importante pour deux raisons : (i) la probabilité de présence est plus importante pour des grandes distances internucléaire fig IV.7. (ii) la section efficace de transition est plus favorable dans le domaine où la condition de quasi-résonance est respectée pour l'échange de charge (faible différence en énergie). La distribution des KER s'étend jusqu'à 0 eV pour les niveaux vibrationnels les plus élevés. Les pics situés à 0,3 et 1 eV peuvent être attribués à l'échange de charge à partir de l'état fondamental respectivement fortement excité ro-

³L'état I(3/2)u est dissociatif. I(3/2)g et I(1/2)g se désexcitent radiativement vers l'état fondamental I(1/2)u (transition u g permise). En revanche, l'état II(1/2)u possède un puits de 40 meV et ne peut pas se désexciter radiativement vers I(3/2)u et I(1/2)u (transition u u interdite), mais vers I(1/2)g et I(3/2)g. Les calculs ont montré que le temps de vie de cet état est de l'ordre de 100 μs se désexcitant vers I(1/2)g.

vibrationnellement et faiblement excité.

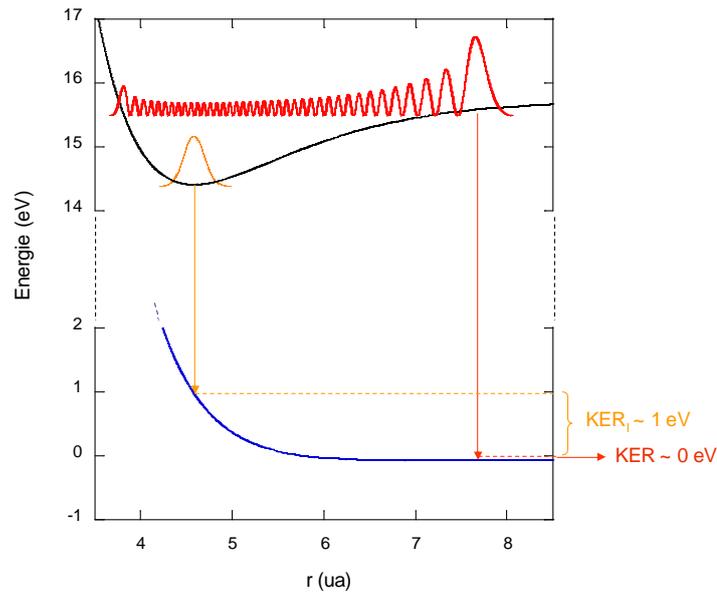


FIG. IV.7.: Courbes d'énergie potentielle de l'état fondamental de Ar_2 et de Ar_2^+ . Les probabilités de présence sont présentées dans le cas de Ar_2^+ avec deux niveaux vibrationnels $v = 0$ et $v = 38$.

Une transition électronique entre l'état $\text{II}(1/2)u$ dont le minimum se situe à 7,2 ua et l'état fondamental de Ar_2 produit un KER de l'ordre de 0,05 eV (fig. IV.6.e). Cette faible valeur peut expliquer la composante étroite observée dans la distribution à faible KER. Cette distribution très étroite $\Delta\text{KER} < 70$ meV est expliquée par le fait que le minimum de la courbe d'énergie potentielle de l'état $\text{II}(1/2)u$ correspond à un continuum très plat de Ar_2 , donc quelque soit l'énergie ro-vibrationnelle de l'ion métastable, le KER produit restera très petit.

Quand l'angle de diffusion augmente les maxima se déplacent vers les plus grands KER (fig IV.6.a) indiquant par là que la transition électronique est accompagnée par un transfert d'impulsion. On a tracé en rouge sur la figure IV.6.a les courbes expérimentaux correspondant au transfert d'énergie cinétique relative associé au modèle binaire⁴. On remarque que les contours suivent les courbes du modèle indiquant qu'à plus petite distance d'approche l'échange de charge s'accompagne d'un transfert d'impulsion.

⁴Le modèle binaire implique une diffusion élastique de la cible par **un seul atome** de l'agrégat, les autres atomes restant spectateurs (§. II.8)

IV. Collision Ar_n^+ / Ar

Afin de mieux analyser les mécanismes mis en jeu, nous allons examiner les comportements de ces mécanismes, identifiés par leur KER, suivant l'angle d'orientation α de l'axe de dissociation par rapport à l'axe de diffusion.

IV.3.1.2. $I(KER/ \alpha)$

Nous avons tracé sous forme de représentation 2D le KER en fonction de $\cos(\alpha)$ pour tous les événements quelque soit l'angle de diffusion χ . Une représentation en $\cos(\alpha)$ a l'avantage de prendre en compte la section efficace géométrique de la collision, et de représenter ainsi un comportement isotrope en α par une distribution uniforme en $\cos(\alpha)$.

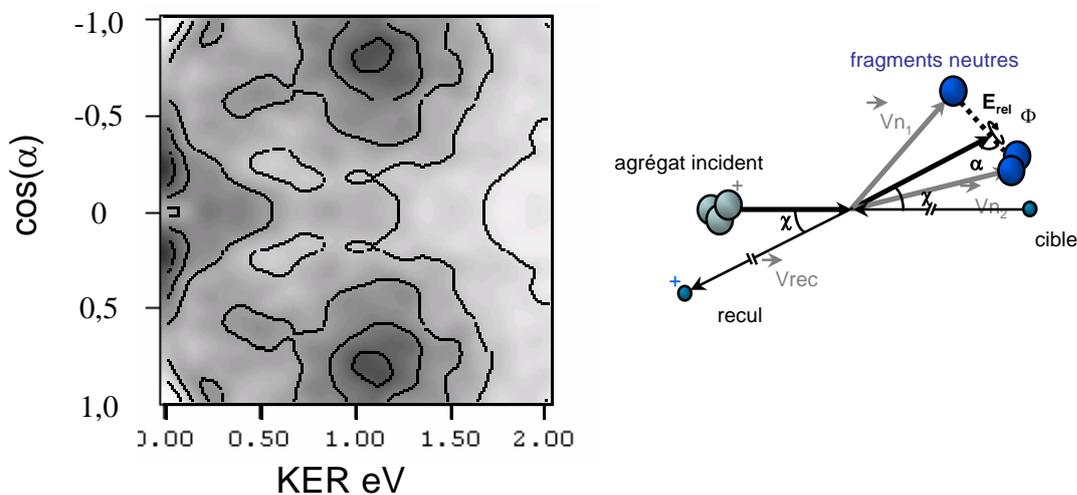


FIG. IV.8.: Section efficace doublement différentielle en $\cos(\alpha)$ et en énergie cinétique relative des fragments (KER).

La figure IV.8 montre deux types de distributions distinctes : une première pour les faibles KER qui est centrée autour de $\alpha = 90$ degré et une seconde dont le maximum correspond à $KER \approx 1$ eV. Afin de s'affranchir de la composante impulsionnelle qui modifie l'énergie transmise, nous avons filtré les événements correspondant à $\chi < 0,5$ degré pour examiner l'orientation α en fonction de KER.

La figure IV.9.a présente la distribution de $\cos(\alpha)$ en fonction de KER sélectionnée pour $\chi < 0,5$. Nous avons aussi présenté les distributions monodimensionnelles en $\cos(\alpha)$ pour différents intervalles de KER correspondant

aux trois pics identifiés dans $I(\text{KER}, \chi)$.

La figure IV.9.b correspond à $\text{KER} < 0,1$ eV, la distribution angulaire est mono-modale avec un maximum à $\alpha \approx 90$ degré. La perte d'événements observée à $\alpha \approx 90$ est due à un artefact expérimental : il s'agit d'événements pour lesquels les deux particules neutres arrivent non seulement à la même position mais aussi dans un intervalle de temps trop court (< 2 ns) pour être détectées. C'est l'ultime temps mort qui subsiste actuellement sur notre détecteur ; temps mort qui peut disparaître en utilisant la validation physique du hit unique exposée dans la section III.8.1.

Autour de $\text{KER} = 0,3$ eV (fig. IV.9.c) on observe un changement brutal de la distribution angulaire, elle devient bimodale centrée autour de 45 degré. La distribution correspondant au $\text{KER} = 1$ eV reste bimodale, mais avec une orientation maximale autour de 36 degrés.

Comme l'état final est le même, les deux types de symétrie observés doivent correspondre à deux états électroniques initiaux différents. Ce comportement conforte l'attribution de la composante à très petit KER ($\text{KER} < 0,1$ eV) à la transition électronique à partir de l'état $\text{II}(1/2)_u$ métastable. Les composantes à plus grand KER sont attribuées à l'échange de charge à partir de l'état fondamental plus ou moins excités ro-vibrationnelement. On remarque pour cette transition que l'orientation α varie avec le KER. Comme le KER est relié à l'énergie interne et donc aux états vibrationnels de Ar_2^+ , ces résultats sont la signature pour l'échange de charge d'une dépendance, avec l'état vibrationnel initial, de l'orientation de l'axe intermoléculaire par rapport à l'axe d'incidence du faisceau. Il est à noter que des calculs ont montré un comportement similaire dans le cas d'échange de charge de H_2^+ sur Mg [16].

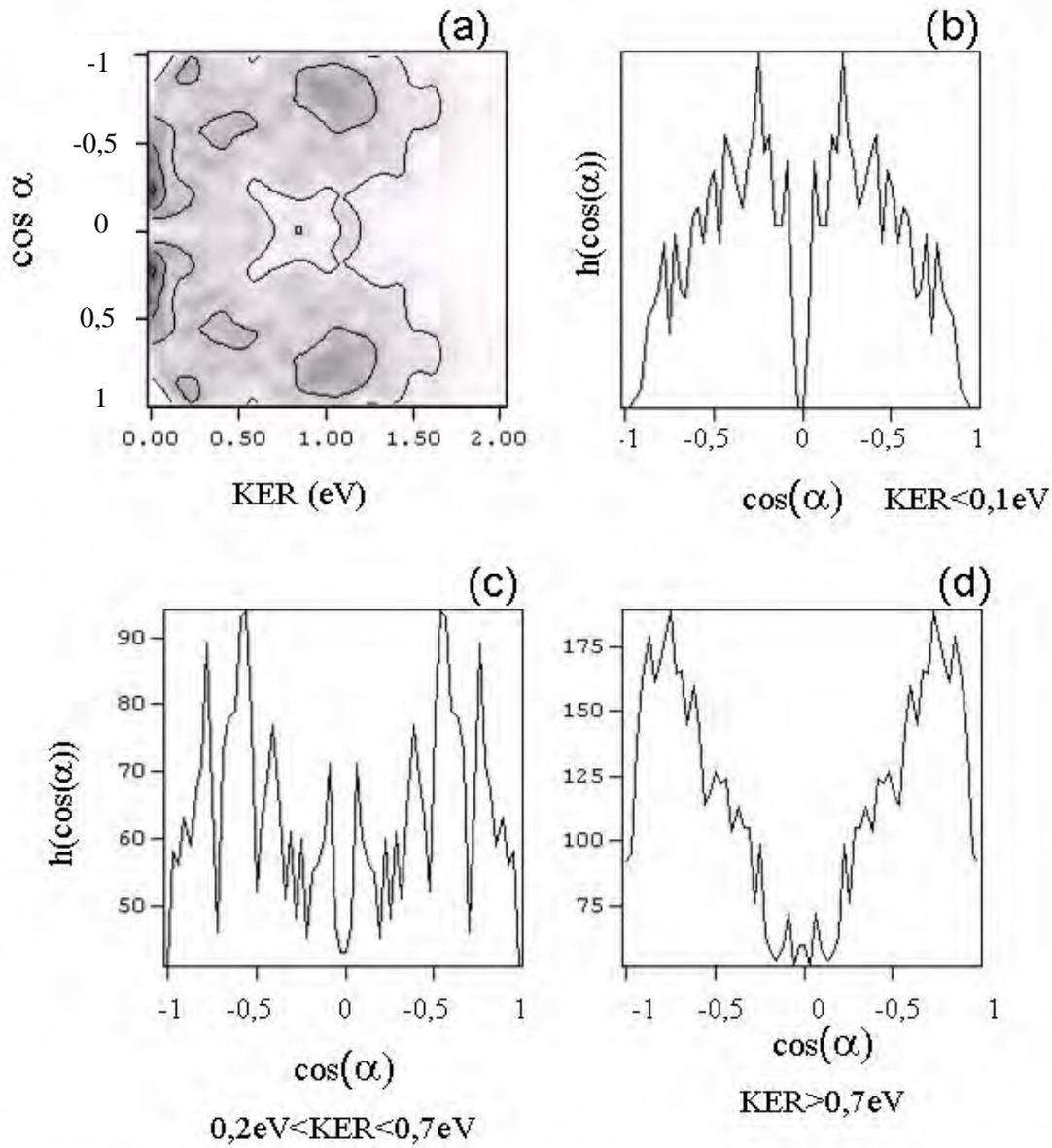


FIG. IV.9.: (a) Section efficace doublement différentielle en $\cos(\alpha)$ et en énergie cinétique relative des fragments (KER) avec $\chi < 0.5$. La projection selon $\cos(\alpha)$ est présentée pour plusieurs intervalles en KER : (b) $KER < 0.1$ eV, (c) $0.2 \text{ eV} < KER < 0.7 \text{ eV}$, (d) $KER > 0.7$ eV.

IV.3.1.3. Étude en fonction de l'énergie interne initiale de Ar_2^+ : effet de la pression de stagnation

Nous avons vu que la taille moyenne des agrégats neutres produits lors d'une détente dépend de la pression de stagnation p_0 . En augmentant la pression on forme des agrégats de plus en plus « gros ». Quand la taille moyenne des agrégats neutres augmente, on favorise la production de Ar_2^+ par ionisation d'agrégats de masse supérieure Ar_m^+ suivie par l'évaporation de $(m - 2)$ atomes, ce qui a pour effet de diminuer leur énergie interne. Une étude en fonction de la pression de stagnation nous révélera des informations sur l'état vibrationnel initial de Ar_2^+ et son incidence sur les mécanismes d'échange de charge.

Nous avons donc réalisé une série d'expériences pour différentes valeurs de la pression de stagnation $p_0 = 2, 3, 4, 5$ et 6 bars. On a présenté sur la figure **IV.10** les sections efficaces doublement différentielle en KER et en χ . Quelle que soit la pression les contours suivent les courbes du modèle, indiquant par là que l'échange de charge est accompagné de transfert d'impulsion. Comme précédemment pour s'affranchir du transfert d'impulsion, nous avons sélectionné les événements correspondant à $\chi < 0,5$ degré. La figure **IV.10** représente l'évolution de la distribution de KER pour les événements filtrés. Le pic à KER $< 0,1$ eV, lié à l'état métastable, est toujours présent quelle que soit la pression et sa distribution reste toujours étroite. En revanche, quand la pression augmente, on voit apparaître un deuxième pic autour de KER = 1 eV, que l'on distingue mieux à 4 bars, pour s'estomper quand la pression augmente. De même le pic observé autour de $0,3$ eV à 4 bars sort d'un continuum quand la pression augmente.

L'évolution de ces distributions avec la pression met en évidence la variation de la population ro-vibrationnelle de l'état fondamental avec la pression de stagnation, alors que l'état métastable est toujours présent.

Pour expliquer ce comportement, rappelons le modèle de production décrit dans la section **II.2.1**.

IV. Collision Ar_n^+ / Ar

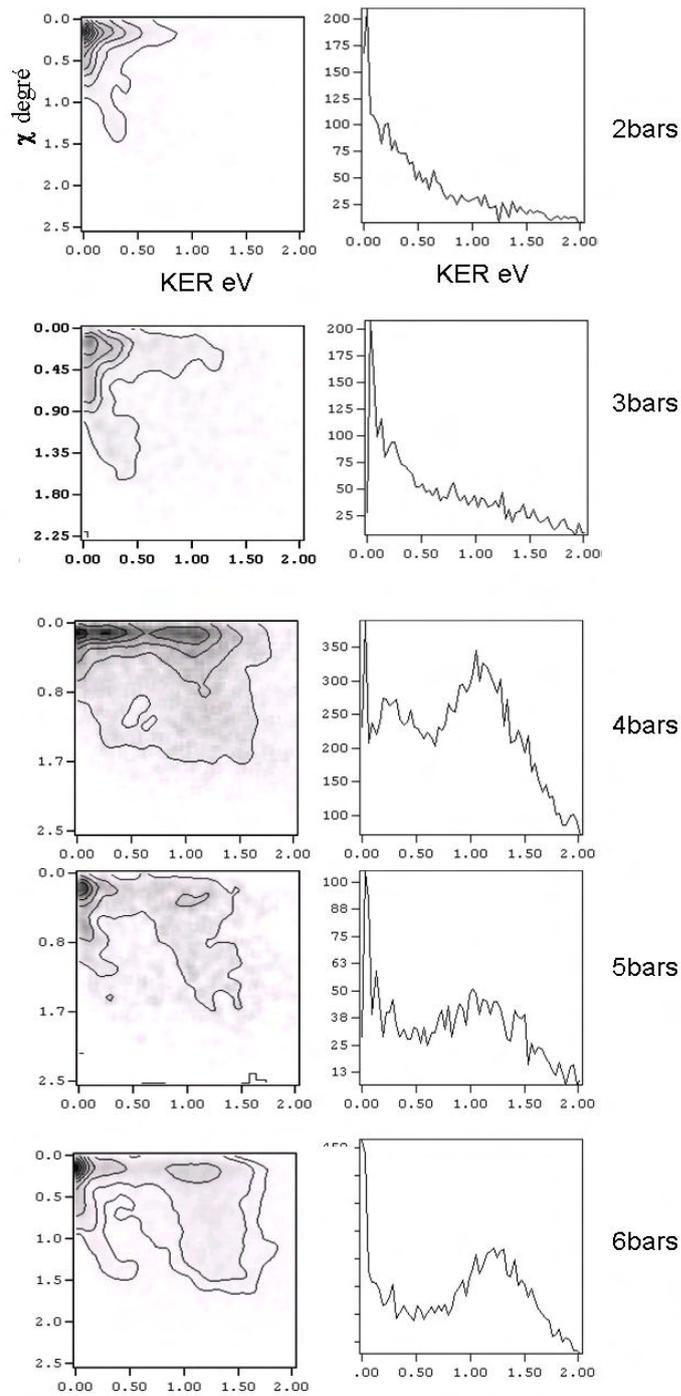


FIG. IV.10.: L'évolution en fonction de la pression de stagnation $p_0 = 2, 3, 4, 5$ et 6 bars, à gauche de la corrélation $I(KER, \chi)$, à droite la projection selon KER pour des angles $\chi < 0,5$ degré.

Après ionisation, la distribution de la taille des agrégats Ar_n^+ est décalée

d'environ 18 atomes par rapport à celle avant ionisation⁵. Ainsi, si on part d'un agrégat neutre de taille moyenne 35, on forme une partie importante de Ar_2^+ à faible énergie interne par évaporation. Par contre, pour une taille d'agrégats neutres suffisamment grande, la perte de 18 atomes ne permet pas d'atteindre la taille 2. Dans ce cas les Ar_2^+ produits sont en partie formés par ionisation directe de Ar_2 . *Ce modèle est très frustré et néglige l'énergie que l'atome emporte sous forme cinétique lors de l'évaporation.*

Une simulation effectuée par le groupe et basée sur un programme de dynamique moléculaire⁶ a permis de calculer la distribution de l'énergie interne de Ar_2^+ en fonction de la taille moyenne de l'agrégat neutre parent (fig. IV.11). La distribution d'énergie interne montre à faible valeur de la taille moyenne deux pics : le premier autour de 1 eV et un deuxième de plus faible énergie. Quand on augmente la taille moyenne des agrégats *i.e.* quand on augmente la pression de 2 bars à 4 bars, la distribution se décale vers les plus petites énergies. En revanche, à partir de 4 bar la composante froide diminue en faveur de la composante chaude ($E_{\text{int}}=1$ eV).

On peut en conclure que la variation de la pression de stagnation a pour conséquence de modifier la population ro-vibrationnelle de l'état fondamental de Ar_2^+ . Les niveaux vibrationnels à la limite de dissociation (chauds) sont préférentiellement peuplés pour les faibles pressions (2 bars). En augmentant la pression, jusqu'à un certain seuil, les niveaux vibrationnels froids sont de plus en plus peuplés, aux dépens des niveaux vibrationnels chauds comme nous l'avons observé expérimentalement.

⁵l'énergie interne maximale est de 1,2 eV, on suppose que chaque perte d'atome consomme environ 0,065 eV de l'énergie interne excepté pour Ar_3^+ où la perte d'un atome coûte 0,2 eV.

⁶dans la simulation on considère qu'un atome de l'agrégat neutre est ionisé et forme avec son plus proche voisin un dimère chargé. La grande différence entre les distances d'équilibre entre les atomes d'argon de Ar_n et le dimère ionique implique que le dimère ainsi formé possède un excès d'énergie de 1,07 eV. La simulation utilise des potentiels de paire entre chaque atome de l'agrégat de type Lenard-Jones qui fait intervenir l'énergie de liaison entre atomes et la distance d'équilibre. Pour le dimère chargé ($r_0 = 2,44 \cdot 10^{-10}$ m et $E_d = 1,38$ eV) et pour les atomes périphériques ($r_0 = 3,80 \cdot 10^{-10}$ m et $E_d = 0,0355$ eV, 0,0305 eV, 0,0295 eV, 0,0230 eV et 0,1 eV respectivement pour Ar_7^+ , Ar_6^+ , Ar_5^+ , Ar_4^+ , Ar_3^+) entre l'atome neutre et chaque atome du coeur Ar_2^+ . Au cours de la simulation le dimère ionique oscille et transfère de l'énergie cinétique aux atomes neutres qui ont ainsi la probabilité d'être éjectés quand leur énergie est supérieure à l'endothermicité de dissociation. On considère qu'ils sont dissociés lorsque leur distance par rapport au coeur est supérieure à 50 Å. L'énergie cinétique emportée par chaque atome évaporé E_{rel} a été déterminée et comparée à l'énergie cinétique donnée par le modèle statistique Engelking [15] $E_{\text{rel}} = \frac{\langle E_{\text{rel}} \text{Engelking} \rangle}{6}$

IV. Collision Ar_n^+ / Ar

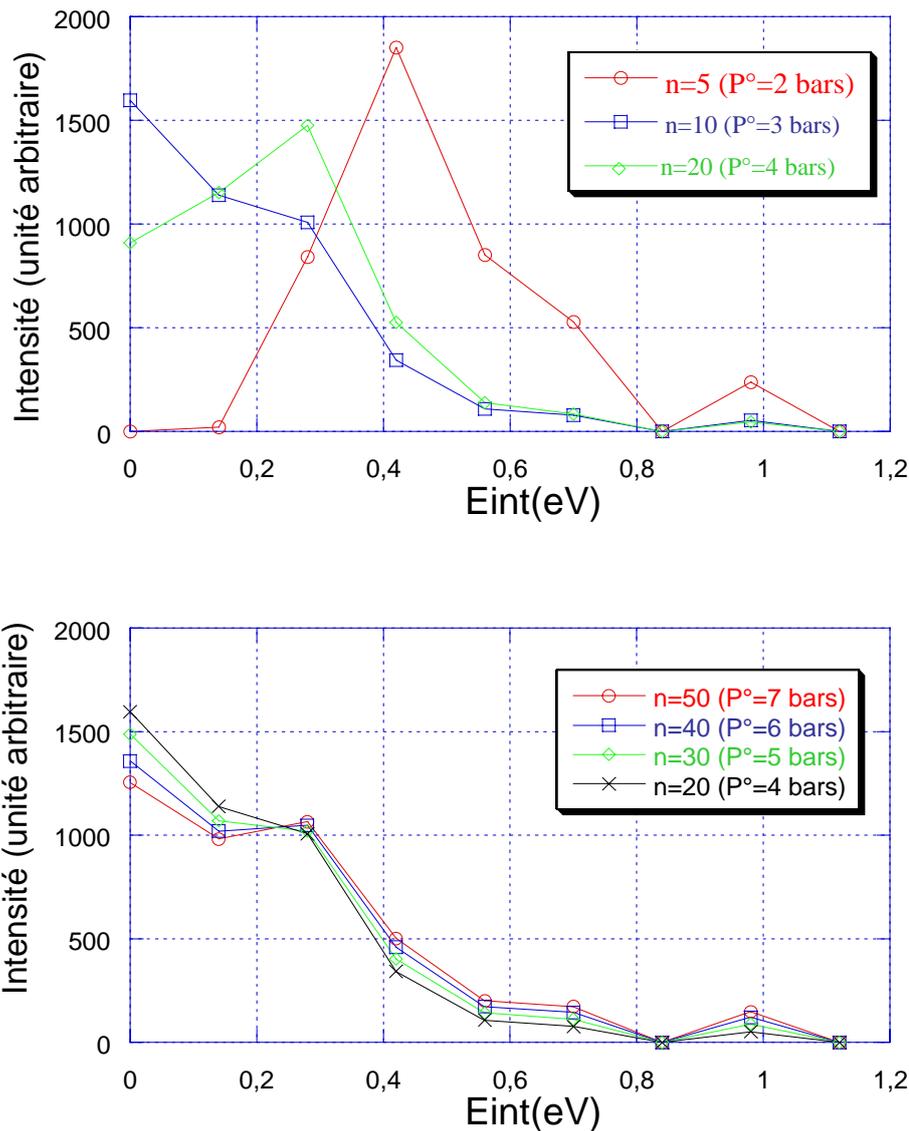


FIG. IV.11.: la distribution de l'énergie interne de Ar_2^+ en fonction de la taille moyenne de l'agrégat neutre parent

Il est à noter que les distributions $I(KER)$ observées ne représentent pas directement la distribution de la population ro-vibrationnelle de l'état initial. Ces distributions doivent être convoluées par la section efficace d'échange de charge qui dépend fortement du défaut à la résonance. Les niveaux vibrationnels fortement excités doivent avoir des sections d'échange nettement plus importantes que les états faiblement excités. En particulier, l'état méta-

stable très proche de la résonance, apparaît très clairement quelque soit la pression.

La comparaison des distributions $I(\text{KER})$ avec les calculs de dynamique moléculaire quantique permettrait d'avoir une estimation du taux de métastable Ar_2^+ présent dans notre faisceau. En particulier de confirmer le taux de 20 % observé dans les expériences effectuées sur le spectromètre Arc-en-Ciel.

IV.3.2. La fragmentation induite par collision CID :

Dans cette expérience les fragments rapides produits de la collision sont détectés en coïncidence par deux détecteurs sensibles en temps et en position. Le faisceau d'agrégats est haché à une fréquence de 1 MHz afin d'obtenir une référence en temps. La pression de stagnation a été maintenue à 5 bars pour cette expérience.

Il convient de montrer tout d'abord le diagramme ZZ^7 (fig. IV.12) qui est la corrélation entre les déviations verticales des fragments neutre et ionique. Il permet de différencier directement les mécanismes impulsionnels des mécanismes électroniques. Ainsi, on remarque que la structure principale oblique correspond à une déviation symétrique des deux fragments ionique et neutre, signature d'une fragmentation induite par excitation électronique (ME). Les deux autres structures, verticale et horizontale, correspondent respectivement au fragment ionique et neutre fortement dévié, l'autre étant spectateur. C'est le mécanisme de transfert d'impulsion qui ne contribue que pour une faible part à la fragmentation dans ce système.

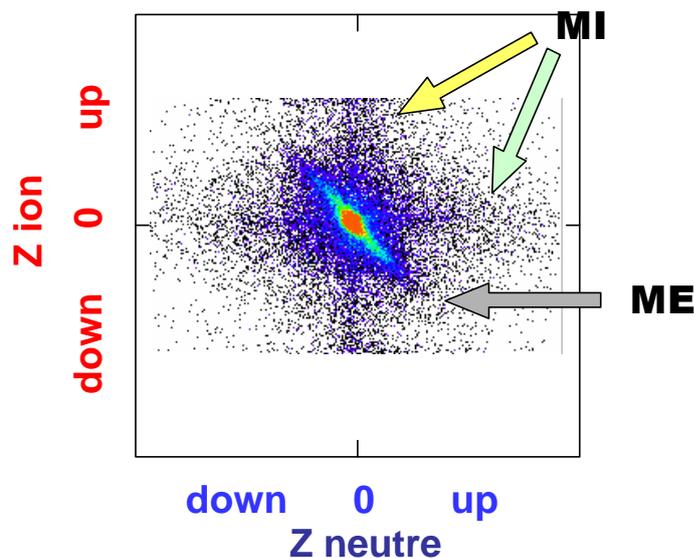


FIG. IV.12.: Corrélation ZZ du système $\overline{Ar_2^+} + Ar$

La figure IV.13.a présente l'énergie cinétique relative des deux fragments

⁷voir §. II.9.2

(KER) en fonction de l'angle de diffusion du centre de masse de l'agrégat (χ). Encore ici, on remarque l'importance des événements ayant lieu pour des faibles valeurs de χ , signature d'une fragmentation induite par un mécanisme électronique.

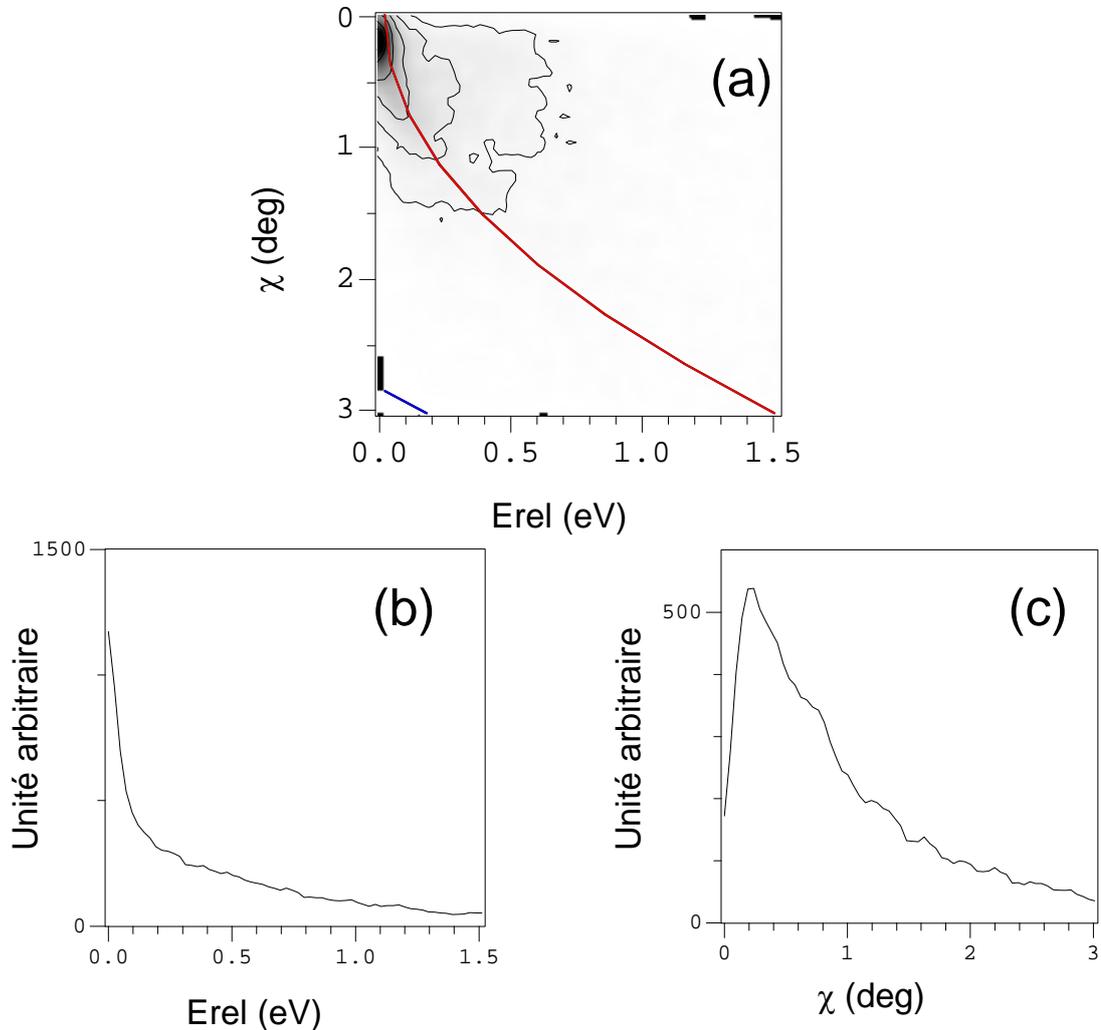


FIG. IV.13.: (a) Section efficace doublement différentielle en angle de diffusion du centre de masse de l'agrégat (χ) et en énergie cinétique relative des fragments (KER) le trait continu présente la courbe résultant des calculs obtenus par le modèle binaire. (b) et (c) la projection selon KER et χ respectivement.

Nous avons vu précédemment qu'à 5 bars (fig. IV.10) les Ar_2^+ étaient formés d'une part dans l'état fondamental avec une composante importante à faible énergie rovibrationnelle, et une composante fortement excitée, et d'autre part

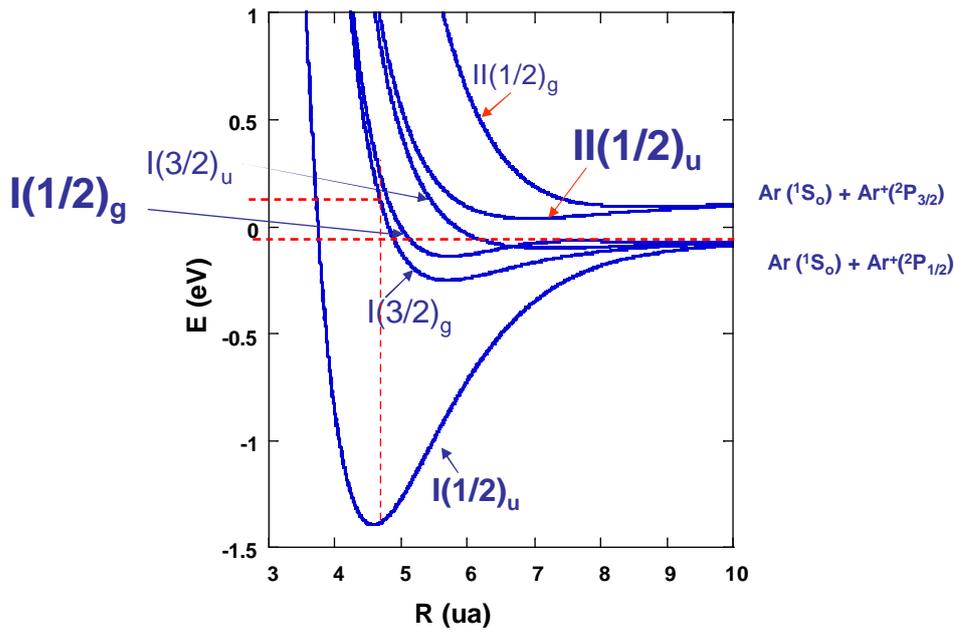


FIG. IV.14.: Courbes d'énergie potentielle de six premiers états électroniques de Ar_2^+ [14].

dans l'état métastable $\text{II}(1/2)_u$. Nous avons tracé sur la figure IV.13.a les courbes résultant des calculs obtenus par le modèle binaire avec deux valeurs de l'endothéricité de 0 eV (trait continu rouge) et 1,3 eV qui a un seuil angulaire à 3 degrés (trait bleu). Les contours suivent la courbe correspondant à un transfert d'impulsion sans seuil en énergie, indiquant par là l'absence de dissociation par transfert d'impulsion à partir de l'état fondamental "froid" ($v=0$). La faible composante impulsionnelle observée sur la corrélation ZZ, ne peut être attribuée qu'à une dissociation par transfert d'impulsion à partir de l'état fondamental chaud ou de l'état métastable ou par un transfert d'impulsion accompagnant l'excitation électronique.

En principe, par collision, toutes les transitions électroniques sont permises (fig. IV.14). Les faibles valeurs de KER peuvent être attribuées aussi bien à l'excitation électronique de l'état métastable $\text{II}(1/2)_u$ vers $\text{II}(1/2)_g$ libérant ainsi un KER de l'ordre de 0,1 eV, qu'à la transition depuis l'état fondamental froid $\text{I}(1/2)_u$ vers $\text{I}(1/2)_g$ ou $\text{I}(3/2)_g$ qui donne lieu à un KER de l'ordre de 0,3 eV, ou depuis l'état fondamental chaud vers $\text{I}(1/2)_g$, $\text{I}(3/2)_g$ ou $\text{I}(3/2)_u$ produisant un $\text{KER} < 0,1$ eV.

IV.4. Collision $\text{Ar}_3^+ / \text{Ar}$

Lors de la collision d'un agrégat d'argon Ar_3^+ , accéléré à 4,8 kV, avec une cible d'argon atomique on peut distinguer plusieurs types de canaux dissociatifs :

1. Soit lors de la fragmentation induite par collision (CID). Dans ce cas, deux chemins de fragmentation ont été observés :



2. Soit lors de l'échange de charge dissociatif (DCT), l'agrégat Ar_3^+ donne sa charge à la cible, en formant ainsi un Ar_3 neutre non stable qui se fragmente pour donner trois atomes Ar : $\overline{\text{Ar}}_3^+ + \text{Ar} \longrightarrow \overline{\text{Ar}} + \overline{\text{Ar}} + \overline{\text{Ar}} + \text{Ar}^+$

Les probabilités relatives de production de ces trois canaux ont été obtenues en mesurant le taux de fragments Ar_2^+ et Ar^+ reçus après l'analyseur électrostatique, et le taux d'ions de recul Ar^+ normalisés sur le taux de fragments neutres.

$$P_{\text{CID}}(\text{Ar}_2^+) = 0,5$$

$$P_{\text{CID}}(\text{Ar}^+) = 0,4$$

$$P_{\text{DCT}}(\text{Ar}^+) = 0,1$$

Le rapport de branchement entre les deux canaux de dissociation induite par collision $P_{\text{CID}}(\text{Ar}_2^+)/P_{\text{CID}}(\text{Ar}^+) = 1,25$ est à comparer à celui obtenu avec une cible He $P(\text{He}) = 0,66$ [3]. L'énergie de collision était dans ce cas dix fois plus faible ($E_{\text{cm}} = 154$ eV).

Nous avons analysé chacune de ces voies de dissociation.

IV.4.1. Fragmentation induite par collision de $\text{Ar}_3^+ / \text{Ar}$

IV.4.1.1. Dissociation en deux fragments

Dans cette expérience les deux fragments rapides sont détectés (l'ion Ar_2^+ et le neutre Ar) par deux détecteurs sensibles en temps et en position. Le faisceau d'agrégats est haché à une fréquence de 1 MHz afin d'obtenir une référence en temps. La pression de stagnation a été maintenue à 5 bars durant l'expérience.

La corrélation ZZ présentée sur la figure IV.15.a et a' montre clairement que la fragmentation se fait principalement par un mécanisme impulsional : la structure horizontale est la signature d'une forte déviation du produit neutre (Ar) le coeur ionique Ar_2^+ étant spectateur, tandis que l'absence de structure verticale indique qu'aucune déviation du fragment ionique n'est observée. On notera cependant, une petite contribution correspondant à une déviation "symétrique" des deux fragments : structure diagonale qui est due à une fragmentation de type électronique. Une estimation du rapport de branchement entre les deux mécanismes impulsional et électronique nous a donné $P(\text{IM})/P(\text{EL}) = 5,6$.

La figure IV.15.b montre la même corrélation ZZ pour le système collisionnel $\overline{\text{Ar}_3^+} + \text{He} \longrightarrow \overline{\text{Ar}_2^+} + \overline{\text{Ar}} + \text{He}$. Il est frappant de remarquer que le changement de cible fait disparaître la structure verticale présente dans le cas de la cible He. Cette structure est associée au mécanisme diatome décrit dans la section II.9.1 qui est le transfert de moment sur le coeur Ar_2^+ .

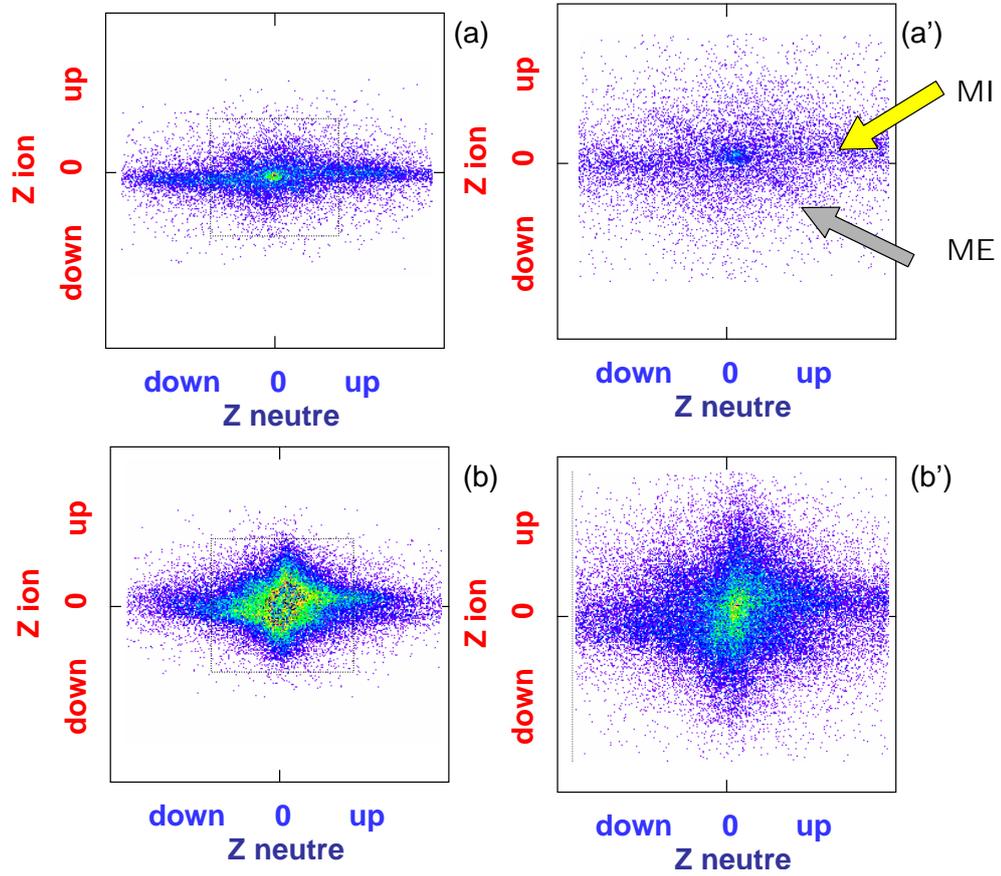


FIG. IV.15.: Corrélations ZZ des systèmes : (a) $\overline{Ar_3^+} + Ar \longrightarrow \overline{Ar_2^+} + \overline{Ar} + Ar$. (a') est un zoom de (a), (b) $\overline{Ar_3^+} + He \longrightarrow \overline{Ar_2^+} + \overline{Ar} + He$. MI et ME correspondent respectivement à un mécanisme impulsional et électronique. (b') est un zoom de (b)

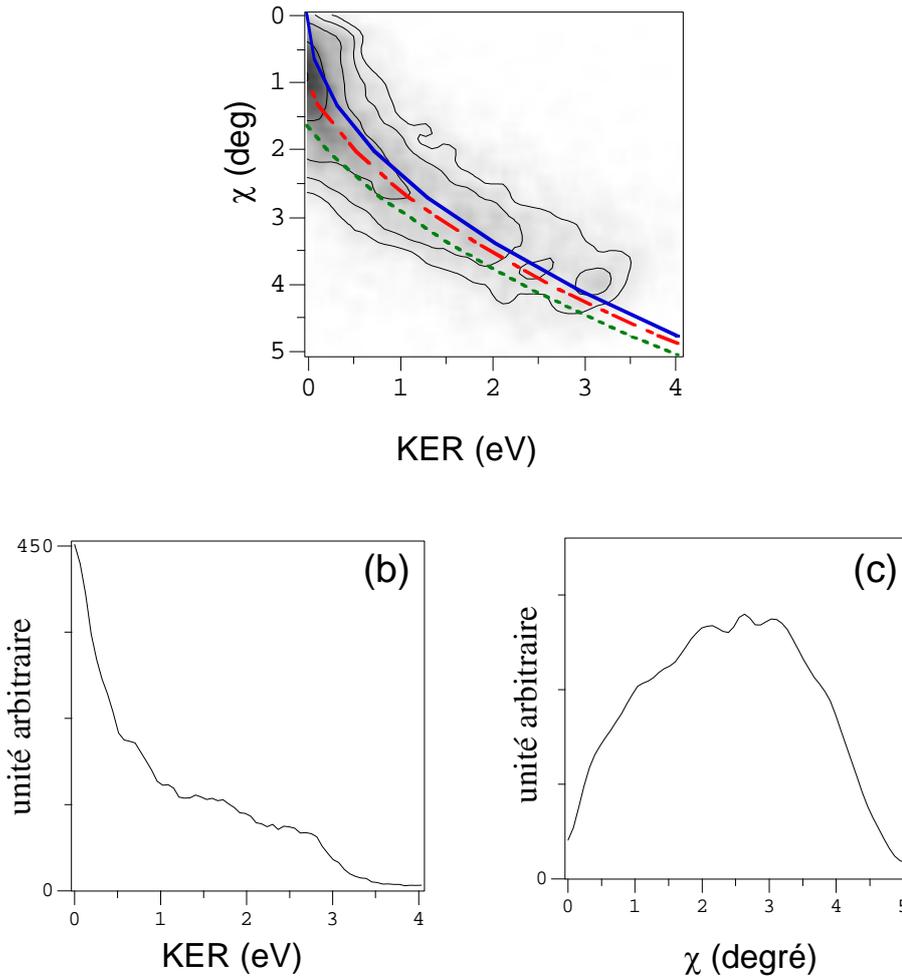


FIG. IV.16.: Section efficace doublement différentielle en angle de diffusion du centre de masse de l'agrégat (χ) et en énergie cinétique relative des deux fragments (KER). Les trois courbes, bleu continu, rouge tiret et vert pointillé sont les résultats du modèle binaire pour une endothermicité de dissociation de 0 eV, de 0,2 eV et de 0,5 eV respectivement. (b) et (c) les projections selon KER et χ respectivement.

On présente sur la figure IV.16.a la corrélation entre l'énergie cinétique relative des deux fragments (KER) et l'angle de diffusion du centre de masse de l'agrégat (χ). La structure principale, sur le spectre bidimensionnel, présente un maximum pour $\chi \approx 1$ degré et s'étend vers les grandes énergies quand l'angle de diffusion augmente. Pour les petits angles de diffusion $\chi < 0,5$ degré, la distribution du KER s'étale jusqu'à 1eV (fig. IV.16.a), elle correspond à la dissociation par excitation électronique comme on le verra plus claire-

ment sur la figure IV.17.a. Il s'agit d'une transition électronique vers un état dissociatif entre $\text{Ar}_2^+ - \text{Ar}$ qui a déjà été observée dans le CID du système $\text{Ar}_3^+ - \text{He}$ [3]. Nous avons tracé les courbes obtenues par le modèle binaire pour des endothermicités de dissociation du projectile de 0 eV, 0,2 eV et 0,5 eV, correspondant à un Ar_3^+ , excité à la limite de dissociation, avec une forme T et une forme L respectivement. La courbe tracée pour une endothermicité de 0,2 eV, reproduit bien les contours expérimentaux en particulier le maximum à 1 degré qui correspond au seuil endothermique. Cet argument indique que la forme T (correspondant à une endothermicité de 0,2 eV) est majoritaire dans le faisceau incident comme cela était vu dans le système collisionnel $\text{Ar}_3^+ - \text{He}$ [3].

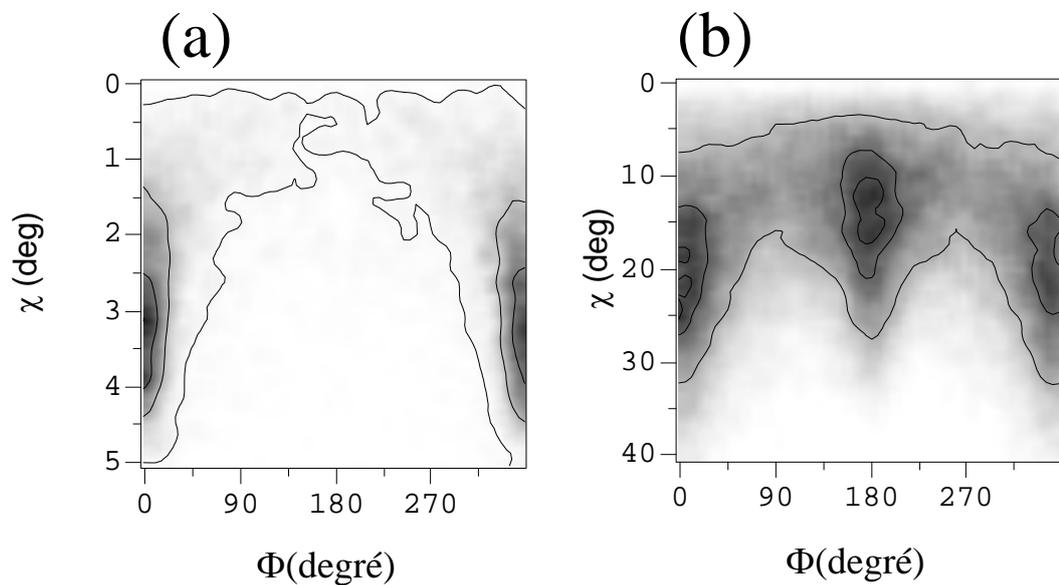


FIG. IV.17.: Section efficace doublement différentielle en angle de diffusion du centre de masse de l'agrégat (χ) et en angle dièdre entre le plan de dissociation et le plan de collision Φ du système (a) $\text{Ar}_3^+ + \text{Ar} \longrightarrow \text{Ar}_2^+ + \text{Ar} + \text{Ar}$, (b) $\text{Ar}_3^+ + \text{He} \longrightarrow \text{Ar}_2^+ + \text{Ar} + \text{He}$.

La figure IV.17.a montre sous forme de présentation 2D l'angle de diffusion du centre de masse χ en fonction de l'angle dièdre Φ entre le plan de dissociation et le plan de collision. Dans une fragmentation induite par un mécanisme impulsif binaire direct, le plan de dissociation est confondu avec le plan de collision, autrement dit dans ce cas tous les événements doivent être localisés autour de $\Phi = 0$ ou π . L'orientation de l'angle Φ est choisie par

IV. Collision Ar_n^+/Ar

convention de telle façon qu'il vaut 0 quand le fragment neutre Ar est dévié et π quand le fragment ionique Ar_2^+ est plus dévié. Ces angles correspondent respectivement à la structure horizontale et verticale de la corrélation ZZ.

Sur la figure IV.17, on peut remarquer pour $\chi > 1$ degré que tous les événements sont situés autour de $\Phi = 0$, confirmant que la dissociation est induite par un transfert d'impulsion sur l'argon périphérique et jamais sur le coeur chargé Ar_2^+ . La distribution uniforme de Φ pour $\chi < 1$ degré est caractéristique d'une dissociation de type électronique [17].

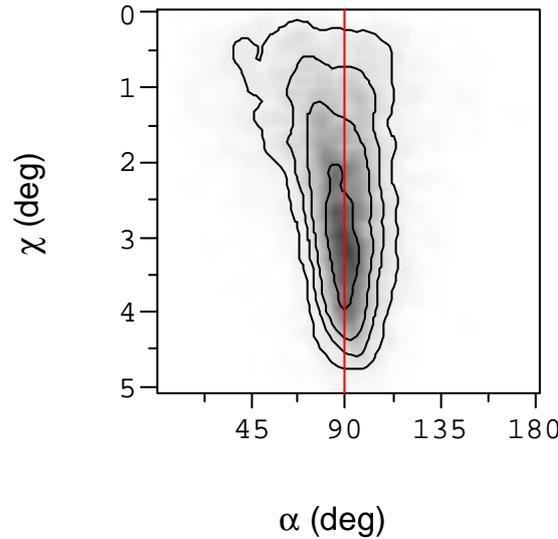


FIG. IV.18.: Section efficace doublement différentielle en angle de diffusion du centre de masse de l'agrégat (χ) et en angle α entre l'axe de dissociation et l'axe de diffusion.

Nous avons vu que dans une dissociation de type impulsif (§. II.9.1), l'orientation de l'axe de dissociation, donnée par l'angle α , est liée à l'angle de diffusion χ par la relation suivante :

$$\alpha = \frac{\pi}{2} \mp \left(\chi - \frac{\chi_1}{2} \right)$$

Or χ et χ_1 sont de l'ordre de quelques degrés donc

$$\alpha \approx \frac{\pi}{2}$$

La corrélation $I(\alpha, \chi)$ (fig. IV.18) suit bien cette relation montrant encore

une fois que la collision se fait selon le modèle binaire.

Nous avons confronté ces résultats avec ceux résultant du système collisionnel $\overline{\text{Ar}_3^+} + \text{He} \longrightarrow \overline{\text{Ar}_2^+} + \overline{\text{Ar}} + \text{He}$ [3]. Une grande différence est observée sur la corrélation I (Φ, χ) (fig IV.17.b) qui présente une seconde structure autour de $\Phi = 180$ degrés absente dans le cas de la cible d'argon. En effet, il avait été montré que deux mécanismes de fragmentation de type impulsif co-existaient : transfert d'impulsion sur l'atome peu lié ou sur l'ion moléculaire Ar_2^+ appelé mécanisme diatome (§.II.8).

On peut expliquer l'absence du mécanisme diatome dans le système $\text{Ar}_3^+ - \text{Ar}$ par le fait que lorsque la cible s'approche du coeur Ar_2^+ , ce dernier se dissocie soit par excitation électronique, hypothèse cohérente avec nos résultats sur la fragmentation induite par collision de Ar_2^+ sur Ar (§. IV.3.2), soit par échange de charge dissociatif, conduisant dans les deux cas à la multi-fragmentation en 3 fragments comme nous le verrons plus loin. Une simulation de dynamique moléculaire classique faite par le groupe nous a d'ailleurs montré que le mécanisme diatome est bel et bien présent lorsque l'on ne prend en compte que des mécanismes de fragmentation de type impulsif élastique.

IV.4.1.2. Dissociation en trois fragments

Dans cette expérience les trois fragments rapides sont détectés : l'ion par un détecteur sensible en temps et en position utilisant une anode résistive, quant aux deux particules neutres, nous avons utilisé notre détecteur "sans temps mort" discuté précédemment pour les détecter. Le faisceau d'agrégats a été haché à une fréquence de 1 MHz afin d'obtenir une référence en temps. La pression de stagnation a été maintenue à 5 bars durant l'expérience.

Dans le cas d'une dissociation en trois fragments, la corrélation entre la déviation verticale des fragments (corrélation ZZ) n'est plus pertinente. Nous devons rechercher des observables qui mettent en évidence les mécanismes de fragmentation. Par exemple, il est intéressant de rechercher si le plan de dissociation des fragments est confondu avec le plan de collision⁸ pour en déduire la présence d'un mécanisme de type impulsif.

⁸Le plan de collision est défini par les deux vecteurs vitesses de la cible dans le référentiel CM avant et après la collision

IV. Collision Ar_n^+ / Ar

Pour identifier les mécanismes de dissociation en trois fragments examinons la corrélation $I(\Phi_1, \chi)$ (fig.IV.19). Φ_1 est l'angle dièdre entre le plan de collision et le plan de dissociation. Ce diagramme est équivalent au diagramme $I(\Phi, \chi)$ défini dans la dissociation en deux fragments.

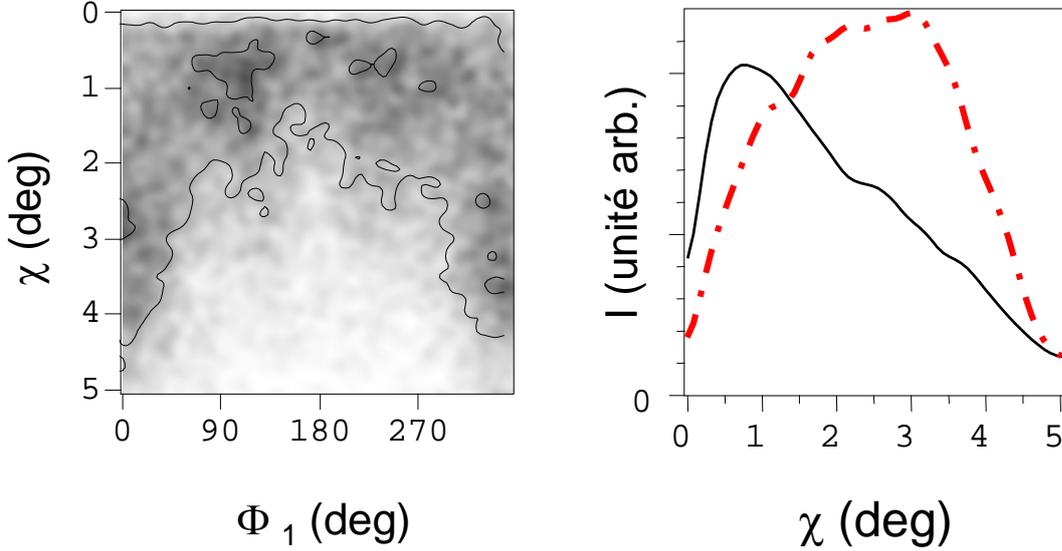


FIG. IV.19.: La corrélation $I(\Phi_1, \chi)$ pour le système $\overline{Ar}_3^+ + Ar \longrightarrow \overline{Ar}^+ + \overline{Ar} + \overline{Ar} + Ar$. A droite en trait plein la projection suivant y représentant la section efficace différentielle en χ , en tiret la section efficace différentielle pour la dissociation en deux fragments normalisée.

La projection suivante y représente la section efficace différentielle en χ (fig.IV.19). Nous avons aussi indiqué en tirets la section efficace différentielle pour la dissociation en deux fragments normalisée par rapport à celle en trois fragments. De ces résultats nous remarquons que la section efficace de dissociation en trois fragments est maximale à petit angle de diffusion ($\chi < 1,5$ degré). C'est la région angulaire pour laquelle aucune structure n'est observée suivant l'angle Φ_1 . Nous avons affaire dans ce cas à une fragmentation de type électronique. Quand l'angle de diffusion augmente la section efficace de dissociation en trois fragments diminue et la dissociation en deux fragments devient prépondérante

La corrélation $I(KER, \chi)$ entre l'énergie cinétique relative des trois frag-

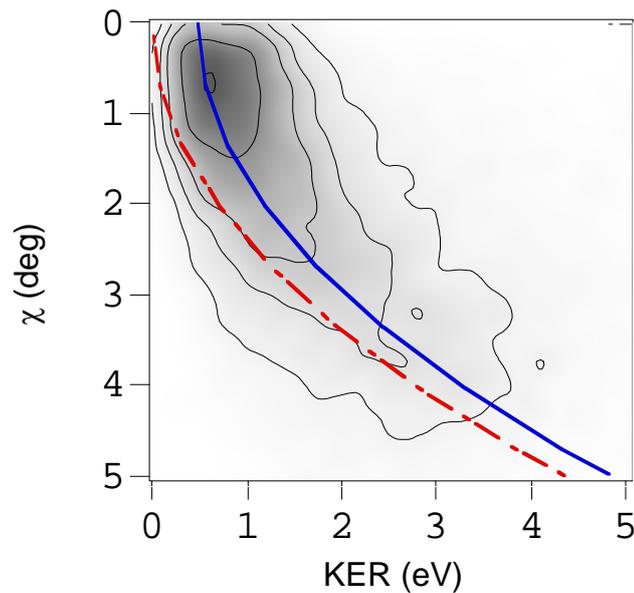


FIG. IV.20.: Section efficace doublement différentielle en angle de diffusion du centre de masse de l'agrégat (χ) et en énergie cinétique relative des trois fragments (KER). les trait continu et pointillé présente les courbes résultant des calculs obtenus par le modèle binaire avec une exothermicité de dissociation de 0 eV et 0,5 eV respectivement.

ments et l'angle de diffusion (fig. IV.20) présente des contours qui suivent le modèle binaire; courbe qui a été décalée de 0,5 eV pour tenir compte de l'énergie cinétique totale des fragments au seuil *i.e.* de la répulsivité de l'état électronique dissociatif. Nous pouvons conclure que la dissociation en trois fragments est due pour une grande part à un mécanisme électronique accompagné de transfert d'impulsion quand l'angle de diffusion augmente. Une estimation du rapport entre le mécanisme avec ou sans transfert d'impulsion égale à 1,2 est obtenue à partir des résultats de la figure IV.19.

Des informations complémentaires sur le mécanisme de fragmentation en trois corps, en particulier sur le partage d'énergie cinétique entre les trois fragments sont présentées sur un diagramme de Dalitz. Ce diagramme met en évidence le partage d'énergie cinétique à l'infini dans le référentiel du centre de masse du système des trois particules détectées. Il est important de rappeler qu'il ne donne aucune indication sur l'angle de diffusion.

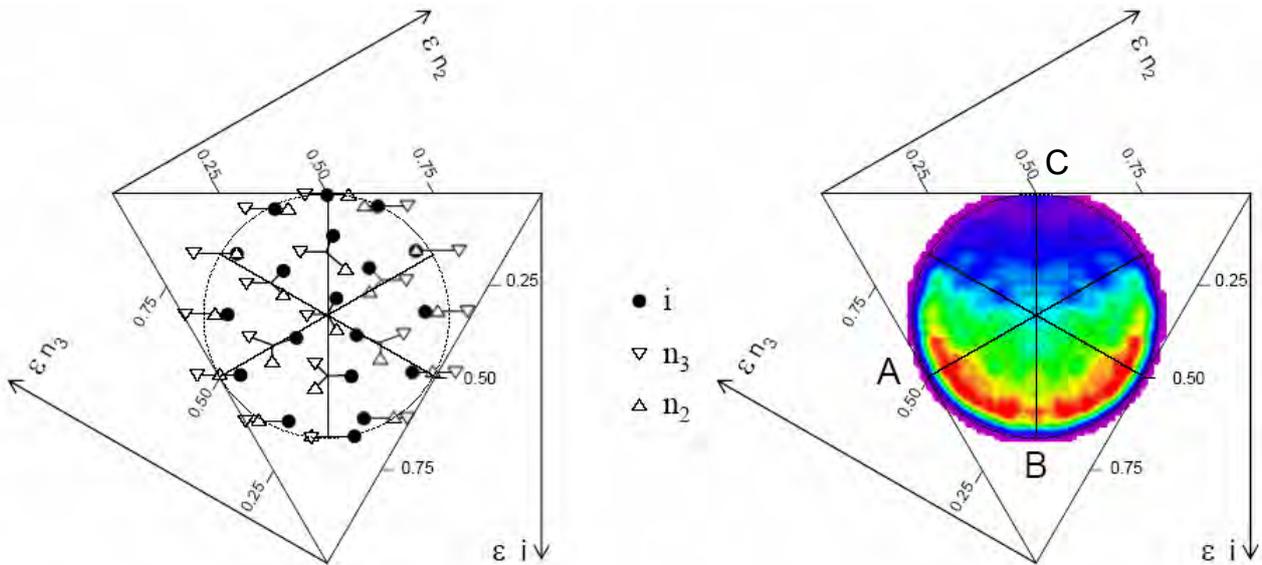


FIG. IV.21.: Diagramme de Dalitz expérimental pour $\chi < 1,5$ degré, à gauche est indiquée la correspondance entre la configuration des vecteurs impulsions des fragments à l'infini et la position sur le diagramme de Dalitz.

Pour cette raison, nous avons construit un diagramme de Dalitz en sélectionnant les événements à petits χ ($< 1,5$ degrés), pour lesquels le transfert d'impulsion est négligeable. Tout d'abord, on remarque l'absence de structure au point C correspondant au cas où le fragment ionique est considéré comme spectateur : la vitesse de l'ion est nulle et l'énergie de dissociation est partagée entre les deux atomes neutres. Ceci indique aussi qu'à petit angle, l'excitation électronique ne peut se produire entre les deux fragments neutres. La structure principale s'étend entre le point A et le point B, elle correspond à une dissociation où un atome neutre est plus ou moins spectateur et l'énergie de dissociation est partagée entre le fragment ionique et seulement un des atomes neutres. Cette structure traduit l'excitation du coeur ionique Ar_2^+ dans un état dissociatif. L'étendue de la structure vers le point B indique que le deuxième atome n'est pas strictement spectateur et peut recevoir une partie de l'énergie de dissociation comme on l'a remarqué dans la corrélation $I(\chi, \Phi_1)$.

En conclusion, on peut caricaturer le CID du système $Ar_3^+ - Ar$ comme suit : lorsque la cible s'approche de l'atome peu lié de Ar_3^+ il ne se produit

qu'un transfert d'impulsion impliquant une dissociation en deux fragments ($\text{Ar}_2^+ + \text{Ar}$). Au contraire, dès les plus grands paramètres d'impact la diffusion de la cible sur le coeur ionique conduit à son excitation électrique induisant une dissociation en trois fragments. Quand le paramètre d'impact diminue la fragmentation électronique s'accompagne d'un transfert d'impulsion. Il n'y a pas de diffusion pseudo élastique du coeur ionique par la cible (mécanisme diatome) comme cela était observé dans le cas du système $\text{Ar}_3^+ - \text{He}$.

IV.4.2. Échange de charge : $\overline{\text{Ar}}_3^+ + \text{Ar} \longrightarrow \overline{\text{Ar}} + \overline{\text{Ar}} + \overline{\text{Ar}} + \text{Ar}^+$

L'analyse complète de la dynamique d'échange de charge de $\text{Ar}_3^+ - \text{Ar}$ n'a jamais été étudiée dans le domaine énergétique du keV. Cette analyse était d'autant plus délicate qu'elle nécessitait la détection en coïncidence de 4 particules dont 3 fragments neutres sans temps mort. A cette difficulté s'ajoute le faible taux de coïncidence induit par une faible efficacité de détection individuelle des fragments conduisant à une efficacité totale [18] $\epsilon \approx (0,2)^4$.

Commençons par présenter la corrélation de l'énergie cinétique relative des trois fragments (KER) avec l'angle de diffusion du centre de masse de l'agrégat (χ) (fig. IV.22) et ses projections selon x et y : $I(\chi)$ et $I(\text{KER})$ respectivement. On peut remarquer que la majorité des événements se passe à des petites valeurs de χ (< 2 degrés) puis disparaît brutalement (chute qui n'est pas imputable à un artefact expérimental). De nouveau l'évolution du KER avec l'angle de diffusion est bien reproduite par le modèle binaire présenté par la courbe rouge (fig. IV.22.a), ce qui indique encore que l'échange de charge dissociatif est accompagné de transfert d'impulsion. Au seuil, la répulsivité de l'état dissociatif est de 1,3 eV.

La figure IV.23 présente les distributions angulaires pour les trois canaux de fragmentation de Ar_3^+ . On remarque la similarité des comportements angulaires pour les deux canaux électroniques CID en trois fragments et DCT. La chute brutale au delà de 2 degrés de la section de DCT indique qu'à petit paramètre d'impact l'échange est inefficace surtout s'il est résonant.

L'énergie totale de dissociation de l'ordre de 1,3 eV est à rapprocher à celle observée dans le cas de l'échange dissociatif de Ar_2^+ (fig. IV.24). L'énergie interne de Ar_3^+ étant inférieure à 200 meV, on peut considérer que le coeur ionique est dans les plus bas niveaux vibrationnels. La figure IV.24 compare les deux distributions d'énergie totale pour l'échange de charge dans les deux systèmes Ar_2^+ et Ar_3^+ . On remarque que la distribution de Ar_3^+ correspond à la composante froide de Ar_2^+ , et les pics attribués à Ar_2^+ chaud et à l'état métastable ont disparu.

Afin de présenter le partage de l'énergie cinétique entre les trois fragments, nous avons construit le diagramme de Dalitz pour les événements sélectionnés à des petits angles de diffusion ($\chi < 1$ degré) (fig. IV.25.a). L'absence d'événements au centre du diagramme nous indique que l'énergie de disso-

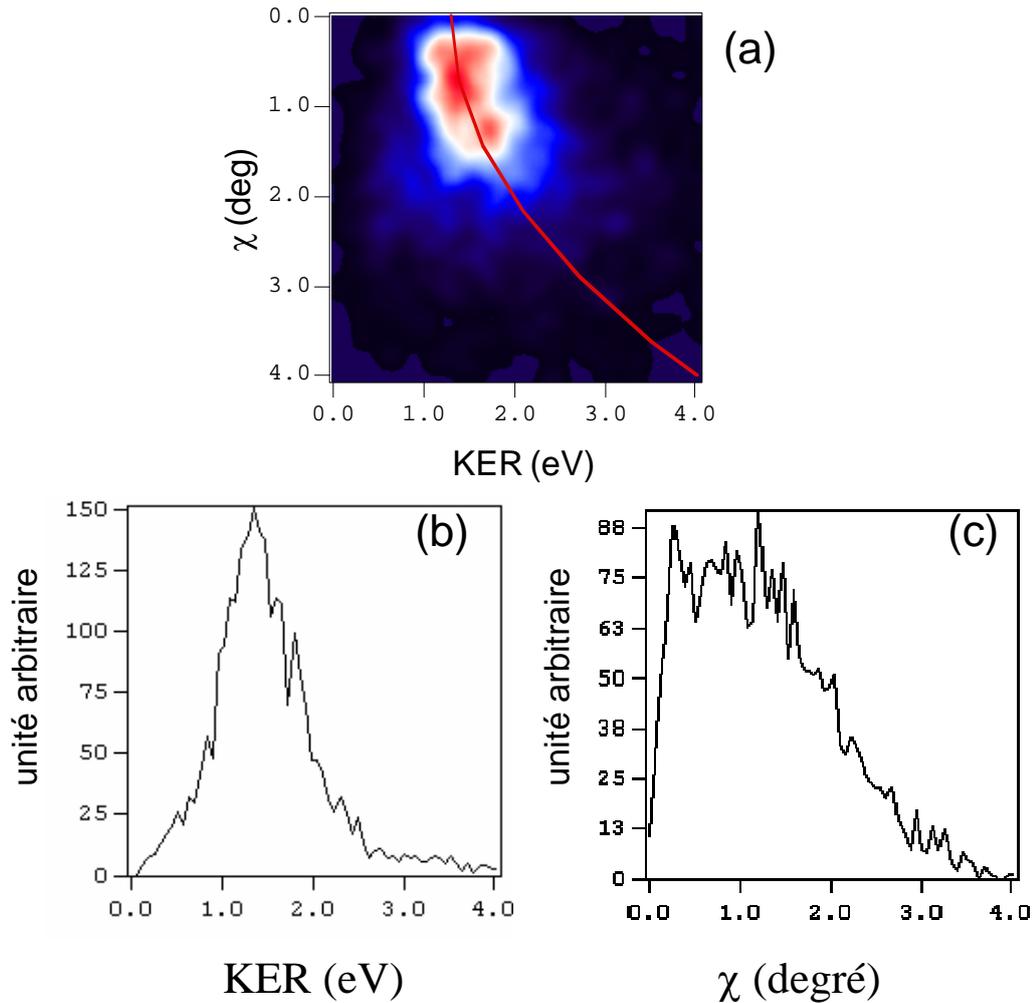


FIG. IV.22.: (a) Section efficace doublement différentielle en angle de diffusion du centre de masse de l'agrégat (χ) et en énergie cinétique relative des fragments (KER). La courbe continue est le résultat du modèle binaire. (b) et (c) sont les projections suivant les axes x et y respectivement.

ciation ne se répartit jamais équitablement entre les trois fragments neutres. Comme dans le cas du CID en trois fragments (§. IV.4.1.2), la majorité des événements correspond à une dissociation donnant lieu à deux fragments se partageant l'énergie alors que le troisième reste spectateur. Nous pouvons interpréter ce résultat, en considérant que l'échange de la charge se produit entre la cible et le coeur ionique Ar_2^+ , le troisième atome peu lié restant spectateur. Ce scénario est compatible avec la forme en T des agrégats Ar_3^+

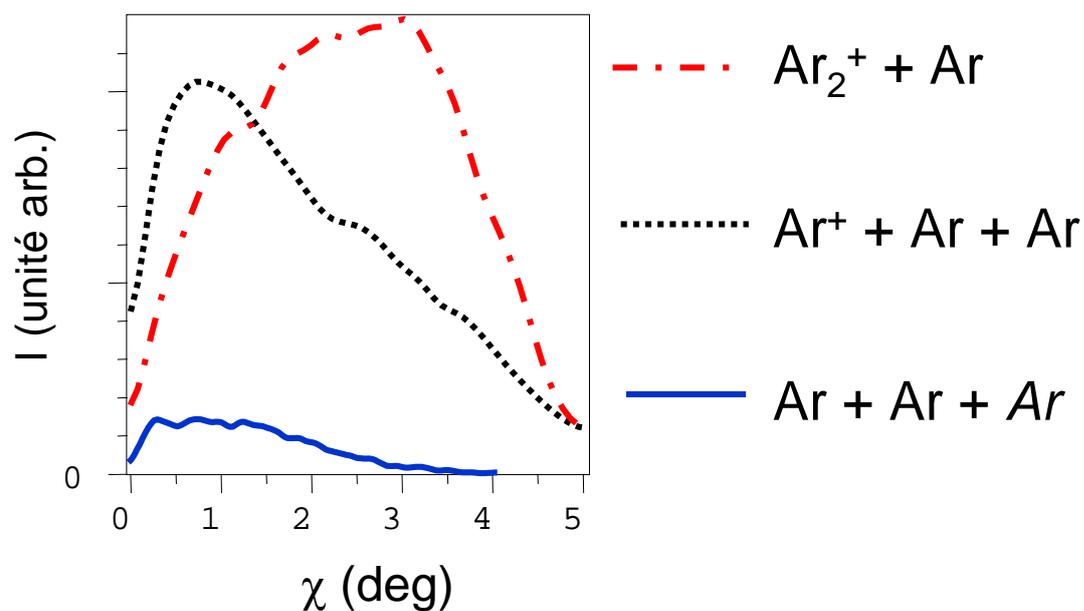


FIG. IV.23.: Distributions angulaires pour les trois canaux de fragmentation de Ar_3^+ .

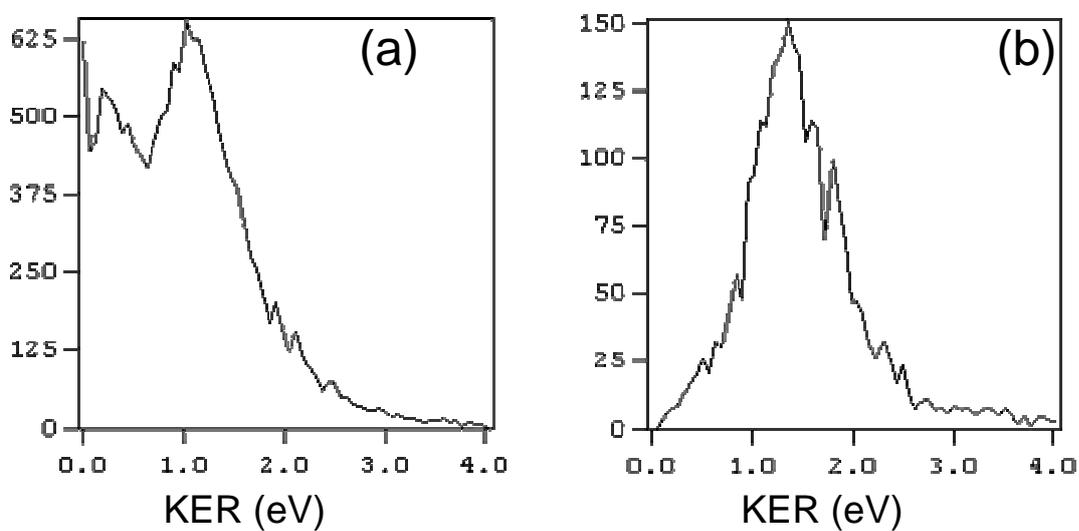


FIG. IV.24.: Distributions d'énergie cinétique totale des fragments pour l'échange de charge dans les deux systèmes : (a) Ar_2^+ et (b) Ar_3^+

dominant dans notre expérience.

Examinons le diagramme de Dalitz en fonction de l'angle de diffusion. Pour $\chi > 1$ degré le transfert d'impulsion s'ajoute à la dissociation électronique comme on la vu sur le diagramme $I(\text{KER}, \chi)$, ce qui complique considérablement le raisonnement. Un transfert d'impulsion peut s'effectuer *a priori* entre la cible et n'importe quel atome du projectile, et donc on s'attendra à des configurations de dissociations très différentes. En effet, selon la violence de la collision (angle χ) le mécanisme collisionnel passe d'un cas "purement électronique" à un cas extrême où le transfert d'impulsion domine avec une particule éjectée les deux autres restant spectateurs, en passant bien évidemment par toutes les configurations intermédiaires. La distribution uniforme du diagramme de Dalitz (fig IV.25.b) rend bien compte de ce scénario. A $\chi > 1,5$ degrés l'observation d'un atome éjecté est clairement vue.

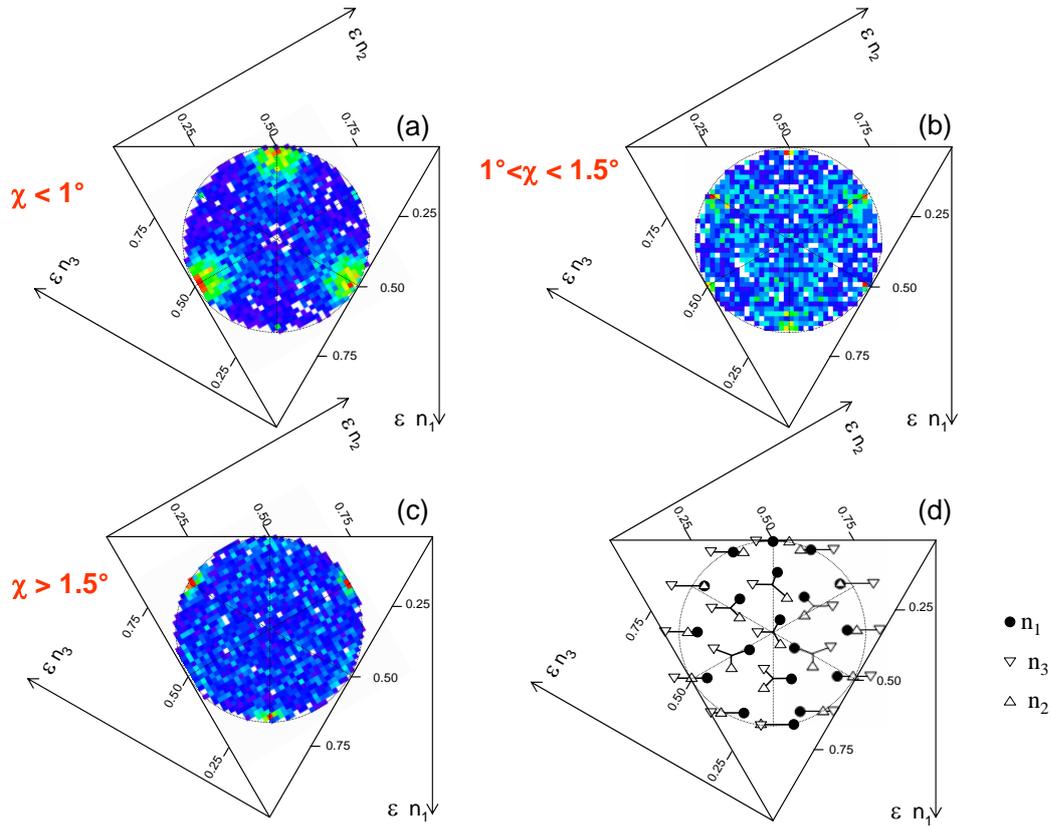


FIG. IV.25.: Diagramme de Dalitz expérimental pour les événements sélectionnés en fonction de l'angle de diffusion : (a) pour $\chi < 1$ degré. (b) pour $1 < \chi < 1,5$ degré et $KER < 1,5eV$. (c) pour $\chi > 1,5$. (d) la correspondance entre la configuration des vecteurs impulsions des fragments à l'infini et la position sur le diagramme de Dalitz.

Pour continuer la comparaison avec le système Ar_2^+ examinons l'orientation de l'axe de dissociation lors du transfert de charge. On se limite au cas des petites valeurs de χ où les effets de transfert d'impulsion sont négligeables. Deux fragments se partagent l'énergie cinétique dans le CM quand le troisième reste spectateur. On définit alors l'angle α_1 comme l'angle entre l'axe de dissociation de ces deux fragments et l'axe de diffusion de l'agrégat. Cette définition est analogue avec celle de α dans le cas de l'échange de charge de Ar_2^+ . La figure IV.26 compare les corrélations I (KER, α) pour les deux systèmes d'échange de charge de Ar_2^+-Ar et Ar_3^+-Ar . De nouveau on remarque que la distribution angulaire pour Ar_3^+ a un comportement similaire à celui de la composante froide de Ar_2^+ .

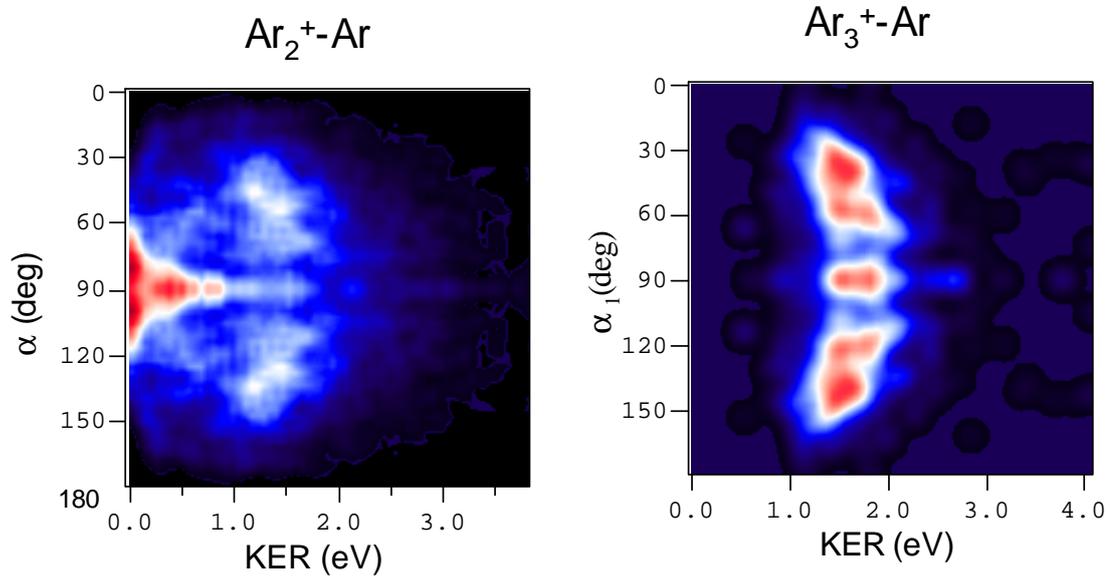


FIG. IV.26.: La corrélation I (KER, α) pour les deux systèmes d'échange de charge de Ar_2^+-Ar et Ar_3^+-Ar .

IV.5. Conclusion

La fragmentation induite par collision de Ar_2^+ est due pour une grande part à un mécanisme de type électronique soit sous forme de transition électronique pour le CID soit par échange de charge.

L'analyse complète de la dynamique de fragmentation du système $\text{Ar}_3^+ - \text{Ar}$

IV. Collision Ar_n^+/Ar

a mis en évidence : *i.* la dissociation en deux fragments est principalement due au transfert de quantité de mouvement entre la cible et l'atome peu lié de l'agrégat. *ii.* l'interaction entre la cible et le coeur chargé est dominée par les processus électroniques induisant la dissociation en trois fragments (comme dans le cas du système $Ar_2^+ - Ar$). *iii.* la forte similitude entre l'échange de charge des systèmes $Ar_2^+ - Ar$ et $Ar_3^+ - Ar$ permet de confirmer que l'échange de charge se passe principalement entre la cible et le coeur chargé, l'atome peu lié de l'agrégat restant spectateur.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] B. J. Whitaker *et al.* J. Chem. Phys. 96, 3666 (1992)
- [2] Y. Chui, S. Pullins, D. J. Levandier, and R. A. Dressler, J. Chem. Phys. 112, 10880 (2000)
- [3] M. Barat, J. C. Brenot, J. A. Fayeton, and Y. J. Picard, J. Chem. Phys. 117, 1497 (2002)
- [4] S. Stephan, A. Stamatovic, and T. D. Märk, Phys. Rev. A, 28, 3105 (1983)
- [5] S. Stephan, and T. D. Märk, Phys. Rev. A, 32, 1447 (1985)
- [6] B. J. Whitaker, C. A. Woodward, P. J. Knowles and A. J. Stace, J. Chem. Phys. 93, 376 (1990)
- [7] A. J. Stace, C. A. Woodward and B. J. Whitaker, Chem. Phys. Lett. 184, 113 (1991)
- [8] J. Fedor, R. Parajuli, S. Matt-Leubner, O. Echt, F. Hagelberg, K. Gluch, A. Stamatovic, M. Probst, P. Scheir, and T. D. Märk, Phys. Rev. Lett. 91, 133401 (2003)
- [9] J. Fedor, K. Gluch, R. Parajuli, S. Matt-Leubner, O. Echt, P. Scheir and T. D. Märk, J. Chem. Phys. 121, 7253 (2004)
- [10] V. Lepère, I. M. Ismail, M. Barat, J. A. Fayeton, Y. Picard, K. Wohrer, C. Jouvét and S. Martrenchar. J. Chem. Phys. 123, 174307 (2005)

Bibliographie

- [11] M. Grigonov and F.Spiegelmann, Surf. Rev. Lett. 3, 211 (1996).
- [12] A.Batista and F.X.Gadea, Z.Phys.D : At., Mol. Clusters 39, 325 (1997).
- [13] D.Hrivnak and R.Kalus, Chem. Phys. 264, 319 (2001)
- [14] F. X. Gadea and I. Paidarová, Chem. Phys. 109, 281 (1996)
- [15] P.C. Engelking, J. Chem. Phys. 87, 936 (1987)
- [16] Dik De Bruijn, thèse de l'Universit  d'Amsterdam (1983)
- [17] M. Barat, J. C. Brenot, H. Dunet, J. A. Fayeton and Y. J. Picard, J. Chem. Phys. 113, 1061 (2000)
- [18] M. Barat, J. C. Brenot, J. A. Fayeton and Y. J. Picard, Rev. Sci. Instrum. 71, 2050 (2000)

CHAPITRE

V

Conclusion

LA fragmentation induite par collision a été étudiée par notre équipe en détail. En particulier, les deux types de mécanismes de fragmentation ont été identifiés : le mécanisme électronique pour lequel l'agrégat est porté dans un état dissociatif à la suite de la perturbation de son nuage électronique et les mécanismes impulsionnels où la quantité de mouvement transférée aux atomes provoque la dissociation rovibrationnelle de la molécule.

Nous avons voulu approfondir nos analyses en les complétant par l'étude de l'échange de charge dissociatif, mécanisme de type électronique qui peut être important à faibles énergies de collision au contraire de l'excitation électronique. L'étude d'une telle fragmentation a impliqué non seulement une modification du spectromètre mais aussi le développement d'une détection multi-particules sensible en temps et en position. Lors de l'échange de charge, la cible lente chargée doit être extraite et accélérée par un champ électrique puis détectée par un détecteur sensible en temps et en position. La deuxième nécessité était de détecter l'ensemble de fragments neutres rapides issus d'un même événement de dissociation, sachant qu'ils sont susceptibles d'arriver sur le détecteur pendant des intervalles de temps s'étalant de zéro

V. Conclusion

à quelques centaines de nanosecondes.

Afin de répondre à cette nécessité, nous avons conçu et réalisé un nouveau type de détecteur *sans temps mort*, sensible en temps et en position et basé sur des galettes de microcanaux. Ce type de détecteur combine une caméra CCD délivrant une mesure précise et sans temps mort des positions d'impact avec un numériseur déterminant sans temps mort et avec une bonne précision les temps d'arrivée. La corrélation entre ces deux éléments est assurée grâce à une anode à lignes à retard capable de fournir les deux informations temps et position mais d'une façon moins précise que les deux autres. Le détecteur peut être utilisé pour la détection de divers types de particules (ions, neutres, photons, électrons) pourvu que leur énergie soit suffisante.

Etant donné, que la caméra CCD est l'élément le plus lent dans le système de détection, elle doit normalement imposer son taux de répétition (1 kHz) à l'ensemble. En fait, nous avons développé une gestion non standard du transfert de l'image de la caméra CCD optimisée en fonction du taux d'événements physiques détectés. Suivant ce taux d'événements, nous avons pu dépasser le taux de répétition de la caméra CCD et atteindre une cadence de 10 kHz dans certains cas.

Avec cet appareil nous avons étudié la collision entre des petits agrégats d'argon et une cible d'argon atomique. L'utilisation de notre détecteur était essentielle pour détecter tous les fragments neutres et donc étudier toutes les voies de fragmentation : la dissociation induite par collision (CID) et l'échange de charge dissociatif (DCT). Une fois enregistrées, les informations temps et position de chaque événement ont été analysées par la méthode des corrélations vectorielles. Elle repose sur la détermination des vecteurs vitesse des fragments détectés en coïncidence et permet de reconstruire complètement la dynamique de fragmentation sans modèle *a priori*.

L'analyse des résultats a montré que la fragmentation induite par collision de Ar_2^+ est due pour une grande part à un mécanisme de type électronique soit sous forme de transition électronique pour le CID soit par échange de charge : le transfert de moment ne vient qu'accompagner la fragmentation électronique. De l'analyse des énergies relatives des fragments issus de l'échange de charge, nous avons montré que le transfert d'électron dépendait fortement de l'énergie interne initiale de l'agrégats (*i.e.* du défaut de résonance) énergie sous forme d'excitation ro-vibrationnelle ou électronique (état

métastable $II(1/2)u$). Ce paramètre a pu être modifié en changeant la pression de stagnation à laquelle ont été formés les agrégats. L'effet de l'énergie interne de Ar_2^+ sur l'échange de charge a été analysé et comparé avec succès à un modèle basé sur une simulation de dynamique moléculaire classique.

L'analyse complète de la dynamique de fragmentation de $Ar_3^+ - Ar$ a demandé de réaliser la coïncidence spatiale et temporelle entre quatre particules dont trois fragments neutres sans temps mort : l'échange de charge de $Ar_3^+ - Ar$ n'avait jamais été étudiée dans le domaine énergétique du keV. Les mécanismes de fragmentation mis en évidence ont été le reflet de la structure même du trimère : les agrégats Ar_3^+ produits dans notre source ont majoritairement la structure d'un dimère chargé (Ar_2^+) autour duquel orbite un troisième atome peu lié. Nous avons montré que la dissociation de l'agrégat en deux fragments ($Ar_2^+ + Ar$) est principalement due au transfert de moment entre la cible et l'atome peu lié de l'agrégat. L'interaction entre la cible et le coeur chargé est quant à elle, dominée par les processus électroniques se produisant à plus grand paramètre d'impact. Ils induisent la dissociation du coeur chargé et donc aussi de l'agrégat en trois fragments. L'analyse des énergies relatives des fragments issus d'échange de charge de Ar_3^+/Ar a révélé une forte similitude avec l'échange de charge Ar_2^+/Ar . En fait, l'échange d'électron se passe entre la cible et le coeur chargé, le troisième atome de l'agrégat restant spectateur. La seule grande différence est que dans le cas de Ar_3^+ le coeur ionique Ar_2^+ est rovibrationnellement peu excité. A la suite de ces expériences on peut se demander quels auraient été les mécanismes de fragmentation si on avait affaire à un trimère froid qui a une structure linéaire dans lequel la charge est répartie sur les trois atomes ?

Ce détecteur sera bientôt monté sur la nouvelle installation «Arc-en-Ciel» qui est dédiée à l'étude de la photo-fragmentation des agrégats et des molécules d'intérêt biologique. Dans ces expériences de photo-fragmentation, plusieurs particules neutres arrivent sur le même détecteur pendant des intervalles de temps relativement brefs. L'utilisation de notre détecteur est parfaitement adaptée à ce type d'expérience d'autant que sa cadence correspond à celle du laser femto seconde utilisé pour la photo-fragmentation.

V. Conclusion

ANNEXE

A

Schéma carte contrôle CTNM3

Dans cette annexe nous présentons le schéma électronique de la carte d'interface CTNM3-PC que nous avons développée. La carte est basée sur l'utilisation d'une carte Kolter PROTO-3 PCI pour assurer la gestion du bus PCI. La carte Kolter reconstitue l'ancienne interface ISA 16 bits des PC AT ou XT¹.

La carte associe un registre de données (Data Register) permettant la lecture des données acquises par le CTNM3, et de deux registres permettant de piloter par un programme l'ensemble des instruments : en entrée un registre de tests (Status Register) et en sortie un registre de contrôle (Control Register) (fig. A.1). La lecture et l'acquittement (ACK) du CTNM3 sont effectués en un seul accès, en associant le signal !R0 avec deux inverseurs (voir figure A.1.b).

¹<http://www.pci-card.com/>

A. Schéma carte contrôle CTNM3

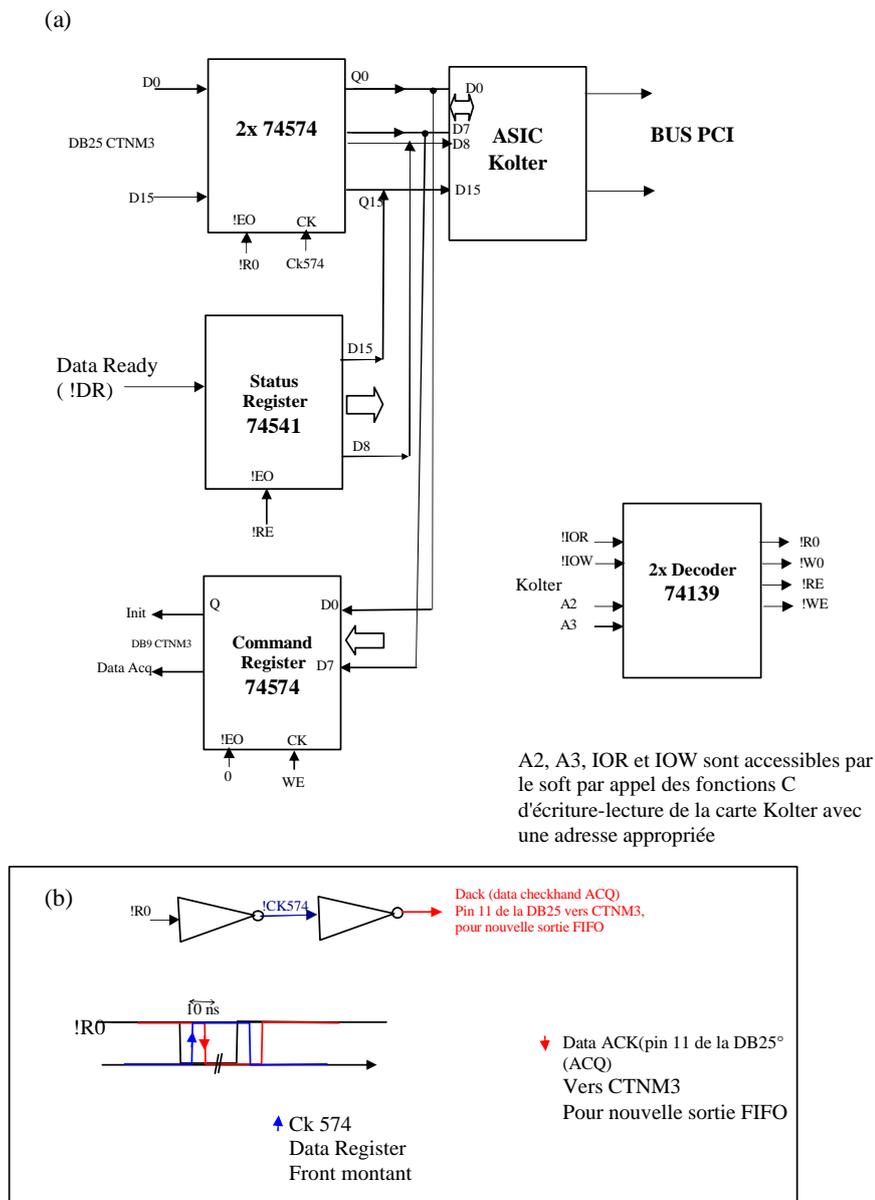
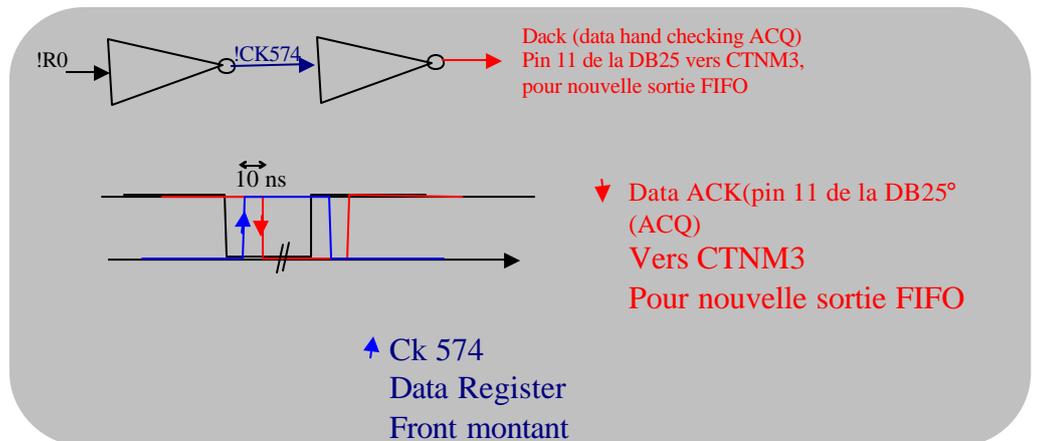
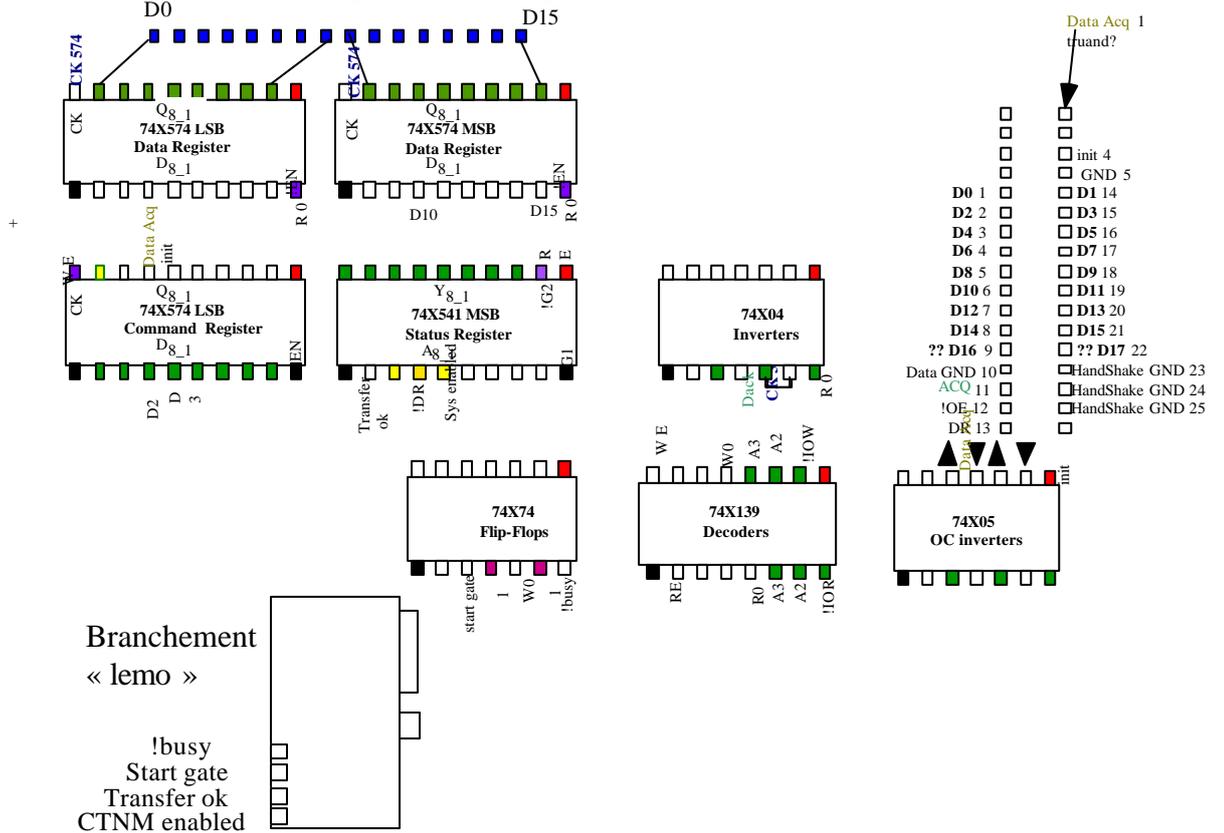


FIG. A.1.: Le schéma électronique de la carte d'interface CTNM3-PC. (b) La lecture et l'acquiescement (ACK) du CTNM3.

Le schéma de câblage est présenté ci-dessous

Control Register 0* xx0c Start 0* xx00 en sortie
 arrêt : 0x0004 Data Register 0* xx00
 arrêt + reset : 0x000c !DataReady : 0x0400
 marche : 0x0000
 Status Register 0* xx0c

attention, ne pas oublier de temporiser le reset (au moins 5 secondes !!!)



A. Schéma carte contrôle CTNM3

ANNEXE

B

La structure des fichiers *.i03

La structure des fichiers *.i03 est présentée sur la figure [B.1](#). Les données sont ordonnées cycle d'acquisition par cycle d'acquisition. Dans un cycle, les données sont regroupées en trois blocs de la façon suivante :

1. Les temps enregistrés par le CTNM3 codés sur 24 bits, suivies par les positions des ions selon leur ordre d'arrivée.
2. Les données du numériseur regroupées en séquence. Le *début* d'une séquence, mesuré par rapport au début de l'acquisition, est codé sur 32 bits (TimeStampL et TimeStampH). Ensuite les points échantillonnés se succèdent en fonction du pas d'échantillonnage (1 ns) et avec un dynamique de 8 bits.
3. Les données caméra sont enregistrées avec la structure (§ [III.9](#)).

B. La structure des fichiers *.i03

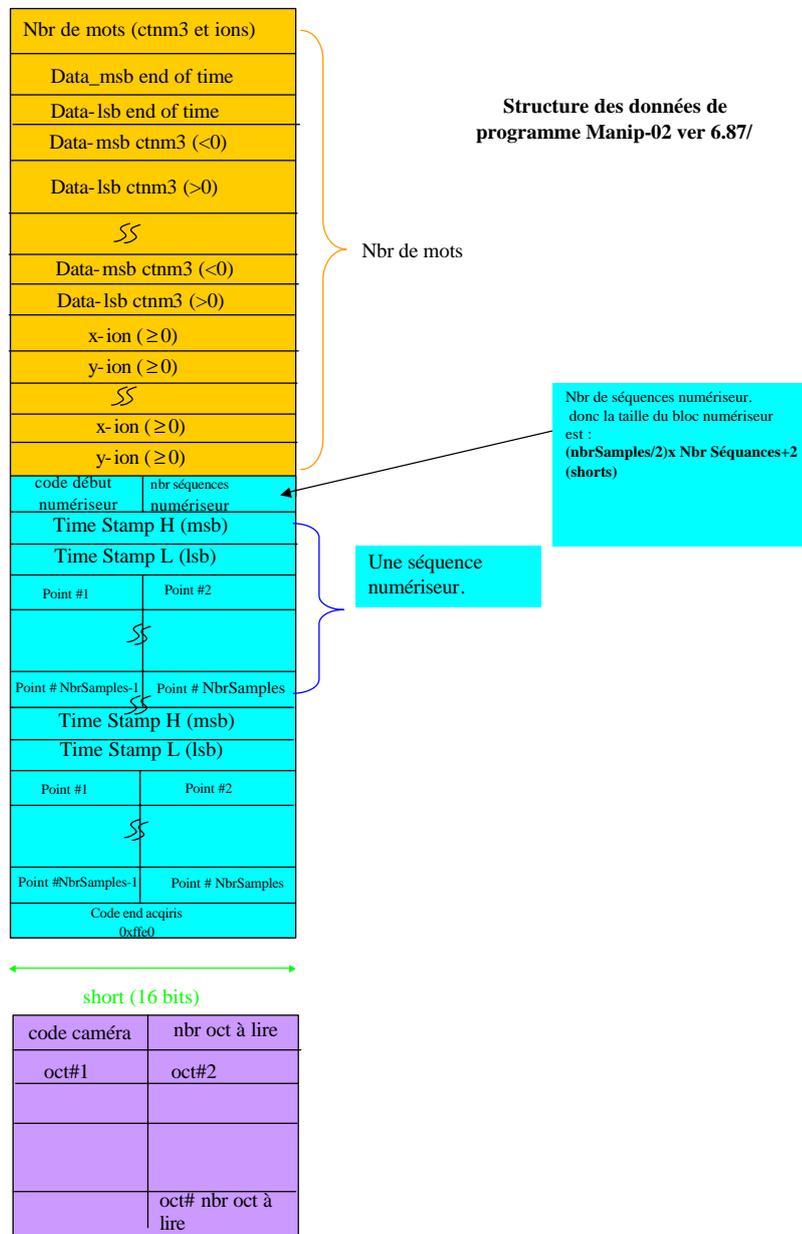


FIG. B.1.: La structure d'un fichier *.i03

A zero dead-time, multihit, time and position sensitive detector based on micro-channel plates

I. M. Ismail,^{a)} M. Barat, J.-C. Brenot, J. A. Fayeton, V. Lepère, and Y. J. Picard^{b)}
*Laboratoire des Collisions Atomiques et Moléculaires (UMR 8625) Université Paris-Sud,
91405 Orsay, Cedex, France*

(Received 9 April 2004; accepted 7 February 2005; published online 1 April 2005)

We have developed a fast multihit position and time sensitive detector with zero dead-time for heavy particles in the keV energy range. This new type of detector makes use of a micro-channel plates (MCP) assembly and combines a detection based on delay line anode with a simultaneous particle imaging with a CCD-camera. The time pickup accuracy is enhanced by digitalizing the MCP biasing signal. This detector, operating at kHz repetition rate, allows a position resolution better than $100\ \mu\text{m}$ and a time resolution better than 100 ps to be achieved. © 2005 American Institute of Physics. [DOI: 10.1063/1.1889326]

I. INTRODUCTION

In many fields of physics, ranging from atomic¹⁻³ and molecular physics⁴⁻¹⁴ to material science,¹⁵⁻¹⁸ the simultaneous detection, resolved in time and position, of several particles produced in a same physical event is required to fully grasp the information. This is the case, for example, in experiments aiming to disentangle the dynamics of the multifragmentation of molecules or clusters accelerated at keV energies.^{4,7,8,11} The fast fragments produced in a given dissociation process may reach the detector within a brief time interval due to small kinetic-energy releases or specific dissociation angles. Such events will be lost if the detector dead time is larger than the difference of their arrival times. A recent study on Na_3^+ fragmentation clearly shows such experimental limitation.¹⁹ Therefore, a reduction of the dead-time of multihit detectors is not just a matter of improving the statistics by reducing the number of lost particles. More important, such systematic loss of events may result in some limitation in the understanding of a physical process.

During the last decade, new techniques of time resolved position sensitive detectors (PSD) using micro-channel plates assemblies (MCPs) have emerged allowing us to tackle this problem. One such type of detector is based on the use of a set of discrete anodes placed behind the MCP assembly.^{17,20-22} All anodes can be independent, each one having his own discriminator and time-to-digital-converter (TDC) channel^{20,21} or, alternatively, several anodes can be connected together and share the same discriminator-TDC channel.²² Such detectors have no dead-time provided that the particles hit different independent anodes, the size of which limits the spatial resolution (e.g., 2.18^{20} and $0.625\ \text{mm}^{22}$). A time resolution of 500 ps is usually obtained. However, this technique requires electronic devices of a complexity drastically increasing with the required spatial

resolution. Another type of PSD based on the delay line anode technique provides a sub-nanosecond time resolution and about a $100\ \mu\text{m}$ position resolution.²³ This detector suffers from a crossed-strip dead zone for the detection of a second particle,²⁴ resulting in a dead-time of several tens of nanoseconds if the two particles hit the detector inside this dead zone. Recently the addition of a third delay line (the Hexanode version of this detector²⁵) allows a reduction of this dead area to a $<16 \times 16\ \text{mm}^2$ surface for simultaneous hits.

A third type of PSD has adopted the CCD-camera technique for recording particle positions in the case of multihit events. Notice that, in contrast to the fast PSD described above, use of CCD-camera imposes a limitation to low acquisition rates, typically below 1 kHz. Two different time-resolving approaches have been developed. The stability of the decay time response of the phosphor screen allows a first type of detector to use the ratio of images intensities integrated on two different CCD-cameras to extract the time information.²⁶ A $50\ \mu\text{m}$ spatial resolution has been obtained. On the other hand, the time resolution of such a device strongly increases with the difference of arrival times between the two detected particles, typically of 0.4 and 2 ns for a 2 and 30 ns arrival time differences, respectively. The resolution drastically degrades for larger time differences. Such a detector also fails detecting particles that hit the detector at very close distance to each other, a limit imposed by the overlapping of the corresponding light spots on the phosphor screen. The second approach combines a CCD-camera with a multianode photo-multiplier tube (PMT).²⁷ This detector has about a 100 ps time resolution and a $100\ \mu\text{m}$ spatial resolution, but it fails to measure the arrival times of particles hitting the same strip of the PMT. Using two PMTs (horizontal and vertical) could eventually resolve this limitation, but this solution will show quickly its limits in the case of three or more particles to be detected. A similar type of detector uses, instead of PMT, a wire array placed between the MCPs and the phosphor screen²⁸ or an array of conductive strips

^{a)}Permanent address: Physics Department, Atomic Energy Commission of Syria, Damascus -P.O. Box 6091, Syria.

^{b)}Electronic mail: picard@lcam.u-psud.fr

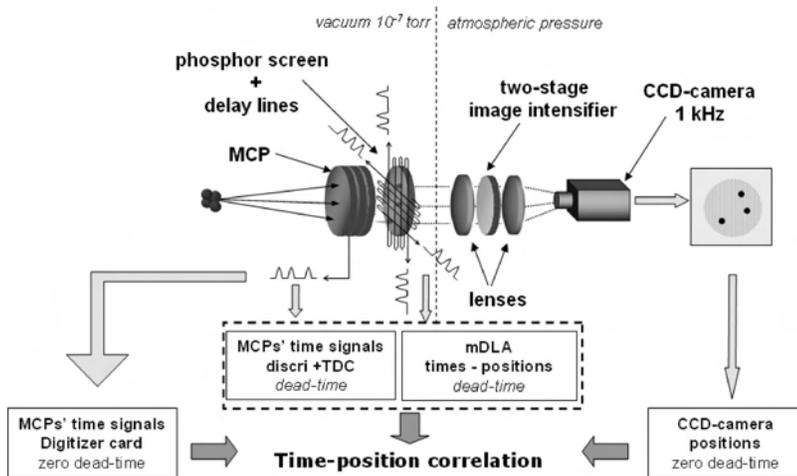


FIG. 1. Detector setup.

covered with phosphorescent material.¹⁸ These two detectors share the same performance but again both types of devices need complex electronics.

In this paper, we describe a new type of fast (kHz) multihit PSD detector based on a combination of the second and third type of detectors, associating the fast detection given by the delay line anode technique with a zero dead time multihit imaging of the CCD-camera. Accurate timing is provided by recording the time pick-up signal by a fast (1 GSample/s) digitizer card.

II. THE DETECTOR SETUP

A simplified drawing of the setup is shown in Fig. 1. The particles hit a stack of two imaging-quality micro-channel plates (MCPs) used in a chevron assembly that provides a gain of $>10^6$. The produced electron avalanche at the MCPs exit passes through two crossed delay lines, and strikes a phosphor screen allowing a CCD-camera to image impact positions. The phosphor screen is polarized to $V_{ph}=+3.3$ kV in order to accelerate the electrons from the back side of the MCPs (connected to ground point).

The position information is obtained by combining two independent read-out sub-systems that operate simultaneously.

The first one is a modified version of a delay line anode (mDLA) located at the exit of the MCPs. The main change primarily consists in inserting a 50 mm diameter P46 phosphor screen in the middle of the metal base plate around which the two delay lines (each one made by two wires called collector and reference) are wrapped (Fig. 2). We also increased the optical transparency (77%) of the delay lines by increasing the thread of the two coils (1 mm between two adjacent wires of 0.125 mm diameter) to improve the amount of electrons reaching the phosphor screen. In our experiment, a signal on the mDLA and a spot on the screen are always simultaneously present (in the case of single impact) showing an efficient sharing of electrons between these sub-systems. Nevertheless, even though some electrons are collected by the DLA wires, it should be mentioned that DLA signals are also due to induction when an electron cloud passes through. The choice of potentials of the collector wire (V), the reference wire (V'), and the phosphor screen

(V_{ph}) plays an important role in DLA behavior. These potentials have been carefully chosen to have the best DLA time signal to noise ratio and are $V_{ph}=+3.3$ kV, $V=+3.9$ kV, and $V'=+3.7$ kV. The focalization effect due to $V-V'$ voltage difference has been simulated by using SIMION 7.0 software. It was found to be rather small giving rise to a slightly reduced electrostatic transparency (75%) and a negligible effect on the position of the electrons spot center-of-mass on the phosphor screen.

The second read-out sub-system consists of a fast CCD-camera (Dalsa CA-D6, nominal 1 kHz repetition rate) that images the phosphor screen. The optical coupling between the phosphor screen and the CCD-camera is insured by a lens of 25 mm focal length and F: 0.95 aperture, a two-stage image intensifier tube (Proxitronic BV 2561 EX-V) of 25 mm diameter and a lens of 4.5 mm and F: 1.4 aperture.

A. Position and time information delivered by the delay lines (mDLA)

The four signals delivered at both ends of the two delay lines, after passing through differential amplifiers (DLA800 Roendek) and (CFD) constant fraction discriminators (CF5201), are recorded with a eight channels time-to-digital converter (CTNM3, IPN Orsay, 250 ps time resolution, 32 ns dead time). The mDLA determines both the position

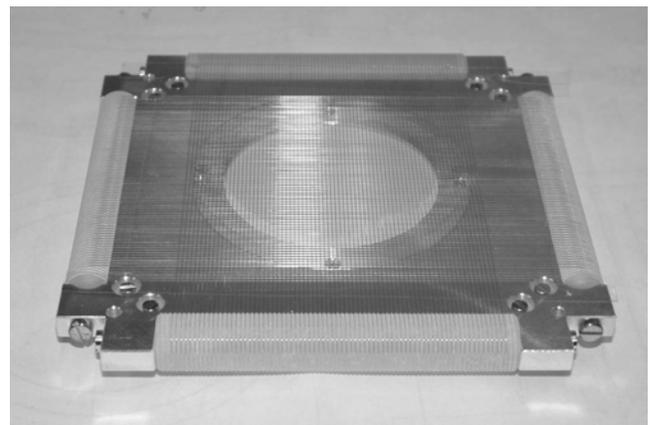


FIG. 2. Photography of the mDLA, showing the phosphor screen inserted in the center of the delay lines.

information, via the differences of arrival times of the signal at both ends of the (vertical and horizontal) coils, and the time information that is taken as the mean value of these four timing data. This provides a “rough” but fast determination of the localization of the particles obtained at the expense of a large (50 ns) dead-time and a $500\ \mu\text{m}$ spatial resolution. This resolution is mainly limited by the time-to-digital converter characteristics.

However, it should be recalled that, as a drawback of the DLA technique, there is a dead area due to the dead-time of the electronics inside which localization of particles hitting the detector might be lost or badly determined. If two particles hit the detector, the second one can either be correctly detected (t , x , y determined), partially localized (t , x , or y determined), or even not detected at all, depending on its localization and its arrival time relatively to those of the first particle.²⁴

B. Position information delivered by the CCD-camera

The output of the CCD-Camera (256×256 pixels $\times 8$ bits) driven by a PCI-card provides a localization of the particles with a zero dead-time. However, the data acquisition is limited by the relatively low repetition rate of the camera. Actually the repetition rate of the CCD-camera is mainly dominated by the time required to transfer an image from the sensitive area to the card memory (1 ms). This time imposes itself as the shortest possible time between two acquisition sequence starts. Therefore, since the CCD-camera is the slowest element of the detector device, it imposes its speed to the overall system. However, in the case of a rather low counting rate, a fast reset procedure can be implemented allowing only images containing relevant information to be transferred. Therefore, the detection system can artificially run at a repetition rate larger than the nominal repetition rate of the CCD-camera. A position resolution more accurate than the CCD-camera pixel size can be achieved thanks to a center-of-gravity averaging routine. We estimate to have a spatial resolution better than $100\ \mu\text{m}$ and a minimum position separation between two spots of the order of 2 mm (Fig. 7). This value, which can be further reduced by decreasing the spot size on the CCD, has to be compared with 8 mm for the Hexanode.²⁵

C. Timing information

As it is usually achieved with MCPs, a fast time pick-up [100 mV, 4 ns full width at half maximum (FWHM) pulse] is obtained from the voltage drop along a resistive divider produced at each particle impact. Accurate time information is obtained after the pulse passing through a CFD and being digitalized by the CTNM3. This time pick-up technique introduces a dead time of about 32 ns. That means that two particles hitting the MCPs within this delay are seen as one particle, or in other words, any additional particle arriving during this delay is lost. In order to overcome this limitation, this time signal is simultaneously recorded by a fast PCI-digitizer card (Acqiris DP110, 250 MHz bandwidth, 1 GSample/s) and its waveform analyzed, allowing a very accurate timing information with zero dead-time. Since the

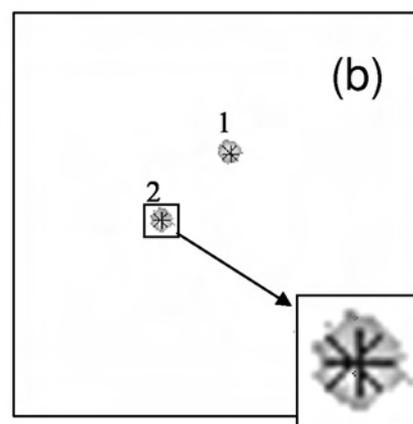
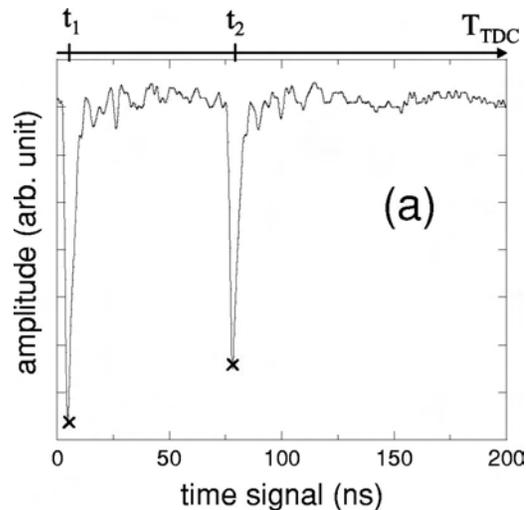


FIG. 3. Typical “double hit” event. (a) Timing signal recorded with the digitizer. On top, t_1 and t_2 are the two time signals recorded by the CTNM3, (x) indicate time resulting from the sampling procedure. (b) Image given by the CCD-camera showing the two spots. (x) center of gravity of the camera spot. (+) Position 1 and 2 provided by the mDLA that are linked to t_1 and t_2 (see text). Insert: Zoom showing the localizations provided by the two localization techniques.

Shannon sampling condition is fulfilled, the over-sampling procedure can be applied and the real continuous time signal can be re-constructed. Consequently, time resolution is only limited by digitizer precision (80 ps) and no longer by the sampling frequency.

D. Data acquisition

The data delivered by the mDLA, the CCD-camera, and the digitizer card are all handled in a PC by a C++ homemade program that controls acquisition and storage of the data. The control program sends a start signal to trigger the CTNM3 (via a homemade PCI-card), that, in turn, triggers the CCD-camera exposure and allows the digitizer to record MCPs time signals. All detection devices are then opened during a software-programmable time, called the “active-window” time. The active-window duration can be set independently of the CCD rate time. At the end of the active-window time, data are transferred to the PC memory, stored, pre-processed and optionally displayed. Then a new acquisition start signal is sent.

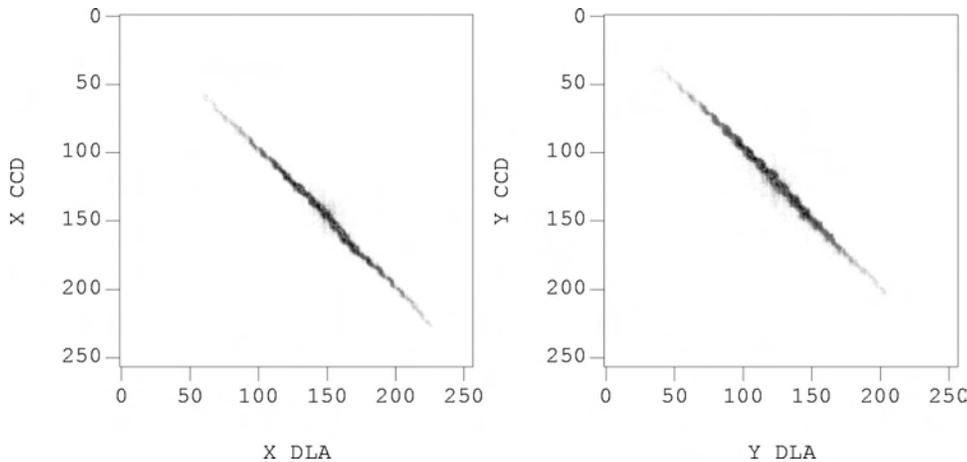


FIG. 4. x and y coordinates determined by the CCD-camera versus that determined by the mDLA for a set of events.

The next task of the software consists to correlate the positions of the particles delivered by the CCD-camera with the accurate timing information provided by the digitizer card. This correlation is possible thanks to the mDLA time resolved positions, all data being acquired during an active-window time, recorded and displayed for on-line immediate control. Later on, off-line treatment is performed in order to correlate the sets of data providing the final zero dead-time and time resolved positions of the particles on the multihit detector.

E. The time-position correlation

Let us consider two particles hitting the detector at t_1 and t_2 arrival times and at different impact positions, respectively. The sum of the time the signals need to propagate along the delay line and of the readout dead-time is about $T=50$ ns. Depending on their arrival time difference (dt) and their relative impact position, the signals on each delay line may overlap. Different cases can be considered:

1. $dt=(t_2-t_1)>T$: The signals do not overlap. The mDLA provides the time and position of the two particles, allowing the correlation of the CCD-camera positions with the corresponding accurate time given by the digitizer card. As the resolution of the camera is better than that of mDLA, the camera position information is always preferred.
2. $dt < T$: Depending on the arrival time difference and the relative localization we can be in three situations.
 - (a) The mDLA correctly detects the two particles. The same treatment as in case 1 applies.
 - (b) The mDLA is able to determine two position coordinates for the first particle, and no position coordinate or only one for the second one. It is clear that in such a case the correlation between the CCD-camera and the mDLA positions for the first particle is done. For the second particle, the leftover CCD-camera position is correlated with the left digitizer time. This correlation may be confirmed by the second particle partial position if any.
 - (c) The mDLA is unable to detect the second particle. The two CCD-camera positions and the two digitizer arrival times are available but the link provided by mDLA is

missing. Although we cannot correctly attribute the position to its appropriate time, these events are not lost and we are still able to calculate, with the time difference, some relative physical quantities such as the relative energy, dissociation, and scattering angles. Still the intensity ratio of the amplitudes of the time signal and the CCD-camera spot integral may resolve the ambiguity.

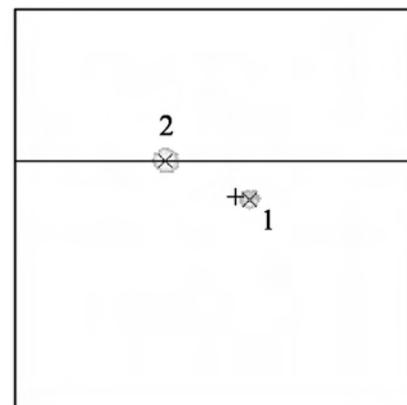
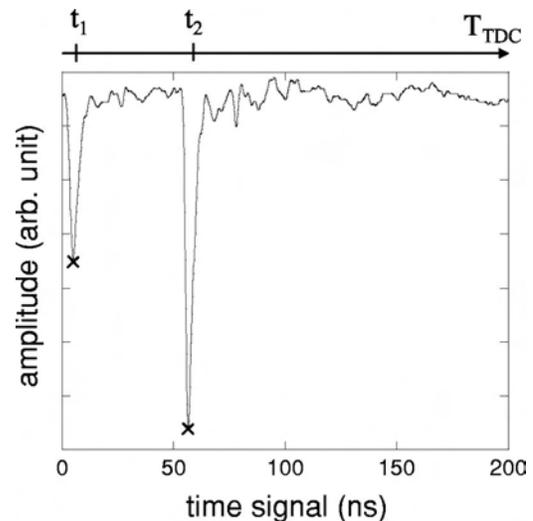


FIG. 5. Same as Fig. 3 when one coordinate determined by the mDLA is missing. It can be noticed that the smaller intensity time signal corresponds to the smaller camera spot.

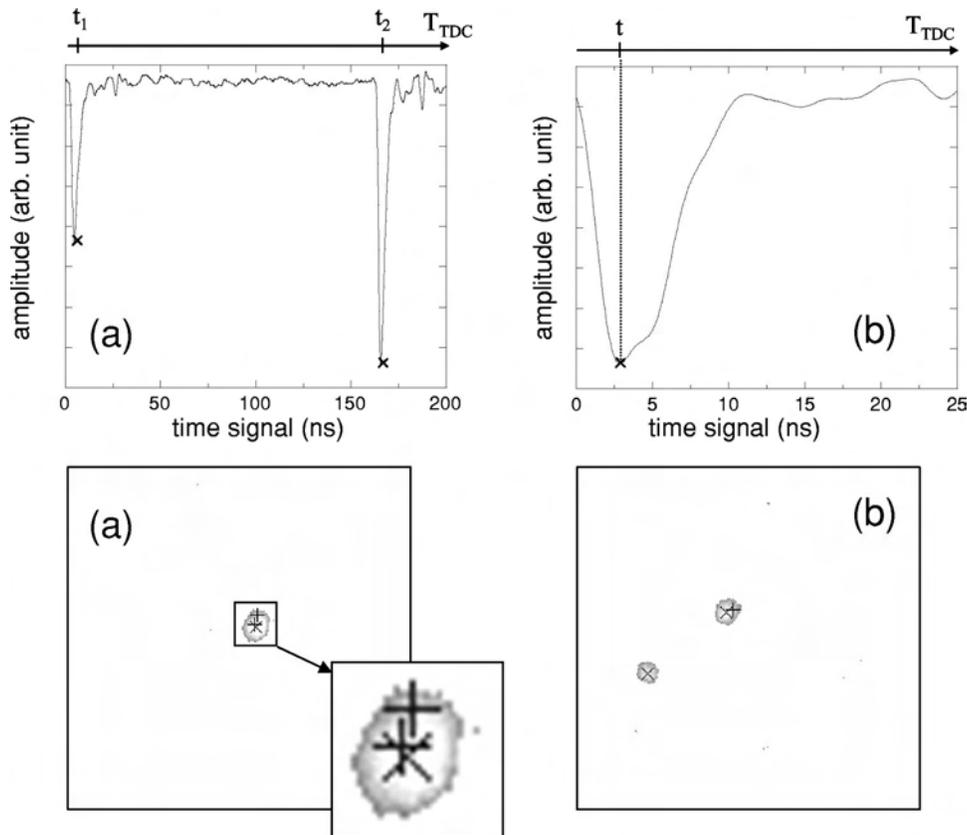


FIG. 6. Same as Fig. 3(a) for events with one visible spot but two times clearly recorded. (b) For events with two well identified spots but a single timing signal. Notice, however, the asymmetry of the shape, a clear signature of the presence of two impacts.

ity (See Fig. 5 as an example of the relation between time signal and CCD spot intensities.)

III. RESULTS AND DISCUSSION

A. Experimental setup

The detector has been tested by studying dissociative electron capture in $\text{Ar}_2^+ + \text{Ar}$ collisions. A detailed description of the experiment can be found elsewhere⁸ and only the main features will be recalled here. An argon cluster beam is produced in a free gas expansion cooled at 173 K, then ionized by 100 eV electron impact, accelerated at a few keV and mass-selected by a Wien filter. The ionic cluster beam then crosses at 90° a cold atomic argon target beam from a supersonic expansion. The fast neutral Ar fragments produced after electron capture fly on straight line and are received on the present detector. For the present experiment, the setup has been modified by adding a recoil ion detector. The slow Ar^+ recoil ion are accelerated by a weak electric field (16 V cm^{-1}) towards an additional PSD based on the resistive anode technique and detected in coincidence with the fast neutral fragments. The electric field configuration of the recoil ion detection device is set within the McLaren conditions allowing a time-of-flight spectrometry of the recoil ion. The two fast Ar neutral fragments, produced in $\text{Ar}_2^+ + \text{Ar} \rightarrow \text{Ar} + \text{Ar} + \text{Ar}^+$ dissociative electron capture process, hit the tested detector within a time interval extending from zero to some hundreds of nanoseconds depending on their relative kinetic energy and the orientation of Ar_2^+ dissociation axis with respect of that of the incident beam. The simultaneous

detection of the Ar_2^+ recoil ion in a triple coincidence detection insures that all hits come from the same physical event.

B. Case study

Figure 3 shows the position and timing data when the two neutral fragments coming from the same event hit the detector with a time difference larger than 50 ns, the mDLA dead time (case 1 of Sec. II E). In this case, the two fragments are localized by both the mDLA and the CCD-camera and then the correlation time position is insured. The enlargement displayed in the insert shows the consistency of the localization provided by the mDLA and the camera, respectively. As a further test of the consistency of the localization provided by the two devices, the correlation between the x and y coordinates determined by the mDLA and the CCD-camera, respectively, displays a clear linear behavior (Fig. 4).

Figure 5 presents a typical case of two neutral fragments hitting the detector with mDLA position signals overlapping (case 2 of Sec. II E). While the mDLA has localized correctly the first fragment, only the y coordinate of the impact of the second fragment has been recorded. However, the correlation between the y coordinates of the second fragment given by the mDLA and the camera, respectively, allows the full identification (positions and times) of the two fragments to still be asserted.

Figure 6(a) illustrates another interesting case. While the camera shows only one spot, the mDLA shows two positions provided that the time difference between the two impacts be $dt > 50 \text{ ns}$. In this case the whole timing and position information is obtained.

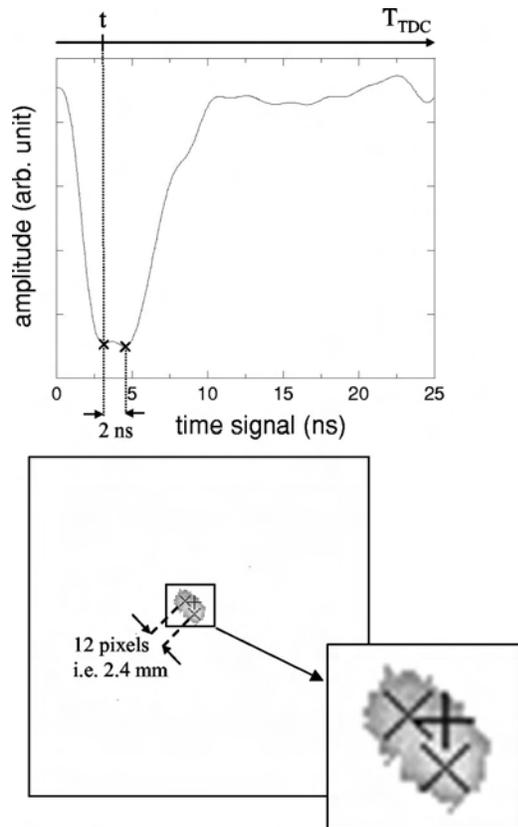


FIG. 7. Same as Fig. 3 for closely lying impacts both in time and position.

In the limit case of Fig. 6(b) while the two fragments are well localized by the camera, the time signal does not allow us to distinction between the two arrival times. In this case, the same arrival time is attributed to both particles.

These examples (Figs. 5 and 6) clearly show the complementarity of the mDLA and CCD sub-systems, each one helping to overcome the limitations of the other.

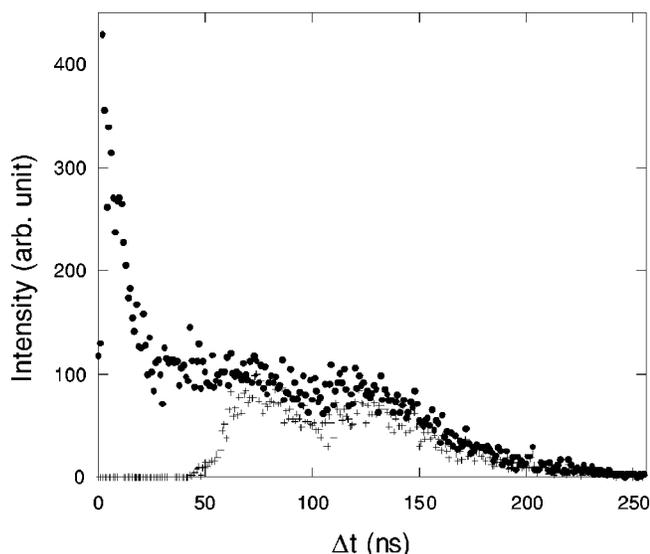


FIG. 8. Distribution of the difference of arrival times of the two Ar fragments resulting from the $\text{Ar}_2^+ + \text{Ar} \rightarrow \text{Ar} + \text{Ar} + \text{Ar}^+$ dissociative electron capture process. Dots: results obtained with the present detector. (+): Result obtained with the delay line detector alone.

In addition, in all cases, the conservation of the neutral fragments and recoil ion total momentum allows an additional confirmation of the event.

As an illustration of a characteristic feature of our detector, Fig. 7 shows that two Ar fragments hitting the detector at a time difference of about 2 ns are still well identified. This very specific situation also demonstrates that the two corresponding spots distant of 12 pixels (2, 4 mm) can easily be identified. This situation corresponds, in this case, to a kinetic-energy release of 60 meV. The distribution of the arrival-time differences of the two Ar neutral fragments, plotted in Fig. 8 shows two contributions: A rather flat plateau for, $\Delta T > 30$ ns and a peak at small ΔT . It is noteworthy that this latter short-time contribution was missed in the previous studies.^{8,19,29} obtained with the standard delay-line PSD (Fig. 8). Such comparison illustrates the improvement brought by the zero dead-time property of the detector. This improvement manifests itself in the data analysis in a non-trivial way since many physical parameters can be simultaneously affected by the dead time.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors thank Bernard Deconihout and Gerald Da Costa for helpful discussions and Karine Wohrer for support and advices during the reviewing process. Iyas Ismail gratefully acknowledges the scholarship grant from the Atomic Energy Commission of Syria.

- ¹A. Huetz and J. Mazeau, Phys. Rev. Lett. **85**, 530 (2000).
- ²A. Dorn, A. Kheifets, C. D. Schröter, B. Najjari, C. Höher, R. Moshhammer, and J. Ullrich, Phys. Rev. A **65**, 032709 (2002).
- ³J. Ullrich, R. Moshhammer, A. Dorn, R. Dörner, L. Ph. H. Schmidt, and H. Schmidt-Böcking, Rep. Prog. Phys. **66**, 1463 (2003).
- ⁴W. Wu and M. H. Prior, Phys. Rev. A **57**, R5 (1998).
- ⁵R. Dörner *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81**, 5776 (1998).
- ⁶L. Adoui *et al.*, Phys. Scr. **T92**, 89 (2001).
- ⁷Alexandra A. Hoops, Ryan T. Bise, Hyeon Choi, and Daniel M. Neumark, Chem. Phys. Lett. **346**, 89 (2001).
- ⁸M. Barat, J. C. Brenot, J. A. Fayeton, and Y. J. Picard, J. Chem. Phys. **117**, 1497 (2002).
- ⁹B. Siegmann, U. Werner, H. O. Lutz, and R. Mann, J. Phys. B **35**, 3755 (2002).
- ¹⁰L. Chen, S. Martin, R. Bredy, J. Bernard, and J. Désesquelles., Europhys. Lett. **58**, 357 (2002).
- ¹¹Todd G. Clements and Robert E. Continetti, Phys. Rev. Lett. **89**, 033005 (2002).
- ¹²Tina S. Einfeld, Christof Maul, Karl-Heinz Gericke, and Alexei Chichinin, J. Chem. Phys. **117**, 4214 (2002).
- ¹³D. Strasser, L. Lammich, H. Kreckel, M. Lange, S. Krohn, D. Schwalm, A. Wolf, and D. Zajfman, Phys. Rev. A **69**, 064702 (2004).
- ¹⁴N. Saito, A. De Fanis, I. Koyano, and K. Ueda, Phys. Scr. **110**, 90 (2004).
- ¹⁵A. Cerezo, J. M. Hyde, M. K. Miller, G. Beverini, R. P. Setna, P. J. Warren, and G. D. W. Smith, Surf. Sci. **266**, 481 (1992).
- ¹⁶D. Blavette, A. Bostel, J. M. Sarrau, B. Deconihout, and A. Menand, Nature **363**, 432 (1993).
- ¹⁷D. Blavette, B. Deconihout, A. Bostel, J. M. Sarrau, M. Bouet, and A. Menand, Rev. Sci. Instrum. **64**, 2911 (1993).
- ¹⁸B. Deconihout, L. Renaud, G. Da Costa, M. Bouet, and D. Blavette, Ultramicroscopy **73**, 253 (1998).
- ¹⁹M. Barat, J. C. Brenot, J. A. Fayeton, Y. J. Picard, D. Babikov, and M. Sizun, Chem. Phys. Lett. **306**, 233 (1999).
- ²⁰S. Bouneau, P. Cohen, S. Della Negra, D. Jacquet, Y. Le Beyec, J. Le Bris, M. Pautrat, and R. Sellem, Rev. Sci. Instrum. **74**, 57 (2003).
- ²¹S. Martin, L. Chen, A. Denis, R. Bredy, J. Bernard, and J. Désesquelles, Phys. Rev. A **62**, 022707 (2000).
- ²²M. Lavollée, Rev. Sci. Instrum. **70**, 2968 (1999).
- ²³O. Jagutzki, J. S. Lapington, L. B.C. Worth, U. Spillmann, V. Mergel, and

- H. Schmidt-Böcking, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **477**, 256 (2002).
- ²⁴O. Jagutzki, V. Mergel, K. Ullmann-Pfleger, L. Spielberger, U. Spillmann, R. Dörner, and H. Schmidt-Böcking, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **477**, 244 (2002).
- ²⁵O. Jagutzki, A. Cerezo, A. Czasch, R. Dörner, M. Hattab, M. Huang, V. Mergel, U. Spillmann, K. Ullmann-Pfleger, T. Weber, H. Schmidt-Böcking, and G. W. Smith, IEEE Trans. Nucl. Sci. **49**, 2477 (2002).
- ²⁶D. Strasser, X. Urbain, H. B. Pedersen, N. Altstein, O. Heber, R. Wester, K. G. Bhushan, and D. Zajfman, Rev. Sci. Instrum. **71**, 3092 (2000).
- ²⁷Z. Amitay and D. Zajfman, Rev. Sci. Instrum. **68**, 1387 (1997).
- ²⁸O. Heber, D. Zajfman, D. Kella, Z. Vager, R. L. Watson, and V. Horvat, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **99**, 90 (1995).
- ²⁹M. Barat, J. C. Brenot, H. Dunet, J. A. Fayeton, and Y. J. Picard, J. Chem. Phys. **113**, 1061 (2000).

Résumé

Nous avons développé un nouveau système de détection *sans temps mort*, résolu en temps et en position et basé sur des galettes de microcanaux. Le principe de ce détecteur est de coupler deux systèmes de détection indépendants qui observent le même événement pour aboutir à leur localisation sans temps mort. Le premier système est constitué d'une caméra CCD capable de fournir l'information position. Le deuxième est constitué d'une carte de numérisation pour enregistrer le signal temps issu des galettes de microcanaux. Le lien entre ces deux systèmes est assuré par une anode constituée de deux lignes à retard, placées derrière les galettes de microcanaux, capable de fournir les deux informations temps et position mais d'une façon moins précise. Ce détecteur opérant au kHz permet d'atteindre une résolution spatiale de 100 μm et temporelle de 100 ps.

Nous avons étudié la fragmentation induite par collision des petits agrégats d'argon (Ar_2^+ et Ar_3^+) avec une cible d'argon atomique dans la gamme des énergies du keV. Toutes les voies de fragmentation : la dissociation induite par collision (CID) et l'échange de charge dissociatif (DCT) sont analysées par la corrélation vectorielle de tous les fragments détectés en coïncidence. En particulier, nous avons montré que le processus DCT dépendait fortement de l'énergie interne initiale de l'agrégat (i.e. du défaut de résonance). La comparaison de diverses observables mesurées en collision $\text{Ar}_2^+ - \text{Ar}$ et $\text{Ar}_3^+ - \text{Ar}$ nous a conduit à conclure que les agrégats Ar_3^+ produits dans notre source ont majoritairement la structure d'un dimère chargé (Ar_2^+) autour duquel orbite un troisième atome peu lié. L'importance des mécanismes électroniques est expliquée par la résonance des systèmes collisionnels étudiés

Abstract

The aim of this work is the development of a fast multi-hit position and time sensitive detector with zero dead-time for heavy particles in the keV energy range. This new type of detector makes use of a micro-channel plates MCP assembly and combines a detection based on delay line anode with a simultaneous particle imaging provided by CCD-camera. The time pickup accuracy is enhanced by digitalizing the MCP biasing signal. This detector, operating at kHz repetition rate, allows a position resolution better than 100 μm and a time resolution better than 100 ps to be achieved.

We have studied the fragmentation induced by collision of small ionic argon clusters (Ar_2^+ and Ar_3^+) with an atomic argon target at keV energies range. All the fragmentation channels: collision induced dissociation (CID) and dissociative charge transfer (DCT) have been analysed by the method of vectorial correlation of all the fragments detected in coincidence. The importance of electronic processes in these collision systems is demonstrated through various results. The dependence of the electron transfer on the initial internal energy of the cluster has been stressed out. Ar_3^+ has been found to be mainly formed of a strongly bound Ar_2^+ core surrounded by loosely linked Ar atom.

Mots clés :

Collision agrégat-atome
Échange de charge
Détection multi-particules
Temps mort
Multi-coïncidence

Key words:

Cluster-atom collision
Charge transfer
Multi-hit detection
Dead-time
Multi-coincidence

Laboratoire des Collisions Atomiques et Moléculaires (2005)

www.lcam.u-psud.fr, iyas_ismail@yahoo.fr