

Etude de l'émission électronique induite par impact d'ion multichargé sur la molécule D2

Guillaume Marc Laurent

▶ **To cite this version:**

Guillaume Marc Laurent. Etude de l'émission électronique induite par impact d'ion multichargé sur la molécule D2. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université de Caen, 2004. Français. NNT : . tel-00203026

HAL Id: tel-00203026
https://theses.hal.science/tel-00203026

Submitted on 8 Jan 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ de CAEN/BASSE-NORMANDIE

U.F.R des Sciences

École doctorale : SIMEM

THÈSE

présentée par

Guillaume LAURENT

et soutenue le 19 Mai 2004 en vue de l'obtention du

DOCTORAT de l'UNIVERSITÉ de CAEN

Spécialité : Milieux dilués et optique fondamentale
(Arrêté du 25 avril 2002)

Étude de l'émission électronique induite par impact d'ion multichargé sur la molécule D_2

Devant la commission d'examen formée de :

M. Jean Pierre GRANDIN, Directeur de Recherche CNRS, Caen	**Directeur de thèse**
M. Alain HUETZ, Directeur de Recherche CNRS, Orsay	**Rapporteur**
M. Azzedine LAHMAM-BENNANI, Professeur des Universités, Orsay	**Rapporteur**
M. Roberto RIVAROLA, Professeur des Universités, Rosario (Argentina)	
M. Amine CASSIMI, Ingénieur CEA, Caen	
M. Xavier FLÉCHARD, Chargé de Recherche CNRS, Caen	

à Nico,



Remerciements

Ce travail a été réalisé au Centre Interdisciplinaire de Recherche Ions Lasers. Je tiens donc à remercier les directeurs successifs, Jean Pierre GRANDIN et Serge BOUFFARD, pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire, et pour avoir offert à notre groupe de recherche, d'excellentes conditions pour mener à bien notre projet. Plus particulièrement, je remercie J.P. GRANDIN qui, grâce à ses qualités de correcteurs, a apporté à ce manuscrit toute la rigueur voulue.

Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance à Azzedine LAHMAM BENNANI et Alain HUETZ pour avoir accepté la lourde charge qui incombe aux rapporteurs du manuscrit de thèse, et m'avoir ainsi donné de nombreux conseils et encouragements pendant la phase finale de la rédaction.

Je remercie également Lamri ADOUI, Amine CASSIMI et Xavier FLECHARD pour leur contribution à la préparation et la réalisation des expériences, et pour les discussions scientifiques toujours fructueuses que nous avons eues. Je remercie très particulièrement Lamri, pour l'écoute, la compréhension et le soutien qu'il m'a apportés.

J'exprime également mes plus sincères remerciements à Roberto RIVAROLA pour m'avoir accueilli dans son laboratoire, et m'avoir fait l'honneur d'accepter d'être membre du Jury. Je remercie, d'autre part, toute l'équipe du groupe de collision atomique de l'Institut de Physique de Rosario pour leur accueil chaleureux, ainsi que Pablo FAINSTEIN du Centre Atomique de Bariloche.

Ma reconnaissance va naturellement à l'ensemble du personnel du laboratoire, secrétaires, techniciens, chercheurs, qui ont toujours su faire preuve de bonne humeur durant les trois années passées en leur compagnie. Je souhaite remercier particulièrement Benoît GERVAIS, Emmanuel BALANZAT, Bernd HUBER, Jean Marc RAMILLON, Patrick GUINEMENT, Laurent MAUNOURY, Francis LEVESQUE, Sylviane LAMOTTE et Linda DE BAEREMAKER pour l'aide qu'ils m'ont fournie.

Je souhaite également remercier l'action ECOS-Sud A98E02, et ses deux responsables Dominique VERNHET et (à nouveau) Pablo FAINSTEIN pour m'avoir offert l'opportunité d'enrichir ma formation scientifique lors du stage effectué, en parallèle, à l'Institut de Physique de Rosario et au Centre Atomique de Bariloche.

Je remercie également les équipes qui m'ont accueilli avant et pendant ma thèse. Je pense particulièrement à l'équipe de Philippe MORETTO et Claire MICHELET au CENBG (Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux Gradignan), ainsi que celle de Michel LAVOLLEE au LURE (Laboratoire pour l'Utilisation du Rayonnement Electromagnétique).

J'ai une pensée particulière pour tous mes amis rencontrés au sein du CIRIL, ainsi que pour tous ceux qui m'ont apporté leur soutien en dehors du laboratoire (en particulier Serge et Sébastien).

Pour terminer, je tiens également à remercier chaleureusement Cécile et ma famille, car ce sont véritablement elles, qui, chaque jour, m'ont fourni la plus fidèle de toutes les aides.

Table des matières

Introduction **1**

1 Interaction ion-H_2 : état des lieux **5**

1.1 Présentation de la collision entre un ion et la molécule H_2 6

1.1.1 Les processus d'ionisation directe 7

1.1.2 Les processus d'excitation 9

1.2 Etude de la molécule H_2 par l'analyse des propriétés des fragments ioniques 11

1.2.1 Distributions d'énergie des fragments ioniques 11

1.2.2 Section efficace des différents processus 14

1.2.3 Distributions angulaires des fragments ioniques 17

1.3 Etude de la molécule H_2 à travers les propriétés de l'émission électronique 19

1.3.1 Etude du système collisionnel ion-H_2 : Effet de centre 21

1.3.2 Etude des propriétés moléculaires : Effet d'interférence 28

1.4 Conclusions : corrélation vectorielle 31

2 Dispositif expérimental **33**

2.1 Principe de fonctionnement du dispositif expérimental. 34

2.2 Caractéristiques du faisceau d'ions 35

2.2.1 L'accélérateur d'ions lourds GANIL 35

2.2.2 Structure temporelle du faisceau d'ions 36

2.3 Description du jet supersonique 37

2.3.1 Principe de fonctionnement 37

2.3.2 Le générateur de jet et le système de pompage 38

2.3.3 Caractéristiques du jet 40

2.4 Le double spectromètre de vitesse 41

2.4.1 Structure du spectromètre 42

2.4.2 Les champs 45

2.5 Le détecteur sensible en position 48

2.5.1 Principe de fonctionnement du détecteur 49

2.5.2 Les galettes à micro-canaux 49
2.5.3 Les anodes à lignes à retard 51
2.6 Traitement des signaux et acquisition des données 53
2.6.1 Prise de temps et mesure des durées 53
2.6.2 Chronologie de la mesure 57
2.7 Conclusion 58

3 Etude du spectromètre de vitesse 61
3.1 Principe général du double spectromètre de vitesse 62
3.1.1 Action d'un champ électrique 62
3.1.2 Action conjuguée d'un champ magnétique et électrique 63
3.2 Equations du mouvement 64
3.2.1 Détermination du temps de vol 65
3.2.2 Détermination des coordonnées de position 68
3.2.3 Conclusion 69
3.3 Caractéristiques des observables 69
3.3.1 Observable *'temps de vol'* 69
3.3.2 Observable *'Position'* 71
3.4 Détermination des composantes de vitesse 76
3.4.1 Détermination de la composante de vitesse V_{0x} 76
3.4.2 Détermination des composantes V_{0y} et V_{0z} 80
3.5 Précision sur la mesure des composantes 81
3.5.1 Précision sur la détermination de la composante V_{0x} 81
3.5.2 Incertitude sur la mesure des composantes V_{0y} et V_{0z} 84
3.6 Efficacité de collection 86
3.6.1 Efficacité de détection des ions 86
3.6.2 Efficacité de détection des électrons 88
3.7 Conclusion : optimisation du spectromètre 90

4 Analyse des données 93
4.1 Observables significatives *Temps de vol* et *Positions* 95
4.1.1 Observable significative *Temps de vol* 95
4.1.2 Observables significatives *Positions (Y,Z)* 98
4.2 Détermination de l'intensité des champs et des origines spatiale et temporelle 101
4.2.1 Détermination du champ d'extraction et de l'origine temporelle des ions 101
4.2.2 Détermination de l'origine des positions des ions 104

4.2.3 Détermination de l'intensité du champ magnétique, et des origines temporelle et spatiale des électrons . . . 106
4.2.4 Détermination de la vitesse longitudinale des molécules dans le jet, et des dimensions de la zone de collision . . . 110
4.3 Sélection des différents processus d'ionisation . . . 112
4.3.1 Sélection du processus d'ionisation non-dissociative . . . 112
4.3.2 Sélection du processus de double ionisation . . . 113
4.3.3 Sélection du processus d'ionisation dissociative . . . 113
4.4 Efficacité de détection des particules . . . 117
4.4.1 Cas des ions . . . 117
4.4.2 Cas des électrons . . . 118
4.5 Précision sur la mesure des énergies et des angles d'émission . . . 119
4.5.1 Précision sur la mesure de l'énergie . . . 120
4.5.2 Précision sur la mesure des angles . . . 120
4.6 Conclusion . . . 123

5 Etude du système 13.6 MeV/u S^{15+}-D_2, par la mesure des corrélations vectorielles 125
5.1 Les différents processus d'ionisation : rappel . . . 126
5.2 Corrélation en énergie . . . 127
5.2.1 Distribution en énergie des fragments D^+ . . . 127
5.2.2 Distribution en énergie des électrons . . . 130
5.2.3 Diagramme de corrélation en énergie . . . 131
5.2.4 Etude quantitative de la contribution des différents processus d'ionisation . . . 134
5.2.5 Conclusions . . . 140
5.3 Corrélation angulaire . . . 141
5.3.1 Etude de l'émission électronique par la méthode CDW-EIS . . . 142
5.3.2 Section efficace d'émission électronique différentielle en angle et en énergie . . . 149

Conclusion 153

Annexes et Références 157

A Equations du mouvement 159
A.1 Configuration du spectromètre . . . 159

A.2 Mise en équation 160
A.3 Action du champ magnétique 162
A.3.1 Détermination des positions 162
A.3.2 Inversion positions-vitesses initiales transverses 163
A.4 Action du champ électrique 163
A.4.1 Détermination du temps de vol 164
A.4.2 Inversion Temps-vitesse initiale longitudinale 166

B Détermination des angles d'émission (θ, φ) des particules 171
B.1 Définition des angles d'émission (θ, φ) 171
B.2 Relation entre les angles (θ, φ) et les composantes du vecteur vitesse initiale (V_{0x}, V_{0y}, V_{0z}) 172

C Programme de simulation Monte Carlo 175
C.1 Présentation du programme 175
C.2 Structure du programme 177

Références bibliographiques 179

Introduction

Ce travail de thèse a été réalisé au Centre Interdisciplinaire de Recherche Ions Lasers (CIRIL), laboratoire qui consacre une part importante de ses activités à l'étude de l'interaction des ions multichargés avec la matière. Cette problématique fait l'objet au sein du CIRIL d'une approche pluridisciplinaire allant de l'étude des mécanismes élémentaires de collision et de la relaxation de molécules isolées jusqu'à celle des modifications induites dans les matériaux les plus complexes (inorganiques, organiques et biologiques) en passant par l'étude des mécanismes d'endommagement. Dans ce cadre, nous avons estimé que l'étude de la molécule d'hydrogène [1] présentait un intérêt fondamental utile pour la compréhension de systèmes plus complexes comme des molécules polyatomiques ou des agrégats. La structure moléculaire simple de cette cible permet aussi bien d'étudier les caractéristiques de l'interaction d'un point de vue expérimental que théorique, ce qui laisse espérer d'atteindre le meilleur niveau possible de compréhension des mécanismes gouvernant la collision.

Lors de l'interaction entre un ion multichargé rapide et la molécule H_2, le processus primaire prépondérant pour le dépôt d'énergie est l'ionisation de la molécule. De nombreux résultats, aussi bien expérimentaux que théoriques ont été obtenus concernant ce processus. Notamment, les différents mécanismes d'ionisation responsables de la fragmentation de la molécule ont fait l'objet de plusieurs études par l'analyse des caractéristiques cinématiques des fragments produits. Cette approche a permis d'obtenir de premières mesures de sections efficaces de ces mécanismes. Néanmoins, l'étude des seules caractéristiques cinématiques des fragments ne permet pas pleinement d'isoler la contribution des différents mécanismes.

De façon complémentaire, l'étude des caractéristiques des électrons émis par la molécule est un autre moyen de signer le processus d'ionisation. De récentes études théoriques ont montré que dans le cas de la molécule H_2, les deux noyaux d'hydrogène (indiscernables) peuvent contribuer de façon cohérente à l'émission électronique, donnant ainsi naissance

1. Bien que, pour des raisons qui seront expliquées plus loin, l'étude expérimentale ait été effectuée sur la molécule D_2, nous utiliserons généralement dans la suite de ce mémoire les termes de molécule d'hydrogène ou molécule H_2.

à des figures d'interférence dans les sections efficaces doublement différentielles en angle et énergie des électrons émis. Ces travaux ont fait l'objet d'un début de confirmation expérimentale. Toutefois, une partie de l'information est perdue dès lors que l'expérience ne permet pas de déterminer l'orientation de la molécule par rapport à la direction du faisceau incident. La connaissance des sections efficaces multi-différentielles en fonction du moment de l'électron dans l'état final et de l'orientation initiale de la molécule serait certainement d'un grand intérêt pour comprendre ce processus.

Dans la continuité de ces travaux, l'étude des corrélations vectorielles entre les vecteurs impulsions des fragments et des électrons émis à la suite de la collision, constitue une approche très prometteuse pour la compréhension du processus d'ionisation de la molécule H_2. Des mesures en corrélation, limitées à quelques états des ions moléculaires H_2^+ et H_2^{2+}, ont déjà été effectuées dans le cadre de la photoionisation. En revanche, dans le cadre des collisions ion-H_2, aucune mesure en corrélation n'a été rapportée jusqu'à aujourd'hui. Nous nous proposons de réaliser une mesure complète des corrélations vectorielles entre les vecteurs impulsions des électrons et des fragments chargés produits lors de la collision. D'une part, la corrélation en énergie nous permettra de mettre distinctement en évidence la contribution des différents mécanismes d'ionisation. D'autre part, à partir des corrélations angulaires, nous aurons accès aux distributions angulaires d'émission électronique dans le repère de la molécule.

La mesure des corrélations a nécessité la réalisation d'un nouvel appareillage permettant la détection en coïncidence de toutes les particules chargées produites lors de la collision. La mesure du temps de vol et de la position d'impact sur un détecteur sensible en position de chacune des particules permet de déterminer leur vecteur impulsion. Dans le cadre de l'approximation du recul axial, valable si le temps caractéristique de la fragmentation de la molécule est très nettement inférieur à sa période de rotation (10^{-10} s), l'exploitation de cette technique permet d'autre part de connaître *a posteriori* l'orientation initiale de la molécule par rapport à la direction du faisceau.

Ce mémoire est composé de cinq chapitres. Le premier chapitre constitue une synthèse bibliographique des différentes études centrées sur l'interaction entre un ion projectile et la molécule H_2. Nous y présenterons des résultats issus des nombreux travaux concernant l'analyse des caractéristiques cinématiques des fragments ioniques et des électrons produits lors de la collision.
Le second chapitre présente le dispositif expérimental employé pour notre étude. Nous décrirons les caractéristiques des différents composants du dispositif : le faisceau d'ion projectile, le générateur de cible, les détecteurs, ainsi que la chaîne électronique d'acquisition des signaux issus des détecteurs. Ce chapitre sera complété par le chapitre 3, consacré à la description du double spectromètre de vitesse. Le spectromètre constituant la pièce

maîtresse du dispositif a fait l'objet d'une attention particulière lors de son élaboration (choix de la géométrie et de l'intensité des champs employées). Nous discuterons des différents critères et des choix qui nous ont conduit à son optimisation.
Le quatrième chapitre est consacré à la description des méthodes d'analyse des données. Nous décrirons les différentes étapes du protocole mis en oeuvre pour extraire les résultats souhaités du flot de données enregistrées.
Enfin, le cinquième chapitre est dédié à la présentation de nos résultats. Nous verrons dans un premier temps comment la contribution des différents processus d'ionisation dissociative peut être déterminée à partir de la corrélation en énergie entre le fragment D^+ et l'électron produits. Puis, nous terminerons ce chapitre par la présentation des résultats sur les caractéristiques de l'émission électronique dans le repère de la molécule. Ces caractéristiques seront décrites d'un point de vue théorique et expérimental.

Chapitre 1

Interaction ion-H_2 : état des lieux

Sommaire

1.1 Présentation de la collision entre un ion et la molécule H_2 . . 6

1.1.1 Les processus d'ionisation directe 7

1.1.2 Les processus d'excitation 9

1.2 Etude de la molécule H_2 par l'analyse des propriétés des fragments ioniques 11

1.2.1 Distributions d'énergie des fragments ioniques 11

1.2.2 Section efficace des différents processus 14

1.2.3 Distributions angulaires des fragments ioniques 17

1.3 Etude de la molécule H_2 à travers les propriétés de l'émission électronique 19

1.3.1 Etude du système collisionnel ion-H_2 : Effet de centre 21

1.3.2 Etude des propriétés moléculaires : Effet d'interférence 28

1.4 Conclusions : corrélation vectorielle 31

Ce premier chapitre constitue une synthèse bibliographique des différentes études centrées sur l'interaction entre un ion projectile et une molécule d'hydrogène. Dans une première partie, nous présenterons succinctement les principales caractéristiques des collisions entre un ion et la molécule H_2. Puis, dans les deux parties suivantes, nous verrons comment ces différentes propriétés ont été décrites par la mesure des grandeurs caractéristiques (distributions d'énergie, distributions angulaires) des fragments ioniques et des électrons créés lors de la collision.

1.1 Présentation de la collision entre un ion et la molécule H_2

Si l'on ne considère que ce qu'il advient de la molécule cible, plusieurs processus sont susceptibles de se produire, lors de l'interaction entre un ion et la molécule H_2. On en distingue deux catégories, suivant les caractéristiques de l'énergie transférée entre le projectile et la molécule cible. Lorsque l'énergie transférée n'est pas quantifiée, le processus est dit non-résonnant. C'est le cas par exemple des processus de simple ionisation et de double ionisation de la cible, pour lesquels la distribution d'énergie du ou des électrons émis, est continue :

$$\text{simple ionisation :} \qquad X^{z+} + H_2 \longrightarrow X^{z+} + H_2^+ + e^- \tag{1.1}$$

$$\text{double ionisation :} \qquad X^{z+} + H_2 \longrightarrow X^{z+} + H^+ + H^+ + 2e^- \tag{1.2}$$

A l'inverse, les processus sont dits résonnants, lorsque l'énergie transférée obéit aux règles de quantification imposées par l'écart énergétique existant entre les niveaux d'énergie de la molécule, ou de l'ion projectile. C'est le cas du processus d'excitation des électrons de la cible :

$$\text{simple excitation :} \qquad X^{z+} + H_2(1s^2) \longrightarrow X^{z+} + H_2^*(1s,n\ell) \tag{1.3}$$

$$\text{double excitation :} \qquad X^{z+} + H_2(1s^2) \longrightarrow X^{z+} + H_2^{**}(n\ell,n'\ell') \tag{1.4}$$

ou, des processus de capture électronique d'un ou des deux électrons de la molécule par le projectile :

$$\text{simple capture :} \qquad X^{z+} + H_2 \longrightarrow X^{(z-1)+} + H_2^+ \tag{1.5}$$

$$\text{double capture :} \qquad X^{z+} + H_2 \longrightarrow X^{(z-2)+} + H^+ + H^+ \tag{1.6}$$

Pour un projectile donné, l'importance relative de ces processus varie avec le rapport V_p/V_e, entre la vitesse du projectile V_p et celle de l'électron actif de la cible V_e. Trois domaines de vitesse sont généralement considérés :

- le domaine des hautes vitesses de collision $\quad V_p/V_e \gg 1$
- le domaine des vitesses intermédiaires $\quad V_p/V_e \approx 1$
- le domaine des basses vitesses $\quad V_p/V_e \ll 1$

Dans le cas particulier de notre étude, la vitesse du projectile ($^{32}S^{15+}$ à 13.6 MeV/u)

de l'ordre de 23.32 u.a., est très nettement supérieure à la vitesse des électrons dans la molécule H_2. Par conséquent, les collisions induites par ces ions s'inscrivent dans le régime des hautes vitesses. Ainsi, seuls les processus d'ionisation et d'excitation, qui dominent dans le régime des hautes vitesses, retiendront dorénavant notre attention.
A la suite de la collision, les états de la molécule H_2, et des ions moléculaires H_2^+ et H_2^{2+} peuvent être peuplés, par les processus décrits précédemment. La figure 1.1 représente les courbes d'énergie potentielle des premiers états de l'ion moléculaire H_2^+, et de quelques états doublement excités de H_2. L'état fondamental de la molécule H_2 $X^1\Sigma_g^+$ $(1s\sigma_g^2)$ admet un minimum d'énergie pour une distance internucléaire d'équilibre r_{H_2} entre les deux noyaux d'environ 1.42 u.a. La vibration de la molécule autour de cette distance d'équilibre est symbolisée par la fonction gaussienne, dont la largeur à mi-hauteur est voisine de 0.39 u.a. Pour le domaine de vitesse du projectile considéré, la durée d'interaction, de l'ordre de 10^{-17} s, est bien inférieure aux temps caractéristiques de la molécule (tels que la période de vibration qui est de l'ordre de 10^{-13} s). Pendant cette durée, les dimensions moléculaires demeurent alors inchangées. On peut donc considérer que la transition entre l'état fondamental de la molécule H_2, et un état d'énergie supérieure de H_2, H_2^+, ou H_2^{2+}, est du type *'transition Franck-Condon'*, ou transition verticale [Con28] (cf. figure 1.1).
Enfin, notons que le nombre d'électrons impliqués, ainsi que la nature des particules présentes dans l'état final, diffèrent en fonction du processus produit lors de l'interaction.

1.1.1 Les processus d'ionisation directe

Le processus de simple ionisation (SI) est produit par l'interaction du projectile avec un seul électron de la cible. Il conduit majoritairement à la formation de l'ion moléculaire H_2^+ dans son état fondamental $X^2\Sigma_g^+(1s\sigma_g)$. Toutefois, compte tenu de la distribution des distances internucléaires autour de la distance d'équilibre, des états du continuum vibrationnel de l'état fondamental électronique de l'ion moléculaire peuvent être peuplés. Ce processus de simple ionisation dissociative (SID) conduit alors à la dissociation de l'ion moléculaire, formant ainsi, un proton et un atome neutre d'hydrogène dans son état fondamental.
Le processus d'ionisation-excitation (IE) implique les deux électrons de la cible. Un électron est émis dans le continuum suite à une ionisation directe, tandis que l'ion moléculaire résultant se trouve dans un état excité. Tous les états excités de l'ion H_2^+ sont dissociatifs, et conduisent donc à la formation d'un proton et d'un atome d'hydrogène dans une sous-couche électronique excitée $n\ell$.
Le processus de double ionisation (DI), comme le processus d'ionisation-excitation, implique les deux électrons de la cible. L'ion moléculaire H_2^{2+} ne peut alors que se frag-

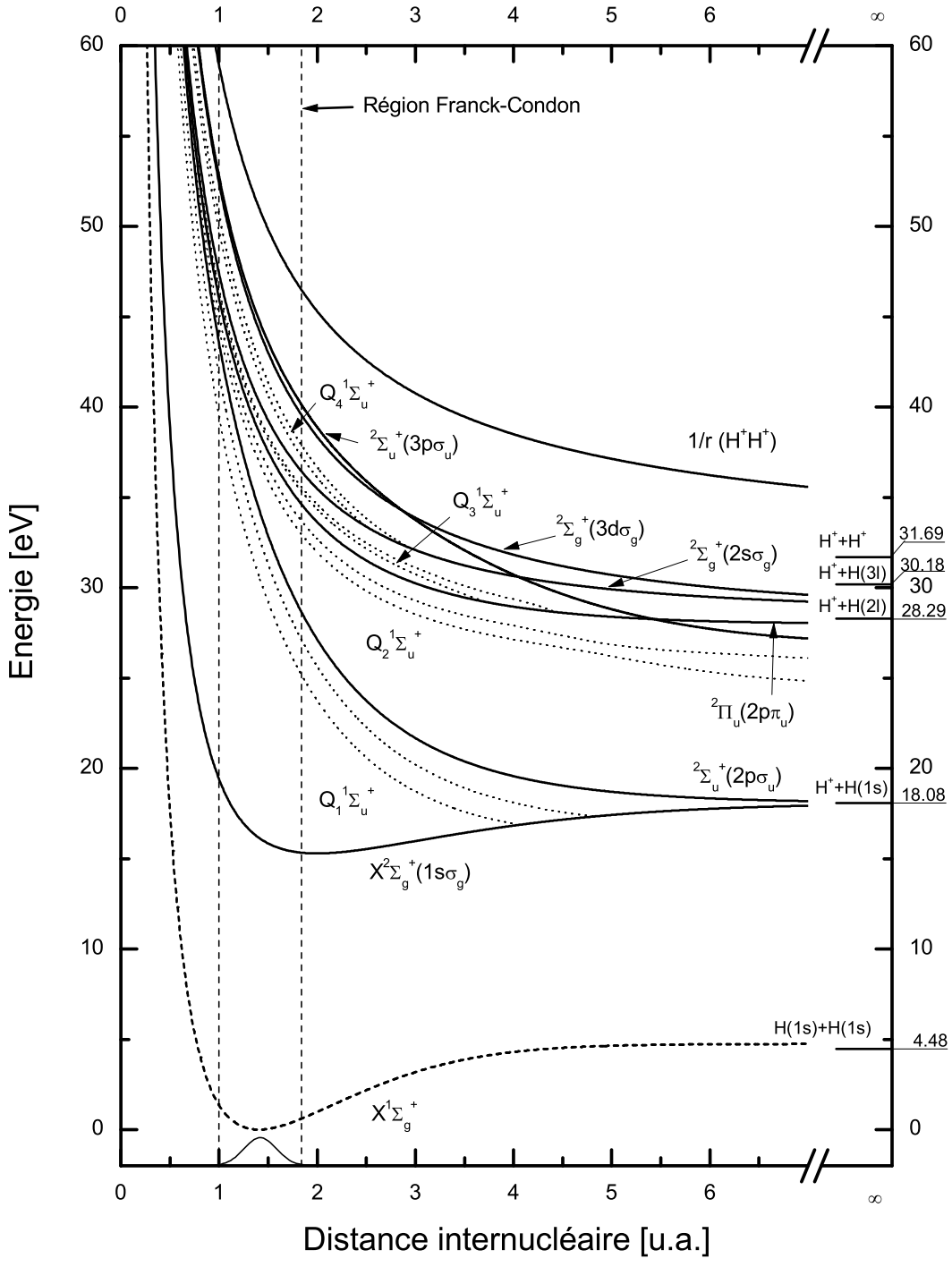


FIG. 1.1 – *Courbes d'énergie potentielle de quelques états de la molécule H_2 et de l'ion moléculaire H_2^+. La courbe de l'état fondamental de H_2 (trait tiret) provient de [KSM86]. Les états de l'ion moléculaire H_2^+ (trait continu) sont issus de [Sha71]. Enfin, les courbes des états doublement excités de H_2 (trait pointillé) de symétrie $^1\Sigma_u^+$ sont extraites de plusieurs références : pour la série Q_1 [SM97], Q_2 [SM99b], Q_3 et Q_4 [FM01].*

menter sous forme de deux protons.

1.1.2 Les processus d'excitation

Nous nous attarderons principalement sur la description des caractéristiques du processus de double excitation de la cible, dans la mesure où comme nous allons le voir, les processus de désexcitation majoritaires qui s'ensuivent, conduisent à la formation de particules chargées détectables à l'aide de notre dispositif.
Les états neutres doublement excités de la molécule (dite *"superexcitée"* [Pla62]) se caractérisent par leur énergie interne généralement supérieure au premier potentiel d'ionisation. Les courbes d'énergie potentielle de ces états doublement excités ont été classées en fonction de leur position par rapport aux états de l'ion moléculaire H_2^+. La série Q_1 comprend l'ensemble des états doublement excités qui s'étend entre l'état fondamental $X^2\Sigma_g^+(1s\sigma_g)$ et le premier état excité $^2\Sigma_u^+(2p\sigma_u)$ de l'ion moléculaire D_2^+. La série Q_2 inclut tous les états compris entre le premier et le deuxième état excité $^2\Pi_u(2p\pi_u)$. Les séries supérieures (Q_3, Q_4 *etc*) sont définies suivant le même principe. A titre d'exemple, les courbes d'énergie potentielle des deux premiers états de symétrie $^1\Sigma_u^+$ pour les quatres premières séries (Q_1, Q_2, Q_3, Q_4) sont représentées sur la figure 1.1.
Plusieurs voies de désexcitation s'offrent alors à la molécule. Les processus les plus probables sont l'autoionisation par effet Auger (AI), et la dissociation en deux fragments neutres [KUH97]. Ces deux voies de désexcitation sont schématiquement représentées sur la figure 1.2. Pour comprendre le cheminement de chacune d'entre elles, nous devons prendre en compte le comportement de la molécule depuis la région Franck-Condon, jusqu'à une distance internucléaire infinie. L'état doublement excité est peuplé lors d'une transition Franck-Condon depuis l'état fondamental de H_2 $X^1\Sigma_g^+$ $(1s\sigma_g^2)$. Les noyaux vont alors se séparer pendant la durée de vie de l'état doublement excité. Si le processus d'autoionisation a lieu pour une distance internucléaire comprise entre r_{H_2} et r_1, les états vibrationnels discrets de l'ion H_2^+ sont peuplés, laissant celui-ci dans son état lié. En revanche, dans le cas où l'autoionisation se produit pour une distance supérieure à r_1, les noyaux ont acquis suffisamment d'énergie cinétique, pour que la molécule puisse se dissocier. Les fragments (H, H^+) et l'électron Auger produits se partagent l'énergie d'excitation transférée à la molécule E_T à la suite de la collision selon la relation :

$$E_T = E_{e^-} + E_c + E_\infty \qquad \text{avec} \quad E_c = E_H + E_{H^+} \tag{1.7}$$

où E_{e^-}, E_H, E_{H^+} représentent respectivement l'énergie cinétique de l'électron Auger, et celles des fragments H et H^+, et E_∞ l'énergie potentielle de la limite de dissociation (18.08 eV pour la première limite). Enfin, si le temps de vie de l'ion moléculaire est

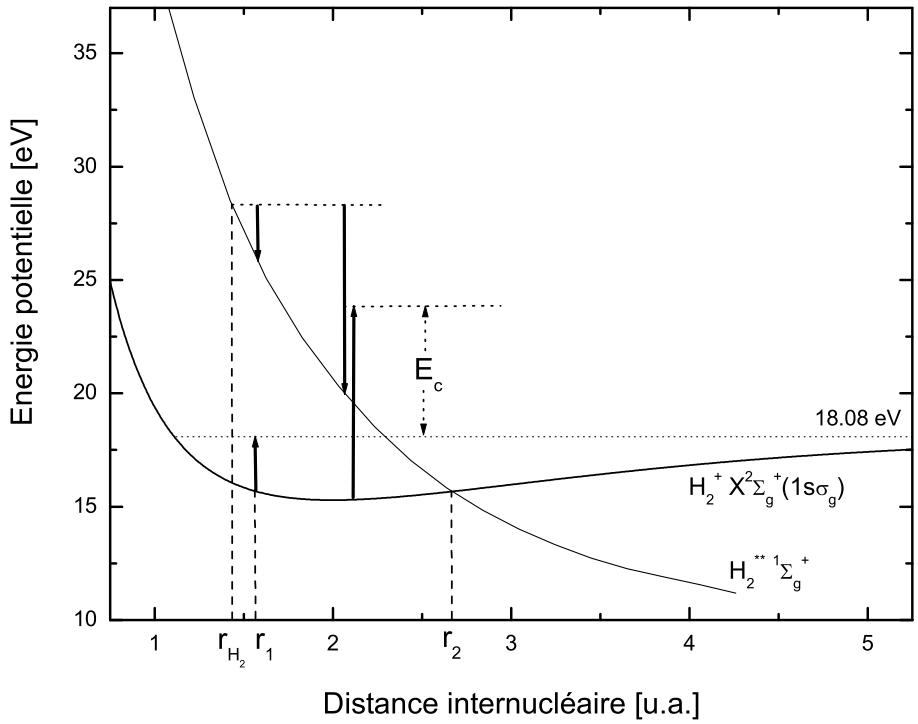


FIG. 1.2 – *Représentation schématique des différentes voies de désexcitation d'un état doublement excités de la molécule H_2 appartenant à la série Q_1, vers l'état fondamental de l'ion H_2^+.*

suffisamment long pour que la distance internucléaire atteigne la valeur r_2, le processus d'autoionisation ne peut alors plus se produire. La molécule se dissocie en formant deux atomes d'hydrogène.
En ce qui concerne les états appartenant aux séries Q_2, Q_3, *etc*, le processus d'autoionisation se produit presque exclusivement vers un état excité de l'ion moléculaire H_2^+. Dans ce cas, ces états étant tous dissociatifs, l'ion moléculaire se dissocie en formant un proton et un atome d'hydrogène dans une configuration excitée $n\ell$.

Un grand nombre de travaux expérimentaux et théoriques ont été motivés par l'existence de ces différentes voies d'ionisation. La plupart d'entre eux se sont focalisés sur les caractéristiques des distributions en énergie et en angle des fragments ioniques, et des électrons émis. Nous allons à présent décrire l'ensemble des résultats obtenus par ces différentes approches. Dans un premier temps, nous aborderons l'étude de la molécule H_2 à travers les caractéristiques des fragments ioniques. Puis, dans un deuxième temps, nous détaillerons les travaux effectués concernant l'étude de l'émission électronique.

1.2 Etude de la molécule H_2 par l'analyse des propriétés des fragments ioniques

Les différentes études basées sur la mesure des fragments ioniques se sont attachées à interpréter les distributions en énergie des fragments, dans le but d'en extraire les sections efficaces absolues ou relatives, et les sections efficaces différentielles en angle, des différents processus d'ionisation dissociative.

1.2.1 Distributions d'énergie des fragments ioniques

La mesure des distributions d'énergie des fragments ioniques, formés à la suite de la dissociation de la molécule, a fait l'objet d'un grand nombre de travaux dans les années soixante. Les premières mesures ont été effectuées à l'aide d'électrons projectiles [DK63, KD67, CM73b, CM73a, SACD75, BJRJ80]. Ce n'est que par le suite que les études se sont tournées vers l'utilisation de faisceaux de photons [BF73, GS75, DD78, SB79] et d'ions [EWS77, WES77]. La quête de la plupart de ces études était de déterminer les états moléculaires de la molécule H_2, et de l'ion H_2^+ peuplés lors de la collision. Pour cela, les distributions d'énergies mesurées ont généralement été comparées aux distributions théoriques obtenues à partir de la méthode des projections.

Méthode des projections

Les distributions en énergie des fragments peuvent être estimées à partir de la méthode des projections développée par Coolidge et *al.* [CJP36]. Le principe de la méthode est représenté sur la figure 1.3 pour une transition entre l'état fondamental de H_2 et l'état $2p\sigma_u$ de l'ion H_2^+. L'énergie la plus probable emportée par les deux fragments correspond à l'écart entre l'énergie potentielle de l'état final dissociatif définie pour la distance internucléaire d'équilibre, et l'énergie potentielle de la limite de dissociation. Les énergies les plus probables emportées par le fragment H^+, prédites par la méthode, sont rassemblées dans le tableau 1.1 pour les premiers états de l'ion moléculaire H_2^+, ainsi que pour l'ion H_2^{2+} [LYSL87].
Cette méthode a été très largement utilisée pour extraire les contributions des différents états de l'ion H_2^+ et de l'ion H_2^{2+}, des distributions d'énergie mesurées.

Distributions d'énergie

La figure 1.4 présente la distribution d'énergie des ions H^+ mesurée par Edwards *et al.* [EWDE90, EWDE91] pour des protons incidents de 0.5 MeV/amu. Le spectre montre

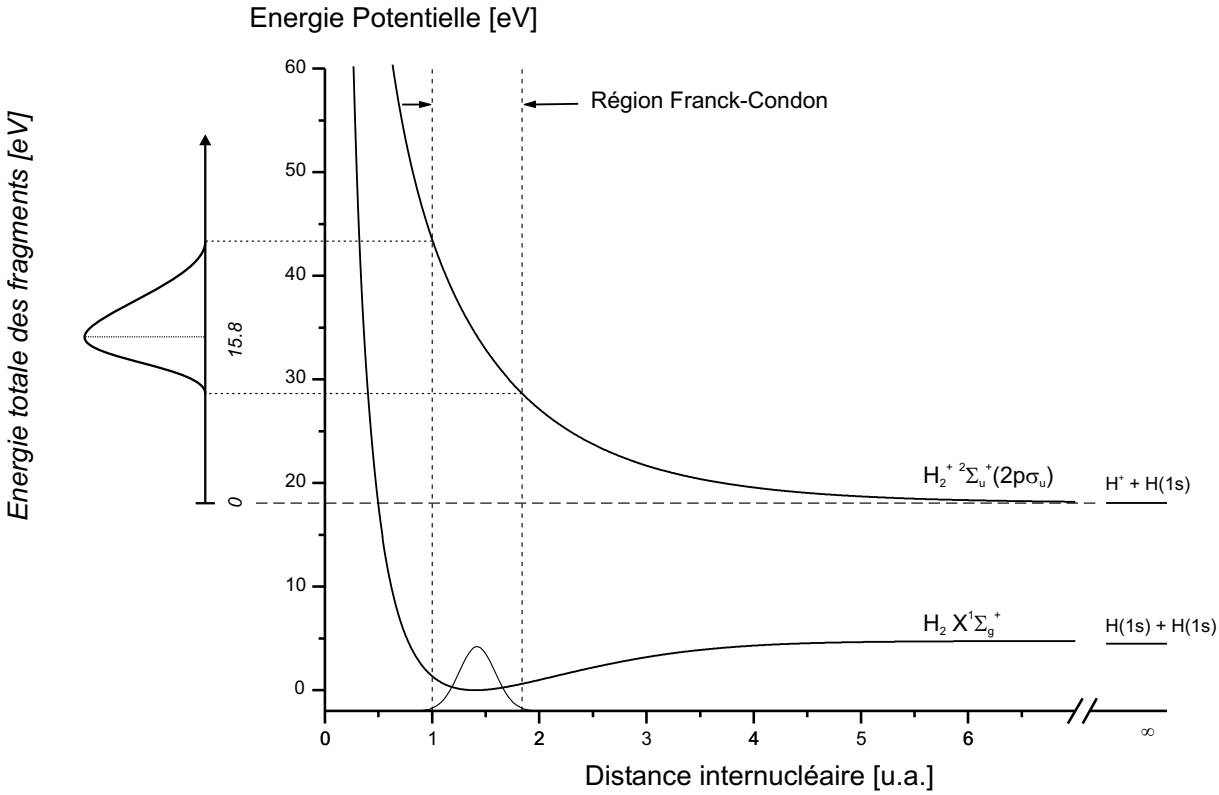


FIG. 1.3 – *Principe de la méthode des projections pour une transition depuis l'état fondamental de H_2 vers l'état $2p\sigma_u$ de l'ion H_2^+. La distribution des distances internucléaires est représentée par une fonction gaussienne.*

Etat de l'ion moléculaire	**Energie du fragment H^+ (eV)**
$H_2^+ \ {}^2\Sigma_g^+(1s\sigma_g)$	< 0.5
$H_2^{+*} \ {}^2\Sigma_u^+(2p\sigma_u)$	7.9
$H_2^{+*} \ {}^2\Pi_u(2p\pi_u)$	5.0
$H_2^{+*} \ {}^2\Sigma_g^+(2s\sigma_g)$	5.8
H_2^{2+}	9.7

TAB. 1.1 – *Energie cinétique la plus probable emportée par le fragment H^+ (dans le référentiel du centre de masse) lors de la dissociation de la cible ionisée, pour les premiers états de l'ion moléculaire H_2^+, et pour l'ion H_2^{2+}.*

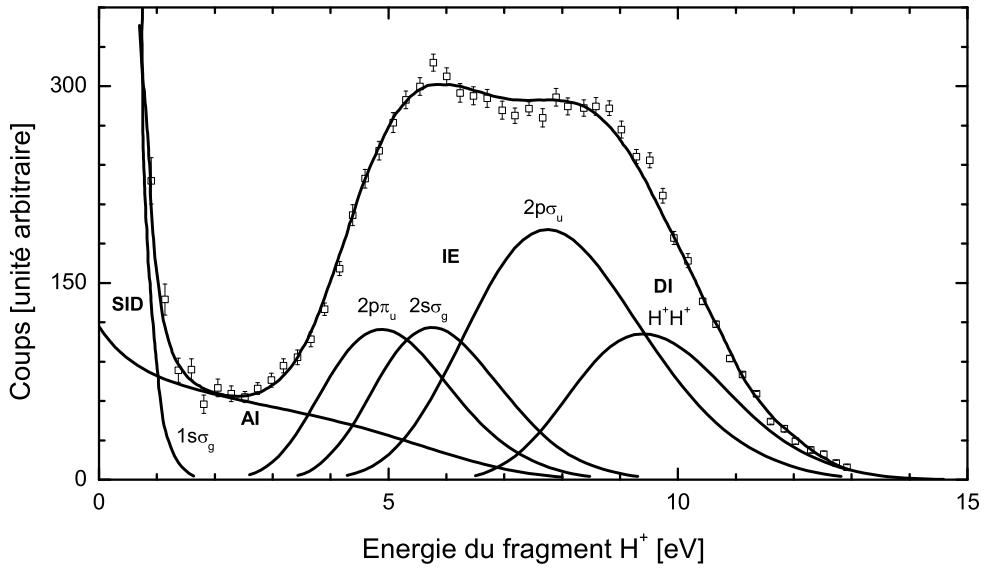


FIG. 1.4 – *Distribution d'énergie des fragments H^+ produits par les différents processus d'ionisation dissociative (SID, AI, IE et DI) mesurée par Edwards et al. [EWDE90, EWDE91]. Les données expérimentales sont ajustées par les distributions d'énergie obtenues par la méthode des projections [CJP36], pour quelques états de H_2^{**}, de H_2^+ ($1s\sigma_g$, $2p\pi_u$, $2s\sigma_g$, $2p\sigma_u$) et de H_2^{2+} (H^+H^+).*

différentes structures, semblables à celles qui furent observées à l'occasion des travaux préliminaires effectués avec des ions projectiles [LYSL87, SLL90]. A l'instar des précédents auteurs, Edwards *et al.* interprètent ces structures à l'aide des distributions d'énergie de quelques états de la molécule H_2, et des ions moléculaires H_2^+ et H_2^{2+} obtenues par la méthode des projections. Ainsi, les ions H^+ de faible énergie (<1 eV) proviennent de la dissociation de l'ion moléculaire H_2^+ induite par le processus de simple ionisation dissociative. D'autre part, la formation de fragments H^+ de plus haute énergie (entre 4 et 13 eV) est attribuée aux processus d'ionisation-excitation et double ionisation. Comme nous l'avons vu précédemment, les états excités de l'ion H_2^+, ainsi que l'état de l'ion H_2^{2+}, sont tous dissociatifs, et conduisent à l'émission de protons dont les énergies les plus probables sont rassemblées dans le tableau 1.1. Enfin, d'après la plupart des auteurs, la seule contribution des distributions en énergies de quelques états de l'ion H_2^+ ($1s\sigma_g$, $2p\pi_u$, $2s\sigma_g$, $2p\sigma_u$) et de H_2^{2+} (H^+H^+) ne suffit pas pour reproduire le spectre en énergie expérimental dans la région autour de 3 eV. Il fut alors suggéré d'inclure la contribution de quelques états doublement excités de la molécule H_2, conduisant au processus d'autoionisation dissociative.

Les contributions des différents états proposés par Edwards sont représentées sur la figure

1.4. Elles montrent que les processus d'ionisation-excitation (IE) et de double ionisation (DI) sont clairement séparés du processus de simple ionisation dissociative (SID), par la mesure de l'énergie cinétique emportée par les fragments. Comme nous le verrons dans les paragraphes suivants, cette particularité a été intensivement mise à profit pour déterminer les sections efficaces ainsi que les distributions angulaires des différents processus de SI, IE et DI.
Toutefois, en dépit du fait que la somme des distributions d'énergie de quelques états de H_2, H_2^+ et H_2^{2+}, calculées par la méthode des projections, reproduit correctement les données expérimentales, quelques doutes planent sur la valeur des contributions de chacun d'entre eux, notamment celle des états doublement excités conduisant au processus AI.

1.2.2 Section efficace des différents processus

La mesure des sections efficaces absolues des différents processus (SI, IE, DI) produits lors de l'interaction entre un ion et la molécule H_2, a fait l'objet de travaux successifs, depuis les premières mesures de Puckett *et al.* [PTM69]. La quasi-totalité d'entre eux a été réalisée pour des énergies du projectile s'étalant sur l'ensemble du domaine des vitesses intermédiaires (0.5-1.5 MeV/uma), et pour différents projectiles incidents [1]. A titre d'exemple, nous avons représenté sur la figure 1.5, les sections efficaces des processus de simple ionisation non dissociative (SIND), d'ionisation-excitation et de double ionisation en fonction de l'énergie du projectile, mesurées par Cheng *et al.* pour le système $O^{8+} + D_2$ [CCK+90], et par Shah *et al.* [SG82, SMG89] pour le système $H^+ + H_2$. Les sections efficaces du processus de simple ionisation non-dissociative, ont été déterminées à partir du taux d'ions D_2^+ (H_2^+) détectés en coïncidence avec le projectile O^{8+} (Cheng *et al.*), ou un électron (Shah *et al.*). Les sections efficaces des processus IE et DI ont quant à elles, été déterminées à partir des contributions de quelques états (D_2^{2+}, $2p\sigma_u$, $2s\sigma_g$ et $2p\pi_u$) déduites des distributions d'énergie par la méthode des projections. Compte tenu des nombreux doutes qui planent sur la validité de ces contributions, l'exactitude des sections efficaces de chacun des processus est largement discutable.

Une autre approche pour estimer la probabilité des différents processus consiste à mesurer la section efficace relative entre les processus à deux et à un électron :

$$R^* = \frac{\sigma_{IE} + \sigma_{AI} + \sigma_{DI}}{\sigma_{SI}} \qquad \text{où} \quad \sigma_{SI} = \sigma_{SID} + \sigma_{SIND} \tag{1.8}$$

1. voir aussi les travaux expérimentaux de Rudd *et al.* [RDT+83, RGID85], et d'Edwards *et al.* [EWE85a, EWE85b, EWE85c, EWE86, EWDE90, EWE90], ainsi que les travaux théoriques de Nagy *et al.* [NV92b, NV92a].

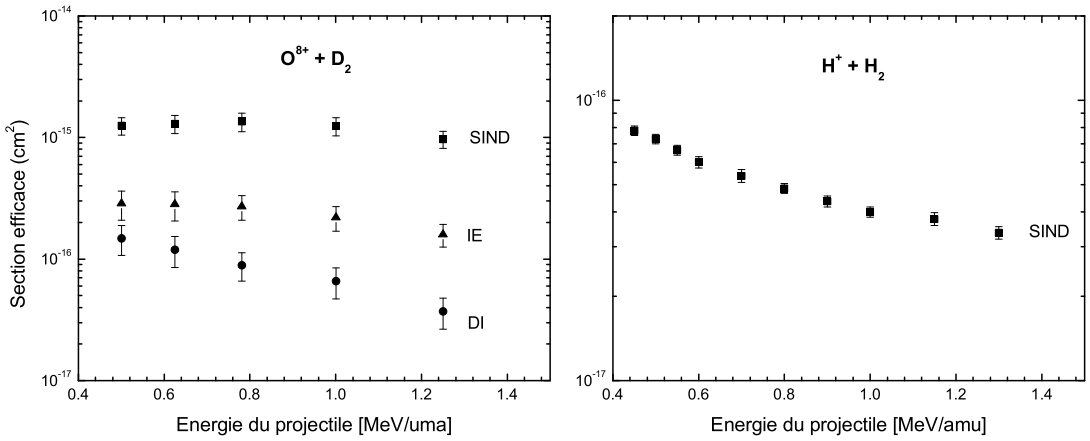


FIG. 1.5 – *Section efficace des processus de simple ionisation non dissociative (SIND), ionisation-excitation (IE) et double ionisation (DI), pour les systèmes* $O^{8+}+D_2$ *[CCK+90] et* $H^+ + H_2$ *[SG82, SMG89].*

Selon les travaux théoriques de Krishnakumar *et al.* [KBRK94], le rapport entre les contributions des processus impliquant 2 électrons et 1 électron de la cible dépend uniquement de la charge q du projectile, et de sa vitesse V_p (en unité atomique) à travers la relation :

$$R^* = A + B\frac{q^2}{V_p^2 ln(9.18V_p)} \tag{1.9}$$

où les valeurs des constantes $A = 0.0277$ et $B = 0.407$ on été déterminées à partir d'un ajustement des données disponibles. Comme le montre la figure 1.6, le modèle semble en très bon accord avec les résultats expérimentaux obtenus par différents auteurs.
Notons toutefois, que ce rapport diffère du taux H^+/H_2^+, généralement mesuré [SG82, BKS+96, KBRK94, CCK+90], par la contribution du processus de simple ionisation dissociatif (SID) :

$$\frac{H^+}{H_2^+} = \frac{\sigma_{IE} + \sigma_{AI} + \sigma_{DI} + \sigma_{SID}}{\sigma_{SIND}} \tag{1.10}$$

Bien que la probabilité du processus SID soit faible devant celle du processus de simple ionisation non dissociative, elle n'est pas négligeable devant celles des processus IE et DI. Récemment, Ben-Itzhak *et al.* ont déterminé le rapport $\sigma_{SID}/\sigma_{SIND}$ entre les contributions des processus de simple ionisation dissociative et non-dissociative pour différents isotopes de la molécule H_2 [BIKC+96] (cf. tableau 1.2). Selon eux, ce rapport est indépendant de la vitesse du projectile, et dépend uniquement du recouvrement entre les fonctions d'onde vibrationnelle des états fondamentaux $\psi_0(r)$ de H_2 et $\phi_{v_f}(r)$ de H_2^+ à travers le taux de

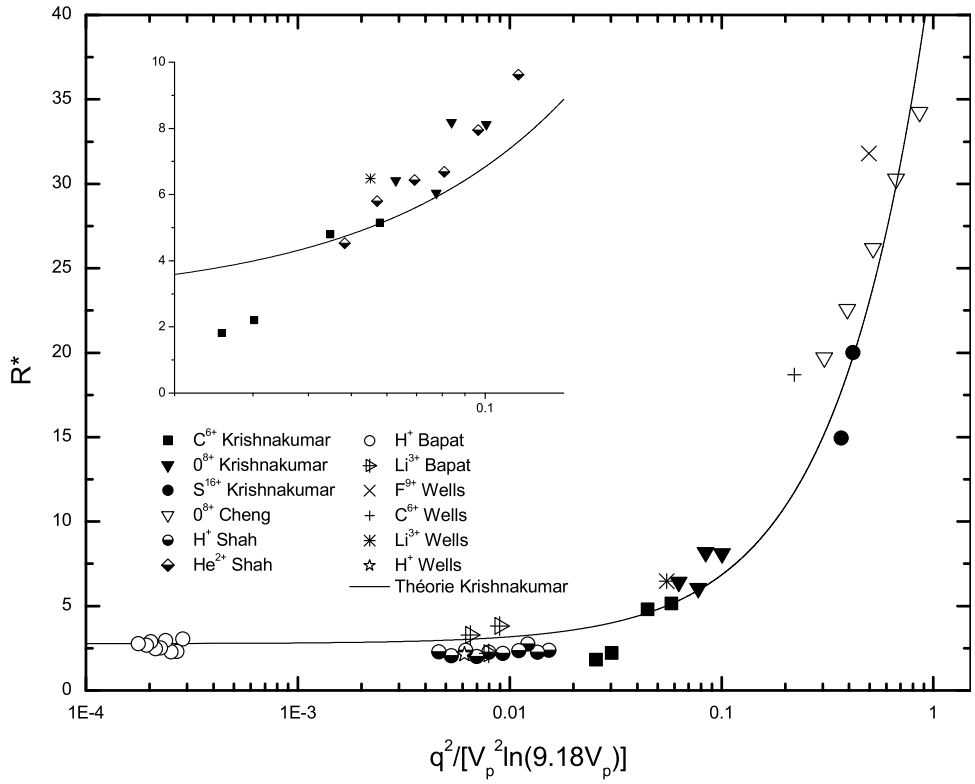


FIG. 1.6 – *Evolution du rapport R* entre les processus à deux électrons et à un électron, en fonction de $q^2/V_p^2 ln(9.18V_p)$, pour l'intéraction entre la molécule H_2 (D_2) et des ions totalement épluchés : H^+, Li^{3+}, C^{6+}, F^{9+} [WBICK99] - C^{6+}, O^{8+}, S^{16+} [KBRK94] - H^+, He^{2+} [SG82, SMG89] - O^{8+} [CCK+90] - H^+, Li^{3+} [BKS+96, BRK96]. La courbe représente la loi d'échelle proposée par Krishnakumar et al. [KBRK94] avec $A = 0.0277$ et $B = 0.407$.*

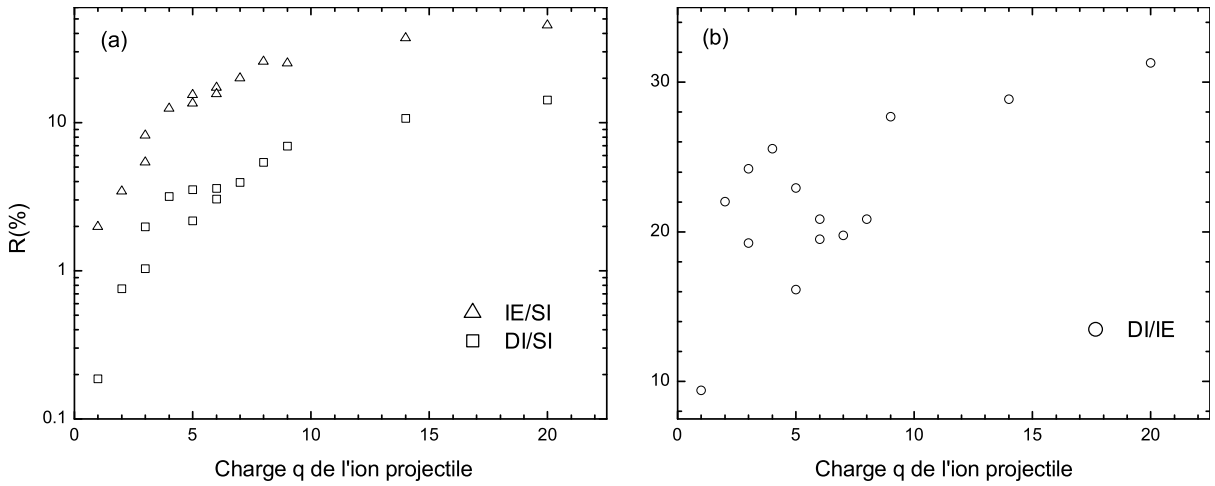


FIG. 1.7 – *Rapports DI/SI, IE/SI (a) et IE/DI (b) mesurés par Wells et al. avec des projectiles de 1 MeV/amu [WBICK99].*

transition T_{v_f} défini par :

$$T_{v_f} = \left| \int_0^\infty dr \phi_{v_f}(r) \psi_0(r) \right|^2 \tag{1.11}$$

Isotope	**Rapport $\sigma_{\mathbf{SID}}/\sigma_{\mathbf{SIND}}$ (%)**
H_2	1.47 ± 0.0082
HD	0.980 ± 0.015
D_2	0.485 ± 0.036

TAB. 1.2 – *Rapport entre les sections efficaces des processus de simple ionisation dissociative (SID), et non-dissociative (SIND), pour différents isotopes de la molécule d'hydrogène.*

Au delà du rapport entre les sections efficaces des processus à deux et à un électron, une meilleure compréhension des mécanismes de collision peut être obtenue à partir du rapport entre les contributions de deux processus distincts (DI/SI, IE/SI, ou DI/IE). Actuellement, les seuls résultats disponibles concernant ces rapports sont ceux obtenus récemment par Wells *et al.* [WBICK99], dans le cadre de leur étude sur l'effet de la charge q du projectile sur ces différents rapports. Le processus DI est isolé par la mesure en coïncidence des deux fragments H^+ produits, tandis que les deux processus IE et SID sont séparés à l'aide des distributions en énergie du fragment H^+ (en négligeant la contribution du processus AI). Les rapports DI/SI, IE/SI et DI/IE sont représentés sur la figure 1.7, pour des charges q comprises entre 1 et 20, et pour une énergie fixe du projectile égale à 1 MeV/amu.

1.2.3 Distributions angulaires des fragments ioniques

Dans le cadre de l'approximation dite du 'recul axial' [Zar67], la direction d'émission des fragments formés définit l'orientation de la molécule au moment de la collision. Ainsi, les différents auteurs impliqués dans la mesure de l'angle d'émission des fragments n'ont pas à proprement parler, rapporté leurs résultats en termes de distributions angulaires des fragments H^+. Ils ont généralement préféré décrire la dépendance d'un processus donné, en fonction de l'angle de la molécule par rapport au faisceau incident.
Du fait de la grande difficulté à séparer correctement les différents processus, la mesure des distributions angulaires est restée l'apanage des différents groupes initialement impliqués dans la mesure des distributions d'énergie [CCK+90, EWDE90]. A l'instar de la mesure des sections efficaces, la mesure des distributions angulaires des fragments H^+ produits par les différents processus d'ionisation, a donc largement tiré profit de l'ana-

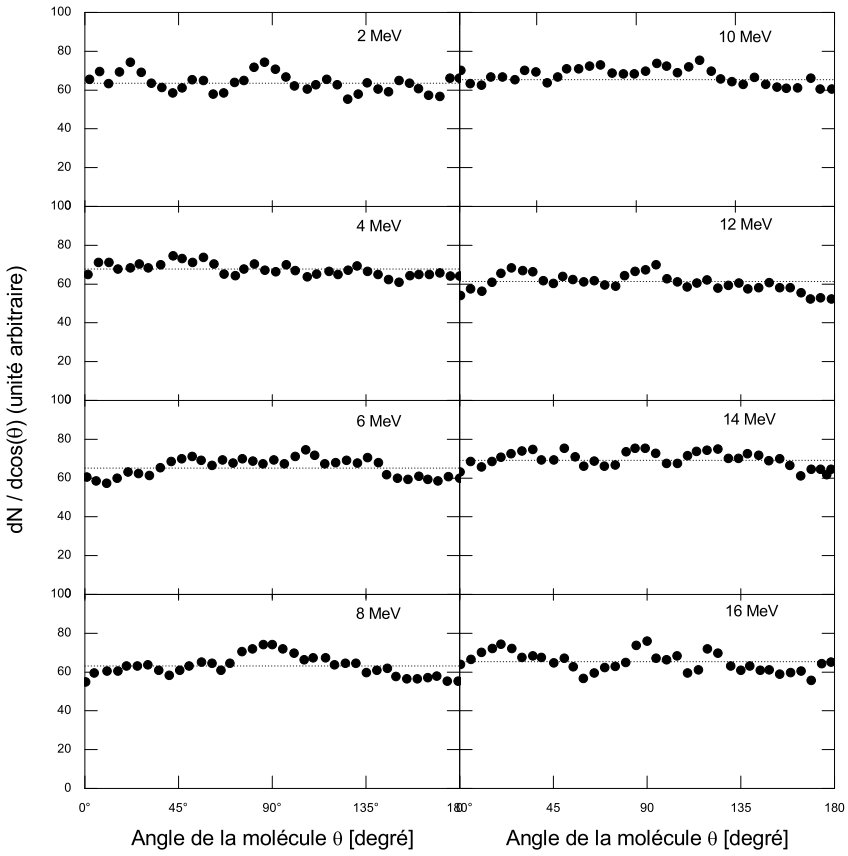


FIG. 1.8 – *Distributions angulaires des fragments H^+ produits par les processus de double ionisation et d'ionisation-excitation par rapport à la direction du projectile, pour des ions O^{8+} incidents d'énergie comprise entre 2 et 16 MeV.*

lyse des distributions d'énergie des fragments, à partir de la méthode des projections. Les distributions angulaires ont généralement été construites à partir de la contribution des différents processus obtenue par la méthode, pour différents angles d'observation par rapport au faisceau incident.

Ainsi, en marge de leur étude sur la dépendance du processus de capture électronique en fonction de l'orientation de la molécule, Cheng *et al.* ont déterminé la distribution angulaire des processus d'ionisation-excitation et de double ionisation pour des ions O^{8+} incidents d'énergie comprise entre 2 et 16 MeV [CCF+93]. Les distributions angulaires mesurées, rassemblées sur la figure 1.8, montrent une émission sensiblement isotrope des fragments H^+ par rapport à la direction du faisceau incident, quelle que soit l'énergie du projectile.

Une description plus détaillée des distributions angulaires des fragments H^+ produits par les différents processus (DI, IE), a été réalisée par Nagy *et al.*, dans le cadre d'une étude sur l'influence de la corrélation électronique sur le processus d'ionisation [NV94b, NV94a]. Leurs travaux rapportent les valeurs des sections efficaces pour les processus de double

ionisation et d'ionisation-excitation en fonction de l'orientation de la molécule pour des ions incidents d'énergie égale à 1 MeV/amu. Les sections efficaces obtenues, reportées sur les figures 1.9*a-d*, sont comparées aux résultats expérimentaux d'Edwards et Ezell [EEW$^+$91, EWME92]. Pour le cas du processus de double ionisation (figure 1.9*a*), les sections efficaces théorique et expérimentale ne montrent aucune dépendance du processus en fonction de l'orientation de la molécule. Ces résultats confirment les mesures effectuées antérieurement par Yousif *et al.* [LYSL87, YLL88]. En revanche, en ce qui concerne le processus d'ionisation-excitation, les sections efficaces calculées pour les états de l'ion moléculaire H_2^+ $2p\sigma_u$, $2p\pi_u$, $2s\sigma_g$ ne reproduisent pas les données expérimentales de façon satisfaisante. Cet écart est, en partie, justifié par Nagy *et al.*, par le fait que leur calcul dépend trop fortement de la forme de la fonction d'onde utilisée pour l'état fondamental de la molécule H_2.
Plus récemment, Bodea et Nagy ont étendu leur modèle théorique au cas du processus de double excitation [BN00], de façon à reproduire les données expérimentales de Edwards *et al.* [EWME92] obtenues pour les états $^1\Sigma_g^+$ et $^1\Pi_g$. Comme le montre la figure 1.9*e*, les sections efficaces calculées sont à nouveau en désaccord avec les résultats d'Edwards. A nouveau, l'analyse servant de base aux résultats expérimentaux d'Edwards présentant quelques incertitudes, il n'est pas totalement surprenant que les résultats théoriques de Nagy et Bodea ne soient pas en accord avec les données expérimentales.

1.3 Etude de la molécule H_2 à travers les propriétés de l'émission électronique

L'étude de l'émission électronique induite par l'impact d'ions, constitue une approche complémentaire à celle reposant sur la description des caractéristiques des fragments, pour étudier les propriétés de la molécule H_2. La démarche, qui consistait à décrire les différents processus d'ionisation (simple ionisation dissociative et non dissociative, ionisation-excitation, double excitation et double ionisation) par la mesure des grandeurs caractéristiques des fragments ioniques (distributions en énergie et en angle, sections efficaces), ne peut pas être reconduite dans le cas de l'émission électronique. En effet, contrairement aux distributions d'énergie des fragments ioniques, les distributions d'énergie des électrons ne permettent généralement pas de séparer directement la contribution des différents processus. Les études basées sur les propriétés des électrons émis, se sont alors focalisées sur la dynamique du processus d'ionisation dans son ensemble.
Dans le cadre particulier des collisions ions-H_2, les travaux réalisés à ce jour restent très peu nombreux. Nous rapportons d'une part les travaux de Tribedi *et al.* sur l'étude des

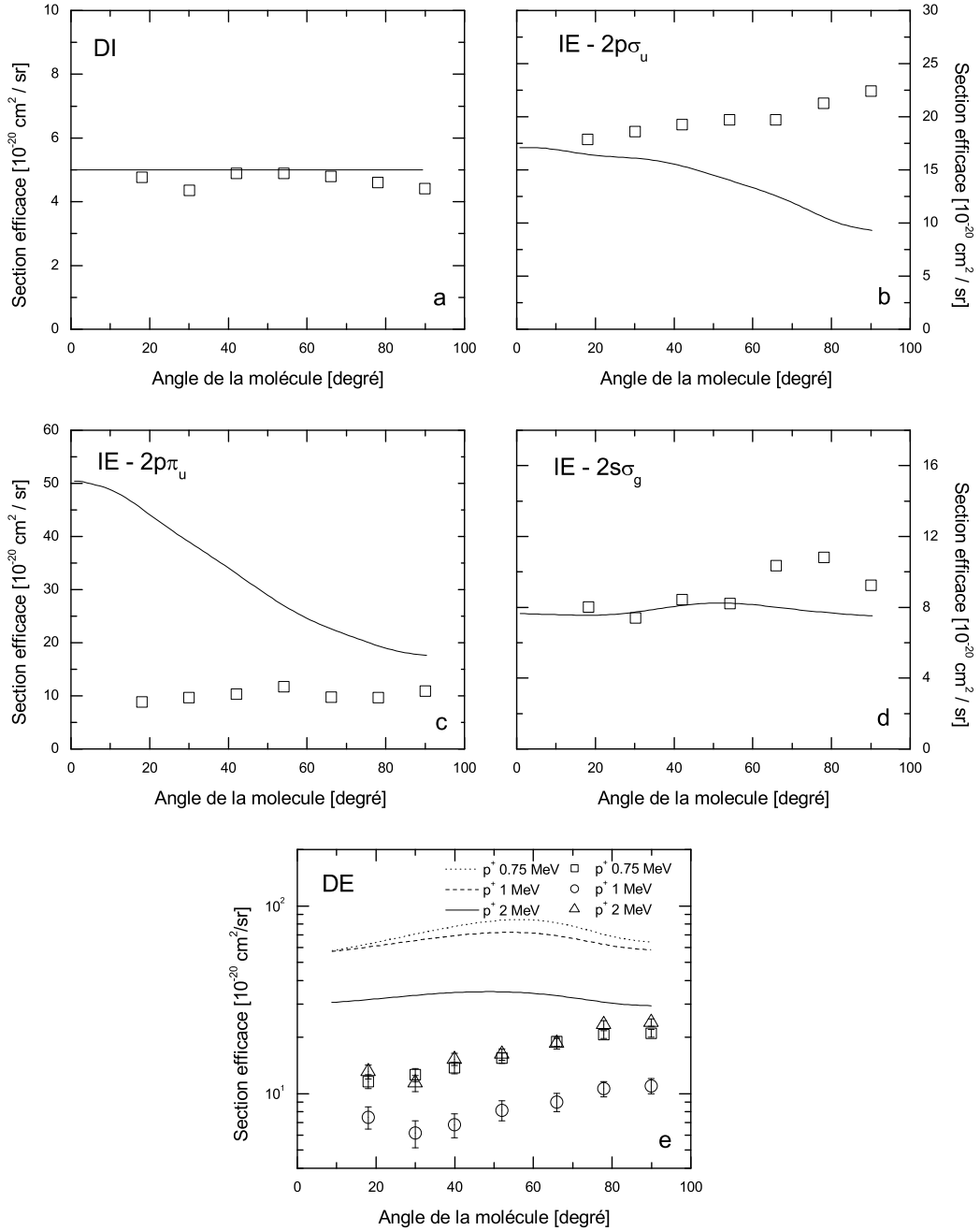


FIG. 1.9 – *Distributions angulaires des fragments H^+ produits par les processus (a) de double ionisation (DI), (b,c,d) d'ionisation-excitation (IE), et (e) de double excitation (DE) pour des protons incidents. Les courbes représentent les résultats théoriques de Nagy et Bodea [NV94b, NV94a, BN00]. Les points correspondent aux données expérimentales relevées par Edwards et al. pour des protons incidents. Pour le cas du processus de double excitation, plusieurs énergies des protons incidents sont considérées : 0.75 MeV, 1 MeV et 2 MeV.*

caractéristiques de l'émission électronique induite par l'impact d'ions sur la molécule H_2 dans le champ coulombien créé par chacun des partenaires de la collision (noyaux cible, projectile), et d'autre part les travaux de Stolterfoht *et al.* sur les effets d'interférence attendus dans la simple ionisation de la molécule H_2.

1.3.1 Etude du système collisionnel ion-H_2 : Effet de centre

Avant de présenter les résultats obtenus dans le cadre des collisions ion-H_2, nous allons brièvement décrire les principales caractéristiques du processus d'ionisation induit lors d'une collision ion-atome.

Collisions ion-atome : Mécanismes d'ionisation

Afin d'introduire les divers mécanismes d'ionisation impliqués dans les collisions ion-atome, nous avons représenté sur la figure 1.10 la section efficace du processus d'ionisation relative au système 5 MeV/amu $H^+ + H$ pour un angle d'observation de 5° par rapport à la direction du projectile, en fonction de l'énergie de l'électron. La distribution obtenue à partir du modèle théorique CDW-EIS (Continuum Distorted Wave-Eikonal Initial State Approximation), dont nous exposerons les caractéristiques dans la suite du chapitre, permet de mettre en évidence plusieurs mécanismes conduisant à l'émission électronique. Les électrons de basse énergie sont produits par des collisions à grand paramètre d'impact (*'Soft Collisions' SC*). A plus haute énergie, les deux structures présentes sont attribuées, d'une part à des électrons capturés vers le continuum d'énergie du projectile (*'Electron Capture to the Continuum' ECC*), et d'autre part à des électrons produits par des collisions binaires (*'Binary-Encounter' BE*). Enfin, les électrons dont l'énergie s'étend entre le pic ECC et les basses énergies issues des collisions SC, résultent du mécanisme d'émission électronique à deux centres (*'Two-Center Electron Emission' TCEE*). Notons toutefois que les frontières entre ces différents mécanismes ne sont pas parfaitement définies. La simple mesure des distributions d'énergie des électrons ne permet pas de dissocier clairement chacun d'entre eux.

Les nombreuses études des systèmes collisionnels ion-atome ont conduit la communauté à décrire ces différents mécanismes en termes d'effet de centres coulombiens formés par chacun des noyaux du système [SDR97]. Ainsi, la formation d'un centre implique une forte interaction entre le noyau et l'électron actif. La figure 1.11 représente schématiquement le concept d'effet de centre. L'émission à un centre implique l'interaction entre le noyau cible (ou projectile) et l'électron actif. D'autre part, l'émission est dite à deux centres, lorsque les deux noyaux affectent la trajectoire de l'électron. Sur un plan théorique, plusieurs modèles aussi bien classiques que quantiques sont basés sur

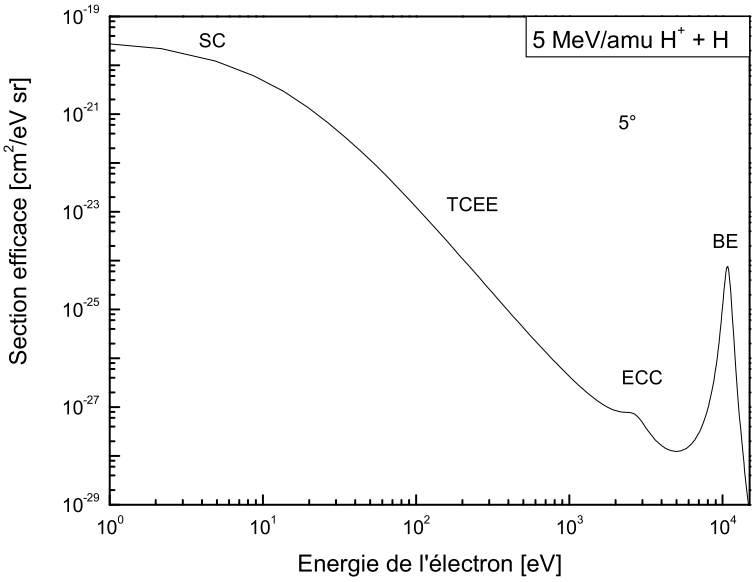


FIG. 1.10 – *Distribution d'énergie des électrons produits lors de l'interaction entre un proton de 5 MeV/amu et un atome d'hydrogène, pour un angle d'émission de* 5° *par rapport à la direction du faisceau projectile, obtenue par le modèle CDW-EIS. Le spectre met en évidence différents mécanismes conduisant à l'ionisation de la cible : 'Soft collision' SC, 'two-center electron emission' TCEE, 'electron capture to the continuum' (ECC), and 'binary encounter' (BE).*

ce concept. Le premier modèle quantique décrivant l'émission électronique par impact d'ions fut développé par Bethe à partir de l'approximation de Born au premier ordre (B1). L'approximation est basée sur une théorie perturbative, qui n'est applicable que si l'interaction entre le projectile et l'électron actif reste faible. En revanche, l'interaction entre le noyau cible et l'électron est complètement prise en compte. Ce modèle reproduit correctement certains mécanismes d'ionisation, mais il révèle ses limites lorsque l'électron ressent l'influence du champ créé par les deux noyaux. Le modèle théorique intégrant l'effet des deux centres, repose sur la théorie des ondes distordues CDW-EIS (Continuum Distorted Wave-Eikonal Initial State Approximation).

Collision binaire (*'Binary encounter BE'*) L'interaction du projectile avec un électron de la cible lors d'une collision binaire est un processus à deux corps. Dans la représentation liée à l'influence des centres coulombiens, les collisions binaires conduisent à une émission électronique à un centre, associé au projectile. Le noyau cible est responsable de la distribution de vitesse initiale de l'électron, mais ne joue aucun rôle dans le mécanisme d'émission électronique. Lors d'une collision binaire, le moment transféré par

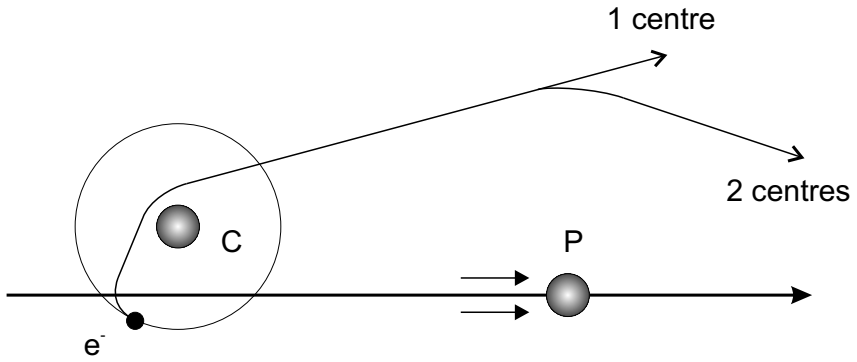


FIG. 1.11 – *Représentation schématique de l'effet des centres sur les trajectoires de l'électron. L'émission à un centre implique l'interaction entre le noyau cible (ou projectile) et l'électron actif. L'émission est dite à deux centres, lorsque les deux noyaux affectent la trajectoire de l'électron.*

le projectile à la molécule est important. Paradoxalement, l'approximation de Born (B1) reproduit correctement le mécanisme BE. Cela parait contradictoire dans la mesure où le modèle traite l'interaction entre l'électron et le projectile de façon perturbative. Cet accord s'explique par le remarquable fait que les théories perturbatives au premier ordre et d'ordres supérieurs conduisent aux mêmes résultats. Pour les projectiles dont la vitesse est supérieure à celle de l'électron lié, les collisions binaires sont responsables du pic observé sur les distributions d'énergie des électrons, pour un angle défini par rapport à la direction du faisceau (cf. le pic à environ 10 keV sur la figure 1.10). La position de ce pic dépend de l'angle d'émission de l'électron selon la relation [FPR91] :

$$\epsilon_{BE} = 4Tcos^2\theta - 2E_b \qquad \text{avec} \quad 0 \leq \theta \leq 90^\circ \tag{1.12}$$

où E_b est le potentiel d'ionisation de l'atome cible, θ l'angle d'émission de l'électron par rapport à la direction du faisceau projectile, et $T = E_p/M_p$ le rapport entre l'énergie du projectile et sa masse (donnée en unité de masse d'électron). Le réduction par le terme $2E_b$ a pour but de prendre en compte la distribution de vitesse initiale de l'électron lié. La largeur du pic est quant à elle, déterminée par le profil Compton de l'électron dans la cible[2] [ZRW+94]. Toutefois, les données expérimentales présentent un léger décalage du pic binaire vers les faibles énergies, par rapport à la valeur prédite par la relation 1.12, qui est généralement attribué à l'influence des deux centres coulombiens. Enfin, il est important de souligner que la position du pic binaire varie avec l'angle d'observation (cf. équation 1.12). Par conséquent, le pic n'est plus observé sur les distributions d'énergie

2. Le profil Compton représente la distribution de la composante d'impulsion de l'électron lié suivant la direction du projectile (axe z), obtenue après avoir intégré sur les autres composantes. Le terme 'profil Compton' a été introduit par Compton lui-même dans sa méthode de diffusion inélastique des photons [Com23].

des électrons, intégrées sur tous les angles d'observation.
D'autre part, la contribution des collisions binaires lors de l'interaction entre un ion très énergétique et un atome est également mise en évidence dans les distributions angulaires de l'électron. La figure 1.12 représente la distribution angulaire mesurée par Stolterfoht *et al.* pour le système 95-MeV/amu $Ar^{18+} - Li$ [SCG+99]. Les résultats expérimentaux sont comparés d'une part à la contribution des collisions à grand paramètre d'impact (SC), et d'autre part à la contribution conjointe des mécanismes BE et SC. Le pic présent autour de 90° est une caractéristique induite par les collisions binaires. Comme le montrent les résultats obtenus à 200 et 500 eV, les distributions angulaires sont principalement dominées par la présence du pic binaire, traduisant le fait que l'émission d'électron de haute énergie est principalement due au mécanisme BE. Pour les électrons de basse énergie (5 eV), la contribution du mécanisme BE est beaucoup moins importante, mais ne peut pas être négligée devant celle des collisions à grand paramètre d'impact.

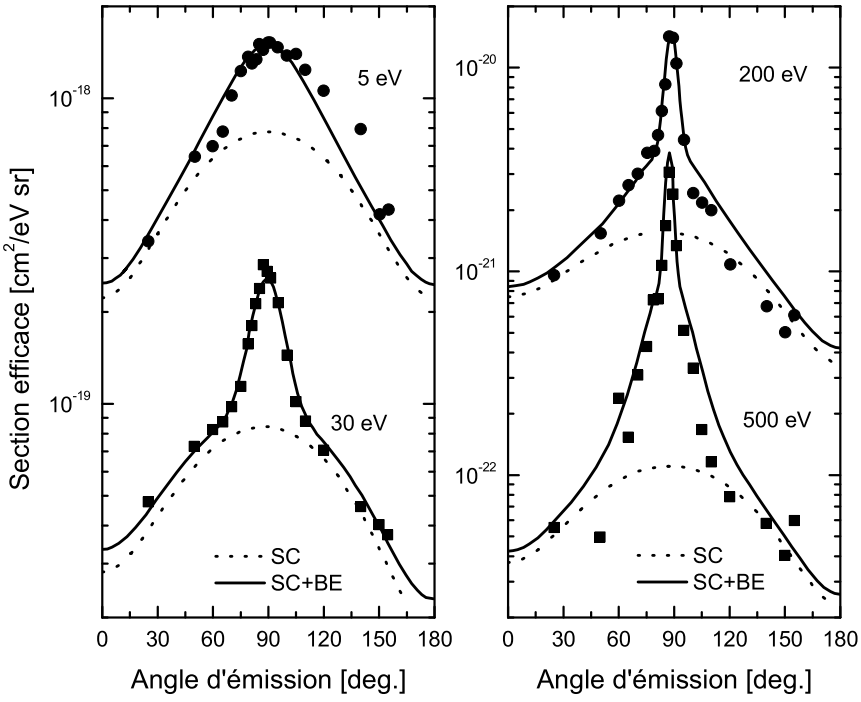


FIG. 1.12 – *Distributions angulaires mesurées par Stolterfoht et al. [SCG+99] pour le système 95-MeV/amu $Ar^{18+} - Li$. La courbe continue représente la contribution des collisions binaires (BE) et à grand paramètre d'impact (SC). La courbe en pointillé représente la contribution des collisions à grand paramètre d'impact.*

Collision à grand paramètre d'impact : *'soft collision SC'* Les électrons de basse énergie produits par des collisions à grand paramètre d'impact sont principalement influencés par le champ créé par le noyau cible. L'émission électronique induite par ces collisions est donc généralement décrite en terme d'émission à un centre. Toutefois, comme nous le verrons ultérieurement, l'effet des deux centres peut également être observé pour des ions projectiles multi-chargés très énergétiques.
A l'instar de la photoionisation, les collisions à grand paramètre d'impact sont caractérisées par un faible moment transféré par le projectile. Cette similitude a généralement conduit les différents auteurs à décrire l'emission électronique induite par ce type de collisions comme des transitions dipolaires. Les travaux de Stolterfoht [SCG$^+$99] effectués sur le système 95-MeV/amu $Ar^{18+} - Li$ ont permis de mesurer les distributions angulaires des électrons produits par des collisions à grand paramètre d'impact (SC). Les résultats rassemblés sur la figure 1.12 rapportent de larges distributions centrées à 90°, semblables à celles observées en photoionisation.

Electron capturé vers le continuum : *'Electron Capture to the Continuum ECC'* La seconde structure présente dans les distributions d'énergie des électrons observées à un angle d'émission donné (dans la direction du projectile), est attribuée au mécanisme de capture vers le continuum du projectile. Ce mécanisme peut être interprété classiquement comme une double diffusion de l'électron, dans le champ coulombien créé par les deux noyaux du système (cible et projectile). Dans un premier temps, l'électron est émis dans le continuum par une collision binaire avec le projectile. Puis, suite à une deuxième diffusion par le champ créé par le noyau cible, l'électron emprunte une trajectoire parallèle à celle du projectile. La position en énergie du pic ECC correspond à une vitesse de l'électron égale à celle du projectile. La forme asymétrique du pic résulte de l'influence du noyau cible. Compte tenu de l'énergie du projectile utilisée, ce mécanisme n'est pas observé dans notre étude[3].

Emission électronique à deux centres : *'Two-Center Electron Emission TCEE'* L'émission électronique à deux centres peut être interprétée comme une généralisation du mécanisme de capture vers le continuum. Comme nous l'avons mentionné précédemment, l'effet induit par les deux noyaux a été observé dans le cas des collisions à grand paramètre d'impact. Toutefois, l'influence des deux centres augmente considérablement avec l'énergie de l'électron. L'étude de l'effet des deux centres repose généralement sur la comparaison

3. Pour l'énergie du projectile utilisée dans notre étude (13.6 MeV/u), l'énergie des électrons résultants de ce mécanisme est de l'ordre de 634 eV. Comme nous le verrons dans les chapitres suivants, l'énergie maximale des électrons mesurables est de l'ordre de 100 eV. Par conséquent, ce mécanisme ne peut pas être observé par nos mesures.

des résultats expérimentaux avec ceux obtenus à partir de l'approximation de Born (B1). Comme nous l'avons déjà mentionné, cette approximation tient compte uniquement du centre formé par le noyau cible. Ainsi, tout écart au modèle peut être attribué aux effets induits par les deux centres. La figure 1.13 représente les sections efficaces d'émission

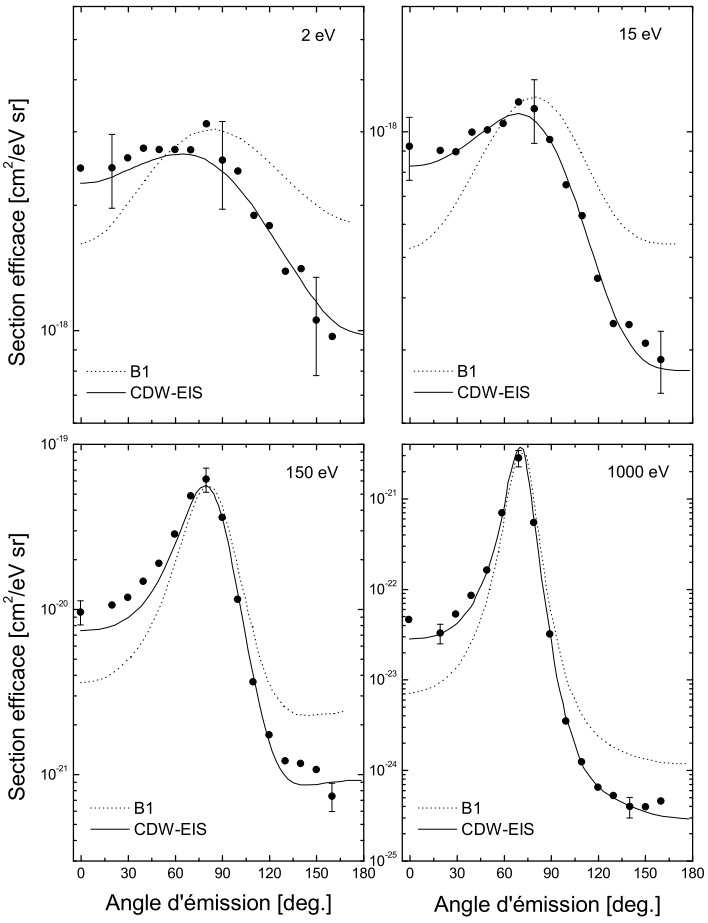


FIG. 1.13 – *Section efficace du processus d'émission électronique induit par impact d'ions Ne^{10+} à 5 MeV/amu sur l'atome d'hélium He, en fonction de l'angle d'émission de l'électron. Les données expérimentales obtenues par Stolterfoht et al. [SPS+95], sont comparées aux résultats prédits par les deux modèles théoriques CDW-EIS et B1.*

électronique mesurées, et calculées par les méthodes B1 et CDW-EIS pour le système 5 MeV/amu $Ne^{10+} - He$. La méthode B1 montre des différences notables pour les angles d'observation vers l'avant (dans la direction du faisceau) et vers l'arrière, qui sont donc attribuées à l'effet des deux centres. En revanche, cet effet est très bien reproduit par le modèle CDW-EIS. L'accord entre la méthode et les résultats expérimentaux est d'ailleurs remarquable sur tout le domaine angulaire, et cela pour une gamme d'énergie des électrons importante (2 ordres de grandeurs). Pour des électrons d'énergie 150 et 1000 eV, l'effet

des deux centres est principalement observé pour les angles où la section efficace est faible. A l'inverse, pour des angles d'observation proches du pic binaire (75°), les données expérimentales sont correctement reproduites par l'approximation de Born, ce qui suggère que l'émission à un centre devient prépondérante. Enfin, pour des électrons de plus basse énergie (2, 15 eV), la position du pic binaire est légèrement décalée par rapport à celle prédite par la méthode B1. Ce décalage angulaire, comme pour celui du pic d'énergie, peut être attribué à l'effet des deux centres. Notons toutefois qu'en dépit du fait que l'influence des deux centres ne peut pas être ignorée dans le cas des collisions à grand paramètre d'impact, elle reste cependant très faible. Pour le système collisionnel décrit précédemment, le rapport entre les sections efficaces obtenues pour les angles avant et arrière est de l'ordre de 2 pour des électrons de 2 eV, tandis que ce même rapport vaut 10 pour des électrons de 150 eV.

Collisions ion-H_2

Dans la continuité des différents travaux effectués sur les cibles atomiques, l'étude des propriétés de l'émission électronique induite par impact d'ions sur la molécule H_2, constitue un premier pas vers la description de cibles plus complexes que les atomes. Dans ce cadre, l'effet des deux centres coulombiens sur l'émission électronique a été étudié récemment par Tribedi *et al.* pour le système 1-MeV/u $C^{6+} - H_2$ [TRGR01]. Les distributions angulaires de l'électron, mesurées par rapport à la direction du faisceau, sont rapportées sur la figure 1.14. Les résultats expérimentaux montrent clairement l'effet des centres sur l'émission électronique. Comme dans le cas des atomes, l'émission vers l'avant (dans la direction du projectile) est favorisée par rapport à l'émission vers l'arrière. D'autre part, pour un angle de l'ordre de 70°, les résultats rapportent la présence du pic binaire, dont la contribution augmente avec l'énergie de l'électron. Les données expérimentales sont également comparées à celles obtenues par les modèles théoriques B1 et CDW-EIS, pour lesquels la molécule H_2 est traitée comme un atome hydrogénoïde de charge effective Z_{eff} égale à 1.064. Comme on peut s'y attendre, le modèle CDW-EIS est en assez bon accord avec les données expérimentales. A l'inverse, l'approximation de Born ne reproduit pas correctement les effets des deux centres, pour les émissions vers l'avant et vers l'arrière. Enfin, pour les grandes énergies d'électron, le désaccord observé entre le modèle CDW-EIS et les données est attribué à la modélisation schématique de la molécule H_2 dans le calcul théorique.

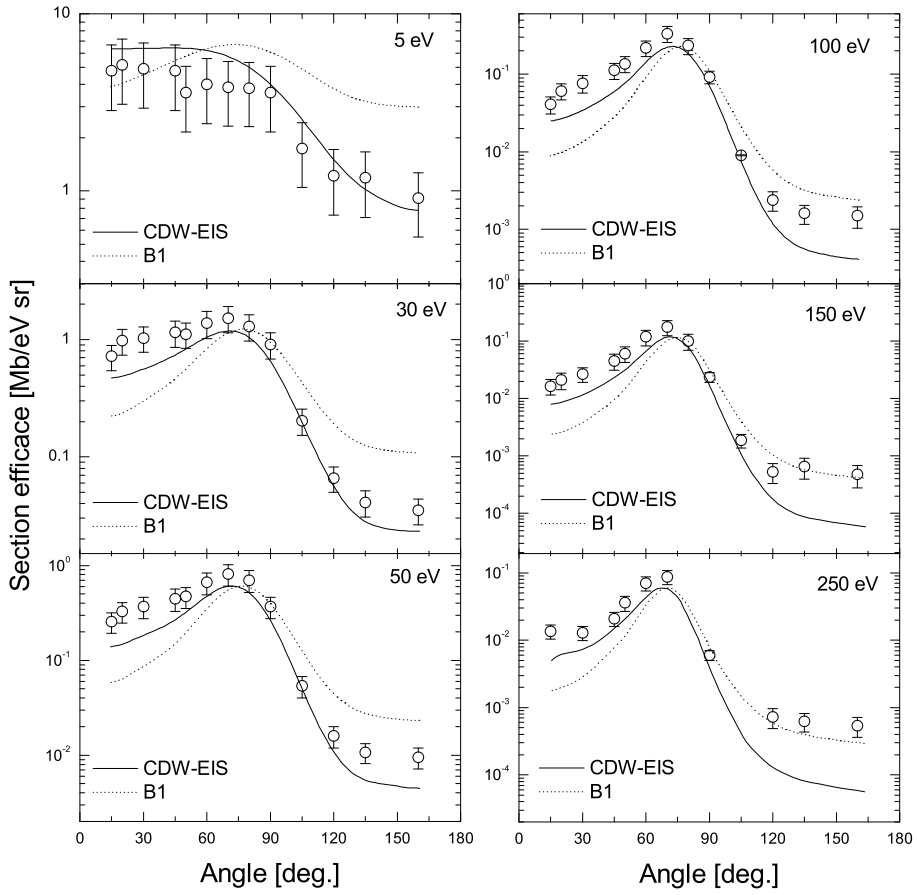


FIG. 1.14 – *Distributions angulaires de l'émission électronique induite par impact d'ions C^{6+} à 1 MeV/amu sur la molécule H_2, mesurées par Tribedi et al. [TRGR01]. Les données sont comparées à celles obtenues par l'approximation de Born (B1), et par la méthode CDW-EIS.*

1.3.2 Etude des propriétés moléculaires : Effet d'interférence

Comme le montrent les résultats obtenus par Tribedi *et al.*, les principales caractéristiques de l'émission électronique, induite par impact d'ions sur la molécule H_2, peuvent être décrites en termes d'effet de centres, de la même façon que pour les cibles atomiques. Récemment, les travaux effectués par Stolterfoht *et al.* ont permis de mettre en évidence des effets beaucoup plus fins, liés à la structure moléculaire de la cible, sur l'émission électronique [SSH$^+$01, SSG$^+$03]. Leurs études se sont focalisées sur le fait que les deux atomes constituant la molécule H_2 sont indiscernables. Par conséquent, leurs contributions au processus d'ionisation s'ajoutent de façon cohérente, donnant ainsi naissance à des effets d'interférences semblables à ceux observés dans les expériences de

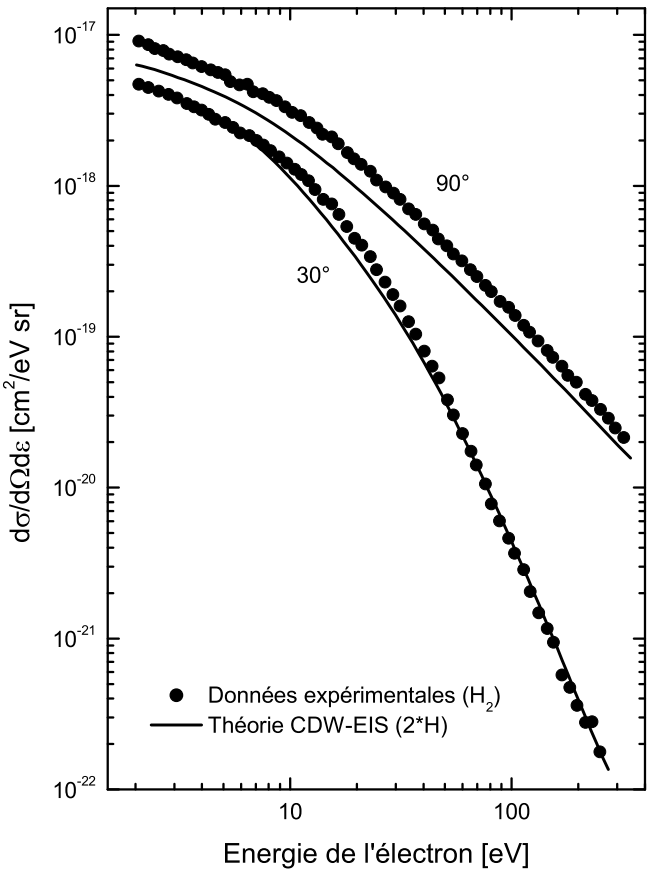


FIG. 1.15 – *Sections efficaces doublement différentielles en angle et en énergie du processus d'ionisation, pour le système 68 MeV/uma* $Kr^{33+} - H_2$*. Les points correspondent aux données expérimentales, mesurées par Stolterfoht et al. [SSG+03]. La courbe représente les sections efficaces pour l'atome d'hydrogène, déterminées à partir du modèle CDW-EIS.*

Young [You07, FLS65]. Ces travaux s'inscrivent dans la continuité des études théoriques réalisées dans le cadre de la photoionisation [CF66, WB99] et de la capture électronique [TG60, CBR99].

Pour mettre en évidence les effets d'interférences pour le processus d'ionisation, Stolterfoht et Briggs suggèrent que la section efficace doublement différentielle en angle et en énergie de l'émission électronique $d\sigma_{H_2}/dqd\varepsilon d\Omega$ peut s'écrire sous la forme:

$$\frac{d\sigma_{H_2}}{dqd\varepsilon d\Omega} = \frac{d\sigma_{2H}}{dqd\varepsilon d\Omega}\left[1 + \frac{sin(pd)}{pd}\right] \tag{1.13}$$

où $d\Omega$ est l'angle solide d'observation, et $d\varepsilon$ l'énergie de l'électron. Le terme $d\sigma_{2H}/dqd\varepsilon d\Omega$ représente la section efficace d'ionisation dans le cas de deux atomes d'hydrogène indépendants. Enfin, le terme entre crochet représente la description formelle des interférences,

où d est la distance internucléaire d'équilibre de la molécule dans son état fondamental, et $p = |k - q|$ la différence entre le moment k de l'électron et le moment transféré q par le projectile. L'orientation de la molécule à l'instant de la collision n'étant pas connue dans le cadre de cette expérience, l'équation 1.13 est obtenue après avoir intégré sur toutes les orientations.

Les sections efficaces doublement différentielles en angle et en énergie mesurées récemment par Stolterfoht [SSG+03], sont représentées sur la figure 1.15. Malgré le fait que toute l'information du processus d'ionisation soit contenue dans ces sections efficaces, cette quantité n'est cependant pas la plus appropriée pour mettre en évidence des effets aussi fins que ceux produits par les interférences. Pour extraire les oscillations induites par le phénomène

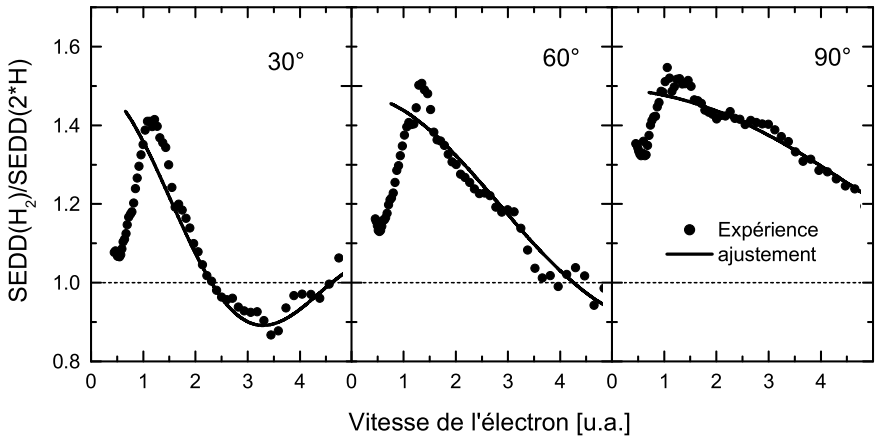


FIG. 1.16 – *Rapports entre les sections efficaces doublement différentielles (SEDD) mesurées pour la molécule H_2, et calculées par la méthode CDW-EIS pour l'atome d'hydrogène. Les points correspondent aux données expérimentales obtenues par Stolterfoht et al. [SSG+03]. Les courbes représentent l'ajustement des données par la fonction $1+sinx/x$, semblable au terme d'interférence présent dans l'équation 1.13.*

d'interférence, les différents auteurs préfèrent généralement s'appuyer sur le rapport entre la section efficace d'ionisation de la molécule H_2, et celle de l'atome d'hydrogène. Faute de données expérimentales, les sections efficaces pour l'atome d'hydrogène sont obtenues théoriquement à partir de la méthode CDW-EIS. La figure 1.16 représente les rapports pour différents angles d'observation (30, 60 et 90°) obtenus par Stolterfoht.

Notons pour finir que les premiers résultats obtenus par Stolterfoht ont motivé ces dernières années plusieurs études successives [BS01, NKPH02, GRFS02, HAL+03].

1.4 Conclusions : corrélation vectorielle

L'existence des nombreuses voies d'ionisation (ionisation dissociative et non dissociative, ionisation excitation, double ionisation) produites lors de l'interaction entre un ion et la molécule H_2, a motivé un grand nombres d'études. Ces dernières se sont principalement focalisées sur la description des grandeurs caractéristiques des fragments ioniques et des électrons produits lors de la collision.
Les résultats obtenus à travers les propriétés cinématiques des fragments, ont montré que les différentes voies d'ionisation pouvait être en partie isolées à l'aide des distributions d'énergie. Pour cela, les distributions ont généralement été comparées aux distributions théoriques prédites par la méthode des projections, afin d'extraire la contribution des différents états moléculaires peuplés lors de la collision. Cette méthode d'analyse a alors permis de déterminer les sections efficaces des processus, ainsi que les distributions angulaires des fragments, à partir des contributions déduites. Toutefois, d'après les résultats théoriques de Sánchez *et al.* [SM99a], ainsi que les récents résultats expérimentaux de Lafosse *et al.* [LLB$^+$03], il subsiste quelques doutes sur la validité des différentes contributions obtenues, notamment celle des états doublement excités.
Contrairement aux caractéristiques des fragments ioniques, les caractéristiques cinématique des électrons émis ne permettent pas de séparer clairement chacune des voies d'ionisation. Ainsi, l'étude de l'émission électronique s'est focalisée sur la dynamique du processus d'ionisation dans son ensemble. Les travaux rapportés concernent d'une part l'étude de l'émission électronique dans la champ coulombien créé par les deux noyaux du système (noyaux cible et projectile), et d'autre part les effets d'interférence attendus dans la simple ionisation de la molécule
Comme nous l'avons mentionné dans l'introduction, nous nous proposons d'établir une mesure complète des corrélations vectorielles entre les vecteurs impulsions des électrons et des protons produits lors de la collision. Pour cela, nous avons développé un dispositif expérimental capable de détecter en coïncidence toutes les particules chargées produites lors de la collision. A partir de la mesure de leurs temps de vol, et de la position de leurs points d'impact sur la surface d'un détecteur sensible en position, nous pouvons déterminer les trois composantes du vecteur impulsion de chacune des particules. Les deux chapitres suivants sont consacrés à la description de ce dispositif.

Chapitre 2

Dispositif expérimental

Sommaire

2.1 Principe de fonctionnement du dispositif expérimental. . . . 34
2.2 Caractéristiques du faisceau d'ions 35
2.2.1 L'accélérateur d'ions lourds GANIL 35
2.2.2 Structure temporelle du faisceau d'ions 36
2.3 Description du jet supersonique 37
2.3.1 Principe de fonctionnement 37
2.3.2 Le générateur de jet et le système de pompage 38
2.3.3 Caractéristiques du jet 40
2.4 Le double spectromètre de vitesse 41
2.4.1 Structure du spectromètre 42
2.4.2 Les champs 45
2.5 Le détecteur sensible en position 48
2.5.1 Principe de fonctionnement du détecteur 49
2.5.2 Les galettes à micro-canaux 49
2.5.3 Les anodes à lignes à retard 51
2.6 Traitement des signaux et acquisition des données 53
2.6.1 Prise de temps et mesure des durées 53
2.6.2 Chronologie de la mesure 57
2.7 Conclusion 58

Le dispositif expérimental utilisé pour l'étude des propriétés vectorielles des particules chargées émises suite à la collision entre un ion projectile et une molécule D_2, a été conçu de façon à remplir deux fonctions : d'une part, assurer la détection en coïncidence de toutes les particules chargées émises dans un angle solide proche de 4π stéradians, et d'autre

part permettre la détermination du vecteur impulsion de chaque particule détectée. Pour satisfaire au mieux ces exigences, le dispositif s'appuie sur les techniques les plus récentes utilisées dans le domaine de la spectroscopie d'ions de reculs :

- un faisceau d'ions projectiles présentant des caractéristiques temporelles adaptées à la mesure de temps de vol;
- un jet supersonique de faible diamètre (au niveau de la zone d'interaction) délivrant une cible monocinétique;
- un spectromètre de vitesse permettant la détection en coïncidence des particules chargées (électrons, ions) produites;
- deux détecteurs sensibles en position placés en vis à vis pour la détection des électrons et des ions;
- un système d'acquisition multiparamétrique, permettant l'analyse et l'enregistrement en mode événement par événement des mesures effectuées suite à une détection.

Dans ce chapitre, après avoir succinctement présenté son principe de fonctionnement, nous décrirons d'une façon générale les différents éléments constituant le dispositif expérimental. En ce qui concerne le spectromètre de vitesse, une simple description de ses caractéristiques mécaniques sera faite ici. Nous aborderons son fonctionnement et son optimisation de façon détaillée dans le chapitre suivant.

2.1 Principe de fonctionnement du dispositif expérimental.

Les ions projectiles fournis par le Grand Accélérateur National d'Ions Lourds (GANIL) entrent en collision avec la cible moléculaire issue d'un générateur de jet supersonique, dans la chambre d'analyse. Les électrons et les ions produits lors de la collision sont dirigés vers deux détecteurs sensibles en position, à l'aide d'un champ électrique et d'un champ magnétique uniformes, orientés suivant l'axe de symétrie du spectromètre (axe x). A l'issue d'une détection, trois observables sont mesurées :

- le temps de vol de chaque particule entre l'instant de la collision et celui de sa détection;
- les coordonnées (Y,Z) de la position d'impact de la particule sur le détecteur.

Les composantes de vitesse longitudinale et transverses de chacune des particules sont ensuite déterminées à partir de son temps de vol et des coordonnées de sa position d'impact sur le détecteur. Le principe de fonctionnement du dispositif est présenté sur la figure 2.1.

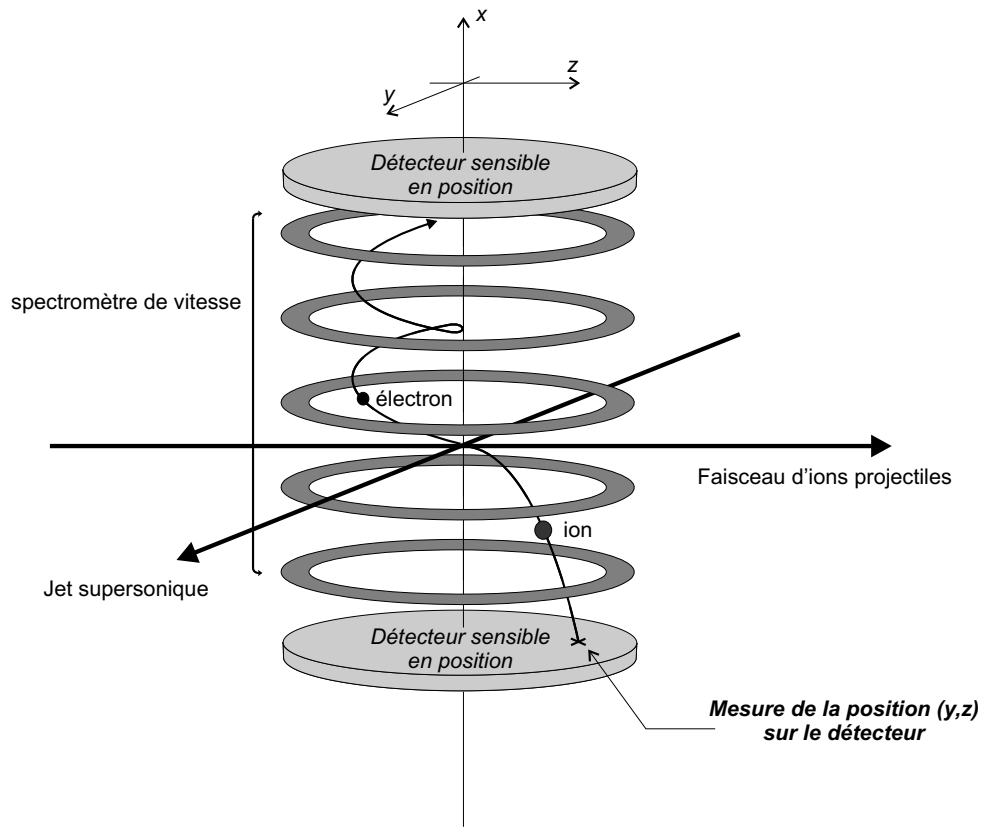


FIG. 2.1 – *Schéma de principe du dispositif expérimental.*

2.2 Caractéristiques du faisceau d'ions

2.2.1 L'accélérateur d'ions lourds GANIL

Les ions accélérés au GANIL [Gan] sont produits par une source ECR (Electron Cyclotron Resonance). Ils sont ensuite extraits et triés en état de charge à l'aide d'un dipôle magnétique, avant d'être successivement injectés dans un premier cyclotron compact (C_0), de manière à les pré-accélérer, puis dans un Cyclotron à Secteurs Séparés CSS1. A la sortie de ce deuxième cyclotron, les ions ont acquis une énergie allant de 4 à 13 MeV/u. Ils sont ensuite épluchés lors de leur passage à travers une cible mince de carbone. A ce stade, les ions sont à nouveau triés en état de charge. Un faisceau d'état de charge donné est injecté dans un deuxième cyclotron à Secteurs Séparés (CSS2), avant d'être dirigés vers la sortie 'Haute Energie' (HE). D'autre part, un faisceau d'état de charge inférieur peut être dirigé vers la 'Sortie Moyenne Energie' (SME).
Les caractéristiques de quelques faisceaux d'ions produits au GANIL sont rapportées dans le tableau 2.1. Pour notre étude, nous avons utilisé un faisceau d'ions $^{32}S^{15+}$ à 13.6 MeV/u délivré par la Sortie Moyenne Energie (SME).

	Haute énergie (HE)		Moyenne énergie (SME)	
Elément	**Energie MeV/A**	**Charge**	**Energie MeV/A**	**Charge**
^{12}C	95	6	13.7	5
^{36}Ar	95	18	13.7	17
^{86}Kr	60	34	9	32
^{129}Xe	44	44	6.1	41
^{208}Pb	29	56	4.5	53

TAB. 2.1 – *Energie et charge de quelques-uns des faisceaux d'ions les plus couramment produits au GANIL.*

2.2.2 Structure temporelle du faisceau d'ions

Par le principe de fonctionnement de ses cyclotrons, le GANIL délivre un faisceau pulsé dont la fréquence dépend du type et de l'énergie de l'ion utilisé. Le faisceau obtenu est ainsi constitué d'une succession de paquets d'ions, caractérisés par une certaine largeur temporelle. Pour notre étude, la fréquence du faisceau de $^{32}S^{15+}$ utilisé est de l'ordre de 13.45 MHz (l'écart temporel entre deux paquets est donc égal à 74 ns), tandis que la largeur d'un train d'ions a été évaluée à 620 ps.
Toutefois, les caractéristiques précédentes du faisceau employé ne satisfont pas pleinement les exigences de notre mesure. En effet, afin d'associer rigoureusement les ions et les électrons détectés avec le paquet projectile à l'origine de leur création, il est impératif qu'aucune autre collision entre un paquet et la cible n'ait lieu tant que ces particules n'ont pas été détectées. Cette condition est satisfaite en supprimant un certain nombre de paquets successifs, à l'aide d'un dispositif disponible au GANIL (que l'on nommera 'Suppresseur de paquets'). Ainsi, ce dispositif nous a permis d'utiliser un faisceau dont la période temporelle s'élève à environ 9.2 μs.
D'autre part, afin d'assurer une association rigoureuse des électrons avec les ions détectés, il est impératif que chacun des paquets ne soit à l'origine que d'une seule collision avec la cible. En pratique, cette condition est satisfaite en diminuant l'intensité du faisceau, tout en conservant une statistique suffisante dans un temps d'acquisition raisonnable. Pour une intensité du faisceau égale à 40 pA, chaque paquet contient en moyenne 1 ion, tandis que le nombre moyen d'événements de coïncidence (détection d'un électron et d'un ion) est de l'ordre de 1000 /s.

2.3 Description du jet supersonique

Le jet moléculaire utilisé comme cible lors des expériences doit présenter deux caractéristiques essentielles :

- les observables *Positions (Y,Z)* étant définies par rapport aux coordonnées du point de collision, son diamètre doit être faible pour assurer une résolution maximale sur leur mesure;
- l'objectif de la mesure étant de déterminer les vecteurs impulsions initiaux des particules émises, la distribution en vitesse des molécules cibles dans le jet doit être étroite.

Les jets moléculaires de type '*supersonique*' présentant ces deux propriétés, constituent par conséquent des bon candidats pour notre étude.

2.3.1 Principe de fonctionnement

Le jet supersonique est obtenu par la détente dans le vide d'un gaz sous une forte pression P_0. La détente se fait à travers une tuyère dont le diamètre D est tel que :

$$\frac{\lambda_0}{D} \ll 1 \tag{2.1}$$

où λ_0 est le libre parcours moyen d'une molécule du gaz sous la pression P_0. L'écoulement a pour effet de transformer le mouvement désordonné initial en un mouvement de translation suivant l'axe de la tuyère. La vitesse suivant cet axe augmente alors au détriment des composantes de vitesse transverses. Simultanément, la dispersion des vitesses longitudinales devient très étroite (cf. figure 2.2).

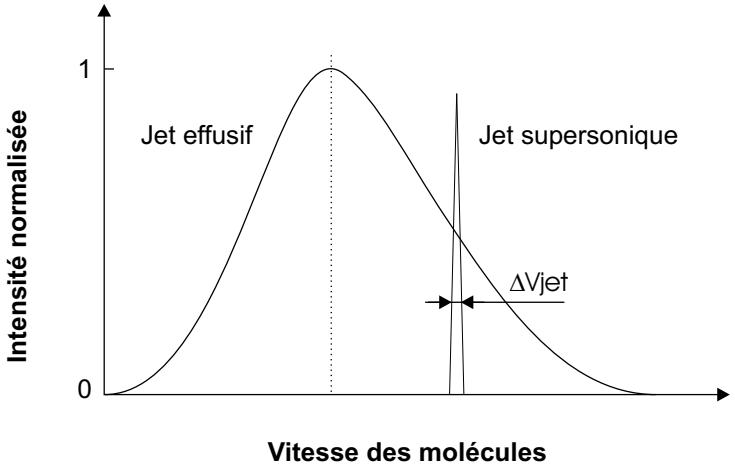


FIG. 2.2 – *Distribution de vitesse des molécules selon la direction d'écoulement dans un jet effusif (Maxwell-Boltzmann) et dans un jet supersonique.*

Toutefois, les collisions entre les molécules du jet et les atomes du gaz résiduel contenu dans l'enceinte de détente peuvent détruire le caractère monocinétique du jet. En pratique, deux solutions peuvent être employées pour surmonter ce problème : soit en diminuant la pression du gaz résiduel dans l'enceinte à l'aide d'un système de pompage suffisamment puissant, soit en augmentant la pression P_0 en amont de la tuyère. La deuxième solution conduit à la formation, par collision entre le jet et le gaz résiduel, d'une surface fermée dite *'structure de choc'*, à l'intérieur de laquelle les atomes et molécules du gaz résiduel ne pénètrent pas (zone de silence) [Cam84]. L'augmentation de la pression P_0 est toutefois limitée, à une température donnée, par la puissance du système de pompage, et par la formation d'agrégats dont le nombre augmente avec la pression. La partie centrale du jet est

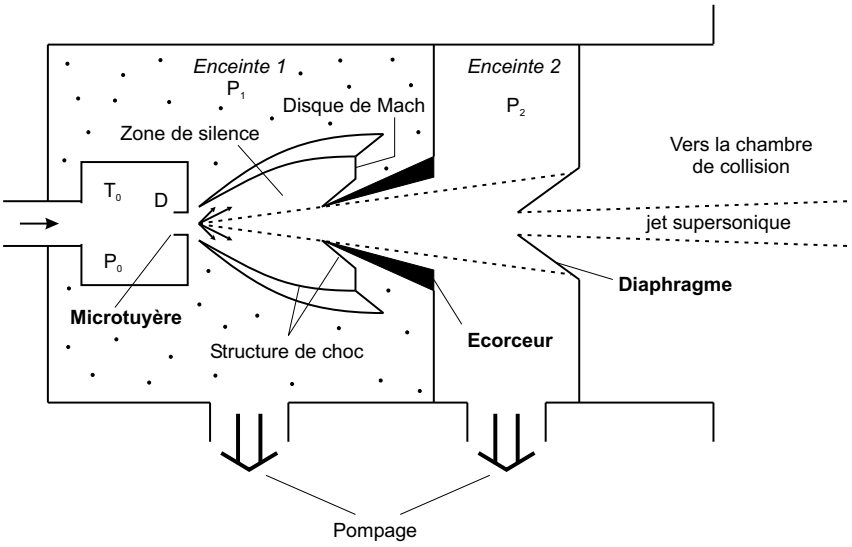


FIG. 2.3 – *Schéma de principe du générateur de jet supersonique.*

alors prélevée dans la zone de silence par l'intermédiaire d'un cône percé en son sommet, généralement nommé *'écorceur'*, qui pénètre le jet sans détériorer ses caractéristiques. En outre, afin de limiter la divergence du jet, les trajectoires axiales des molécules sont ensuite sélectionnées à l'aide d'un diaphragme (cf. figure 2.3).

2.3.2 Le générateur de jet et le système de pompage

Le générateur de jet supersonique utilisé est de type '*Campargue*' [Cam70]. Il est constitué de deux chambres communiquant entre elles par l'écorceur. Le gaz initialement sous la pression P_0 se détend dans la première chambre à travers la tuyère, dont la position x_e par rapport à l'écorceur est réglable. D'autre part, la divergence du jet émergeant dans la chambre d'analyse est fixée par un diaphragme situé en sortie de la seconde chambre. Une représentation de l'ensemble du générateur de jet est donnée sur la figure 2.4.

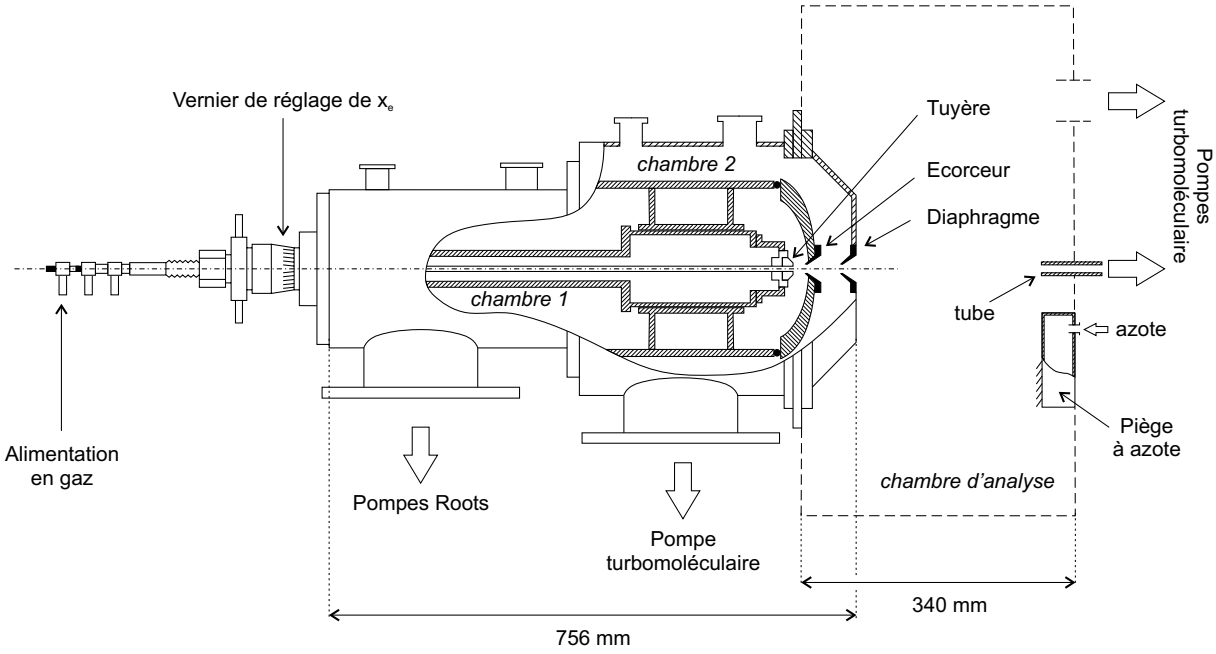


FIG. 2.4 – *Aspect mécanique du générateur de jet supersonique.*

Le bon fonctionnement du jet dépend fortement des pressions régnant dans chaque enceinte. Chacune d'elles possède son propre système de pompage. En ce qui concerne la chambre 1 (cf. figure 2.4), nous avons utilisé un système de pompage composé de trois pompes montées en série : une pompe roots de 2050 m^3/h, une pompe roots de 253 m^3/h, et une pompe à palette de 40 m^3/h. Le pompage de la chambre 2 (cf. figure 2.4) est assurée à l'aide d'une seule pompe turbo-moléculaire (de 400 l/s) associée en série à une pompe primaire. Enfin, le système de pompage utilisé pour la chambre d'analyse est constitué d'une pompe turbo-moléculaire, et d'un piège à azote liquide. D'autre part, pour éviter la diffusion du jet sur les parois de la chambre d'analyse après le point de collision, ce dernier est dirigé à travers un tube étroit (de diamètre interne égal à 10 mm) vers une pompe turbo-moléculaire. Notons pour finir qu'un clapet étanche permet d'isoler le générateur de jet, de la chambre de collision. Les pressions typiques dans les différentes chambres, en fonctionnement pour une pression P_0 de 4 bars, sont données dans le tableau 2.2.

	Pression (en mbar)
Chambre 1	$4.2\ 10^{-3}$
Chambre 2	$5.7\ 10^{-5}$
Chambre d'analyse	$1.8\ 10^{-7}$

TAB. 2.2 – *Pressions dans les différentes chambres en fonctionnement.*

2.3.3 Caractéristiques du jet

Le jet supersonique utilisé présente les caractéristiques suivantes :

Diamètre du jet

Le diamètre 'optique' ainsi que sa divergence sont définis par la géométrie de l'ensemble *tuyère-écorceur-diaphragme* [Jar95].

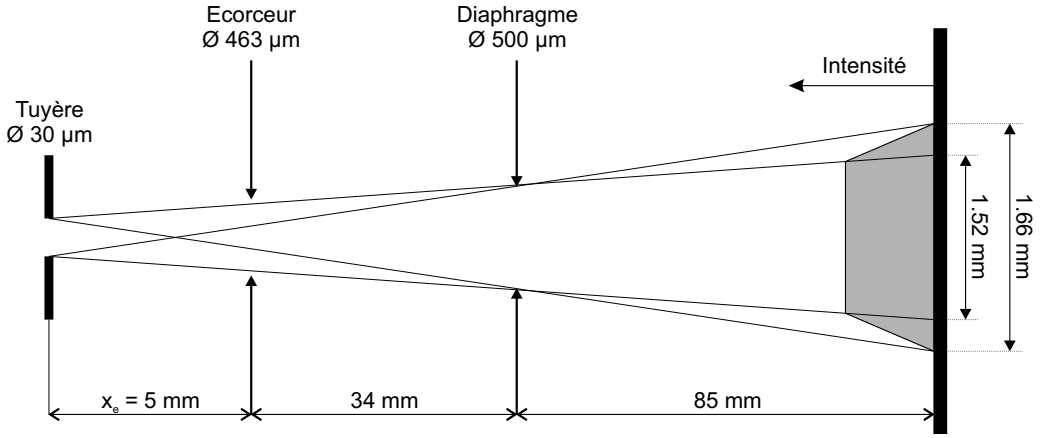


FIG. 2.5 – *Schéma de principe du jet supersonique défini par l'ensemble tuyère-écorceur-diaphragme.*

La configuration géométrique utilisée lors de l'expérience conduit à un diamètre théorique au point de collision (c'est à dire à 85 mm du diaphragme) de l'ordre de 1.52 mm pour la zone d'intensité maximum, et de 1.66 mm pour la zone de pénombre (cf. figure 2.5). Expérimentalement, le diamètre du jet est évalué à environ 1.54 mm (cf. chapitre 4).

Vitesse moyenne des molécules dans le jet

La valeur moyenne V de la vitesse des molécules dans le jet peut être déterminée à partir de la relation (cf. [Jar95]) :

$$V = \sqrt{5.347 \frac{RT}{M}} \tag{2.2}$$

où R est la constante des gaz parfaits, T la température en Kelvin et M la masse molaire de la molécule. Pour le cas du deutérium moléculaire à une température T de 300 K, la vitesse moyenne théorique est égale à 1820 m/s. Comme nous le verrons dans le chapitre 4 (cf. paragraphe 4.2.4), la vitesse mesurée est de l'ordre de 1830 m/s ($\pm$ 190 m/s).

2.4 Le double spectromètre de vitesse

Le spectromètre de vitesse est la pièce maîtresse du dispositif expérimental. Il permet de détecter les particules chargées émises lors de la collision, dans un angle solide proche de 4π stéradians. Les électrons et les ions sont confinés sur la surface finie de leurs détecteurs respectifs, sous l'action d'un champ électrique et d'un champ magnétique uniformes, dirigés suivant l'axe de symétrie du spectromètre (axe x). Dans cet environnement, les trajectoires des particules sont similaires à celles représentées sur la figure 2.6. Le champ électrique a pour effet d'extraire les particules de la zone de collision vers leurs détecteurs respectifs, tandis que le champ magnétique leur impose un mouvement de rotation dans le plan transverse à sa direction, confinant ainsi leurs trajectoires dans le volume du spectromètre. La période de rotation T_0 dépendant linéairement de la masse m de la particule, le déplacement induit par le champ magnétique sera différent pour les électrons et les ions. Dans les conditions de l'expérience (géométrie du spectromètre, intensité des champs), les électrons pourront accomplir plusieurs révolutions avant d'atteindre le détecteur, alors que la trajectoire des ions sera peu affectée par l'action du champ magnétique.

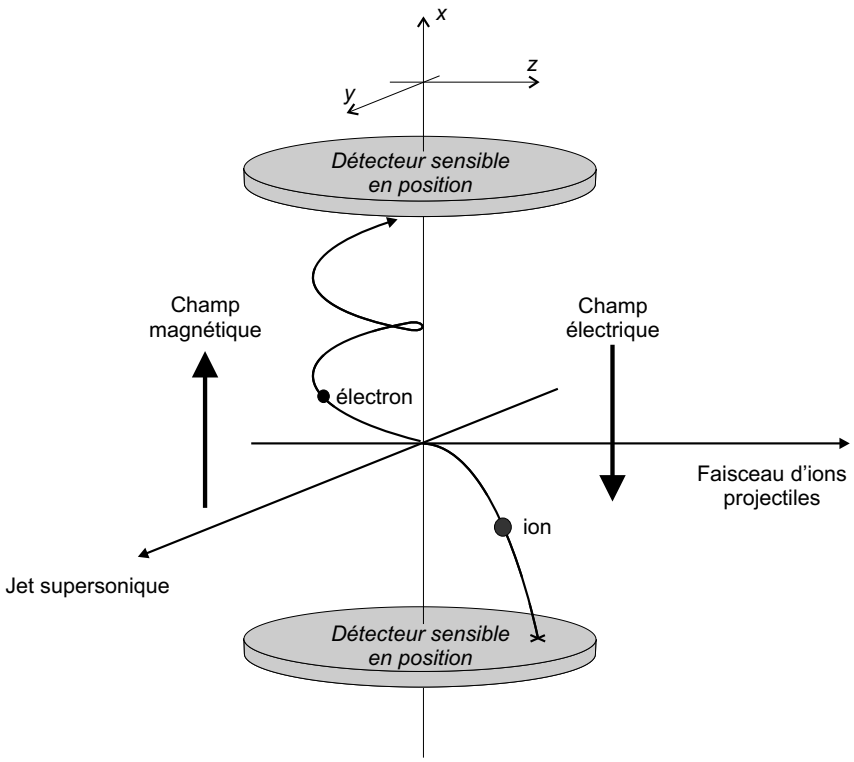


FIG. 2.6 – *Trajectoire des électrons et des ions dans le spectromètre.*

L'expression des temps de vol T^e et T^i des électrons et des ions, ainsi que les coordonnées de leurs positions d'impact (Y,Z) sur chacun des détecteurs découlent des

équations du mouvement. On montre que pour une particule dont les composantes de vitesse initiale sont (V_{0x}, V_{0y}, V_{0z}) émise à la position (x_0, y_0, z_0), le temps de vol est donné par la relation [1] :

$$T^{e,i} = \frac{m}{|q|E_1}\left(sV_{0x} + \sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^{e,i} + sx_0\right)}\right) + \frac{d_2^{e,i}}{\sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^{e,i} + sx_0\right)}}$$
$$+\frac{m}{|q|E_3^{e,i}}\left(-\sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^{e,i} + sx_0\right)} + \sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^{e,i} + sx_0\right) + \frac{2|q|E_3^{e,i}}{m}d_3^{e,i}}\right) \tag{2.3}$$

où m est la masse de la particule, et s le signe de sa charge q ($s = 1$ pour les ions chargés positivement, -1 pour les électrons). Le temps de vol d'une particule est la somme des temps passés dans les trois zones constituant chaque partie du spectromètre (cf. ci-après), de dimensions suivant l'axe x (d_1, d_2, d_3), et où règnent des champs électriques d'intensités différentes (E_1,E_2 ,E_3). En ce qui concerne les coordonnées (Y,Z) de la position d'impact, leurs expressions sont données par les relations :

$$Y(t = T^{e,i}) = \frac{1}{\omega_0}\left[V_{0y}sin\left(\omega_0 t\right) + sSV_{0z}\left(1 - cos\left(\omega_0 t\right)\right)\right] + y_0 \tag{2.4}$$

$$Z(t = T^{e,i}) = \frac{1}{\omega_0}\left[V_{0z}sin\left(\omega_0 t\right) - sSV_{0y}\left(1 - cos\left(\omega_0 t\right)\right)\right] + z_0 \tag{2.5}$$

où S vaut 1 pour un champ $\vec{B}$ dans le même sens que l'axe $\vec{x}$, -1 pour un sens opposé (cf. figure 2.6). La pulsation cyclotron $\omega_0 = \frac{|q|B}{m}$ dépend uniquement de la masse m de la particule, de la valeur absolue de sa charge $|q|$, et de l'intensité du champ magnétique B. Comme nous le verrons dans le chapitre 3, les composantes du vecteur vitesse initiale peuvent être déterminées à partir de l'expression analytique du temps de vol et des coordonnées (Y,Z). Dans la suite de ce paragraphe, nous nous intéresserons uniquement à la constitution mécanique du spectromètre.

2.4.1 Structure du spectromètre

Le double spectromètre de vitesse comporte deux parties dédiées à la détection des ions et des électrons (cf. figure 2.7). Chacune d'elles est constituée de trois zones où règnent des champs électriques d'intensités différentes :

– **une zone d'extraction** où règne un champ électrique d'intensité E_1;

1. La détermination de l'expression analytique des temps de vol T^e et T^i, et des coordonnées (Y,Z) des positions d'impact sur le détecteur est décrite en détail dans l'Annexe A.

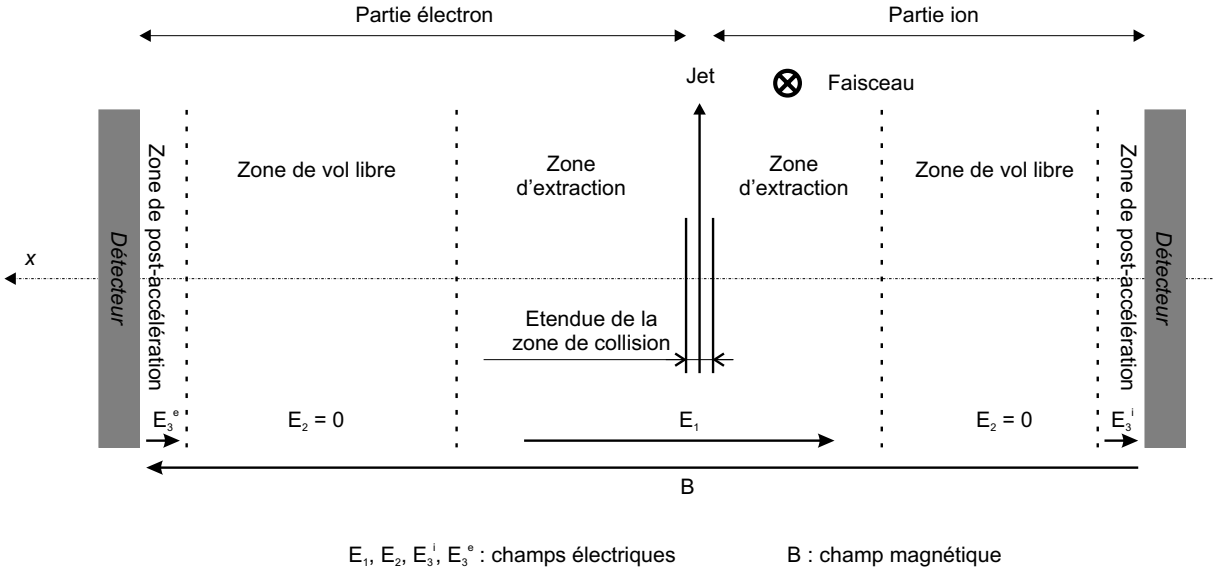


FIG. 2.7 – *Structure du double spectromètre de vitesse.*

– **une zone de vol libre** exempte de champ électrique;
– **une zone de post-accélération** où règne un fort champ électrique (E_3^i, E_3^e).

La géométrie basée sur l'utilisation conjointe d'une zone d'extraction et de vol libre a été choisie de façon à satisfaire les conditions de focalisation en temps dites de "Wiley-McLaren" [WM55]. Dans ces conditions, le temps de vol devient indépendant de la position x_0 du point de création de la particule dans le volume d'interaction. D'autre part, la présence de la zone de post-accélération permet de conférer aux particules l'énergie nécessaire à une détection efficace par les galettes à micro-canaux (cf. paragraphe 2.5.2). Le spectromètre de vitesse est représenté sur la figure 2.8. Il est constitué d'un empilement de plaques en aluminium d'épaisseur 1 mm percées sur un diamètre de 80 mm, séparées entre elles par des alumines. La distance entre deux plaques est égale à 5 mm, excepté au niveau de la zone de collision où l'écart est de 10 mm. Le spectromètre est entièrement démontable. Les dimensions des zones d'extraction et de vol libre suivant l'axe du spectromètre peuvent ainsi être adaptées en fonction des caractéristiques des particules à détecter, de façon à obtenir la meilleure résolution sur la mesure[2]. La zone de post-accélération est quant à elle définie entre la dernière plaque marquant la fin de la zone de vol libre, et la surface du détecteur.
Notons pour finir que l'ensemble du spectromètre baigne dans un champ magnétique uniforme et dirigé suivant l'axe d'extraction, créé à l'extérieur de la chambre d'analyse par une paire de bobines placées en position de Helmholtz.

2. L'étude de la résolution du dispositif sera décrite dans le chapitre 3 consacré à l'optimisation du spectromètre.

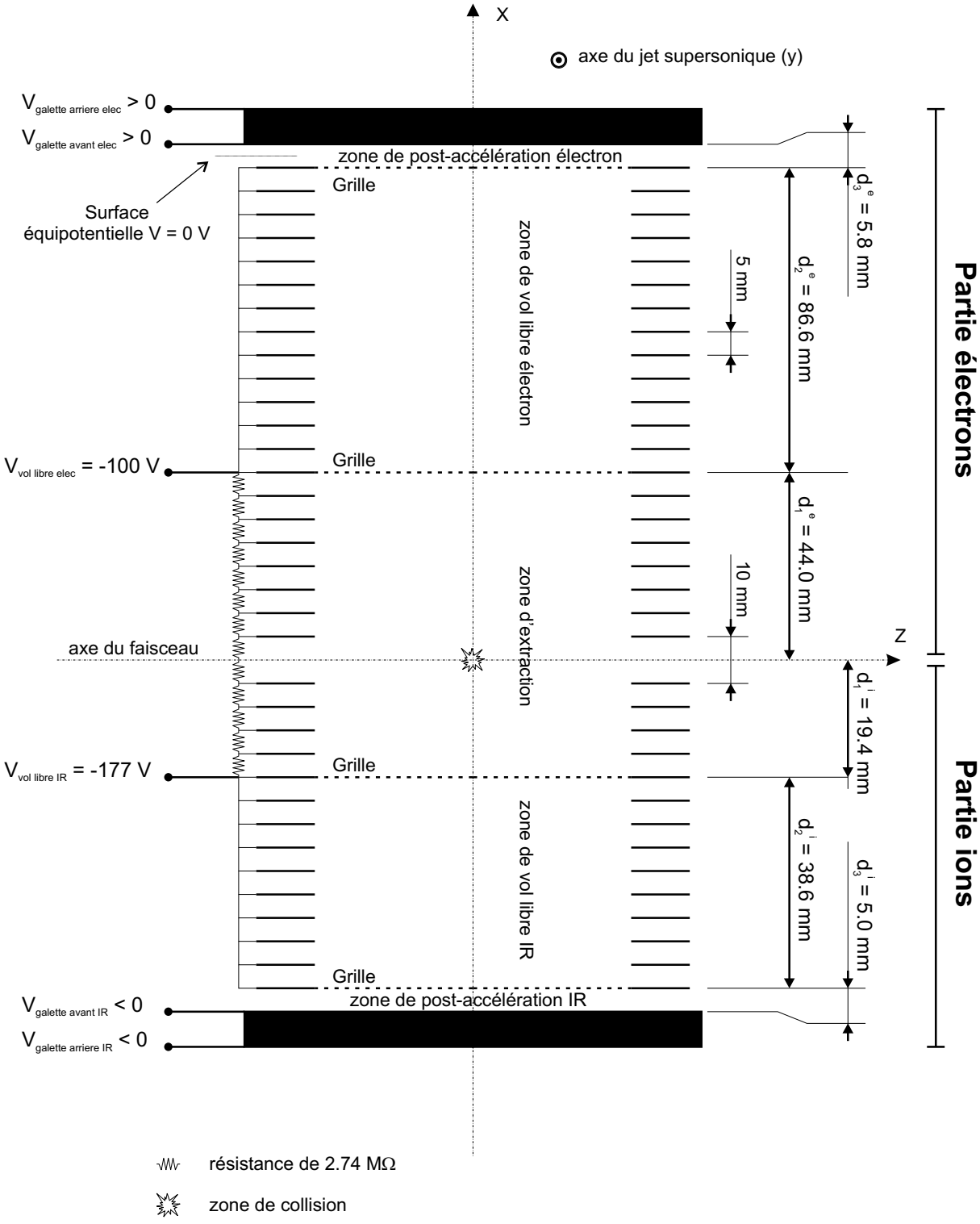


FIG. 2.8 – *Constitution du double spectromètre de vitesse.*

2.4.2 Les champs

Le champ électrique

Le champ électrique d'extraction est généré en appliquant un potentiel sur chacune des plaques frontières séparant les zones d'extraction et de vol libre. Pour assurer l'homogénéité du champ, les plaques formant les zones d'extraction sont reliées entre elles par un pont de résistances équilibrées. Dans les zones de vol libre, toutes les plaques sont soumises au même potentiel, celui de la plaque frontière, en les connectant les unes aux autres par un court-circuit. Enfin, le champ électrique de post-accélération résulte de la différence entre le potentiel de la zone de vol libre, et celui de la face avant du détecteur (cf. paragraphe 2.5.2). Notons que chacune des zones est délimitée par des grilles de nickel transparentes à 95 % de façon à garantir l'homogénéité des champs électriques, et que les différents potentiels appliqués au spectromètre sont négatifs par rapport au potentiel de la chambre de collision (masse), de façon à éloigner du spectromètre les électrons 'parasites' présents hors de celui-ci. Pour l'expérience réalisée, l'intensité du champ électrique d'extraction[3] utilisé est égale à 30 V/cm, tandis que les intensités des champs régnant dans les zones de post-accélération des ions et des électrons s'élèvent respectivement à 6000 V/cm, et 400 V/cm.

Le champ magnétique

La résolution sur la mesure des coordonnées de position (Y,Z) repose sur l'uniformité du champ magnétique utilisé pour confiner les électrons sur leur détecteur. Pour assurer la meilleure homogénéité du champ dans le volume du spectromètre, les dispositifs développés ces dernières années [MUU$^+$96, LWA$^+$01, SFK$^+$03, SMF$^+$03] se sont appuyés sur l'utilisation d'une paire de bobines alimentées par un courant continu, placées dans la configuration dite de 'Helmholtz' à l'extérieur de la chambre de collision (cf. figure 2.11). Comme le montre la figure 2.9, il est alors possible de créer un volume important dans lequel les lignes de champ sont rectilignes et parallèles, où l'on placera le spectromètre de vitesse.

En pratique, le diamètre des bobines a été choisi de façon à remplir deux conditions : d'une part, permettre d'obtenir un champ homogène dans tout le volume du spectromètre, ce qui imposait leur diamètre minimum, et d'autre part, respecter la géométrie imposée par la configuration de Helmholtz[4] dans l'encombrement mécanique du dispositif expérimental initial. Ces conditions ont conduit à un diamètre de l'ordre de 1.20 m. D'autre part, les bo-

3. La détermination expérimentale de l'intensité du champ électrique d'extraction sera décrite dans le chapitre 4.

4. Dans la configuration de Helmholtz, la distance séparant les deux bobines est égale à leur rayon.

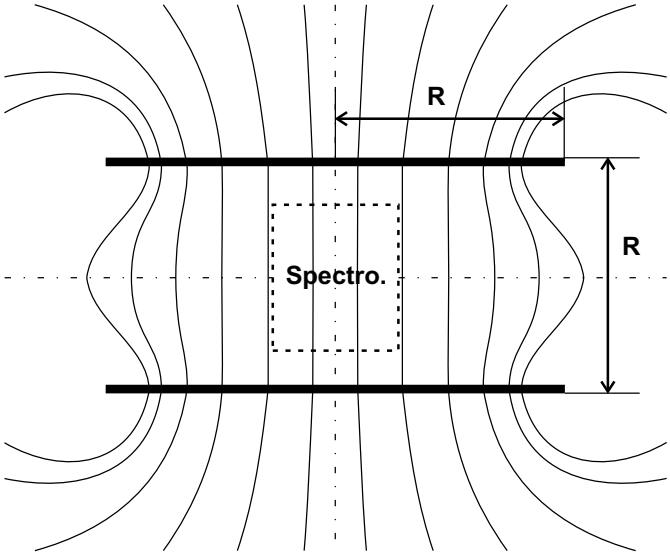


FIG. 2.9 – *Géométrie des lignes de champ dans la configuration dite de Helmholtz.*

bines sont constituées de 143 spires jointives formant une section carrée d'environ 38×62 mm^2.

Pour le diamètre des bobines utilisées, la forme théorique des profils du champ a été déterminée à partir d'un calcul découlant de l'application de la loi de Biot et Savart au cas hypothétique où les deux bobines sont infiniment étroites. La figure 2.10, représente les profils de la composante B_x du champ magnétique créé (normalisée par la valeur B_0 du champ au centre du système composé par les deux bobines) suivant les directions parallèle et transverse à l'axe des bobines. Dans le volume occupé par le spectromètre, les variations de l'intensité du champ autour de la valeur B_0 n'excèdent pas 0.5% suivant l'axe des bobines, et 10^{-5} suivant la direction transverse à l'axe x.

Expérimentalement, l'homogénéité du champ peut être altérée par l'environnement magnétique ambiant. Il n'a pas été possible de cartographier précisément la valeur du champ magnétique à l'intérieur du spectromètre. Toutefois, les inhomogénéités du champ ont été évaluées à l'aide d'une sonde de type '*Flux Gate*' à environ 0.1 Gauss pour un champ de 18 Gauss[5]. D'autre part, afin d'annuler la composante horizontale du champ magnétique ambiant dans le volume du spectromètre, nous avons positionné deux paires de bobines, orthogonales entre elles, à l'extérieur de la chambre de collision (cf. figure 2.11). La somme des champs créés par chacune des paires, permet alors d'annuler la composante horizontale du champ ambiant, quelle que soit l'orientation de notre dispositif.

L'énergie maximale des électrons pouvant être confinés sur le détecteur varie avec l'inten-

5. 1 Gauss = 10^{-4} Tesla.

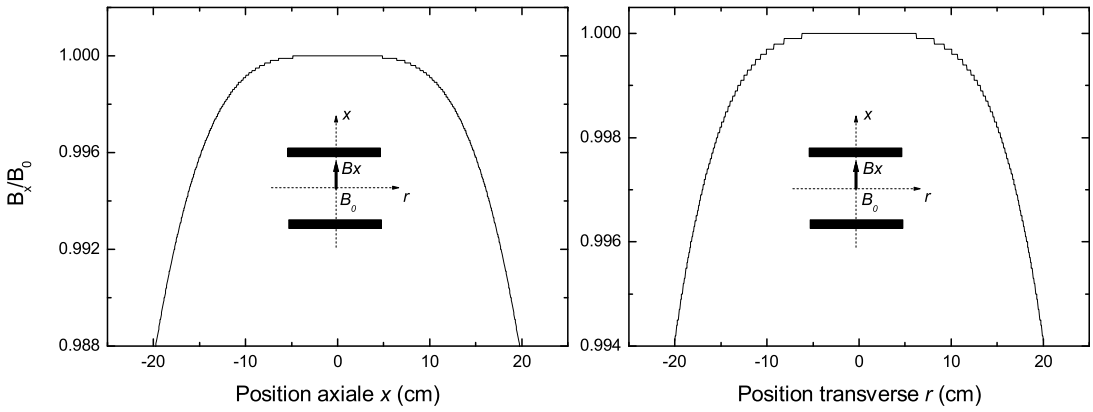


FIG. 2.10 – *Profils de la composante B_x du champ magnétique (normalisée par la valeur B_0 du champ au centre du système composé par les deux bobines) suivant les directions parallèle et transverse à l'axe des bobines.*

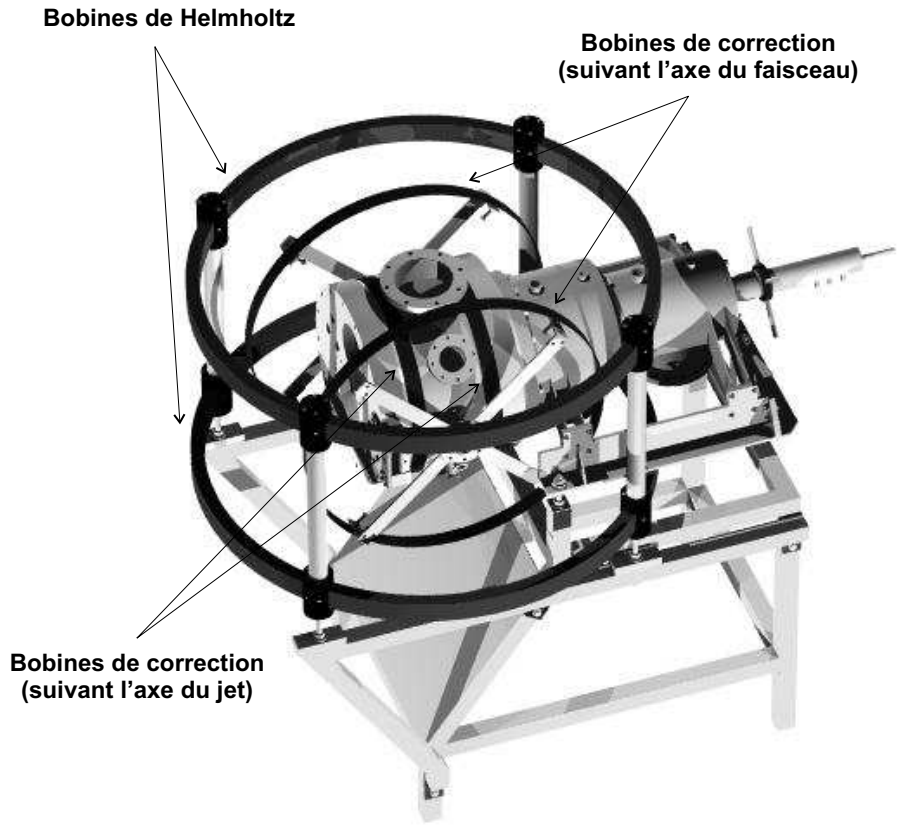


FIG. 2.11 – *Vue du dispositif expérimental et des bobines de création de champ magnétique.*

sité du champ magnétique appliqué suivant la relation :

$$E_{max} = \frac{eD^2B^2}{32m_e} \tag{2.6}$$

où D est le diamètre du détecteur, m_e la masse de l'électron, e la charge élémentaire et B l'intensité du champ magnétique régnant dans le spectromètre. Avec l'alimentation en courant dont nous disposons (20A/60V), l'intensité maximale du champ pouvant être atteinte est de l'ordre de 40 Gauss, ce qui permet de confiner sur un détecteur de 80 mm de diamètre, des électrons dont l'énergie est inférieure à 563 eV. En ce qui concerne notre étude, nous voulions détecter des électrons dont l'énergie pouvait atteindre environ 100 eV, ce qui imposait l'utilisation d'un champ de l'ordre de 18 Gauss.

2.5 Le détecteur sensible en position

Les Détecteurs Sensibles en Position (DSP) que nous avons utilisés, fournissent deux types d'informations : d'une part, l'information temporelle correspondant à l'instant d'arrivée des particules sur sa surface, et d'autre part l'information de leur position d'impact repérée par les coordonnées (Y,Z). Ce type de détecteur, largement utilisé actuellement [JMUP$^+$98, LLB$^+$00, WWB$^+$03], et dont l'apparition remonte à quelques années [SW88], comporte un empilement de trois galettes à micro-canaux, et une anode constituée d'un enroulement de deux lignes à retard. La figure 2.12 donne une représentation du détecteur.

En fonctionnement, le détecteur nécessite plusieurs potentiels rapportés dans le tableau 2.3. La valeur de chacun d'entre eux est fonction du potentiel $V_{V.L.}$ appliqué dans la zone de vol libre. Comme nous avons choisi de polariser le spectromètre négativement, les potentiels appliqués au détecteur d'ions sont également négatifs par rapport à celui de la chambre de collision.

Potentiel	**Détecteur électrons**	**Détecteur ions de recul**
V galette avant	$V_{V.L.}$(électron) + 200 V	$V_{V.L.}$(ion) - 3000 V
V galette arrière	$V_{V.L.}$(électron) + 2600 V	$V_{V.L.}$(ion) - 600 V
V support	$V_{V.L.}$(électron) + 2700 V	$V_{V.L.}$(ion) - 500 V
V ligne	$V_{V.L.}$(électron) + 3000 V	$V_{V.L.}$(ion) - 200 V

TAB. 2.3 – *Potentiels appliqués à chaque détecteur*

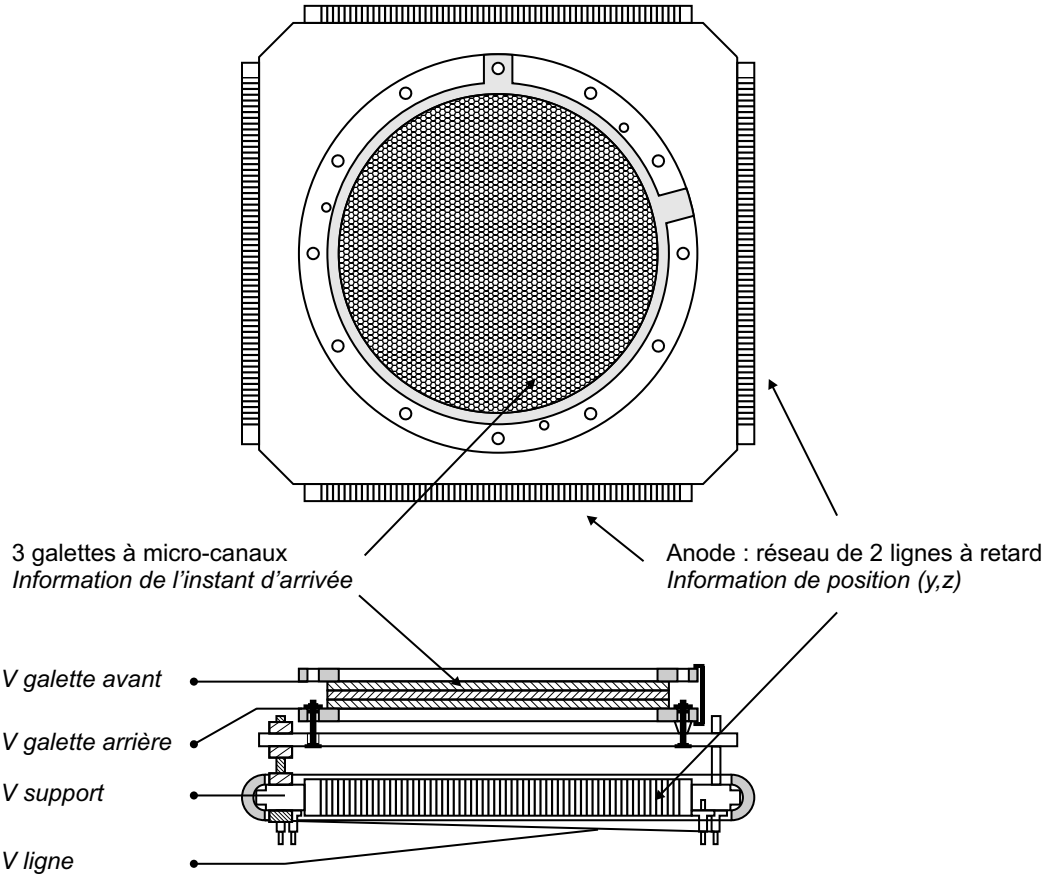


FIG. 2.12 – *Structure et polarisation du Détecteur Sensible en Position (DSP)*

2.5.1 Principe de fonctionnement du détecteur

L'impact d'une particule sur la première galette engendre l'émission de quelques électrons secondaires. Sous l'action de la tension appliquée à chaque extrémité de l'empilement, ces électrons secondaires vont être accélérés dans les micro-canaux, donnant naissance à une gerbe d'électrons d'une intensité de l'ordre du picoCoulomb, dirigée vers le plan de fils de l'anode à la sortie de la troisième galette. Ces charges collectées par l'anode vont ensuite se propager dans chaque direction des deux lignes à retard. Ainsi à l'issue de la détection d'une particule, cinq signaux sont recueillis : un premier signal fourni par l'empilement des trois galettes donne l'instant d'arrivée de la particule sur le détecteur, tandis que les quatre signaux recueillis à chaque extrémité des deux lignes à retard permettent de déterminer les coordonnées du point d'impact de la particule.

2.5.2 Les galettes à micro-canaux

Chaque détecteur comporte trois galettes à micro-canaux de type GALILEO, d'un diamètre utile d'environ 80 mm. Les galettes ont été empilées en alternant l'orientation des

canaux, de façon à diminuer leurs bruits ioniques (cf. figure 2.13). En outre, la différence de potentiel appliquée entre les 2 extrémités de l'empilement (entre la face avant de la première galette, et la face arrière de la troisième galette) s'élève à environ 2400 V.

Prise de temps

Le gerbe d'électrons émise vers l'anode suite à la détection d'un ion ou d'un électron, provoque une brève chute de la tension appliquée aux extrémités des galettes à micro-canaux. La composante impulsionelle de cette tension est extraite sur la face arrière de la troisième galette à l'aide d'un condensateur de capacité 1 nF. Le montage électronique utilisé pour extraire le signal est représenté sur la figure 2.13.

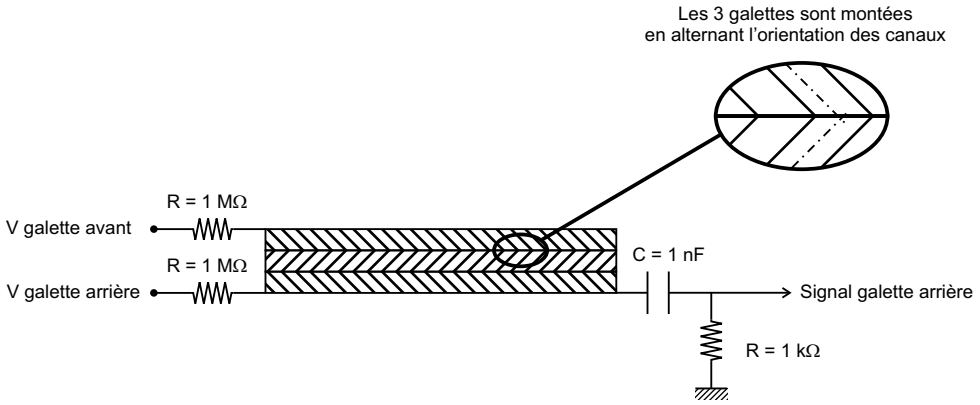


FIG. 2.13 – *Montage et polarisation des galettes micro-canaux*

Rendement des galettes

L'efficacité des galettes dépend de plusieurs facteurs. D'une part, elle est liée à leur structure dans la mesure où l'avalanche d'électrons est créée uniquement dans le cas où les particules incidentes viennent percuter l'intérieur d'un canal. Le rendement donné par le constructeur est alors défini par le rapport :

$$\eta = \frac{\text{surface apparente des canaux}}{\text{surface totale}} = 57\% \tag{2.7}$$

D'autre part, elle dépend également de la nature et de l'énergie des particules incidentes [GS00]. D'après les données du constructeur, l'efficacité maximale de détection est obtenue pour une énergie des électrons et des ions respectivement de l'ordre de 200 eV et 3000 eV. Ces énergies sont obtenues en appliquant une différence de potentiel de 200 V et 3000 V dans les zones de post-accélération des électrons et des ions.

2.5.3 Les anodes à lignes à retard

L'anode à lignes à retard, de type Roentdek [Roe], est constituée de deux enroulements croisés perpendiculairement, de façon à former un réseau bidimensionnel de fils [SW88]. Chaque ligne, bobinée autour du support avec un pas de l'ordre du millimètre, définit une des directions du plan de détection (y ou z). L'arrivée de la gerbe d'électrons sur l'anode, crée une charge localisée qui va engendrer la propagation d'une impulsion vers chacune des extrémités des deux lignes à retard (cf. figure 2.14).

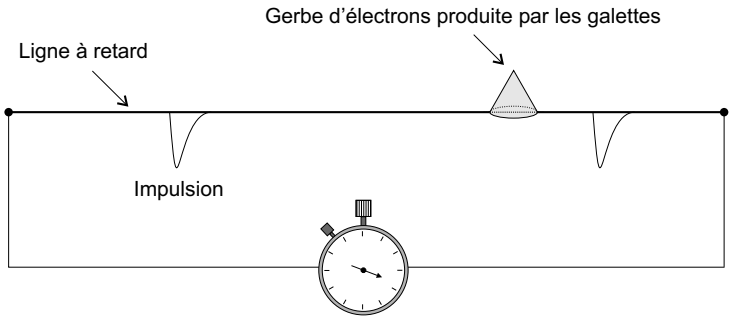


FIG. 2.14 – *Principe d'utilisation d'une ligne à retard*

Le temps nécessaire à la propagation des impulsions jusqu'aux extrémités rend compte de la distance parcourue depuis le point de leur création (cf. figure 2.15). On montre alors que la coordonnée de position du point d'impact est directement proportionnelle à la différence des temps de parcours (*t1*, *t2*) associés aux impulsions voyageant vers les deux extrémités de la ligne :

$$y(M) = C_{tp}(t1y - t2y) \tag{2.8}$$

$$z(M) = C_{tp}(t1z - t2z) \tag{2.9}$$

où C_{tp} représente le facteur de conversion '*temps/positions*'. Il correspond à la vitesse de propagation des impulsions suivant l'une ou l'autre des directions (y, z).
Il apparaît alors évident que la somme des temps mis pour atteindre chaque extrémité, est une constante égale au temps nécessaire pour parcourir toute la longueur de la ligne. Pour nos détecteurs, elle est de l'ordre de 70 ns. Nous verrons au chapitre 4 comment utiliser cette caractéristique pour sélectionner les événements.

En pratique, le nuage d'électrons créé par les galettes arrose simultanément plusieurs fils de l'anode. Ceci entraîne une modulation du profil temporel de l'impulsion, ayant pour effet de donner la position du point d'impact avec une résolution inférieure au pas du bobinage de la ligne (1 mm). La résolution spatiale obtenue découle alors du pas de codage de la mesure des temps (*t1*, *t2*). Pour un pas de codage des temps égal à 0.5 ns (cf. paragraphe suivant), elle s'élève à environ 300 μm.

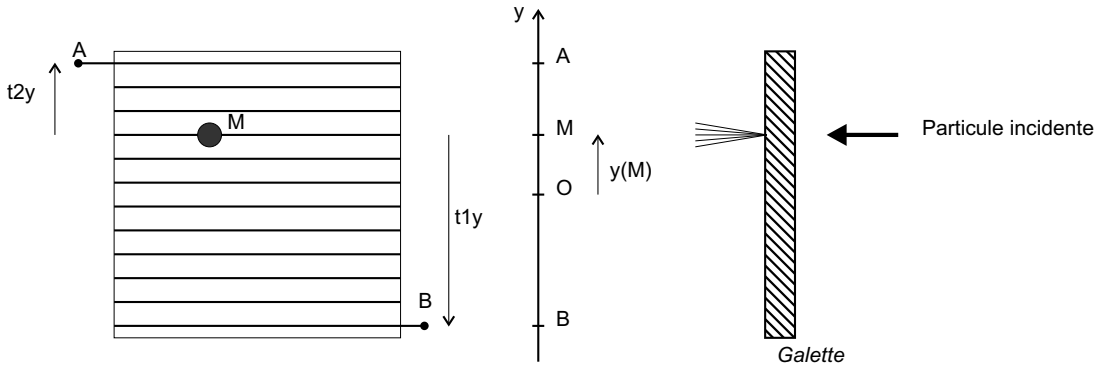


FIG. 2.15 – *Principe de la détermination des coordonnées du point d'impact à partir des temps mesurés*

Minimisation du bruit

Chaque ligne à retard est en fait constituée d'une paire de fils séparés l'un de l'autre par un peu moins de 0.5 mm : l'un est nommé '*signal*' et l'autre dit '*référence*'. Une différence de potentiel de l'ordre de 50 V est maintenue entre ces deux fils de façon à ce que les impulsions physiques engendrées par l'arrivée de l'avalanche d'électrons soient d'amplitudes différentes. Les deux fils collectent en revanche les mêmes signaux parasites. Ainsi, par différence des signaux recueillis aux extrémités de chacun de ces fils, les impulsions physiques sont extraites du bruit de fond accumulé. Cette opération est réalisée à l'aide de transformateurs[6] différentiels analogiques rapides (TD) adaptés en impédance, dont la petite taille (10×10 mm) permet de les connecter directement aux extrémités de l'anode dans la chambre de collision (cf. figure 2.16).

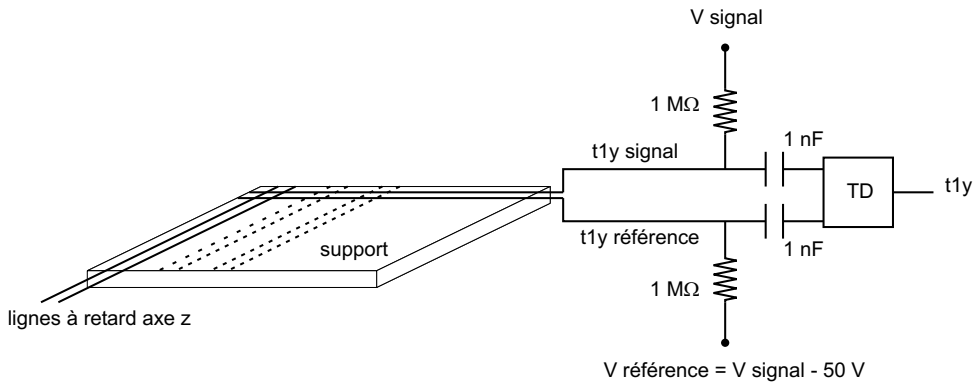


FIG. 2.16 – *Utilisation du transformateur différentiel (TD) et polarisation de l'anode à ligne à retard.*

6. Référence des transformateurs utilisés : modèle TP-104 de AMP Company.

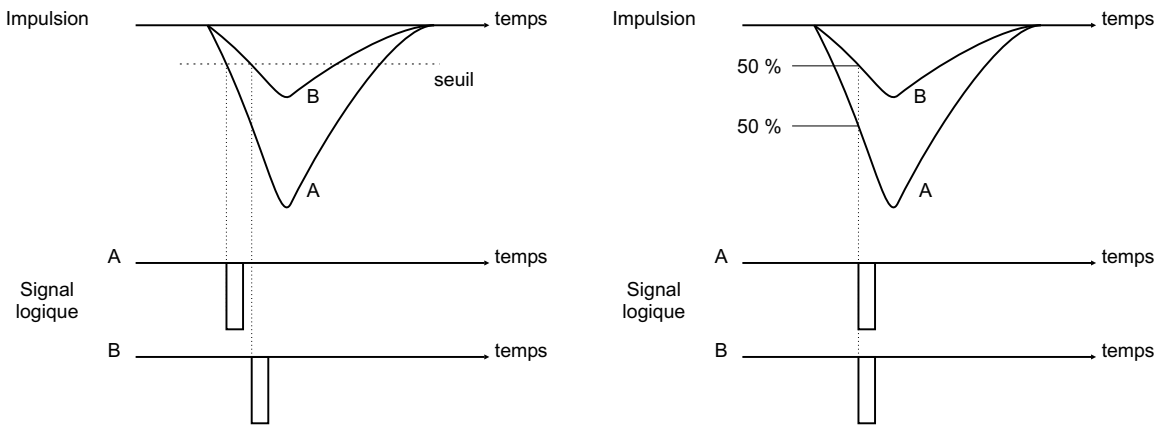
2.6 Traitement des signaux et acquisition des données

2.6.1 Prise de temps et mesure des durées

Le rôle de la chaîne électronique consiste à déterminer l'intervalle de temps séparant l'instant d'arrivée des impulsions issues des galettes et des anodes suite à la détection d'un événement, de celui d'un signal de référence. Elle doit donc assurer d'une part, une prise de temps soigneuse des signaux issus des détecteurs, et d'autre part, le codage d'une durée. Deux types de modules électroniques sont destinés à cette fonction :

- un Discriminateur à Fraction Constante (DFC);
- un Convertisseur Temps Numérique (ou 'Time-to-Digital Converter' TDC).

Un moyen simple pour effectuer une prise de temps aurait été d'utiliser un discriminateur à seuil classique, émettant un signal logique lorsqu'une impulsion entrante dépasse un seuil déterminé. Comme le montre la figure 2.17*a* cette méthode entraîne une dépendance de la prise de temps en fonction de l'amplitude de l'impulsion. Pour surmonter ce problème, on préfère utiliser un discriminateur à fraction constante. Son fonctionnement consiste à générer un signal logique lorsque l'impulsion entrante atteint un pourcentage déterminé de son amplitude [Leo87]. La figure 2.17*b* montre comment la prise de temps devient indépendante de l'amplitude de l'impulsion pour une fraction constante égale à 50%.



(a) Discrimination à seuil classique

(b) Discrimination à fraction constante

FIG. 2.17 – *Principe de fonctionnement de deux types de discriminateurs*

La mesure des durées est effectuée à l'aide d'un convertisseur temps numérique. Ce module permet de coder sur 16 bits l'intervalle de temps séparant l'instant d'arrivée d'un signal sur une de ses voies, de l'instant d'arrivée d'un signal de référence (*'Common Stop'*). Le pas de codage du convertisseur (Lecroy Model 3377) valant 0.5 ns, des temps allant jusqu'à 32μs peuvent être mesurés. D'autre part, le modèle utilisé prévoit la possibilité de fonctionner en mode *'Multi-événements'*. Il peut coder les durées séparant plusieurs signaux (jusqu'à 16) arrivant sur la même voie par rapport au même signal de référence, tant que ceux-ci sont séparés entre eux d'une durée supérieure au temps mort du TDC (10 ns).

Chaîne de traitement électronique

La figure 2.18 présente la chaîne électronique de mise en forme des signaux issus des détecteurs. D'une façon générale, chaque signal provenant d'une galette (*tge*, *tgi*) ou d'une ligne à retard (*t1y*, *t2y*, *t1z*, *t2z*), subit le même traitement. Dans un premier temps les impulsions fournies par les détecteurs sont amplifiées (Amp), le gain variant de 10 pour les signaux issus des galettes, à 45 pour ceux provenant des anodes, avant d'être envoyées dans un discriminateur à fraction constante (DFC), où elles subissent une double discrimination :

- une discrimination par niveau qui permet d'éliminer les impulsions de faible amplitude (bruit électronique);
- une discrimination à fraction constante, qui opère une prise de temps indépendante de l'amplitude des impulsions entrantes (tant que celles-ci passent le seuil de la discrimination par niveau).

Les signaux logiques émis par le DFC sont ensuite envoyés sur les différentes voies d'entrées du TDC. Les durées séparant l'instant de leurs arrivées, de celui du signal de référence sont codées, puis enregistrées à l'aide d'un ordinateur d'acquisition.

L'acquisition des données

Un programme a été développé dans le but d'acquérir les données en mode événement par événement. Son rôle consiste essentiellement à piloter le TDC, c'est à dire, initialiser le TDC au début de l'acquisition, lire et enregistrer les durées codées pour chaque événement lorsque la conversion est effectuée, et remettre à zéro l'ensemble de ses mémoires, une fois les données lues. Le processus d'acquisition des données est déclenché par l'arrivée du signal commun de référence (*'Common Stop'*). Le temps nécessaire pour effectuer une opération d'acquisition d'un événement est de l'ordre de 400 μs. Ce temps étant

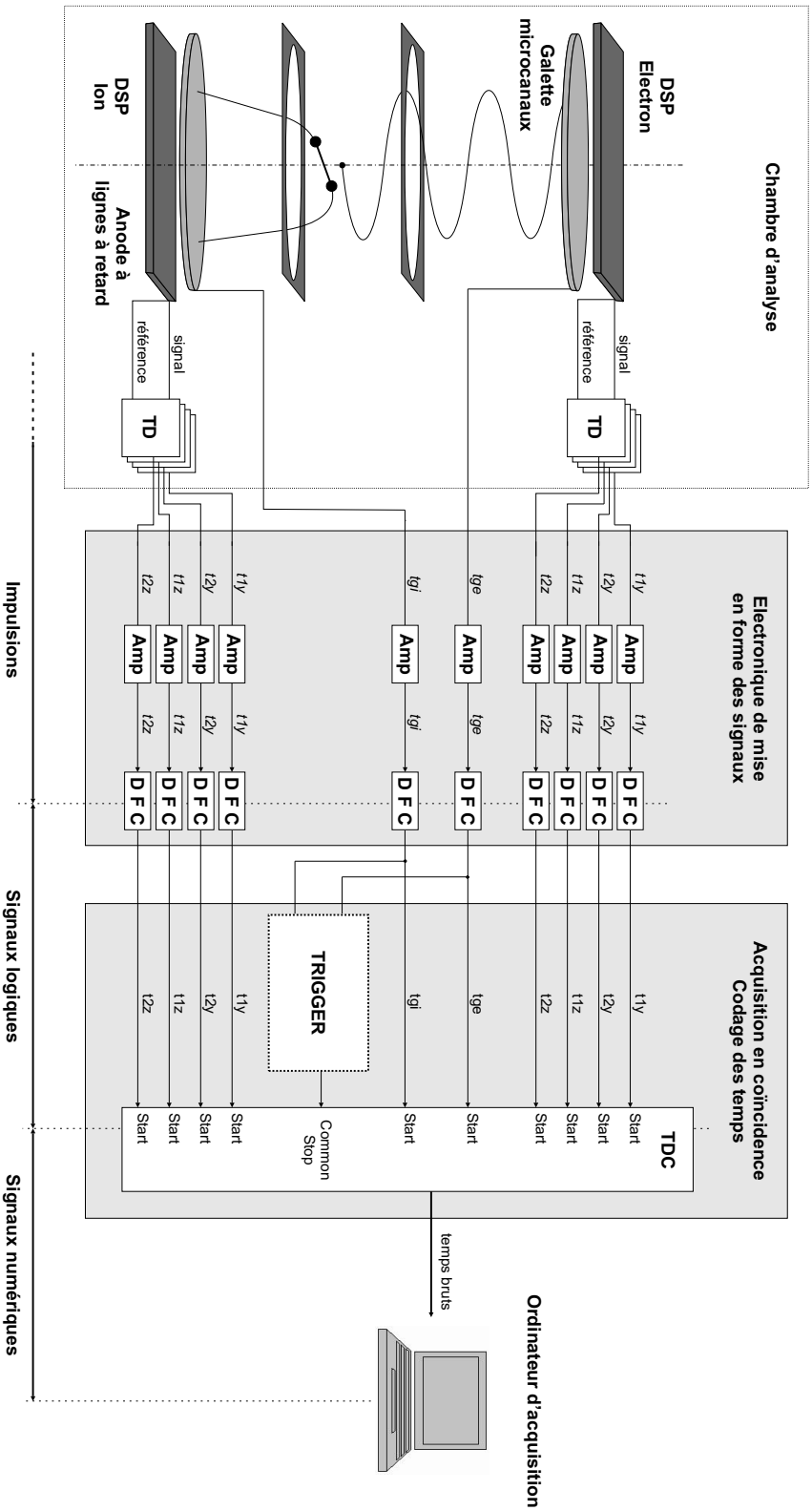


FIG. 2.18 – *Electronique de mise en forme des signaux et codage en temps*

relativement long (il limite le taux de comptage à environ 2500 événements par seconde), il est important que le signal commun de référence signe un bon événement.

Sélection des événements à coder

Dans le cadre de cette étude, au moins un électron est attendu en coïncidence avec un (ou deux) ion(s) D^+. Le signal commun de référence sera donc émis uniquement si ces deux types de particules sont détectés. De plus, pour limiter les déclenchements d'acquisition sur des fausses coïncidences (provenant du bruit par exemple), on ajoute une coïncidence avec le signal suppresseur de paquets. La partie de la chaîne électronique liée à la formation du signal commun de référence est représentée sur la figure 2.18 par l'étage nommé *'Trigger'* (pour Déclenchement). La méthode utilisée est quant à elle représentée sur la figure 2.19.

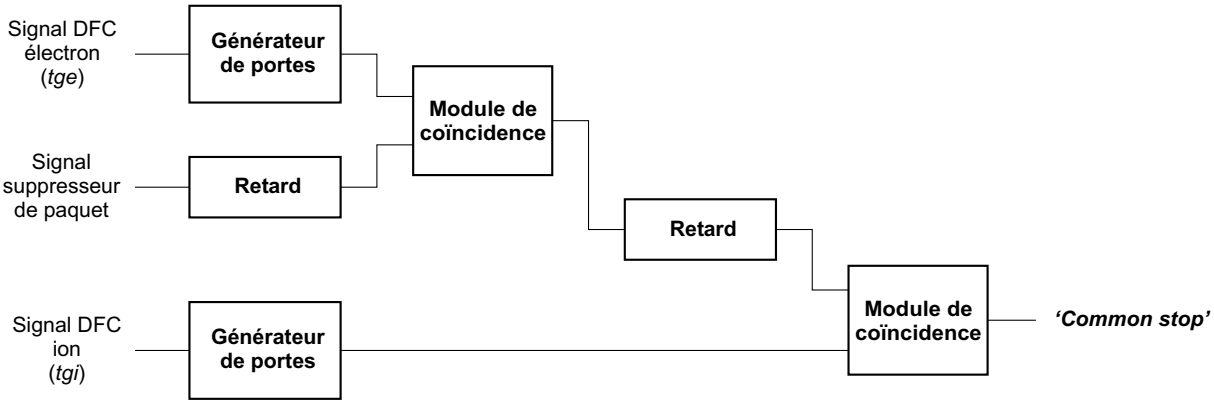


FIG. 2.19 – *Principe de formation du signal de référence ('Common Stop')*

En pratique, la double coïncidence est obtenue à l'aide de générateurs de portes, de retards programmés, et de modules de coïncidence. La première particule détectée à la suite d'une collision étant l'électron, le signal issu des galettes du détecteur d'électrons, sert de base à la validation de l'hypothétique événement. Ce signal déclenche alors l'ouverture d'une fenêtre, dont la largeur minimale correspond à la gamme des temps de vol des électrons, dans l'attente du signal provenant du suppresseur de paquets préalablement retardé de façon à coïncider avec la fin de la fenêtre. Un signal est alors généré par un premier module de coïncidence.

Pour conclure et valider l'événement, il reste à effectuer une deuxième coïncidence avec l'ion. L'impulsion correspondante déclenche l'ouverture d'une porte dont la largeur correspond à la gamme de temps de vol des ions à détecter. La coïncidence entre la porte générée par l'ion et le signal de coïncidence *'Electron/Suppresseur'* préalablement retardé forme alors le signal commun de référence. La figure 2.20 représente la chronologie de la formation du signal *'Common Stop'*[7].

7. Les retards a et b appliqués aux signaux issus du suppresseur de paquet, et du premier module

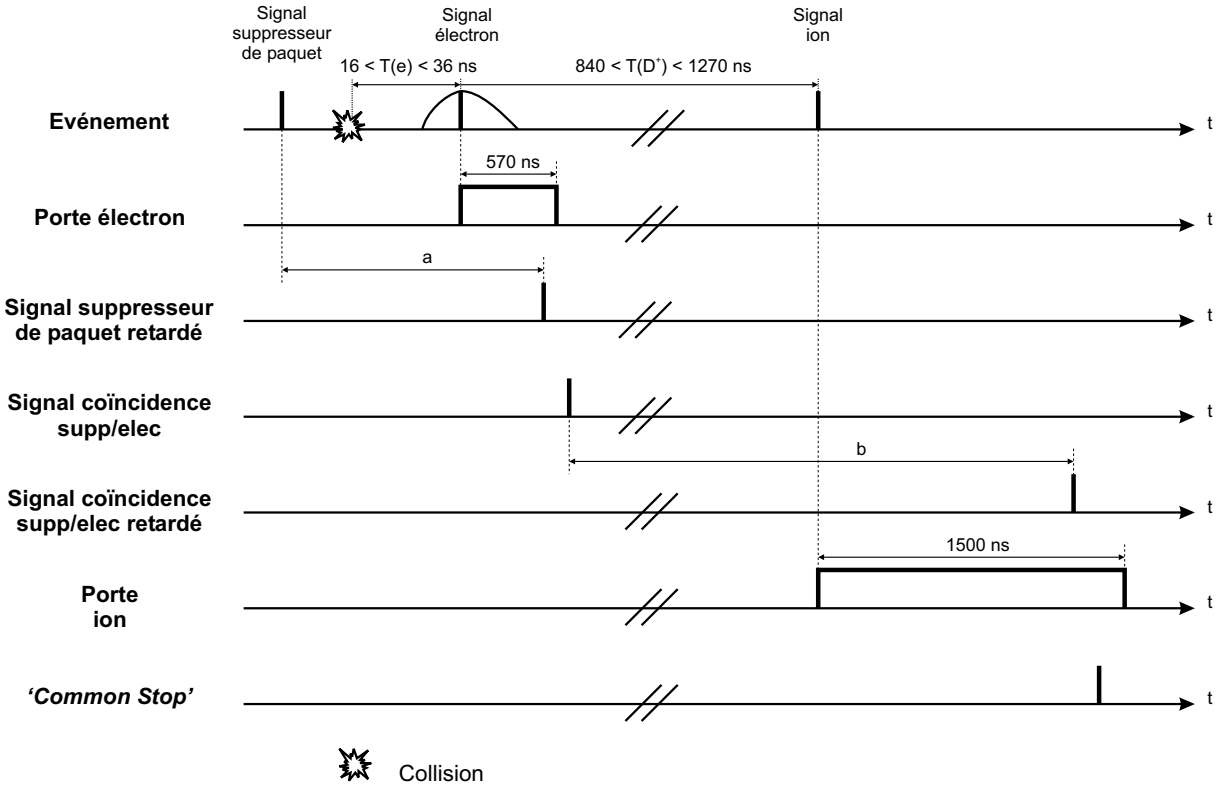


FIG. 2.20 – *Chronologie de la formation du signal de commun de référence ('Common Stop')*

2.6.2 Chronologie de la mesure

La chronologie de la mesure d'un événement est représentée sur la figure 2.21. Les gammes de temps de vol de chaque particule sont rappelées sur l'échelle *'Collision'*. Le temps de vol $T_0(e)$ d'un électron sans énergie cinétique initiale est de l'ordre de 27 ns, tandis que celui d'un ion ($T_0(D^+)$) avoisine 1089 ns. A la suite de la détection d'une particule, chacun des signaux (*tge*, *t1y*, *t2y*, *t1z*, *t2z*) issus des discriminateurs, ainsi que le signal de coïncidence *'Electron/Suppresseur'*[8] sont envoyés sur une entrée du TDC. Lorsque tous ces signaux ont atteint les différentes voies d'entrées, le signal commun de référence (*'Common stop'*) arrive à son tour et déclenche, d'une part le codage des durées, et d'autre part l'acquisition de l'événement.

Durant toute la durée de l'acquisition, les discriminateurs à fraction constante sont inhibés de façon à éviter l'arrivée d'éventuels signaux sur le TDC, provenant d'un événement suivant. L'inhibition est réalisée à l'aide d'un signal porte, généré par le signal commun de référence, que l'on applique sur l'entrée *'Inhibit'* des discriminateurs. Lorsque les

de coïncidence dépendent de la longueur des cables acheminant chacun des signaux, et du temps de traitement des divers modules électroniques, c'est pourquoi nous n'avons pas précisé leurs valeurs.

8. Nous verrons dans le chapitre 4 que l'instant d'émission de ce signal peut être employée comme référence temporelle pour les spectres de temps de vol des ions et des électrons.

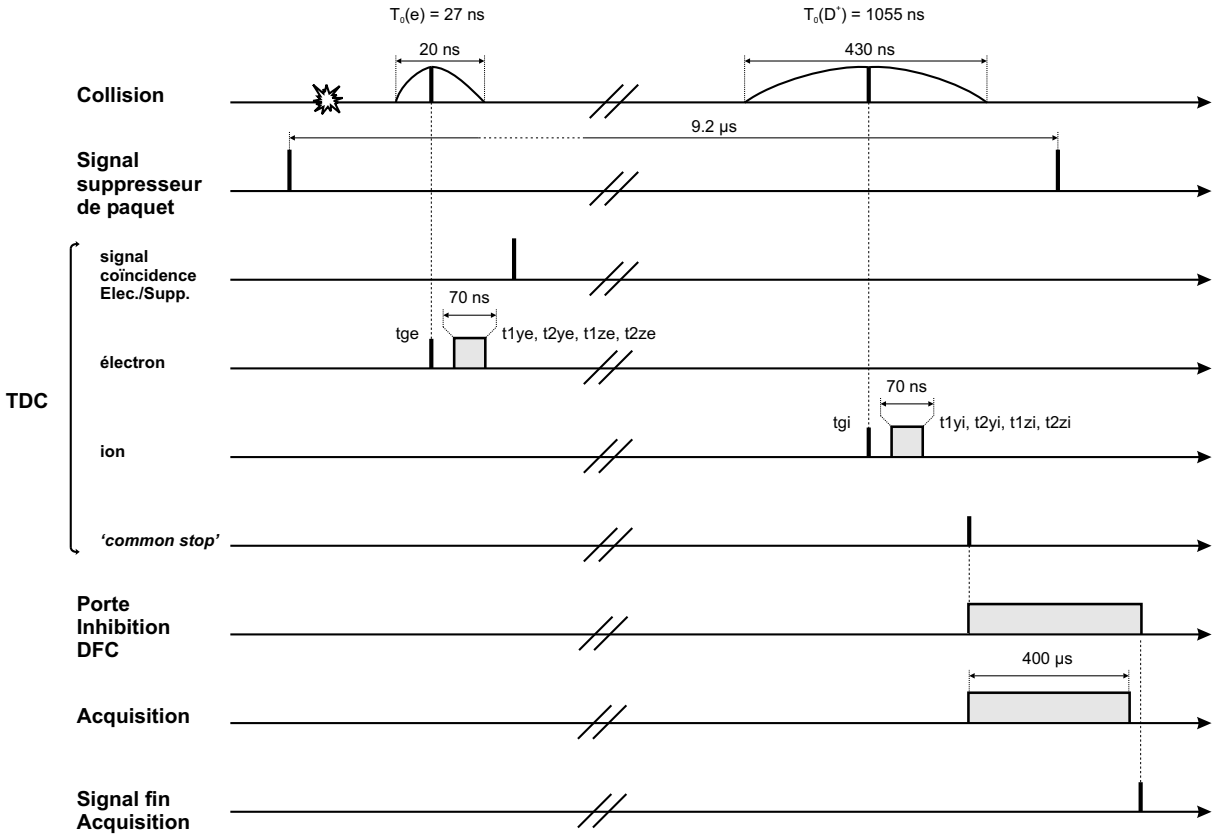


FIG. 2.21 – *Chronologie de la mesure d'un événement*

différentes durées codées par le TDC ont été lues et enregistrées, le programme d'acquisition ordonne à un générateur d'impulsions d'émettre un signal utilisé pour fermer la fenêtre, ce qui active à nouveau les discriminateurs.

2.7 Conclusion

Le dispositif expérimental développé, a été utilisé pour la mesure des vecteurs impulsions des particules chargées (électron, ion) produites suite à la collision entre un ion projectile ($^{32}S^{15+}$) et une molécule de deutérium. Ses principales caractéristiques peuvent se résumer à ce qui suit :

Faisceau projectile : $^{32}S^{15+}$ à 13.6 MeV/u pulsé, dont la période (intervalle de temps entre deux paquets) vaut 9.2 μs.

Jet moléculaire : Jet supersonique de deutérium (D_2). La vitesse moyenne des molécules avoisine 1830 m/s, tandis que le diamètre du jet est de l'ordre de 1.3 mm (au point de collision).

Spectromètre de vitesse : Il permet la détection en coïncidence des électrons et des

ions émis suite à une collision entre un ion projectile et la molécule cible, en confinant chacune des particules sur la surface finie de son détecteur. Le confinement est réalisé par l'effet combiné d'un champ électrique d'extraction (3010 V/m) et d'un champ magnétique (18 Gauss) créé par une paire de bobines placées dans la configuration dite de Helmholtz.

Détecteur sensible en position : Deux détecteurs identiques (Roentdek) sont utilisés pour la détection des électrons et des ions. Ils sont constitués d'un empilement de trois galettes à micro-canaux d'un diamètre utile de l'ordre de 80 mm, et d'une anode à ligne à retard. La résolution en position est de l'ordre de 300 μm suivant les deux dimensions y et z.

Modules électroniques : 12 discriminateurs à fraction constante servent à la prise de temps des signaux issus des galettes et des lignes à retard de chaque détecteur. Un TDC multi-voies dont la résolution est de 0.5 ns, permet de mesurer des durées allant jusqu'à 32 μs. Le modèle utilisé prévoit également un fonctionnement en mode multi-événements : 16 signaux arrivant sur la même voie peuvent être codés, tant que l'intervalle de temps séparant l'arrivée de chacun d'entre eux est supérieur au temps mort du TDC (10 ns).

Acquisition : Un système d'acquisition multi-paramétriques est employé pour l'enregistrement des données en mode événement par événement.

Le chapitre suivant est consacré à l'étude du double spectromètre de vitesse. Nous verrons comment ses dimensions, ainsi que les intensités des champs électrique d'extraction et magnétique ont été choisies de façon à confiner chacune des particules sur les détecteurs. De ces choix, découleront également les résolutions en énergie et en angle du dispositif pour l'expérience réalisée.

Chapitre 3

Etude du spectromètre de vitesse

Sommaire

3.1 Principe général du double spectromètre de vitesse 62
3.1.1 Action d'un champ électrique 62
3.1.2 Action conjuguée d'un champ magnétique et électrique 63
3.2 Equations du mouvement 64
3.2.1 Détermination du temps de vol 65
3.2.2 Détermination des coordonnées de position 68
3.2.3 Conclusion 69
3.3 Caractéristiques des observables 69
3.3.1 Observable *'temps de vol'* 69
3.3.2 Observable *'Position'* 71
3.4 Détermination des composantes de vitesse 76
3.4.1 Détermination de la composante de vitesse V_{0x} 76
3.4.2 Détermination des composantes V_{0y} et V_{0z} 80
3.5 Précision sur la mesure des composantes 81
3.5.1 Précision sur la détermination de la composante V_{0x} 81
3.5.2 Incertitude sur la mesure des composantes V_{0y} et V_{0z} 84
3.6 Efficacité de collection 86
3.6.1 Efficacité de détection des ions 86
3.6.2 Efficacité de détection des électrons 88
3.7 Conclusion : optimisation du spectromètre 90

Le dispositif expérimental employé pour déterminer les composantes du vecteur vitesse initiale de l'ensemble des particules chargées émises lors de la collision, doit permettre d'accéder à une statistique de mesure suffisante, dans un temps d'acquisition raisonnable.

Pour cela, compte tenu des faibles taux de comptage généralement liés à la détection en coïncidence de plusieurs particules (électron, ions), il doit :

- d'une part, présenter un angle solide de détection important pour chacune des particules;
- d'autre part, permettre d'explorer une plage en énergie des particules suffisamment grande.

Pour satisfaire ces conditions, la méthode mise en oeuvre consiste à exploiter les caractéristiques intrinsèques et cinématiques des particules produites. Les particules issues d'une collision entre un ion multichargé et une molécule étant en majorité chargées et de basse énergie, l'utilisation d'un champ électrique s'avère alors très efficace pour contraindre leurs trajectoires sur la surface finie d'un détecteur. Cette méthode a depuis quelques années fait ses preuves dans le domaine de la spectroscopie d'impulsion d'ions de recul (RIMS : Recoil Ion Momentum Spectroscopy) [Flé99]. Cependant, elle révèle ses limites dès que l'on souhaite détecter des électrons d'énergie plus importante. Aussi, comme nous allons le décrire dans ce chapitre, l'extension de cette technique à la spectroscopie d'électrons de grande vitesse n'a pu voir le jour que récemment, grâce à l'action conjointe d'un champ électrique et d'un champ magnétique [MUU$^+$96].

Dans ce chapitre, nous allons discuter de l'utilisation et de l'optimisation d'un tel dispositif. Dans une première partie, nous aborderons de façon générale, le principe de la méthode utilisée. Puis, nous décrirons l'ensemble des propriétés des observables mesurées (*Temps de vol*, *Positions*), à partir desquelles nous déterminerons les composantes du vecteur vitesse initiale de chaque particule. Ensuite, nous verrons comment évolue la précision sur la mesure des composantes de vitesse en fonction de la géométrie du spectromètre et de l'intensité des champs utilisés. Enfin, nous déterminerons les conditions d'efficacité de collection des particules en fonction des caractéristiques du spectromètre.

3.1 Principe général du double spectromètre de vitesse

Comme nous venons de le mentionner, notre dispositif repose sur l'utilisation d'un champ électrique et d'un champ magnétique uniformes, qui permettent de diriger les particules vers les deux détecteurs à localisation.

3.1.1 Action d'un champ électrique

Sous l'action d'un champ électrique, les particules chargées émises suite à la collision, sont extraites de la zone de collision, et dirigées sur la surface du détecteur. Par analogie

avec la mécanique, l'action du champ électrique s'apparente à celle d'un plan incliné (cf. figure 3.1).

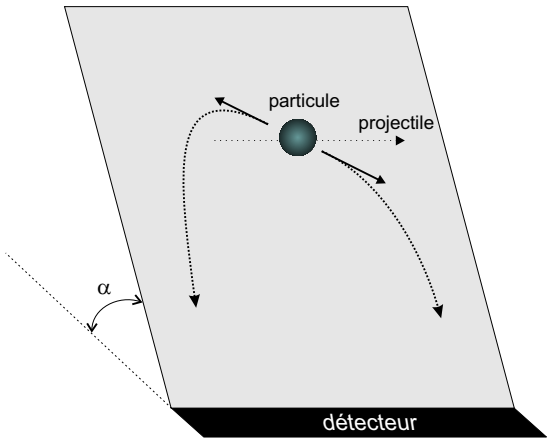


FIG. 3.1 – *Dans le cadre de l'analogie avec la mécanique, l'action du champ électrique s'apparente à celle d'un plan incliné.*

L'utilisation d'un champ électrique s'avère très efficace pour extraire des fragments moléculaires dont l'énergie n'excède pas la vingtaine d'eV, mais il n'en est pas de même lorsque l'on souhaite détecter des électrons plus énergétiques, émis dans un angle solide de 4π stéradians. En effet, comme nous allons le voir par la suite, l'angle solide de collection ne peut alors être conservé qu'au prix de concessions sur la précision des mesures.
Pour s'affranchir de cette perte de résolution, le dispositif développé s'appuie sur l'utilisation conjointe d'un champ magnétique, et d'un champ électrique de faible intensité.

3.1.2 Action conjuguée d'un champ magnétique et électrique

Une particule de charge q et de masse m émise dans un champ magnétique uniforme d'intensité B avec une vitesse initiale $\vec{v_0}$ orthogonale au champ est animée d'un mouvement circulaire uniforme, dont le rayon s'exprime sous la forme :

$$R = \frac{mv_0}{|q|B} \tag{3.1}$$

Sous l'action conjuguée des champs électrique et magnétique colinéaires, la trajectoire de la particule peut ainsi être confinée dans le volume du spectromètre. La figure 3.2 schématise le principe de la méthode. Dans le cadre de l'analogie avec la mécanique, l'action conjuguée du champ magnétique et du champ électrique est associée à celle d'un plan incliné incurvé, qui permet de contraindre les trajectoires transverses des électrons vers le détecteur.
L'action du champ magnétique permet alors d'éviter le compromis entre l'efficacité de col-

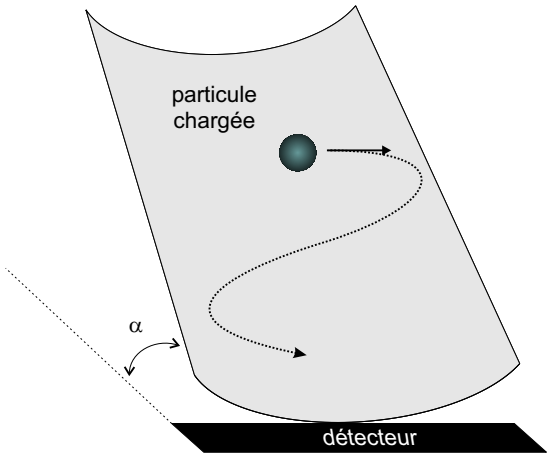


FIG. 3.2 – *Dans le cadre de l'analogie avec la mécanique, l'action conjuguée du champ magnétique et du champ électrique est associée à celle d'un plan incliné incurvé, qui permet de contraindre les trajectoires transverses des électrons vers le détecteur.*

lection et la précision sur la mesure, inhérent à l'utilisation d'un seul champ électrique, en découplant les deux contraintes. Le confinement des électrons sur le détecteur est réalisé à l'aide du champ magnétique, tandis que la précision sur la mesure est optimisée en choisissant une intensité du champ électrique adaptée.
Notons pour finir que pour une intensité du champ magnétique donnée, le rayon R est proportionnel à la masse de la particule. Ainsi, un champ magnétique efficace pour confiner les électrons sur la surface de leur détecteur, pourra n'avoir que peu d'effet sur la trajectoire des ions. Cette caractéristique permet alors de définir les bases de notre dispositif : l'intensité du champ magnétique sera adaptée pour confiner les électrons, tandis que celle du champ électrique est choisie de façon à diriger les ions vers leur détecteur.

Nous allons à présent traiter de façon formelle l'action des deux champs sur les particules chargées émises dans le spectromètre. De ce traitement, vont découler les expressions analytiques des observables mesurées (*Temps de vol*, *Positions*), en fonction des caractéristiques du spectromètre (géométrie, intensité des champs). Nous verrons par la suite que ces expressions serviront de base à la détermination des composantes du vecteur vitesse initiale.

3.2 Equations du mouvement

Une particule de masse m et de charge q émise dans le volume du spectromètre de vitesse sera soumise à la force de Lorentz $\overrightarrow{F_L}$ créée par la composition des deux champs : le champ électrique $\overrightarrow{E}$ et le champ magnétique $\overrightarrow{B}$. D'après le principe fondamental de la

dynamique, il vient:

$$m\overrightarrow{a} = \overrightarrow{F_L} = q\left(\overrightarrow{E} + \overrightarrow{v} \wedge \overrightarrow{B}\right) \tag{3.2}$$

où $\overrightarrow{v}$ est la vitesse de la particule. En décomposant l'équation précédente dans le repère défini sur la figure 3.3, il vient :

$$m\ddot{x} = s|q|E(x) \tag{3.3}$$
$$m\ddot{y} = s|q|SBv_z \tag{3.4}$$
$$m\ddot{z} = -s|q|SBv_y \tag{3.5}$$

avec s le signe de la charge de la particule ($s = -1$ pour les électrons, 1 pour les ions de charge positive), S le sens du champ magnétique dans le repère lié au spectromètre ($S = 1$ pour un champ magnétique dans le même sens que l'axe x, -1 dans le sens inverse), (v_y, v_z) les composantes de vitesse de la particule suivant les axes y et z, et $E(x)$ et B les intensités respectives des champs électrique et magnétique.
Le développement analytique des équations du mouvement à partir des équations précédentes, permet de déterminer l'expression générale du temps de vol de la particule et des coordonnées de sa position d'impact sur le détecteur. Cette partie a été décrite en détail dans l'annexe A. Aussi, nous rappellerons brièvement ici les résultats obtenus. Dans les expressions qui suivent, les indices e et i distinguent respectivement les grandeurs associées aux électrons et aux ions. D'autre part, les notations employées définissent les grandeurs suivantes : (V_{0x}, V_{0y}, V_{0z}) représentent les composantes du vecteur vitesse initiale de la particule de masse m et de charge q dans le repère du spectromètre (cf. figure 3.3), (x_0, y_0, z_0) les coordonnées du point d'émission de la particule, (d_1, d_2, d_3) les dimensions suivant l'axe du spectromètre des zones d'extraction, de vol libre et de post-accélération, et (E_1, E_3) les intensités des champs régnant respectivement dans les zones d'extraction et de post-accélération.

3.2.1 Détermination du temps de vol

La détermination du temps de vol de la particule nécessite de traiter indépendamment chaque zone du spectromètre où l'intensité du champ électrique diffère : les zones d'extraction, de vol libre, et de post-accélération (cf. paragraphe 2.4.1).

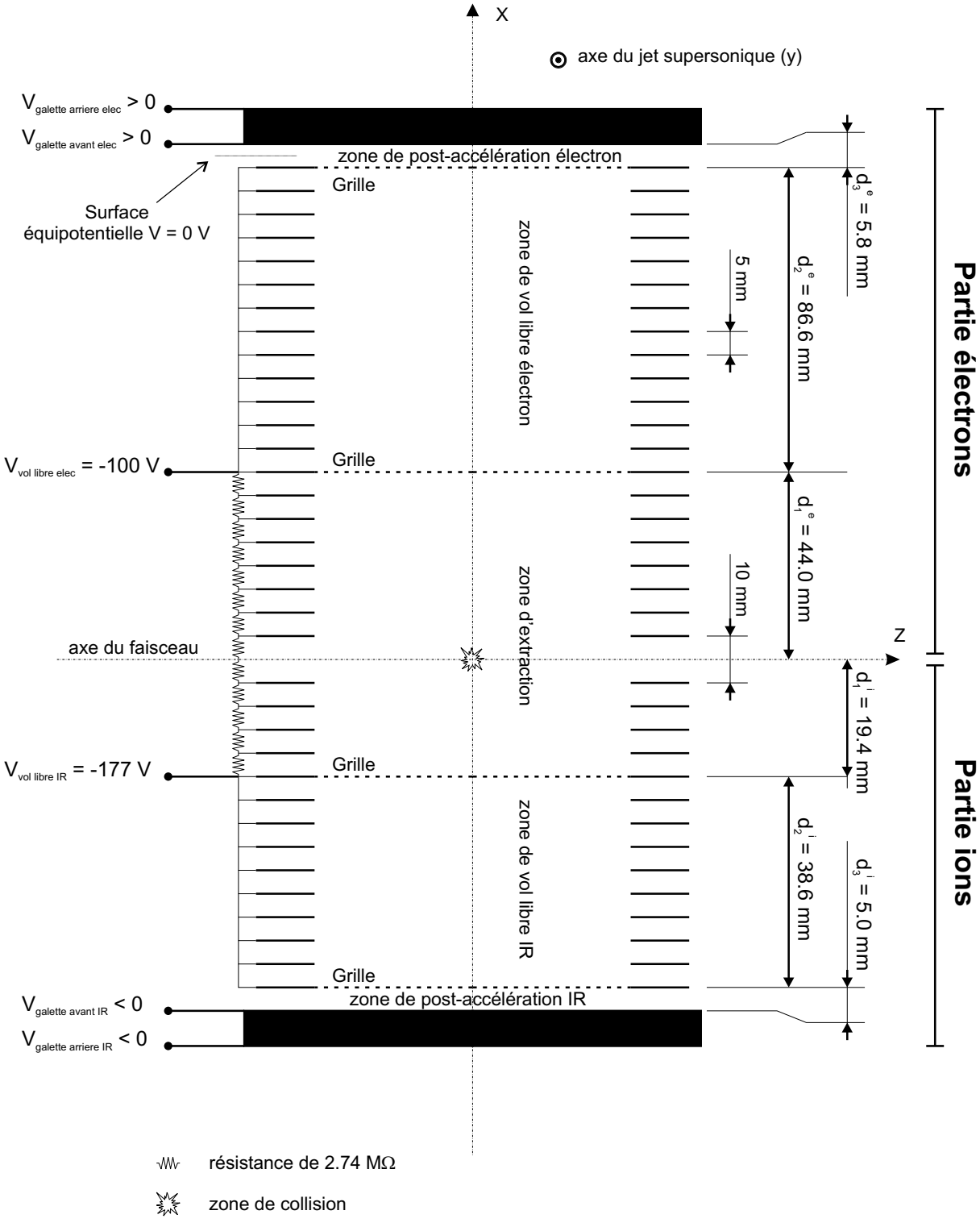


FIG. 3.3 – *Schéma général du double spectromètre de vitesse*

Temps de vol dans la zone d'extraction : $T^{e,i}_{ext}$

$$T^{e}_{ext} = \frac{m}{|q|E_1}\left(- V_{0x} + \sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^e - x_0\right)}\right) \quad (3.6)$$

$$T^{i}_{ext} = \frac{m}{|q|E_1}\left(+ V_{0x} + \sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^i + x_0\right)}\right) \quad (3.7)$$

Temps de vol dans la zone de vol libre : $T^{e,i}_{vl}$

$$T^{e}_{vl} = \frac{d_2^e}{\sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^e - x_0\right)}} \quad (3.8)$$

$$T^{i}_{vl} = \frac{d_2^i}{\sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^i + x_0\right)}} \quad (3.9)$$

Temps de vol dans la zone de post-accélération : $T^{e,i}_{pa}$

$$T^{e}_{pa} = \frac{m}{|q|E_3^e}\left(-\sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^e - x_0\right)} + \sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^e - x_0\right) + \frac{2|q|E_3^e}{m}d_3^e}\right) \quad (3.10)$$

$$T^{i}_{pa} = \frac{m}{|q|E_3^i}\left(-\sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^i + x_0\right)} + \sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^i + x_0\right) + \frac{2|q|E_3^i}{m}d_3^i}\right) \quad (3.11)$$

Temps de vol : $T^{e,i}$

Le temps de vol de chaque particule est donc la somme de ces trois temps:

$$\text{Temps de vol} = \mathrm{T^{e,i}} = \mathrm{T^{e,i}_{ext}} + \mathrm{T^{e,i}_{vl}} + \mathrm{T^{e,i}_{pa}} \quad (3.12)$$

Pour les électrons :

$$\mathbf{T^e} = \frac{\mathbf{m}}{\mathbf{|q|E_1}}\left(-\mathbf{V_{0x}} + \sqrt{\mathbf{V_{0x}^2} + \frac{\mathbf{2|q|E_1}}{\mathbf{m}}\left(\mathbf{d_1^e} - \mathbf{x_0}\right)}\right) + \frac{\mathbf{d_2^e}}{\sqrt{\mathbf{V_{0x}^2} + \frac{\mathbf{2|q|E_1}}{\mathbf{m}}\left(\mathbf{d_1^e} - \mathbf{x_0}\right)}}$$
$$+\frac{\mathbf{m}}{\mathbf{|q|E_3^e}}\left(-\sqrt{\mathbf{V_{0x}^2} + \frac{\mathbf{2|q|E_1}}{\mathbf{m}}\left(\mathbf{d_1^e} - \mathbf{x_0}\right)} + \sqrt{\mathbf{V_{0x}^2} + \frac{\mathbf{2|q|E_1}}{\mathbf{m}}\left(\mathbf{d_1^e} - \mathbf{x_0}\right) + \frac{\mathbf{2|q|E_3^e}}{\mathbf{m}}\mathbf{d_3^e}}\right) \tag{3.13}$$

Pour les ions :

$$\mathbf{T^i} = \frac{\mathbf{m}}{\mathbf{|q|E_1}}\left(\mathbf{V_{0x}} + \sqrt{\mathbf{V_{0x}^2} + \frac{\mathbf{2|q|E_1}}{\mathbf{m}}\left(\mathbf{d_1^i} + \mathbf{x_0}\right)}\right) + \frac{\mathbf{d_2^i}}{\sqrt{\mathbf{V_{0x}^2} + \frac{\mathbf{2|q|E_1}}{\mathbf{m}}\left(\mathbf{d_1^i} + \mathbf{x_0}\right)}}$$
$$+\frac{\mathbf{m}}{\mathbf{|q|E_3^i}}\left(-\sqrt{\mathbf{V_{0x}^2} + \frac{\mathbf{2|q|E_1}}{\mathbf{m}}\left(\mathbf{d_1^i} + \mathbf{x_0}\right)} + \sqrt{\mathbf{V_{0x}^2} + \frac{\mathbf{2|q|E_1}}{\mathbf{m}}\left(\mathbf{d_1^i} + \mathbf{x_0}\right) + \frac{\mathbf{2|q|E_3^i}}{\mathbf{m}}\mathbf{d_3^i}}\right) \tag{3.14}$$

3.2.2 Détermination des coordonnées de position

Les formes générales des coordonnées (Y,Z) de la position d'impact de la particule sur le détecteur, sont déterminées à partir des deux équations (3.4) et (3.5). Le champ magnétique utilisé étant uniforme sur l'ensemble du volume du spectromètre, il n'est pas nécessaire de traiter séparément chaque zone. En intégrant les équations (3.4) et (3.5), nous obtenons les coordonnées de la particule dans le plan ($\vec{y}$,$\vec{z}$) en fonction du temps t.

$$y(t) = \frac{1}{\omega_0}\left[V_{0y} sin\left(\omega_0 t\right) + sV_{0z}\left(1 - cos\left(\omega_0 t\right)\right)\right] + y_0 \tag{3.15}$$

$$z(t) = \frac{1}{\omega_0}\left[V_{0z} sin\left(\omega_0 t\right) - sV_{0y}\left(1 - cos\left(\omega_0 t\right)\right)\right] + z_0 \tag{3.16}$$

où $\omega_0 = qB/m$ représente la pulsation cyclotron. Les coordonnées (Y,Z) de la position d'impact découlent alors des équations précédentes, en posant $t = T^{e,i}$:

$$\mathbf{Y(T^{e,i})} = \frac{\mathbf{1}}{\omega_\mathbf{0}}\left[\mathbf{V_{0y}} \mathbf{sin}\left(\omega_\mathbf{0}\mathbf{T^{e,i}}\right) + \mathbf{sSV_{0z}}\left(\mathbf{1} - \mathbf{cos}\left(\omega_\mathbf{0}\mathbf{T^{e,i}}\right)\right)\right] + \mathbf{y_0} \tag{3.17}$$

$$\mathbf{Z(T^{e,i})} = \frac{\mathbf{1}}{\omega_\mathbf{0}}\left[\mathbf{V_{0z}} \mathbf{sin}\left(\omega_\mathbf{0}\mathbf{T^{e,i}}\right) - \mathbf{sSV_{0y}}\left(\mathbf{1} - \mathbf{cos}\left(\omega_\mathbf{0}\mathbf{T^{e,i}}\right)\right)\right] + \mathbf{z_0} \tag{3.18}$$

3.2.3 Conclusion

Comme nous allons le voir par la suite, les composantes (V_{0x}, V_{0y}, V_{0z}) du vecteur vitesse initiale de la particule sont déterminées à partir des expressions analytiques des observables mesurées (*Temps de vol*, *Positions*) données ci-dessus. D'autre part, nous pouvons déjà souligner le fait que la composante de vitesse initiale V_{0x} de la particule s'exprime uniquement en fonction du temps de vol, comme le montre les équations (3.13) et (3.14). En revanche, les composantes transverses V_{0y} et V_{0z} s'expriment en fonction des trois observables mesurées : *Temps de vol* et *Positions (Y,Z)*.

3.3 Caractéristiques des observables

Dans la suite du chapitre, E désignera l'énergie cinétique initiale de la particule, V_{0yz} sa composante de vitesse initiale dans le plan ($\vec{y}$,$\vec{z}$) transverse à la direction du champ magnétique, et β son angle d'émission par rapport au plan ($\vec{y}$,$\vec{z}$). Ces variables s'expriment en fonction des composantes (V_{0x}, V_{0y}, V_{0z}) de la particule selon les relations :

$$E = \frac{1}{2}m(V_{0x}^2 + V_{0yz}^2) \tag{3.19}$$

$$V_{0yz} = \sqrt{V_{0y}^2 + V_{0z}^2} \tag{3.20}$$

$$V_{0x} = V_0 sin\beta = \sqrt{\frac{2E}{m}} sin\beta \tag{3.21}$$

où V_0 représente le module du vecteur vitesse initiale de la particule de masse m.

3.3.1 Observable *'temps de vol'*

A partir des équations (3.13) et (3.14), et en exprimant la composante de vitesse V_{0x} de la particule en fonction de son énergie et de l'angle d'émission β selon la relation (3.21), on montre que le temps de vol d'une particule évolue en fonction du rapport entre sa masse m et sa charge q, selon la relation [1] :

$$T^{e,i} = \sqrt{\frac{m}{q}} f(E,\beta,d_1,d_2,d_3,E_1,E_3) \tag{3.22}$$

Pour une géométrie du spectromètre et une intensité du champ d'extraction données, le spectre de temps de vol mesuré des ions se présente alors sous la forme d'un ensemble de

1. En toute rigueur, le temps de vol dépend également de la coordonnée x_0 du point d'émission de la particule. Toutefois, comme nous allons le voir par la suite, des conditions géométriques particulières nous permettront de rendre cette dépendance négligeable.

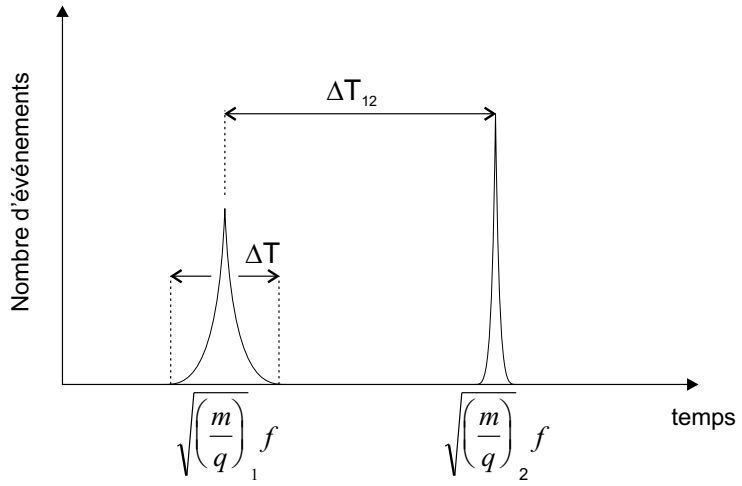


FIG. 3.4 – *Le spectre de temps de vol mesuré des ions se présente sous la forme d'un ensemble de pics correspondant chacun à des particules ayant un même rapport m/q.*

pics correspondant chacun à des particules ayant un même rapport m/q (cf. figure 3.4), tandis que celui des électrons présente seulement un pic.

Etendue de la gamme des temps de vol

L'étendue de la gamme des temps de vol d'une classe de particules (électron ou ion) d'énergie E donnée, est définie par la différence entre le temps de vol $T_{arriere}$ des particules émises le long de l'axe x dans la direction opposée au détecteur, et celui (T_{avant}) des particules émises le long de l'axe vers le détecteur. On montre alors que l'étendue ΔT s'exprime sous la forme :

$$\Delta T = T_{arriere} - T_{avant} = \frac{\sqrt{8mE}}{|q|E_1} \tag{3.23}$$

L'étendue de la gamme des temps de vol associée à une particule donnée dépend de son énergie cinétique initiale E. Par conséquent, la largeur des pics de temps de vol des fragments de molécules, dont l'énergie peut atteindre une vingtaine d'eV, est plus grande que celle des pics correspondant aux ions moléculaires non dissociés (cf. Chapitre 4).

Intervalle entre deux pics de temps de vol

Le temps de vol d'un ion donné dont la composante de vitesse V_{0x} suivant l'axe x est nulle, s'exprime sous la forme :

$$T_0^i = \frac{m}{|q|E_1}\sqrt{\frac{2|q|E_1}{m}d_1^i} + \frac{d_2^i}{\sqrt{\frac{2|q|E_1}{m}d_1^i}} + \frac{m}{|q|E_3^i}\left(-\sqrt{\frac{2|q|E_1}{m}d_1^i} + \sqrt{\frac{2|q|E_1}{m}d_1^i + \frac{2|q|E_3^i}{m}d_3^i}\right) \tag{3.24}$$

En négligeant le temps nécessaire à la traversée de la zone de post-accélération, qui représente 3 % du temps de vol total, l'équation précédente devient :

$$T_0^i \approx \frac{\sqrt{m}}{\sqrt{|q|}\sqrt{E_1}}\left[\sqrt{2d_1^i} + \frac{d_2^i}{\sqrt{2d_1^i}}\right] \tag{3.25}$$

$$\approx \frac{\sqrt{m}}{\sqrt{|q|}\sqrt{E_1}}F(d_1^i,d_2^i) \tag{3.26}$$

Nous en déduisons alors que l'écart entre les pics de temps de vol de deux particules de rapport m/q distincts, s'exprime sous la forme :

$$\Delta T_{12} \approx \frac{1}{\sqrt{E_1}}\left[\sqrt{\left(\frac{m}{|q|}\right)_2} - \sqrt{\left(\frac{m}{|q|}\right)_1}\right]F(d_1^i,d_2^i) \tag{3.27}$$

L'écart entre deux pics de temps de vol évolue de façon proportionnelle à $1/\sqrt{E_1}$, tandis que l'étendue de chaque pic varie en $1/E_1$. Ainsi, en principe, il est toujours possible de séparer deux pics successifs, en augmentant l'intensité du champ d'extraction.

3.3.2 Observable *'Position'*

Dans le but de faciliter notre compréhension des caractéristiques de l'observable *'Position'* (qui dépendent de l'action conjuguée des champs électrique et magnétique), nous allons dans un premier temps rappeler les propriétés du mouvement d'une particule chargée émise dans un champ magnétique pur, avant d'aborder le cas du couplage des deux champs.

Mouvement d'une particule dans un champ magnétique

Les équations du mouvement d'une particule de masse m et de charge q, émise perpendiculairement [2] à la direction d'un champ magnétique uniforme d'intensité B avec une vitesse initiale V_{0yz}, sont données par les équations (3.15) et (3.16). Sous l'action du

2. On considérera ici que la vitesse initiale de la particule suivant l'axe du champ magnétique est nulle.

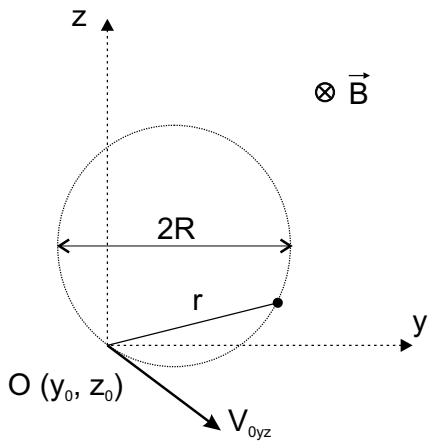


FIG. 3.5 – *Trajectoire d'une particule chargée dans un champ magnétique*

champ, la trajectoire circulaire de la particule se situe dans le plan transverse ($\vec{y}$,$\vec{z}$) à la direction du champ. D'autre part, nous pouvons paramétriser son mouvement à partir de sa position radiale r par rapport à la position d'émission $O(y_0,z_0)$ en fonction du temps t (cf. figure 3.5) :

$$r(t) = \sqrt{(y(t) - y_0)^2 + (z(t) - z_0)^2} = \frac{V_{0yz}}{\omega_0}\sqrt{2(1 - cos(\omega_0 t))} \tag{3.28}$$

dont le rayon R de la trajectoire dépend de la masse, de la charge, de la vitesse initiale de la particule, et de l'intensité du champ magnétique par la relation :

$$R = \frac{V_{0yz}}{\omega_0} = \frac{mV_{0yz}}{|q|B} \tag{3.29}$$

La période cyclotronique $T_{cyclo.}$, correspondant au temps nécessaire à la particule pour effectuer une révolution complète, est reliée à la pulsation ω_0 par la relation :

$$T_{cyclo.} = \frac{2\pi}{\omega_0} = \frac{2\pi m}{|q|B} \tag{3.30}$$

La période dépend uniquement de l'intensité du champ magnétique et des caractéristiques intrinsèques de la particule (masse, charge). En d'autres termes, quelle que soit son énergie, le temps nécessaire à la particule pour effectuer une révolution complète est constant. Ainsi, comme le montre la figure 3.6, pour un temps égal à un nombre entier de périodes cyclotroniques, l'électron retrouve sa position initiale, quelle que soit son énergie.
Pour finir, notons bien que la période de révolution croît linéairement avec la masse de la particule. Par conséquent, pour une intensité de champ donnée, la période cyclotronique des ions D^+ est environ 3600 fois plus grande que celle des électrons.

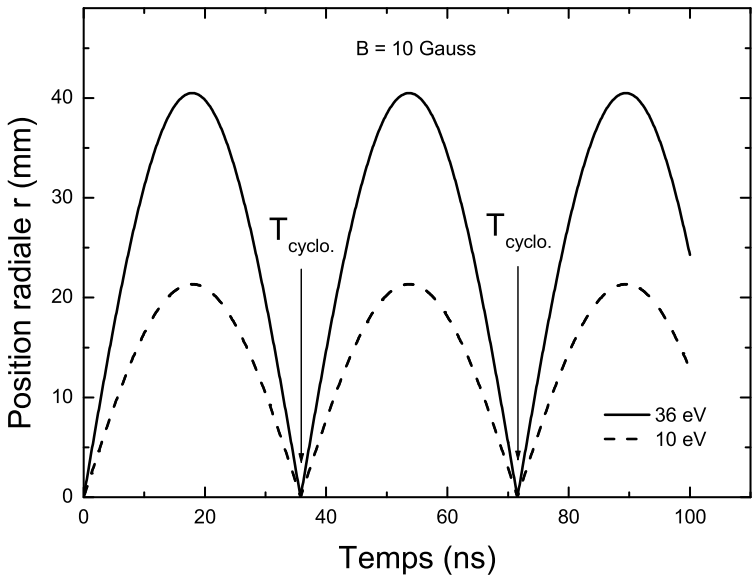


FIG. 3.6 – *Evolution de la position radiale r(t) en fonction du temps, pour des électrons d'énergie 10 eV et 36 eV et un champ magnétique de 10 gauss.*

Mouvement dans un champ électrique et magnétique

La trajectoire des particules émises dans la superposition d'un champ magnétique et d'un champ électrique colinéaires est hélicoïdale. Sous l'effet du champ magnétique, la projection de leur trajectoire dans le plan ($\vec{y}$,$\vec{z}$) est circulaire, tandis que l'action du champ électrique permet de les extraire vers le détecteur. Par conséquent, la position d'impact des particules sur la surface du détecteur dépend de l'intensité du champ magnétique, mais également de celle du champ électrique à travers leur temps de vol T.
Pour une particule d'énergie E donnée, compte tenu de la relation entre les deux composantes de vitesses V_{0x} et V_{0yz}, et de celle entre le temps de vol T et la composante V_{0x}, nous pouvons considérer que la composante V_{0yz} de la particule est reliée à son temps de vol T. Ainsi, à partir des équations (3.17) et (3.18), on montre que la position radiale $r(T)$ du point d'impact d'une particule sur le détecteur en fonction du temps de vol s'exprime sous la forme :

$$r(T) = \frac{V_{0yz}^{T}}{\omega_0}\sqrt{2(1 - cos(\omega_0 T))} \tag{3.31}$$

$$r(T) = R(T)\sqrt{2(1 - cos(\omega_0 T))} \tag{3.32}$$

où V_{0yz}^{T} représente la valeur de la composante V_{0yz} pour le temps de vol T.
L'équation précédente met en évidence le fait que l'évolution de la position radiale $r(T)$

suit d'une part, le mouvement circulaire imposé par le champ magnétique, et d'autre part, l'évolution du rayon $R(T)$ en fonction de la valeur de la composante V_{0yz}.

Cas des électrons Comme le montre la figure 3.7, la position radiale des électrons s'annule lorsque leur temps de vol est un multiple entier de la période cyclotronique, ou bien lorsque leur composante V_{0yz} est nulle (ce qui correspond à l'émission de la particule le long de l'axe du spectromètre). Le profil de la position radiale des électrons

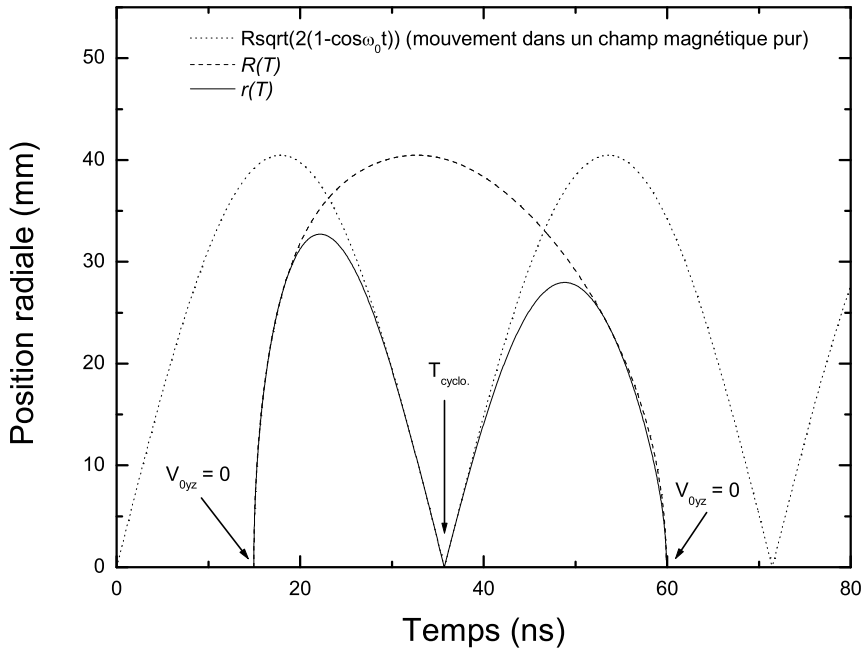


FIG. 3.7 – *Evolution de la position radiale r(T) d'un électron, en fonction de son temps de vol. Nous avons également représenté l'évolution du terme R(T), ainsi que l'évolution de la position radiale d'une particule d'énergie E émise dans un champ magnétique pur, perpendiculairement à sa direction. Géométrie : d_1 = 20 mm, d_2 = 40 mm, d_3 = 5 mm, E_1 = 9 V/cm, E_3 = 400 V/cm, B = 10 G, E = 36 eV.*

en fonction du temps dépend de leur énergie, et de l'intensité des champs électrique et magnétique (cf. figure 3.8). Nous avons vu dans le paragraphe 3.3.1, qu'un abaissement de l'intensité du champ électrique, ou une augmentation de l'énergie de la particule, a pour conséquence l'élargissement de la distribution des temps de vol qui lui est associée. Par conséquent, le nombre de périodes cyclotroniques compris dans la distribution des temps de vol augmente. De même, pour une largeur de distribution donnée, ce nombre croît avec l'intensité du champ magnétique, dans la mesure où la période de révolution évolue de façon inversement proportionnelle à l'intensité du champ. Comme nous allons le

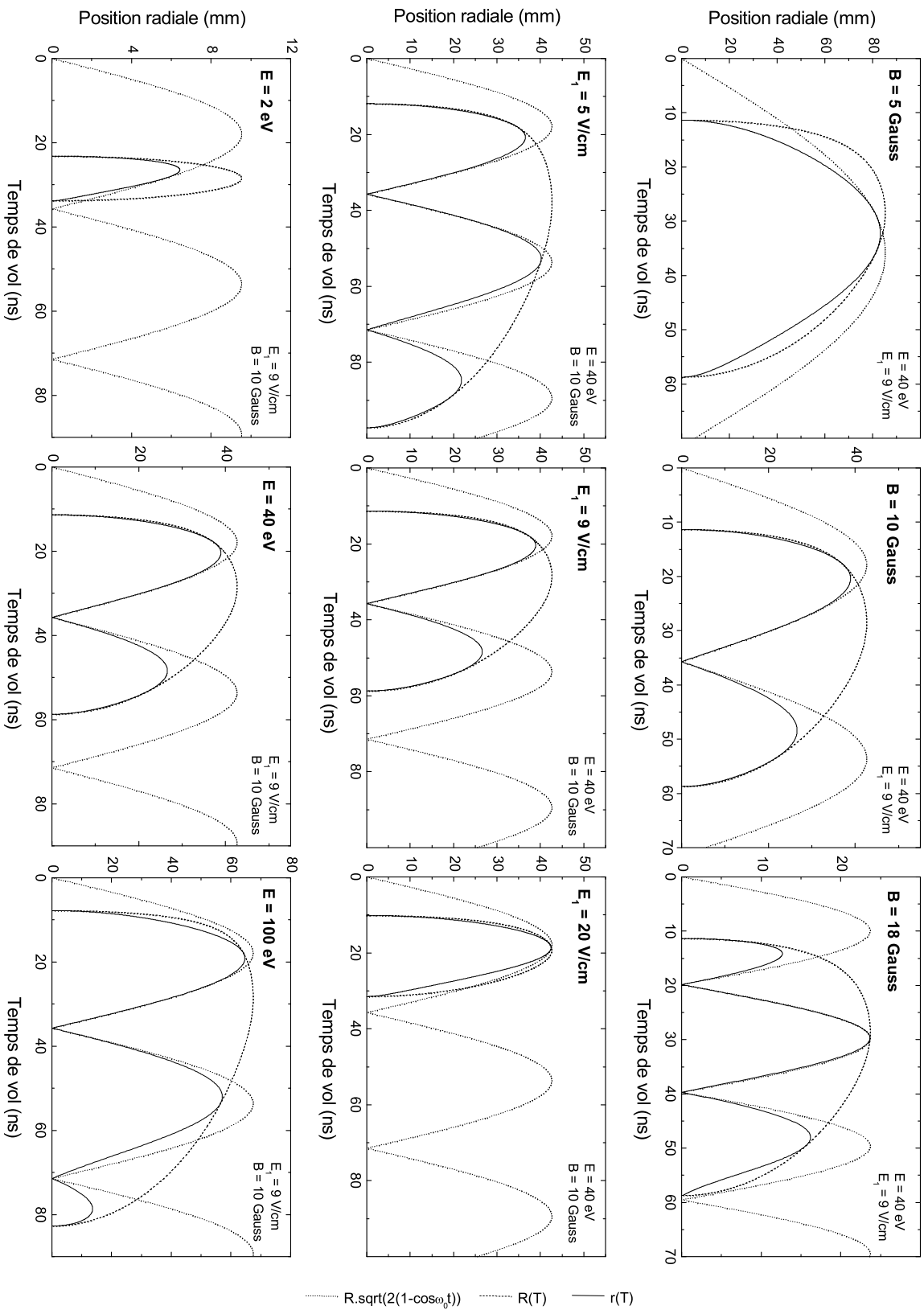


FIG. 3.8 – *Evolution de la position radiale en fonction du temps pour différentes énergies d'électron, et différentes intensités des champs électrique et magnétique. Géométrie : d_1 = 15 mm, d_2 = 30 mm, d_3 = 5 mm, E_3 = 400 V/cm.*

voir par la suite, les événements dont le temps de vol de l'électron est égal à un multiple entier de périodes cyclotroniques sont exclus du traitement analytique conduisant à la détermination des composantes de vitesse. Aussi, nous pouvons dès à présent garder à l'esprit qu'en pratique, les intensités des champs sont choisies de façon à ce que l'étendue de la gamme des temps de vol recouvre un minimum de périodes cyclotroniques.

Cas des ions La figure 3.9 représente l'évolution de la position radiale $r(T)$ en fonction du temps de vol des ions D^+ d'énergie égale à 12 eV. Dans les conditions de l'expérience, pour lesquelles l'intensité du champ magnétique est de l'ordre de 18 Gauss, la période cyclotronique des ions D^+ s'élève à environ 73 μs. Par conséquent, compte tenu de l'ordre de grandeur de leurs temps de vol (environ 1 μs), l'angle rotation dans le plan ($\vec{y}$,$\vec{z}$) par rapport à la direction d'émission initiale, induit par l'action du champ magnétique, n'excède pas 6 degrés. L'évolution de la position $r(T)$ est donc dominée par celle du terme $R(T)$.
Notons pour finir que le déplacement $d\ell$ maximal de la position d'impact de l'ion sur le détecteur sous l'effet du champ magnétique, par rapport à sa position d'impact obtenue sans champ, est de l'ordre de 3 mm (cf. figure 3.10). Par conséquent, l'action du champ magnétique ne peut pas être négligée dans le traitement analytique qui mène à la détermination des composantes de vitesse initiale des ions.

3.4 Détermination des composantes de vitesse

3.4.1 Détermination de la composante de vitesse V_{0x}

La détermination de la composante V_{0x} de la particule à partir de son temps de vol T ne se fait pas de façon triviale, compte tenu de la relation analytique reliant ces deux paramètres (cf. équations (3.13) et (3.14)). En pratique, la composante V_{0x} peut être déterminée numériquement. Toutefois, dans le cadre de certaines approximations, il est possible d'obtenir une solution analytique approchée de l'expression de V_{0x} en fonction de T. En effet, comme l'indique la figure 3.11, l'évolution du temps de vol des ions D^+ en fonction de la composante de vitesse présente un caractère linéaire. En revanche, en ce qui concerne les électrons, la loi de linéarité n'est plus aussi bien vérifiée pour les grandes valeurs de V_{0x}, ce qui nécessite par conséquent un développement plus précis.

Approximation linéaire

Dans l'hypothèse où l'énergie cinétique initiale de la particule est négligeable devant son énergie potentielle initiale dans le champ d'extraction, l'expression du temps de vol

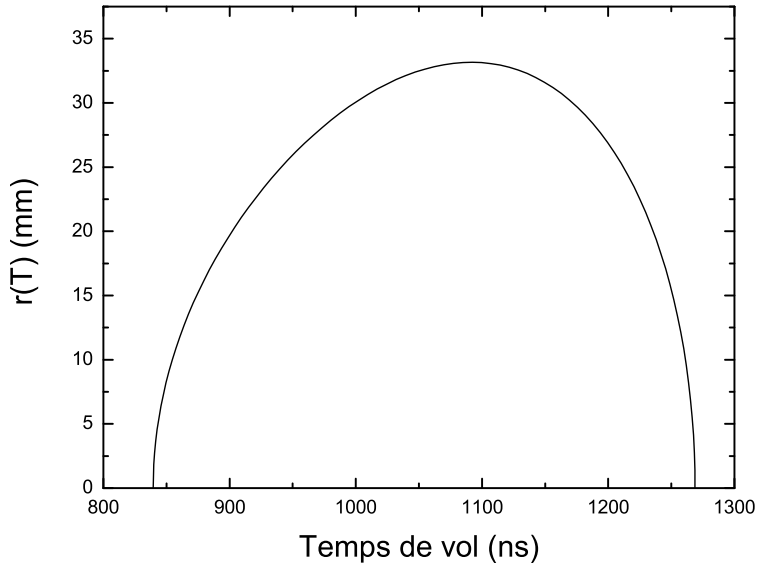
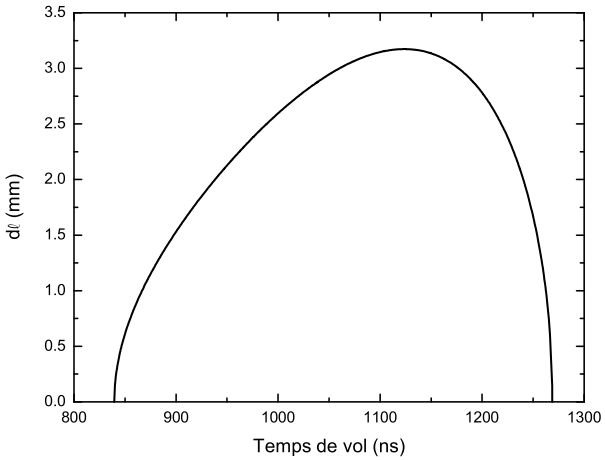
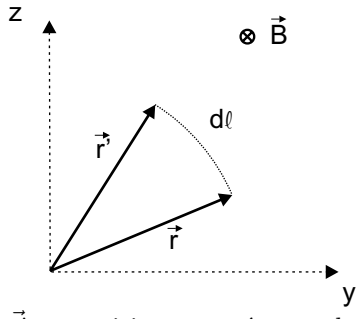


FIG. 3.9 – *Evolution de la position radiale des ions D^+ de 12 eV, en fonction de leur temps de vol (la géométrie et l'intensité des champs correspondent à celles utilisées pour l'expérience).*





$\vec{r'}$ = position en présence du champ magnétique
$\vec{r}$ = position sans champ magnétique

FIG. 3.10 – *Evolution du déplacement $d\ell$ de la position d'impact sur le détecteur des ions D^+ de 12 eV, sous l'effet du champ magnétique, par rapport à la position obtenue sans champ, en fonction du temps de vol (dans les conditions de l'expérience : géométrie, intensités des champs électrique et magnétique).*

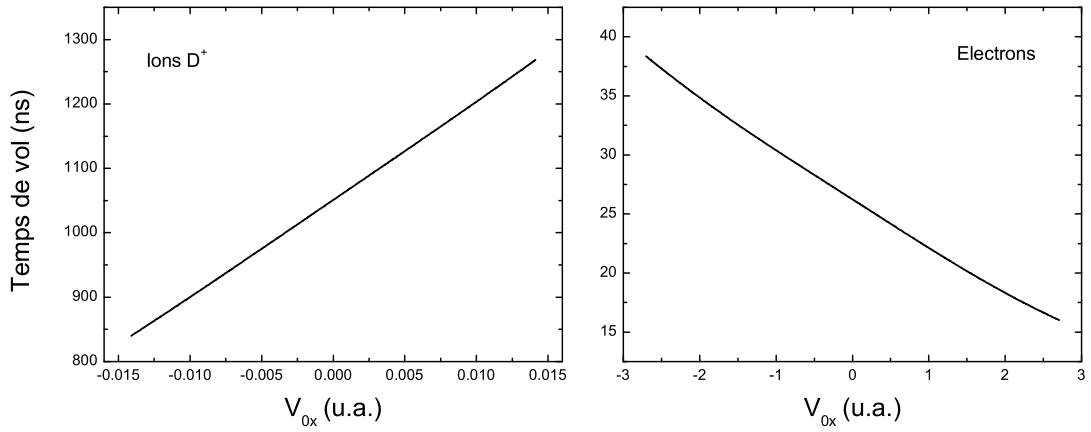


FIG. 3.11 – *Evolution du temps de vol des ions D^+ (d'énergie inférieure à 12 eV)et des électrons (d'énergie inférieure à 100 eV) en fonction de la composante V_{0x} de leur vecteur vitesse initiale, pour les conditions de l'expérience (géométrie, champ électrique).*

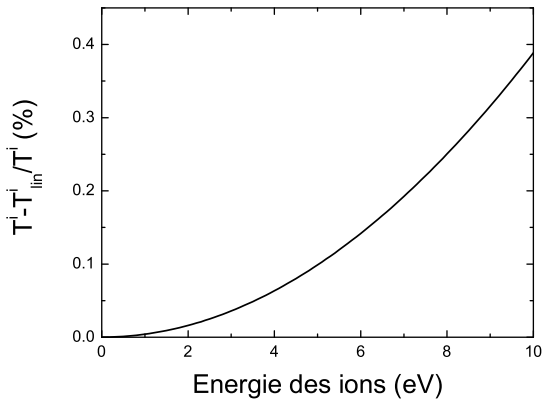


FIG. 3.12 – *Ecart relatif entre le temps de vol réel d'un ion D^+, et celui obtenu à partir de l'approximation linéaire, en fonction de son énergie (dans les conditions de l'expérience : géométrie, champ électrique).*

se simplifie considérablement. En effet, dans le cas des ions, si :

$$\frac{1}{2}mV_{0x}^2 \quad \leq \quad \frac{1}{2}mV_0^2 \quad \ll \quad |q|E_1 d_1^i \tag{3.33}$$

il vient alors :

$$V_{0x}^2 \ll \frac{2|q|E_1}{m} d_1^i \tag{3.34}$$

dans ce cas, le temps de vol s'exprime sous la forme:

$$\begin{aligned} T_{lin}^i = \frac{m}{|q|E_1}\left(V_{0x} + \sqrt{\frac{2|q|E_1}{m}d_1^i}\right) + \frac{d_2^i}{\sqrt{\frac{2|q|E_1}{m}d_1^i}} \\ + \frac{m}{|q|E_3^i}\left(-\sqrt{\frac{2|q|E_1}{m}d_1^i} + \sqrt{\frac{2|q|E_1}{m}d_1^i + \frac{2|q|E_3^i}{m}d_3^i}\right) \end{aligned} \tag{3.35}$$

Ou plus simplement,

$$T_{lin}^i = \frac{m}{|q|E_1}V_{0x} + T_0^i \tag{3.36}$$

avec

$$\begin{aligned} T_0^i = \frac{m}{|q|E_1}\sqrt{\frac{2|q|E_1}{m}d_1^i} + \frac{d_2^i}{\sqrt{\frac{2|q|E_1}{m}d_1^i}} \\ + \frac{m}{|q|E_3^i}\left(-\sqrt{\frac{2|q|E_1}{m}d_1^i} + \sqrt{\frac{2|q|E_1}{m}d_1^i + \frac{2|q|E_3^i}{m}d_3^i}\right) \end{aligned} \tag{3.37}$$

et donc,

$$V_{0x} = \frac{|q|E_1}{m}(T_{lin}^i - T_0^i) \tag{3.38}$$

Cette dernière équation indique clairement la relation linéaire reliant la composante de vitesse V_{0x} au temps de vol.

La figure 3.12 représente l'évolution de l'écart relatif entre le temps de vol réel d'un ion D^+ et celui obtenu à partir de l'approximation linéaire, en fonction de son énergie (en supposant une émission suivant l'axe du spectromètre), pour les conditions de l'expérience (géométrie, champ électrique). Pour les énergies inférieures à une dizaine d'eV, l'approximation linéaire est satisfaisante à 0.5 % prés.

En pratique, afin de minimiser le nombre de routines employées dans le traitement analytique, les composantes V_{0x} des ions D^+ sont déterminées à partir de la même procédure que celle utilisée dans le cas des électrons (cf. ci-après).

Approximation du terme constant

Comme l'indique la figure 3.13, les largeurs des distributions de temps de vol des électrons et des ions D^+ dans la zone de post-accélération, sont inférieures au pas de codage des temps (0.5 ns). Le temps T_{pa} nécessaire à la traversée de cette zone peut donc être considéré comme constant. Dans le cadre de cette approximation, le temps de vol s'exprime alors sous la forme :

$$T^e = \frac{m}{|q|E_1}\left(-V_{0x} + \sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}d_1^e}\right) + \frac{d_2^e}{\sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}d_1^e}} + T_{pa} \qquad (3.39)$$

A partir de l'équation précédente, il est alors possible de déterminer analytiquement la composante V_{0x} en fonction du temps de vol. Le détail du calcul est décrit dans l'annexe A.

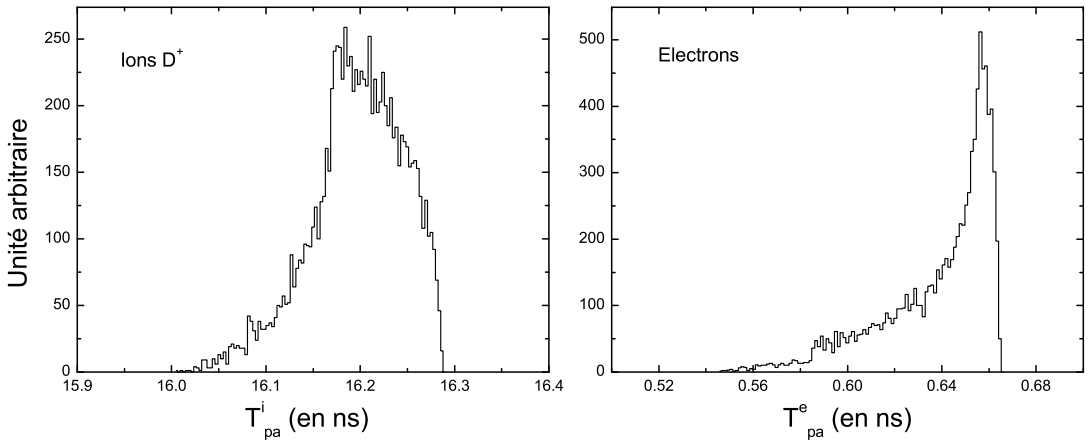


FIG. 3.13 – *Distribution des temps de vol dans la zone de post-accélération, pour des électrons (d'énergie inférieure à 100 eV) et des ions D^+ (d'énergie inférieure à 12 eV) émises de façon isotrope dans le spectromètre, dans les conditions de l'expérience (géométrie, champ électrique).*

3.4.2 Détermination des composantes V_{0y} et V_{0z}

La détermination des composantes de vitesse initiale V_{0y} et V_{0z} de la particule à partir des coordonnées (Y, Z) de sa position d'impact sur le détecteur découle des équations (3.15) et (3.16). Le détail du calcul étant développé dans l'annexe A, nous donnerons uniquement le résultat obtenu. On montre que :

$$V_{0y} = \frac{\omega_0}{2\,(1 - cos(\omega_0 T))}\,[sin(\omega_0 T)\,(Y - y_0) - sS\,(1 - cos(\omega_0 T))\,(Z - z_0)] \tag{3.40}$$

$$V_{0z} = \frac{\omega_0}{2\,(1 - cos(\omega_0 T))}\,[sin(\omega_0 T)\,(Z - z_0) + sS\,(1 - cos(\omega_0 T))\,(Y - y_0)] \tag{3.41}$$

d'où on peut déterminer la composante de vitesse initiale V_{0yz} :

$$V_{0yz} = K(T)r \qquad \text{avec} \quad r = \sqrt{(Y - y_0)^2 + (Z - z_0)^2} \tag{3.42}$$

$$\text{et} \qquad K(T) = \frac{\omega_0}{\sqrt{2(1 - cos(\omega_0 T))}} \tag{3.43}$$

$K(T)$ est défini comme étant le facteur de conversion position-vitesse.

3.5 Précision sur la mesure des composantes

3.5.1 Précision sur la détermination de la composante V_{0x}

La précision sur la détermination de la composante de vitesse initiale V_{0x} dépend de plusieurs facteurs :

- de la résolution sur la mesure du temps de vol;
- de la dispersion en temps δT induite par la largeur de la zone de collision, et par les imprécisions de mesure de la géométrie du spectromètre et de l'intensité des champs électriques.

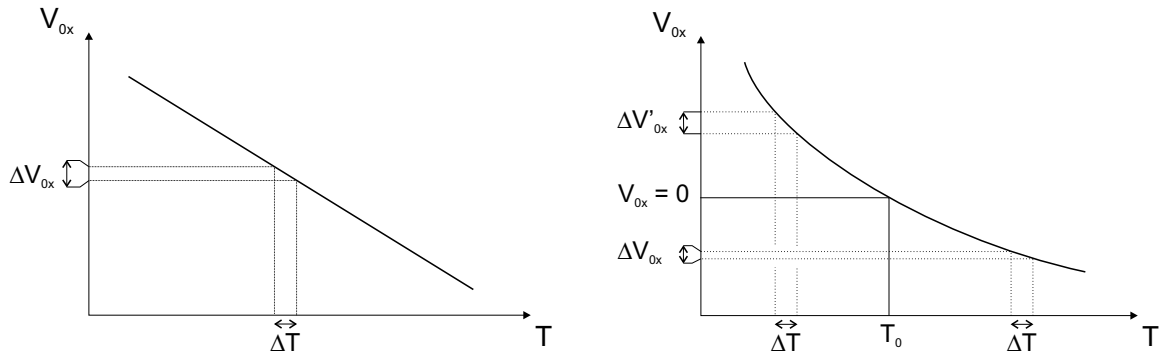
Dans ce paragraphe, nous discuterons uniquement du choix des caractéristiques du spectromètre (choix de la géométrie, champ électrique), permettant d'optimiser la précision sur la mesure de la composante V_{0x}.

Influence du champ électrique

L'incertitude ΔV_{0x} sur la détermination de la composante V_{0x} dépend du pas de mesure ΔT des temps de vol (cf. figure 3.14*a,b*). Dans le cadre de l'approximation linéaire, il existe une relation simple reliant ces deux incertitudes. La vitesse V_{0x} évoluant linéairement en fonction du temps de vol selon la relation (3.38), l'incertitude ΔV_{0x} s'exprime sous la forme :

$$\Delta V_{0x}^{e,i} = \frac{|q|E_1}{m}\Delta T_{lin}^{e,i} \tag{3.44}$$

Le choix d'un champ électrique faible permet donc d'augmenter la précision sur la détermination de la composante V_{0x}.



(a) Cadre de l'approximation linéaire : $V_{0x} = aT + b$

(b) Cadre général : $V_{0x} = f(T)$

FIG. 3.14 – *Relation entre l'incertitude ΔV_{0x} sur la détermination de V_{0x} et le pas de mesure ΔT des temps de vol.*

Dans le cas où la relation entre V_{0x} et le temps de vol n'est plus linéaire, l'incertitude ΔV_{0x} correspondant au pas de codage ΔT, dépend du temps de vol de la particule. Comme le montre la figure 3.14*b*, pour les électrons émis vers le détecteur (dont les temps de vol sont inférieurs à T_0), l'intervalle ΔV_{0x} correspondant à un intervalle ΔT fixe, est plus grand que pour les électrons émis à l'opposé du détecteur. En d'autres termes, l'incertitude sur la mesure des vitesses V_{0x} est plus grande pour les électrons émis vers le détecteur, que pour ceux émis dans sa direction opposée.

Influence de la géométrie du spectromètre

Dimension de la zone d'extraction Comme l'indique l'équation (3.34), l'approximation linéaire est d'autant mieux satisfaite que l'intensité du champ électrique, ou bien la dimension de la zone d'extraction sont grandes (cf. figure 3.15). En pratique, la dimension de la zone d'extraction des électrons est donc choisie la plus grande possible, de façon à ce que l'incertitude sur la mesure de la composante V_{0x} de leur vecteur vitesse initiale soit indépendante de leur temps de vol.

Focalisation en temps En pratique, la mesure des temps de vol s'affranchit de la perte de résolution induite par la largeur de la zone de collision, si la configuration du spectromètre satisfait la condition dite de *'Wiley-Mclaren'* [WM55]. Cette condition qui consiste à annuler au premier ordre la dépendance en x_0 du temps de vol s'exprime sous

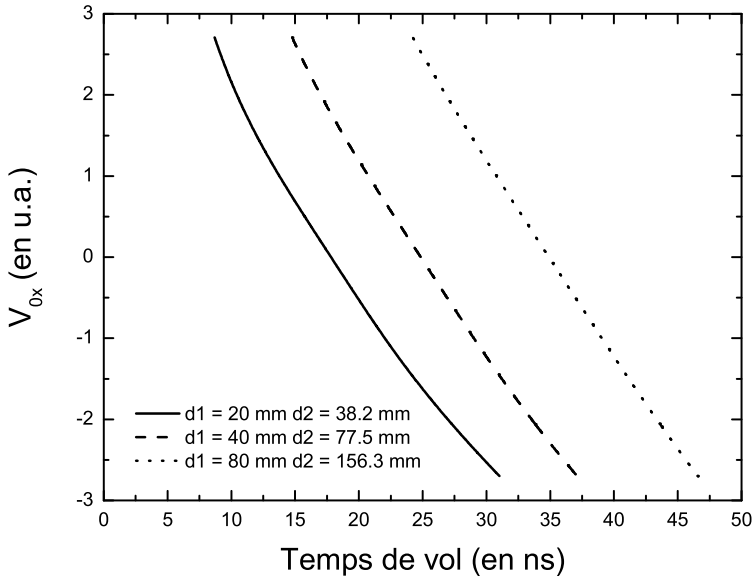


FIG. 3.15 – *Evolution de la composante V_{0x} en fonction du temps de vol, pour différentes géométries du spectromètre (E_1 = 30.1 V/cm, E_3 = 400 V/cm, d_3 = 5 mm, E = 100 eV).*

la forme :

$$\frac{dT^{e,i}}{d(sx_0)} = 0 \qquad \text{avec s} = \begin{cases} +1 & \text{pour un ion} \\ -1 & \text{pour un électron} \end{cases} \tag{3.45}$$

Dans le cadre de l'approximation linéaire, l'équation précédente conduit à la relation suivante entre les dimensions des zones d'extraction et de vol libre [Jar95]:

$$d_2^{e,i} \approx 2d_1^{e,i} \tag{3.46}$$

La géométrie du spectromètre a été déterminée précisément à l'aide du programme de simulation que nous avons développé (cf. Annexe C). Les distances des zones d'extraction et de vol libre ont été choisies de façon à minimiser la variation du temps de vol sur la largeur de la zone de collision. A titre indicatif, nous avons représenté sur la figure 3.16, l'évolution du temps de vol d'un électron et d'un ion D^+ d'énergie nulle, en fonction de la coordonnée x_0 de sa position d'émission, pour la géométrie du spectromètre employée lors de l'expérience. Pour une largeur de la zone de collision d'environ 1.5 mm, la variation du temps de vol des électrons n'excède pas 0.01 ns, tandis que celle des ions D^+ est inférieure à 0.2 ns. Ces variations sont inférieures au pas de codage des temps, et ne sont, par conséquent, pas mesurables.

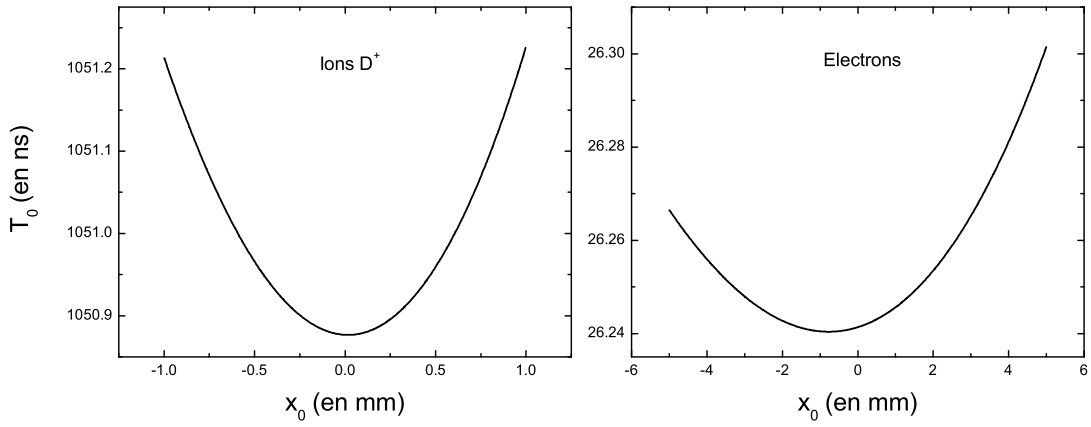


FIG. 3.16 – *Evolution du temps de vol T_0 d'un électron et d'un ion D^+ d'énergie nulle, en fonction de la coordonnée x_0 de leur position d'émission, pour les conditions expérimentales (géométrie, champ électrique) de l'expérience.*

3.5.2 Incertitude sur la mesure des composantes V_{0y} et V_{0z}

L'incertitude sur la détermination des composantes V_{0y} et V_{0z} découle de divers facteurs :

- de la résolution sur la mesure du temps de vol;
- de la résolution sur la mesure des temps d'arrivée des signaux issus des lignes à retard, qui permettent de déterminer les positions (Y, Z) de la position d'impact (cf. chapitre 2);
- des imprécisions sur la mesure de l'intensité des champs électriques et magnétique.

L'incertitude sur la détermination des composantes, induite par les imprécisions sur la mesure des champs, sera analysée dans le chapitre 4.
Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 3.4.2, la composante de vitesse initiale V_{0yz} est reliée à la position radiale du point d'impact sur le détecteur par les relations (3.42) et (3.43). L'incertitude relative sur la mesure de la composante V_{0yz} s'exprime alors par la relation :

$$\frac{\Delta V_{0yz}}{V_{0yz}} = \frac{\Delta K}{K} + \frac{\Delta r}{r} \tag{3.47}$$

L'incertitude relative sur la détermination du facteur de conversion $K(T)$ dépend de l'incertitude ΔT sur la mesure du temps de vol. On montre que :

$$\frac{\Delta K}{K} = \frac{\omega_0 \Delta T}{2tan\left(\frac{\omega_0 T}{2}\right)} \tag{3.48}$$

D'autre part, l'incertitude sur la mesure de la position Δr dépend non seulement du pas de mesure des positions $\Delta r'$, mais également de la dimension de la zone de collision Δr_0, par la relation :

$$\Delta r = \Delta r' + \Delta r_0 \tag{3.49}$$

Le pas de mesure des positions, de l'ordre de 300 μm, étant très inférieur aux dimensions de la zone de collision (estimées à environ 1.5×1.5 mm^2), la précision sur la mesure des positions est par conséquent limitée par la largeur de la zone de collision.
L'incertitude relative sur la mesure de la composante V_{0yz} dépend alors des résolutions expérimentales par la relation :

$$\frac{\Delta V_{0yz}}{V_{0yz}} = \frac{\omega_0 \Delta T}{2tan\left(\frac{\omega_0 T}{2}\right)} + \frac{\Delta r_0}{r} \tag{3.50}$$

Dans le cas des ions, pour l'intensité du champ magnétique utilisé, la contribution du terme $\Delta K/K$ est négligeable (elle n'excède pas 10^{-4}). Nous pouvons donc considérer que l'incertitude sur la mesure de leur composante V_{0yz} ne dépend que de l'incertitude sur la mesure de leur position d'impact, c'est à dire des dimensions de la zone de collision. Dans le cas des électrons, en revanche, la contribution du terme $\Delta K/K$ n'est plus négligeable. La précision sur la mesure de leur composante V_{0yz} dépend alors de l'incertitude sur la mesure des positions, mais également de celle sur la mesure du temps de vol. Ainsi, comme le montre la figure 3.17, la précision maximale est obtenue lorsque la somme des deux termes présents dans l'équation (3.50) est minimale, ce qui peut ne pas correspondre avec un déplacement maximal dans le plan du détecteur.

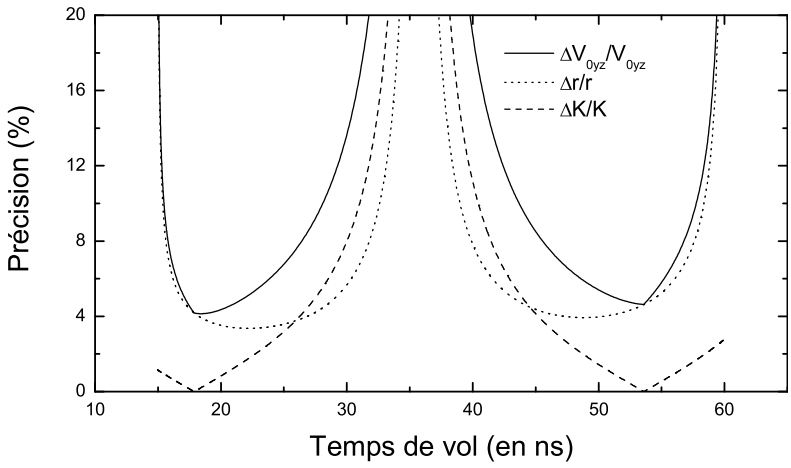
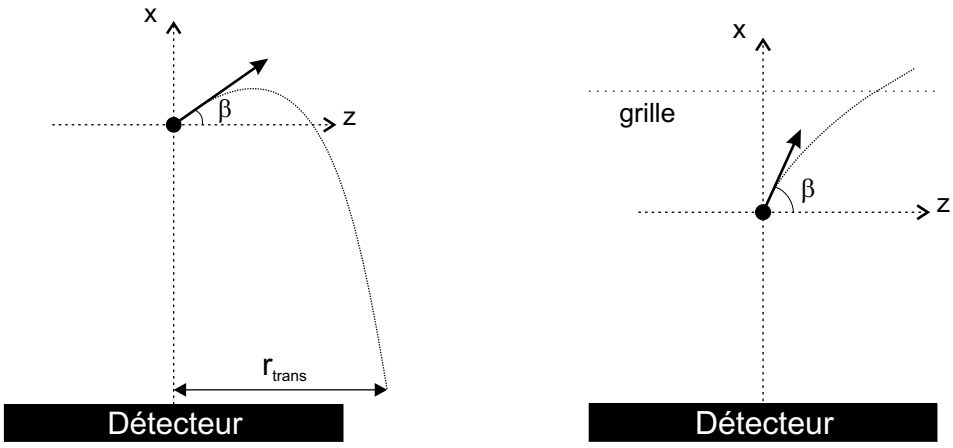


FIG. 3.17 – *Evolution de l'incertitude relative sur la mesure de la composante de vitesse initiale V_{0yz} des électrons (E = 36 eV, d_1 = 20 mm, d_2 = 40 mm, d_3 = 5 mm, E_1 = 9 V/cm, E_3 = 400V/cm, B = 10 Gauss).*

3.6 Efficacité de collection

L'efficacité de collection des particules dépend, d'une part des caractéristiques du spectromètre (géométrie, intensité des champs), et d'autre part des propriétés intrinsèques et cinématiques de la particule (masse, charge, énergie, angle d'émission). En pratique, il existe deux situations pour lesquelles une particule n'est pas détectée :

- si le déplacement transversal de la particule par rapport à l'axe du spectromètre est supérieur aux dimensions du détecteur;
- si l'énergie et l'angle d'émission d'une particule émise à l'opposé de son détecteur, lui permettent de sortir de la zone d'extraction.



(a) Le déplacement transversal de la particule par rapport à l'axe du spectromètre, est supérieur aux dimensions du détecteur.

(b) La particule sort de la zone d'extraction opposée à son détecteur.

FIG. 3.18 – *Types de trajectoire pour lesquels la particule n'est pas détectée.*

3.6.1 Efficacité de détection des ions

La trajectoire des ions étant très peu sensible à l'action du champ magnétique (cf. paragraphe 3.3.2), leur efficacité de collection est optimisée à l'aide du champ électrique. En d'autres termes, l'intensité du champ doit être fixée de manière à ce que d'une part, leurs déplacements latéraux soient inférieurs aux dimensions du détecteur, et d'autre part, leurs distances de rebroussement dans la zone d'extraction des électrons soient inférieures à la largeur de celle-ci.

Déplacement latéral maximal

Dans le cadre de certaines approximations, il est possible de déterminer l'expression analytique reliant le déplacement transverse maximal r_{trans}^{max} de l'ion à son énergie, ainsi qu'à l'intensité du champ électrique. En effet, dans le cadre de l'approximation linéaire, et si l'on peut considérer que le temps nécessaire à la traversée de la zone de post-accélération est négligeable devant le temps de vol total, on montre alors que le déplacement maximal r_{trans}^{max} s'exprime sous la forme :

$$r_{trans}^{max} = \sqrt{\frac{1}{q^2}\alpha^2 + \frac{5F^2}{4|q|}\alpha + \frac{\sqrt{2}F}{q}\alpha\sqrt{\frac{2}{q}\alpha + \frac{F^2}{8}} + \frac{\sqrt{2}F^3}{16}\sqrt{\frac{2}{q}\alpha + \frac{F^2}{8}} - \frac{F^4}{32}} \tag{3.51}$$

où,

$$\alpha = \frac{E}{E_1} \tag{3.52}$$

$$\text{et} \qquad F = \sqrt{2d_1^i} + \frac{d_2^i}{\sqrt{2d_1^i}} \tag{3.53}$$

Pour conserver une efficacité de collection maximale pour les ions, le déplacement latéral r_{max} doit être inférieur aux dimensions du détecteur, ce qui impose alors la valeur du rapport E/E_1. En d'autres termes, comme le montre la figure 3.19, pour une géométrie du spectromètre donnée, l'intensité du champ électrique nécessaire à une efficacité de collection maximale évolue linéairement avec l'énergie des ions.

Distance de rebroussement

La distance de rebroussement $x_{rebr.}$ parcourue par les ions dans la zone d'extraction des électrons, dépend de l'intensité du champ électrique, à travers la relation :

$$x_{rebr.} = \frac{sin^2\beta}{|q|}\frac{E}{E_1} + x_0 \tag{3.54}$$

Ainsi, pour conserver une efficacité de collection maximale des ions émis à l'opposé de leur détecteur, l'intensité du champ électrique doit être fixée de façon à ce que cette distance soit inférieure à la dimension d_1^e de la zone d'extraction des électrons. Nous pouvons toutefois souligner le fait que l'intensité du champ électrique nécessaire pour assurer la collection des ions dont le déplacement latéral est maximal, est suffisante pour permettre une collection complète des ions émis à l'opposé de leur détecteur. A titre d'exemple, pour l'expérience réalisée, l'intensité du champ électrique de 3010 V/m conduit à une distance

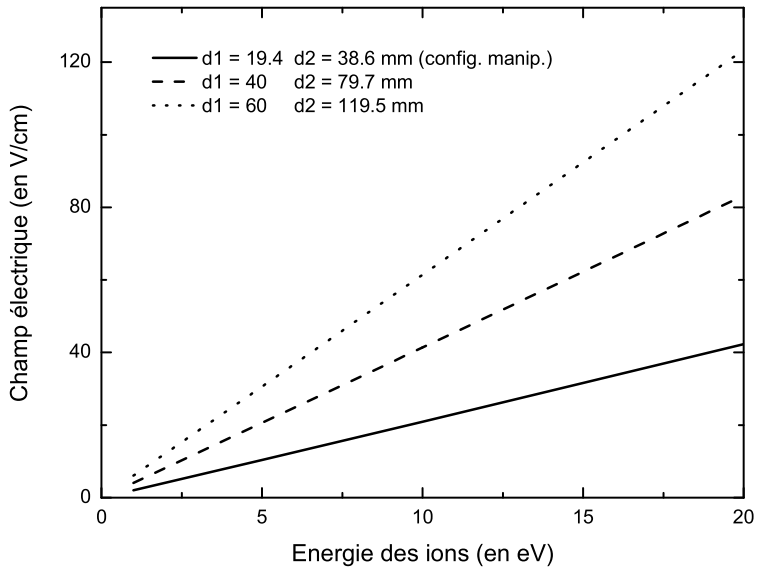


FIG. 3.19 – *Evolution de l'intensité du champ électrique nécessaire à une efficacité de collection maximale, en fonction de l'énergie des ions, pour différentes géométries du spectromètre.*

parcourue dans la zone d'extraction des électrons d'environ 3 mm.

3.6.2 Efficacité de détection des électrons

Contrairement aux ions, l'efficacité de collection des électrons dépend de l'action conjuguée des deux champs. La détection des électrons émis à l'opposé de leur détecteur reste imposée par l'intensité du champ électrique. En revanche, comme nous l'avons mentionné plusieurs fois, le confinement transversal des électrons dépend principalement de l'action du champ magnétique, mais aussi de celle du champ électrique. D'autre part, l'utilisation du champ magnétique ajoute une perte d'efficacité supplémentaire. Nous allons voir qu'il existe des conditions pour lesquelles les composantes de vitesse initiale de la particule, et les observables mesurées qui en résultent, ne sont plus liées par une relation de bijectivité.

Confinement par le champ magnétique

En toute rigueur, un électron est détecté si sa trajectoire est contenue dans le volume du spectromètre (dont le diamètre est égal à celui des détecteurs). Sa position radiale $r(t)$

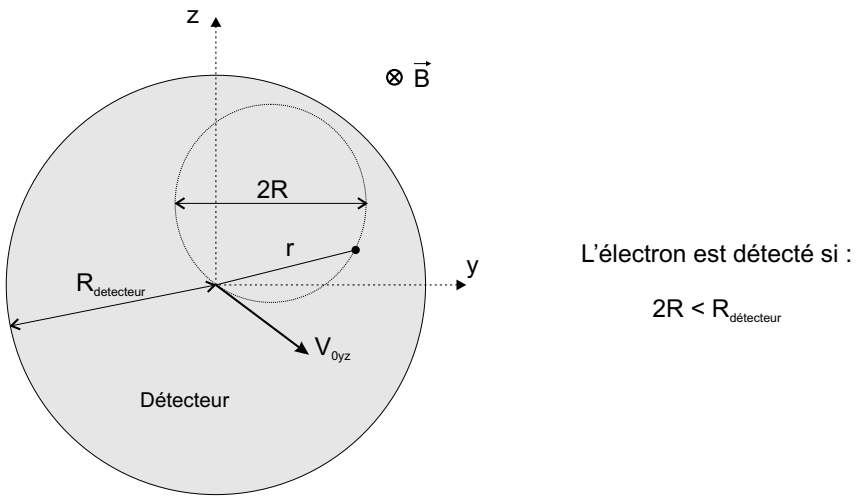


FIG. 3.20 – *Condition de détection des électrons.*

jusqu'au détecteur doit donc être inférieure au rayon de celui-ci :

$$r(t) \leq R_{detec.} \quad \text{pour} \qquad t \leq T \tag{3.55}$$

Il vient :

$$2R = \frac{2mV_{0yz}}{|q|B} \leq R_{detec.} \tag{3.56}$$

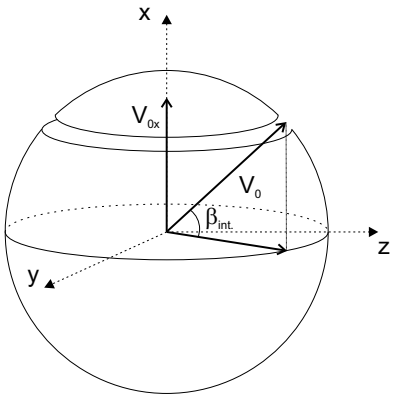
L'efficacité de collection des électrons dépend alors de leur énergie (à travers la composante V_{yz}), mais également de l'intensité du champ magnétique. En d'autres termes, l'énergie maximale des électrons que l'on souhaite confiner sur le détecteur, fixe l'intensité du champ magnétique à utiliser.

Collection des électrons émis à l'opposé du détecteur

La condition permettant d'obtenir une efficacité de collection maximale pour les électrons émis à l'opposé de leur détecteur, reste la même que celle évoquée dans le cas des ions. L'intensité du champ électrique doit être choisie de façon à ce que la distance parcourue par les électrons dans la zone d'extraction des ions soit inférieure à sa dimension. Dans le cadre de nos expériences, où des électrons d'énergie supérieure à 100 eV sont produits lors de la collision, il est difficile de fixer une intensité du champ qui permette de collecter tous ces électrons quelle que soit leur énergie, sans détériorer la résolution sur la mesure de leur temps de vol. Par conséquent, nous nous sommes résolus à ce qu'une certaine quantité de ces électrons sorte de la zone d'extraction des ions. Pour les caractéristiques du spectromètre employées (géométrie, intensités des champs), la limite en énergie au delà de laquelle les électrons peuvent sortir de la zone d'extraction est fixée à 55 eV.

Temps de vol 'mort'

Enfin, une dernière cause de perte d'efficacité est liée aux propriétés des observables mesurées induites par l'utilisation d'un champ magnétique. Comme nous l'avons déjà mentionné à plusieurs reprises, pour un temps de vol égal à un multiple entier de la période cyclotronique, les électrons retrouvent leur position d'origine quelle que soit leur énergie. En d'autres termes, le jeu d'observables mesurées (*Temps de vol*, *Position Y*, *Position Z*) ne suffit plus pour séparer les énergies des électrons. Pour ces temps de vol, nous pouvons alors considérer que le dispositif ne joue plus le rôle de spectromètre auquel il est destiné.
A partir de la relation liant le temps de vol de l'électron à la composante V_{0x} de sa vitesse initiale, on montre alors qu'il existe, pour une énergie donnée, un angle mort $\beta_{int.}$ d'émission de l'électron par rapport au plan ($\vec{y}$,$\vec{z}$), dont la forme analytique est donnée par l'équation (3.57). Toutefois, l'orientation des molécules dans le jet supersonique étant



$$\beta_{int.} = asin\left(\sqrt{\frac{m}{2E}}V_{0x}(T = kT_{cyclo.})\right) \qquad (3.57)$$
$$\text{avec k} \in \mathbb{N}$$

FIG. 3.21 – *Angle d'émission pour lequel le dispositif ne joue plus son rôle de spectromètre.*

totalement aléatoire et isotrope, un angle d'émission particulier par rapport à l'axe de la molécule peut prendre toutes les valeurs possibles dans le repère du laboratoire. Par conséquent, la perte totale d'efficacité liée à l'angle mort $\beta_{int.}$ dans le repère du laboratoire, se traduit par une perte uniforme d'efficacité dans le repère de la molécule.

3.7 Conclusion : optimisation du spectromètre

L'optimisation du spectromètre (choix de la géométrie et de l'intensité des champs), doit tenir compte au mieux des diverses contraintes imposées par la précision sur la mesure des composantes de vitesse initiale, et par l'efficacité de collection des particules. Aussi, il peut arriver que le choix de certains paramètres, comme par exemple l'intensité du champ électrique d'extraction, découle d'un compromis entre la meilleure précision sur la mesure et l'efficacité maximale de collection.

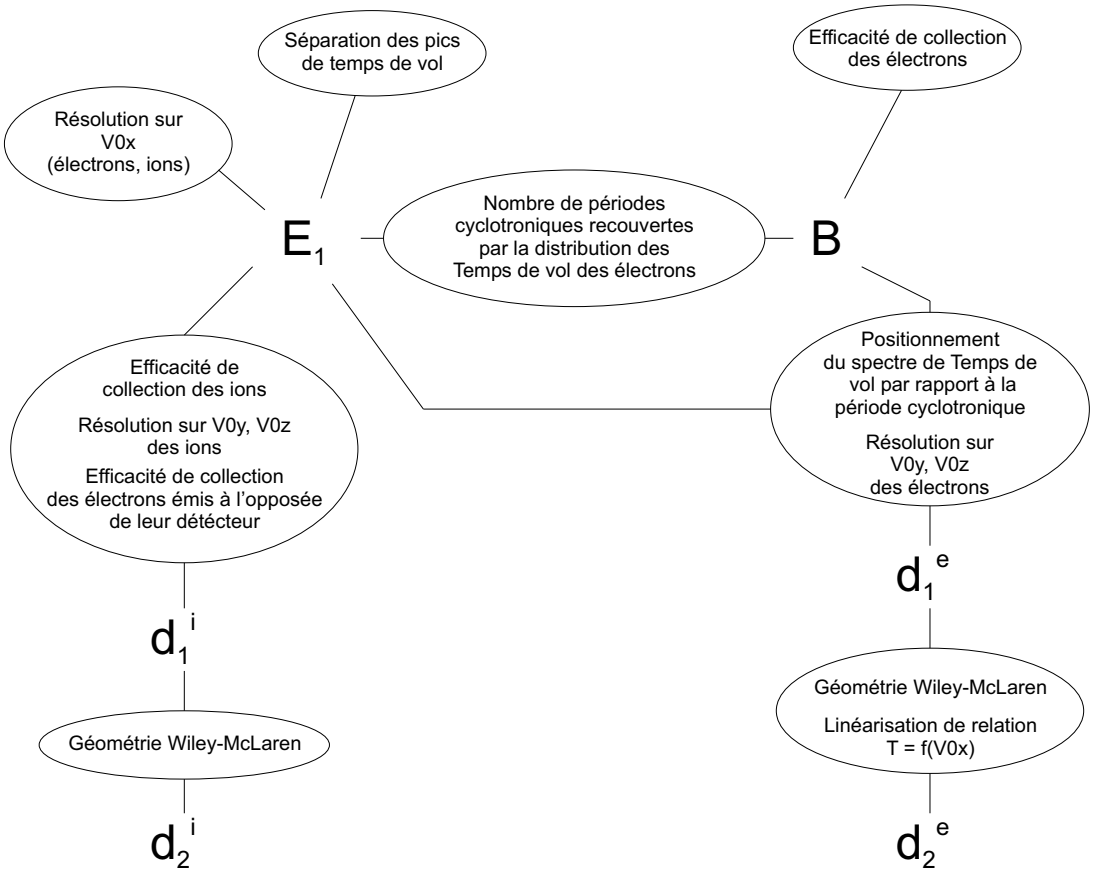


FIG. 3.22 – *Influence des différents paramètres du spectromètre sur les critères d'optimisation.*

L'organigramme présenté sur la figure 3.22 précise l'influence de chacun des paramètres du spectromètre sur l'ensemble des critères dont il faut tenir compte lors de son optimisation. Il n'existe pas de protocole général d'optimisation, dans la mesure où la valeur des différents paramètres dépend des caractéristiques cinématiques des particules détectées. Aussi, pour conclure ce chapitre, nous pouvons décrire la démarche que nous avons mise en oeuvre pour optimiser le spectromètre utilisé lors de l'étude du système 13.7 MeV/u S^{15+}-D_2. La géométrie et les intensités des champs ont été définies de façon à détecter des ions D^+ d'énergie inférieure à 12 eV dans un angle solide de 4π stéradians, ainsi que des électrons de 100 eV avec une efficacité de collection maximale. Le protocole établi est donc le suivant :

1. L'énergie maximale des électrons à confiner sur la surface du détecteur fixe la valeur du champ magnétique.
2. L'intensité du champ électrique ainsi que la largeur de la zone d'extraction des ions ont été déterminées de façon à remplir deux conditions : d'une part, permettre de collecter des ions D^+ d'énergie inférieure à 12 eV dans un angle solide de 4π stéradians,

d'autre part, conserver une précision maximale sur la mesure de la composante V_{0x} des particules.

3. La distance de la zone de vol libre des ions découle de la configuration dite de Wiley-McLaren [WM55].
4. Les largeurs des zones d'extraction et de vol libre des électrons, sont déterminées d'une part à partir de la configuration dite de Wiley-McLaren, et d'autre part, en ajustant la distribution des temps de vol dans l'intervalle d'une période cyclotronique.

Chapitre 4

Analyse des données

Sommaire

4.1 Observables significatives *Temps de vol* et *Positions* 95

4.1.1 Observable significative *Temps de vol* 95

4.1.2 Observables significatives *Positions (Y,Z)* 98

4.2 Détermination de l'intensité des champs et des origines spatiale et temporelle 101

4.2.1 Détermination du champ d'extraction et de l'origine temporelle des ions 101

4.2.2 Détermination de l'origine des positions des ions 104

4.2.3 Détermination de l'intensité du champ magnétique, et des origines temporelle et spatiale des électrons 106

4.2.4 Détermination de la vitesse longitudinale des molécules dans le jet, et des dimensions de la zone de collision 110

4.3 Sélection des différents processus d'ionisation 112

4.3.1 Sélection du processus d'ionisation non-dissociative 112

4.3.2 Sélection du processus de double ionisation 113

4.3.3 Sélection du processus d'ionisation dissociative 113

4.4 Efficacité de détection des particules 117

4.4.1 Cas des ions 117

4.4.2 Cas des électrons 118

4.5 Précision sur la mesure des énergies et des angles d'émission 119

4.5.1 Précision sur la mesure de l'énergie 120

4.5.2 Précision sur la mesure des angles 120

4.6 Conclusion 123

L'analyse des données constitue une étape déterminante dans la chaîne de production des résultats scientifiques. Son rôle consiste à extraire les résultats expérimentaux souhaités, du flot de données accumulées lors de l'expérience. En pratique, l'analyse des données doit permettre d'isoler l'ensemble de celles correspondant aux processus physiques étudiés, afin d'en extraire les observables représentatives (énergie, angle d'émission) des particules qui en résultent, en précisant conjointement leurs conditions de validité (incertitude). Le protocole d'analyse que nous avons mis en oeuvre s'articule autour des grandes lignes suivantes :

- **Mise en forme des observables significatives *Temps de vol* et *Positions*.** Dans un premier temps, il convient de convertir les observables brutes codées et enregistrées lors de l'expérience, en observables significatives. Rappelons que les observables significatives directement accessibles à l'aide du dispositif sont le temps de vol de la particule, et sa position d'impact sur le détecteur (cf. chapitre 2).
- **Détermination des constantes de mesure.** La deuxième phase du traitement des données consiste à déterminer les constantes de mesure. Il s'agit de déterminer d'une part les intensités réelles des champs utilisés, et d'autre part les origines temporelle (instant de la collision) et spatiale (coordonnées du point de collision) des observables significatives (*Temps de vol*, *Positions*).
- **Selection des événements correspondant aux processus observés.** Cette étape consiste à séparer les événements correspondant aux différents processus observés, en s'appuyant sur les caractéristiques des observables significatives des particules qui en résultent. Il s'agit également d'identifier, puis d'éliminer la contribution des diverses pollutions (pollution par le gaz résiduel présent dans la chambre, pollution par contamination isotopique des molécules dans le jet).
- **Détermination de l'efficacité de collection et de détection.** La connaissance de l'efficacité de collection et de détection des différentes particules est primordiale dés lors que l'on souhaite mesurer la section efficace relative (ou absolue) d'un processus donné, en fonction de l'angle d'émission et de l'énergie de la particule.
- **Détermination de la précision sur la mesure.** Enfin, la dernière étape de l'analyse consiste à déterminer la précision sur la mesure de l'énergie et des angles d'émission des particules.

Dans ce chapitre, nous nous attacherons à décrire les méthodes que nous avons développées pour remplir chacune des taches énumérées précédemment. A l'instar du protocole d'optimisation du spectromètre, ces méthodes ont très largement tiré profit du programme de simulation décrit dans l'annexe C.

4.1 Observables significatives *Temps de vol* et *Positions*

Les variables significatives[1] accessibles par le biais du dispositif expérimental sont le temps de vol de la particule, et les coordonnées (Y,Z) de son point d'impact sur le détecteur à localisation. Chacune de ces trois observables n'est cependant pas directement mesurée par le dispositif, mais découle des observables brutes codées et enregistrés (cf. chapitre 2). Ces dernières correspondent aux intervalles de temps séparant l'arrivée des impulsions issues des galettes à micro-canaux et des anodes sur les différentes entrées du convertisseur temps numérique, de celle du signal commun de référence (*'Common Stop'*) (cf. figure 4.1).

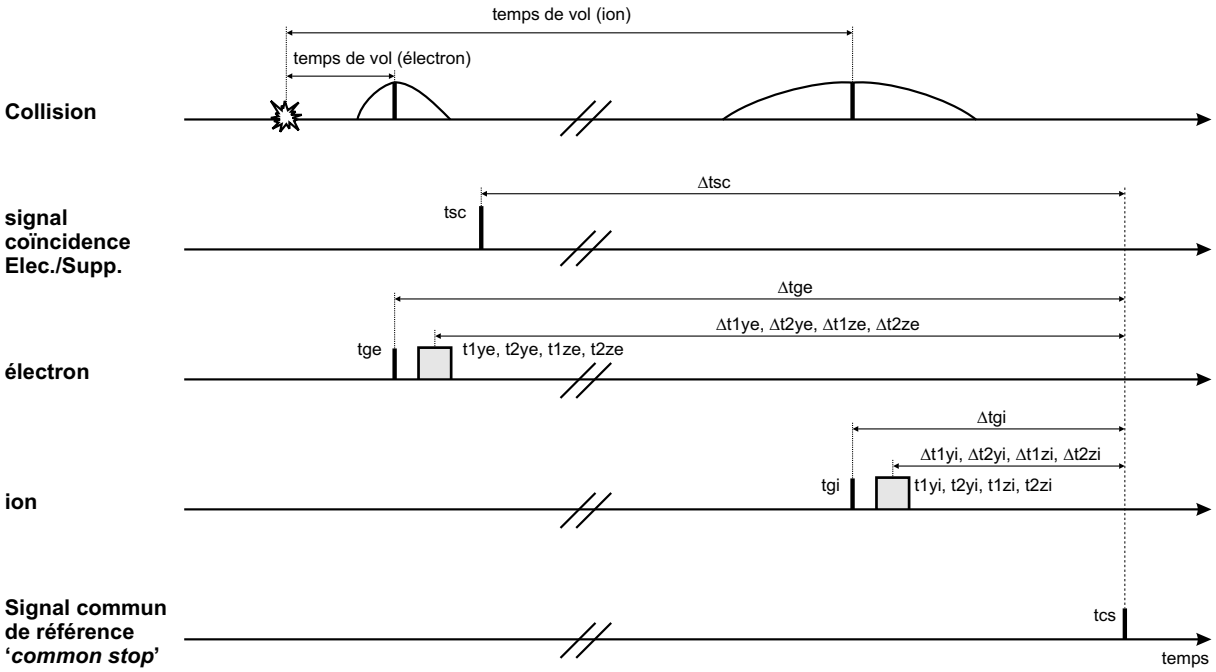


FIG. 4.1 – *Les observables brutes mesurées lors de l'expérience (Δtge, Δtgi, Δt1ye, Δt2ye, ...) correspondent aux intervalles de temps séparant l'arrivée des impulsions issues des galettes et des anodes (tge, tgi, t1ye, t2ye, ...) sur les entrées du convertisseur temps numérique, de celle du signal commun de référence ('Common Stop').*

4.1.1 Observable significative *Temps de vol*

Les spectres de temps de vol des particules sont obtenus en modifiant l'origine temporelle des observables brutes (qui, comme nous l'avons mentionné, correspond à l'instant

1. D'une manière générale, nous définirons l'ensemble des variables intervenant de façon directe dans l'équation du mouvement de la particule, comme des variables significatives. C'est le cas par exemple, de l'énergie de la particule, de sa vitesse, de son temps de vol, ou de son déplacement.

d'arrivée du signal commun de référence au niveau du convertisseur temps numérique). La nouvelle origine est donnée par l'instant d'arrivée du signal de coïncidence *'Electron/Suppresseur'* (cf. paragraphe 2.6.1) au niveau du convertisseur temps numérique (cf. figure 4.1). Le signal émis par le suppresseur de paquets étant en phase avec l'émission d'un paquet d'ions, son instant d'arrivée au niveau du convertisseur reflète donc l'instant de la collision, à une constante de temps additive prés.
Les temps de vol des ions (T_i) et des électrons (T_e) par rapport à la nouvelle origine temporelle sont déterminés à partir des relations suivantes :

$$T_i = \Delta tsc - \Delta tgi \tag{4.1}$$

$$T_e = \Delta tsc - \Delta tge \tag{4.2}$$

Les spectres de temps de vol[2] qui en découlent sont représentés sur la figure 4.2. Notons bien que ces spectres différent de ceux définis par rapport à l'instant de l'interaction, par une constante temporelle. Ce décalage provient d'une part de l'écart temporel existant entre l'instant d'émission du signal par le suppresseur de paquet, et l'instant de l'interaction, et d'autre part, du retard accumulé dans les différents cables et modules acheminant et traitant chaque signal jusqu'au convertisseur temps numérique. A priori, il n'y a aucune raison pour que les décalages temporels dont font l'objet les spectres de temps de vol des ions et des électrons soient identiques, dans la mesure où la longueur des cables, et donc le temps nécessaire à l'acheminement des signaux, peut être différents d'un détecteur à l'autre. La détermination de ces constantes de décalage sera décrite dans le paragraphe 4.2.
Nous remarquons sur les spectres de temps de vol des ions, la présence d'entités H^+ et H_2^+ issues de collisions avec le gaz résiduel, ainsi que d'ions moléculaire HD^+ résultant de l'interaction entre le faisceau et la proportion de molécule HD initialement présente dans la bouteille de D_2 (0.2 %). Les pics de temps de vol de ces différentes particules se situent entièrement (HD^+) ou en partie (H^+) dans la gamme temporelle sur laquelle s'étend la distribution des temps de vol des ions D^+. Par conséquent, comme nous le verrons par la suite, l'ensemble des événements correspondant à ces ions constitue une pollution dont il faudra éliminer la contribution. Ainsi, nous comprenons à présent que d'un point de vue expérimental la cible moléculaire D_2 a été préférée à H_2, de façon à ce que nos mesures s'affranchissent en partie de la pollution due à la présence d'ions H^+ produits par collision avec le gaz résiduel. Enfin, notons également la différence existant entre les largeurs des distributions de temps des ions moléculaires D_2^+ ou HD^+, et celles

2. Le pas de temps (canal) des spectres de temps de vol correspond au pas de codage du convertisseur temps numérique (0.5 ns).

des distributions correspondant aux fragments ioniques H^+ ou D^+. Comme nous l'avons décrit dans le chapitre 3 (paragraphe 3.3.1), la largeur du pic de temps de vol d'une particule est proportionnelle à la racine carrée de son énergie initiale. Par conséquent, les distributions de temps de vol des ions moléculaires (dont l'énergie initiale est de l'ordre du meV) sont beaucoup plus étroites que celle des ions issus de la fragmentation d'une molécule (l'énergie emportée par chaque fragment pouvant atteindre une dizaine d'eV).

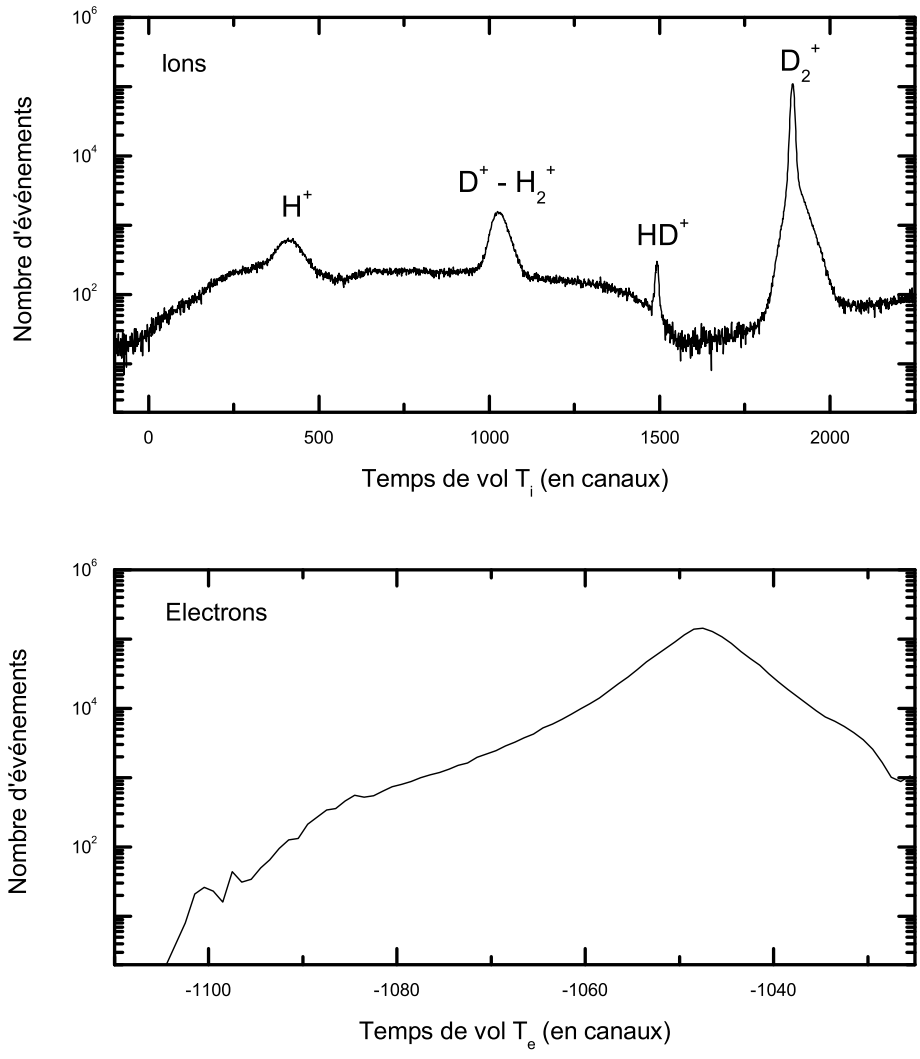


FIG. 4.2 – *Spectres de temps de vol des électrons et des ions, référencés par rapport à l'instant d'arrivé du signal de coïncidence 'Electron/Suppresseur' sur l'entrée du convertisseur temps numérique.*

4.1.2 Observables significatives *Positions (Y,Z)*

Comme nous l'avons décrit dans le chapitre 2 (cf. paragraphe 2.5.3), les observables positions (Y,Z) du point d'impact de la particule sur le détecteur à localisation, découlent de la différence des temps de parcours associés aux impulsions voyageant vers les deux extrémités des anodes, par les relations :

$$Y = C_{tp}(t1y - t2y) \tag{4.3}$$

$$Z = C_{tp}(t1z - t2z) \tag{4.4}$$

où C_{tp} représente le facteur de conversion 'temps/positions', *t2y* et *t2z* les temps de parcours des impulsions recueillies aux extrémités des anodes situées dans les parties positives des coordonnées Y et Z, et *t1y* et *t1z* les temps de parcours des impulsions recueillies aux extrémités opposées (cf. figure 4.3).

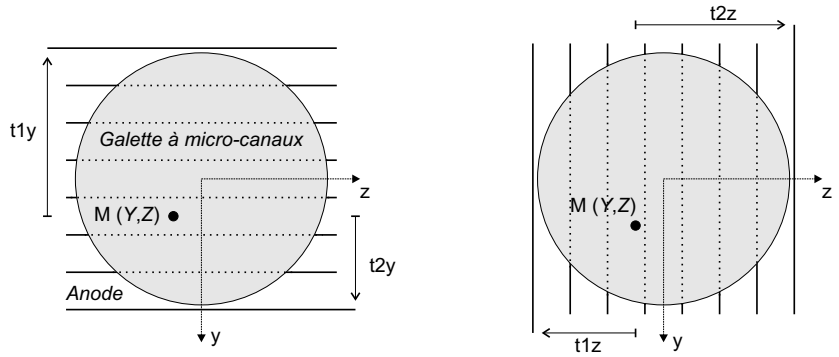


FIG. 4.3 – *Les coordonnées (Y, Z) du point d'impact de la particule sur le détecteur à localisation sont déterminées à partir de la différence des temps de parcours* $t1y - t2y$ *et* $t1z - t2z$ *des impulsions voyageant vers les extrémités de la ligne à retard.*

En pratique, nous mesurons l'instant d'arrivée des signaux au niveau de l'entrée du convertisseur temps numérique, par rapport au signal commun de référence (cf. figure 4.1 : $\Delta t1ye\text{-}i$, $\Delta t2ye\text{-}i$, $\Delta t1ze\text{-}i$, $\Delta t2ze\text{-}i$). Par rapport à cette origine temporelle, les relations (4.3) et (4.4) deviennent :

$$Y = C_{tp}(\Delta t2y - \Delta t1y) \tag{4.5}$$

$$Z = C_{tp}(\Delta t2z - \Delta t1z) \tag{4.6}$$

La figure 4.4 représente les spectres des termes $\Delta t2y - \Delta t1y$ et $\Delta t2z - \Delta t1z$ présents dans les relations précédentes, pour le cas des électrons et des ions. Ces spectres ont été nettoyés de la contribution de l'ensemble des événements produits par le bruit électronique en tirant profit des propriétés des lignes à retard (ce traitement est décrit dans le paragraphe

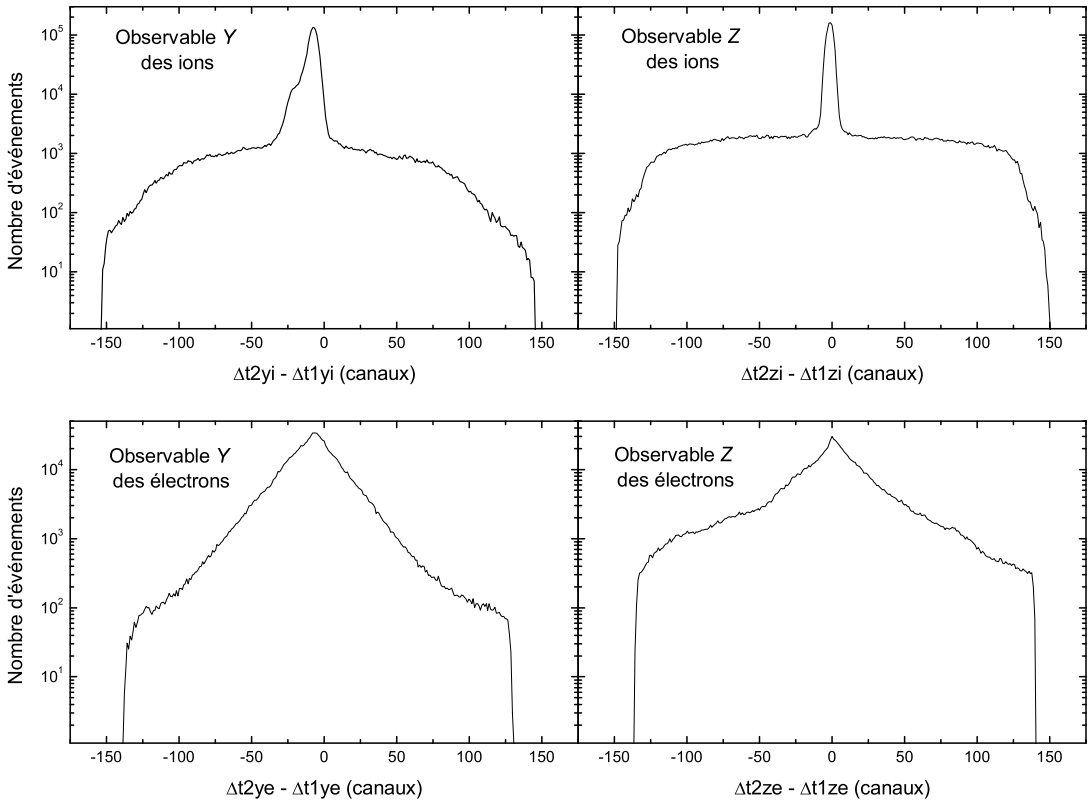


FIG. 4.4 – *Spectre des observables positions (Y,Z) des électrons et des ions, déterminées à partir des premières observables selon les relations* (4.5) *et* (4.6).

'Somme des temps de propagation dans la ligne à retard', ci-après). Notons bien que ces spectres représentent les coordonnées (Y,Z) des points d'impact des particules en unité de canal, dont l'équivalent en longueur correspond à la valeur du facteur 'temps/positions' C_{tp}, par rapport au centre du détecteur. A l'instar des spectres de temps de vol rapportés précédemment, ils diffèrent donc des spectres des observables mesurées par rapport au point de la collision (origine spatiale), dont les coordonnées par rapport au centre du détecteur sont déterminées suivant la méthode que nous allons décrire dans la section 4.2.

Facteur de conversion 'temps/positions'

La détermination des positions (Y,Z) en unité de longueur, nécessite de connaître la valeur du facteur de conversion 'temps/positions'. Celle-ci est déterminée à partir des spectres représentés sur la figure 4.4. La largeur des spectres, correspond au diamètre utile de la surface de détection. Pour un diamètre utile mesuré de 81.25 mm, nous en déduisons les facteurs de conversion C^i_{tp} et C^e_{tp} correspondant respectivement aux détecteurs des ions

et des électrons :

$$C^i_{tp} = \frac{81.25 \pm 0.2}{294 \pm 2} = 0.276 \pm 0.003\text{mm/canal} \tag{4.7}$$

$$C^e_{tp} = \frac{81.25 \pm 0.2}{277 \pm 2} = 0.293 \pm 0.003\text{mm/canal} \tag{4.8}$$

où les valeurs 294 et 277 correspondent respectivement aux largeurs des distributions des observables (Y,Z) des ions et des électrons (cf. figure 4.4). Notons que ces valeurs représentent l'équivalent en longueur du pas de codage des temps de parcours (0.5 ns). Elles constituent donc la résolution en position ultime du dispositif.

Somme des temps de propagation dans la ligne à retard

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 2, les sommes $t1y+t2y$ et $t1z+t2z$ des temps de propagation vers chaque extrémité de l'anode doivent être égales à la constante caractéristique de la ligne à retard, définie comme étant le temps nécessaire pour parcourir toute sa longueur. En imposant une condition sur cette somme, nous nous affranchissons de la contribution du bruit électronique. La figure 4.5 représente les distributions des sommes $t1y + t2y$ pour le cas des ions et des électrons. Seuls les événements dont la somme est contenue dans l'intervalle défini par la gaussienne représentée sur chacune des distributions sont retenus.

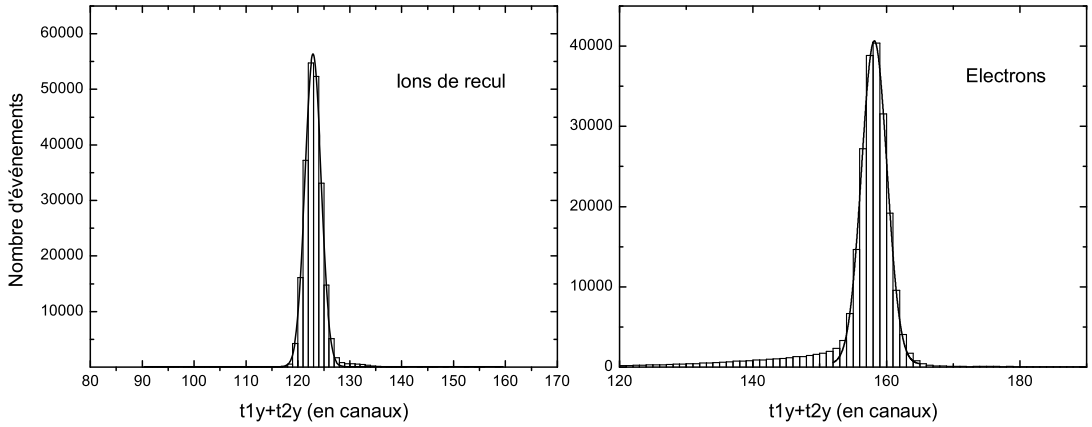


FIG. 4.5 – *Distributions des sommes 't1y+t2y' des temps de propagations dans les lignes à retard des détecteurs des ions, et des électrons.*

4.2 Détermination de l'intensité des champs et des origines spatiale et temporelle

La deuxième étape du traitement des données consiste à déterminer les constantes de mesure. Il s'agit de déterminer d'une part l'intensité réelle des champs magnétique et électrique utilisés lors de l'expérience, et d'autre part les références temporelles et spatiales des observables définies respectivement par l'instant de la collision (par rapport à l'instant d'arrivée du signal de coïncidence *Electron/suppresseur*), et les coordonnées du point de collision (par rapport au centre du détecteur). Cette étape, constitue la base sur laquelle va ensuite s'appuyer le calcul des vitesses, des angles et des énergies. Inutile alors de souligner à quel point une calibration soigneuse pèse sur la validité des distributions en énergie et angulaire que l'on souhaite déterminer.

4.2.1 Détermination du champ d'extraction et de l'origine temporelle des ions

Pour une particule d'énergie initiale nulle, ou émise dans un plan parallèle à celui du détecteur, la composante de vitesse suivant l'axe d'extraction s'annule. L'équation du temps de vol peut alors s'écrire de manière simplifiée. On montre que :

$$T_{V_{0x}=0} = \sqrt{\frac{m}{q}}\left[\sqrt{\frac{2d_1}{E_1}} + \frac{d_2}{\sqrt{2E_1d_1}} + \sqrt{\frac{2E_1d_1}{E_3^2}} + \sqrt{\frac{2E_1d_1}{E_3^2} + \frac{2d_3}{E_3}}\right] \tag{4.9}$$

ou plus simplement,

$$T_{V_{0x}=0} = \sqrt{\frac{m}{q}}g(d_1,d_2,d_3,E_1,E_3) \tag{4.10}$$

L'expression du temps de vol se décompose en un produit de deux termes: un terme prenant en compte les propriétés de la particule (masse et charge), et un autre ne dépendant que des caractéristiques du spectromètre (dimensions et champs électriques). Cette singularité peut être mise à profit pour déterminer le champ d'extraction et l'origine temporelle des ions.

Détermination du champ d'extraction

L'intensité du champ E_1 est déterminée en minimisant l'écart séparant le temps de vol théorique d'une particule ayant une vitesse initiale nulle décrit par l'équation (4.9), du temps de vol mesuré, par la méthode des moindres carrés. Autrement dit, en supposant que l'on dispose de N temps de vol mesurés correspondant à N particules ayant chacune

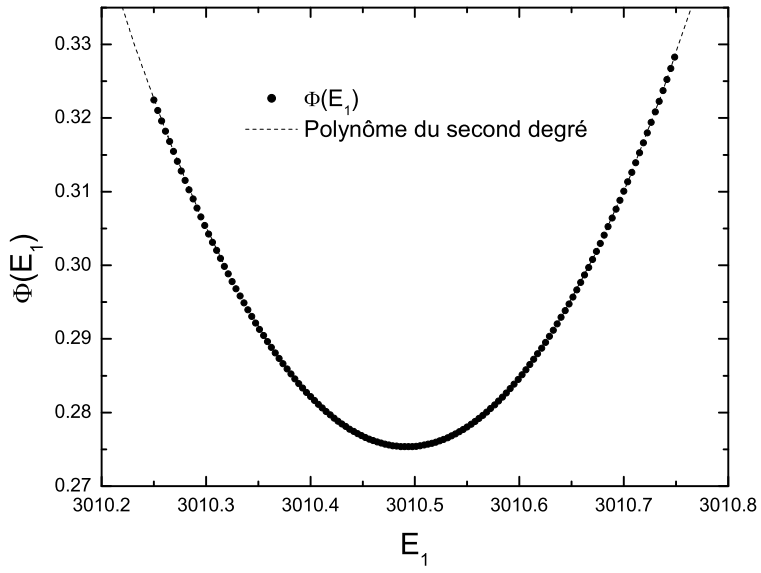


FIG. 4.6 – *Détermination de l'intensité du champ d'extraction: les points représentent l'évolution de* $\Phi(E_1)$ *en fonction de* E_1*, tandis que la courbe en pointillé correspond à l'ajustement par un polynôme du* 2^{ieme} *degré. Le minimum de* $\Phi(E_1)$ *donne la valeur du champ.*

un rapport m/q différent, il s'agit de trouver la valeur du champ d'extraction qui minimise la quantité:

$$\Phi(E_1) = \sum_{j=1}^{N} \left(T_j^{mesuré} - T_j^{théorique}(E_1) \right)^2 \tag{4.11}$$

Toutefois, de façon à s'affranchir de l'incertitude résultant de la détermination de l'origine temporelle des temps de vol mesurés (la méthode mise en oeuvre pour sa détermination est décrite dans la suite du paragraphe), nous avons choisi d'appliquer la méthode aux différences entre les temps de vol, plutôt qu'aux temps de vol eux-mêmes. En d'autres termes, la quantité à minimiser s'exprime sous la forme :

$$\Phi(E_1) = \sum_{\substack{j=1,N \\ k=1,N \\ j \neq k}} \left(\Delta_{jk} T^{mesuré} - \Delta_{jk} T^{théorique}(E_1) \right)^2 \tag{4.12}$$

où $\Delta_{jk} T^{mesuré}$ et $\Delta_{jk} T^{théorique}$ représentent respectivement l'écart mesuré et théorique entre les pics de temps de vol de deux particules ayant un rapport m/q distinct. Le minimum de la fonction $\Phi(E_1)$ est ensuite déterminé graphiquement, en ajustant par un polynôme du deuxième degré (cf. figure 4.6).

L'intensité du champ E_1, déduite de la méthode, dépend de la géométrie du spectromètre

de vitesse. Les imprécisions sur les dimensions mécaniques sont responsables d'une incertitude négligeable sur le champ d'extraction de l'ordre de 0.2%.
D'autre part, la valeur du champ de post-accélération intervient dans l'expression du temps de vol, et donc dans la détermination de l'intensité du champ d'extraction. En toute rigueur, il faudrait minimiser la fonction Φ en faisant varier les valeurs des deux champs. La démarche est fastidieuse et ne présente pas réellement d'intérêt. En effet, si l'on fixe l'intensité du champ de post-accélération à sa valeur théorique, c'est à dire celle supposée être appliquée lors de l'expérience, avec une imprécision de 10%, l'incertitude résultante sur le champ d'extraction n'excède pas 0.2%. La plus importante source d'incertitude émane du repérage des pics de temps de vol. C'est pourquoi, il est toujours préférable d'utiliser les pics associés aux ions moléculaires n'ayant pas fragmenté, dans la mesure où la largeur de leurs distributions de temps de vol est plus étroite que celle des fragments. En général, il peut être intéressant de réaliser une pré-expérience dédiée à la mesure du champ d'extraction, à l'aide de gaz donnant naissance à des ions présentant de nombreux états de charge (argon ou néon). On estime l'incertitude induite sur la valeur du champ d'extraction, due aux imprécisions de repérage, de l'ordre de 0.4%.

Détermination de l'origine temporelle des ions

Comme le souligne l'équation (4.10), le temps de vol des particules évolue linéairement en fonction de la racine carrée du rapport entre leurs masses et leurs charges $\sqrt{m/q}$. En ce qui concerne les temps de vol mesurés par rapport au signal de référence, cette équation est légèrement différente puisqu'elle comporte un terme constant additif $T_{origine}$.

$$T_{E=0}^{brut} = \sqrt{\frac{m}{q}} g(d_1,d_2,d_3,E_1,E_3) + T_{origine} \tag{4.13}$$

Nous avons déjà mentionné le fait que ce terme correspondait à la position de l'origine temporelle absolue (instant de l'interaction) dans le spectre de temps de vol référencé par rapport au signal de référence. Sa valeur est déterminée, en ajustant les N temps de vol utilisés lors de la détermination du champ d'extraction, par une droite dont le coefficient directeur est égal à $g(d_1,d_2,d_3,E_1,E_3)$, E_1 prenant la valeur déterminée par la méthode des moindres carrés (cf. figure 4.7).
L'incertitude qui entache la valeur du terme $T_{origine}$ provient de deux facteurs:

- l'incertitude sur la détermination des positions des pics (d'où l'intérêt de réaliser une pré-expérience à l'aide d'ions moléculaires ayant de nombreux états de charge).
- l'incertitude sur la détermination du champ d'extraction.

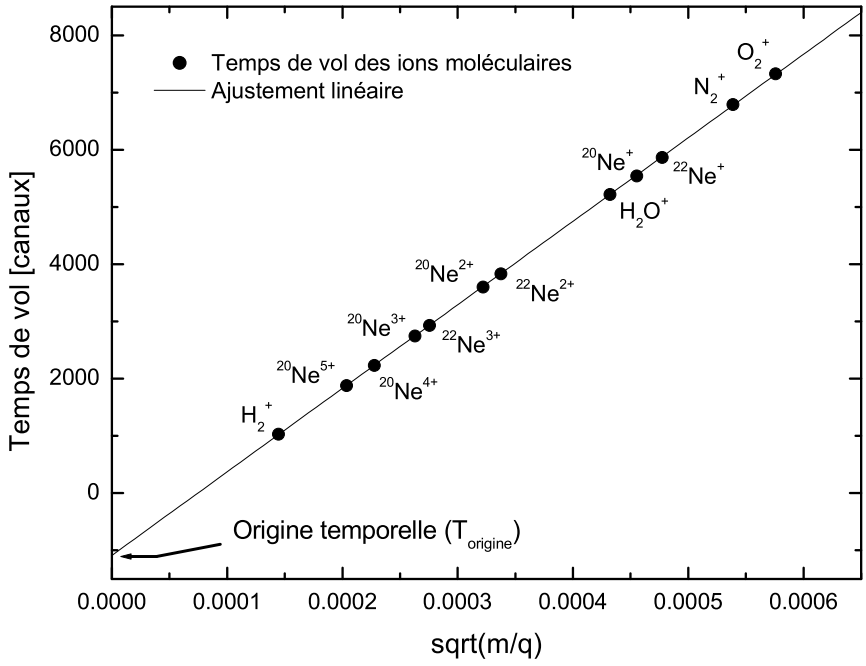


FIG. 4.7 – *Détermination de l'origine temporelle $T_{origine}$ des ions : chaque point correspond au temps de vol d'un ion en fonction du rapport $\sqrt{m/q}$. Un ajustement linéaire dont le coefficient directeur est fixé par la valeur du champ d'extraction, permet de déterminer l'instant de l'interaction.*

L'ensemble de ces imprécisions conduit à une incertitude globale de l'ordre de 0.2% sur la valeur du terme $T_{origine}$.

4.2.2 Détermination de l'origine des positions des ions

L'origine $O'(x',y_0,z_0)$ des positions mesurées sur le détecteur à localisation est définie par la projection orthogonale sur le détecteur du point de croisement $O(x_0,y_0,z_0)$ entre le faisceau et le jet moléculaire (cf. figure 4.8). En négligeant l'action du champ magnétique, les distributions des positions d'impact au niveau du détecteur des ions moléculaires D_2^+, et des ions thermiques produits lors de collisions entre le faisceau projectile et le gaz résiduel, peuvent être employées pour déterminer les deux coordonnées (y_0,z_0) du point de collision. La figure 4.9 représente la répartition des points d'impacts des ions sur leur détecteur. La trace rectiligne dirigée suivant l'axe z est formée par l'ensemble des positions d'impact des ions thermiques produits lors du passage du projectile, au cours d'interactions avec le gaz résiduel. Elle reflète donc la trajectoire du faisceau, permettant ainsi de remonter à la coordonnée y_0 du point de collision (cf. figure 4.9a).

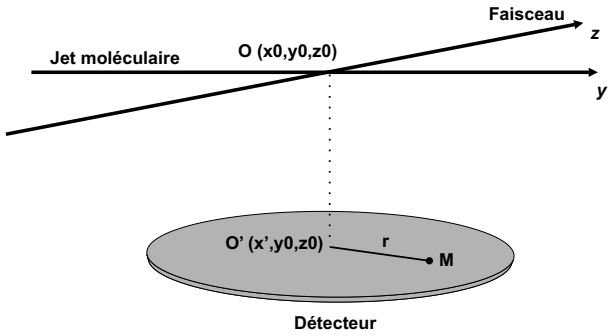
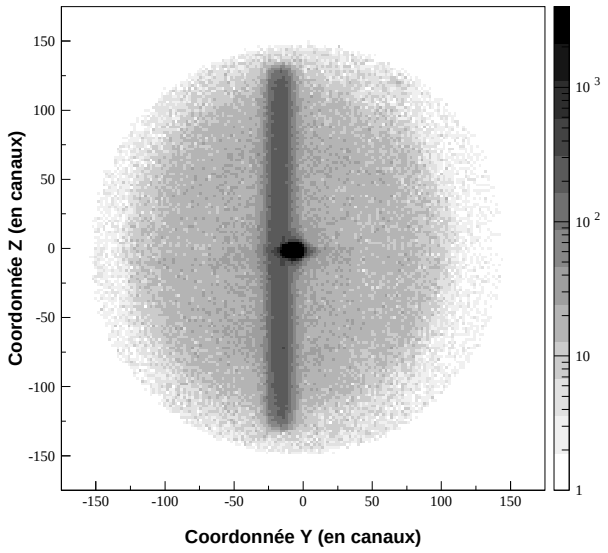
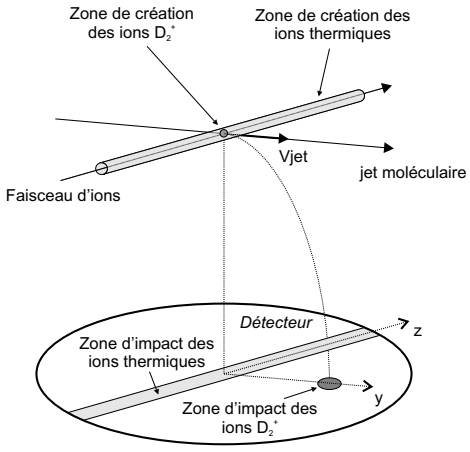


FIG. 4.8 – *L'image projetée du point de collision entre le jet moléculaire et le faisceau projectile sur le détecteur à localisation définit l'origine des positions mesurées.*



(a) Répartition des positions d'impact des ions sur le détecteur



(b) Zones d'impact des ions thermiques et des ions D_2^+ sur le détecteur

FIG. 4.9 – *Répartition des points d'impact des ions sur le détecteur. La figure (a) représente l'image des positions d'impact des ions mesurées. Comme le schématise la figure (b), la tache centrale prédominante correspond à la zone d'impact des ions* D_2^+*, tandis que la trace dirigée suivant l'axe z représente la zone d'impact des ions thermiques.*

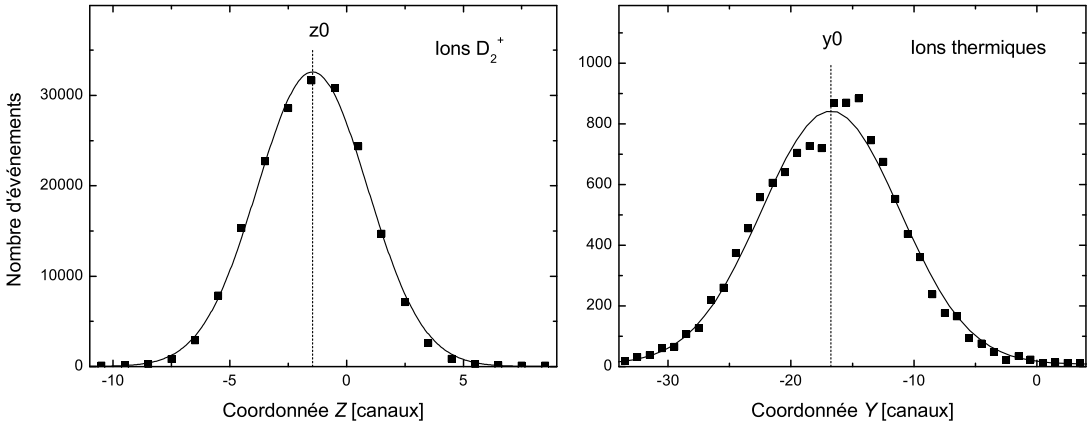


FIG. 4.10 – *Détermination des coordonnées (y_0,z_0) de l'origine des positions. La coordonnée z_0 correspond à la valeur moyenne de la distribution des positions des ions D_2^+ suivant l'axe du faisceau. La coordonnée y_0 est quant à elle obtenue à partir de la distribution des positions d'impact des ions thermiques suivant la direction du jet.*

La coordonnée z_0 est quant à elle déterminée à partir de la distribution des positions d'impact suivant la direction du faisceau (axe z) des ions moléculaires D_2^+ n'ayant pas fragmenté. En négligeant le moment transféré par le projectile (de l'ordre de 1 meV), ces ions sont produits en tout point du volume d'interaction, sans modification de leur vitesse de translation initiale[3]. La répartition localisée de leurs positions d'impact sur le détecteur reflète donc la direction de propagation du jet supersonique(cf. figure 4.9*a*).
La figure 4.10 représente la distribution des positions d'impact des ions D_2^+ suivant la direction du projectile (axe z), ainsi que celle des ions thermiques suivant l'axe du jet (axe y). Les deux coordonnées (y_0,z_0) du point de collision correspondent aux valeurs moyennes de ces distributions. L'analyse quantitative est réalisée en ajustant les distributions par des gaussiennes.

4.2.3 Détermination de l'intensité du champ magnétique, et des origines temporelle et spatiale des électrons

D'après ce que nous avons vu dans le chapitre précédent, sous l'action conjuguée du champ électrique et du champ magnétique, le déplacement des électrons se décompose en un mouvement de translation vers le détecteur, et un mouvement de rotation autour de

3. Sous l'effet de cette vitesse d'entraînement, la répartition des positions d'impact suivant l'axe du jet se trouve décalée par rapport à l'origine des positions (cf. figure 4.9*b*). Ce décalage nous permettra dans le paragraphe 4.2.4 de déterminer la vitesse moyenne d'entraînement des molécules dans le jet.

l'axe du spectromètre. Le temps nécessaire aux électrons pour effectuer une révolution complète (période cyclotronique) est indépendant de l'énergie initiale de l'électron. Ainsi,

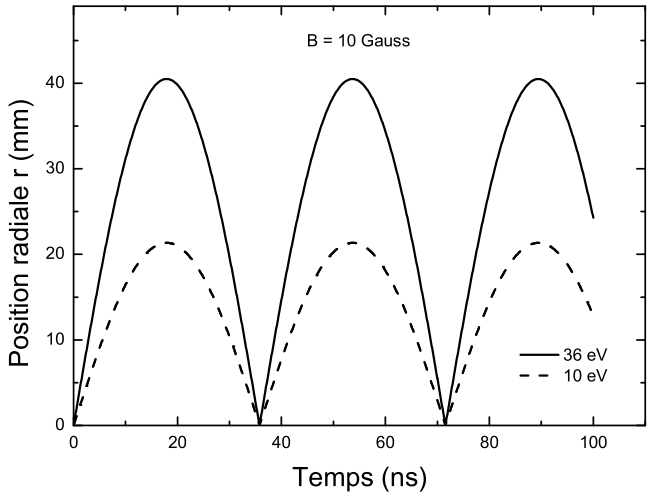


FIG. 4.11 – *Evolution de la position radiale (dans le plan (y,z)) en fonction du temps de vol pour des électrons d'énergie différentes (10 et 36 eV).*

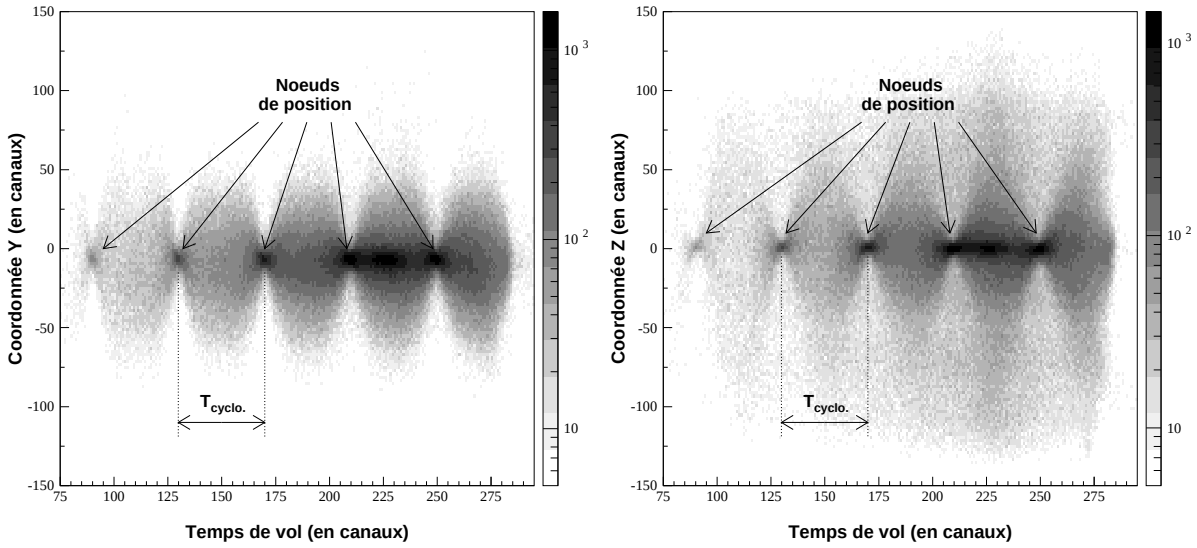
comme le montre la figure 4.11, pour chaque instant t égal à un nombre entier de périodes cyclotroniques, la position des électrons dans le plan (y,z) tend vers le point origine de l'émission. Cette caractéristique est mise à profit pour déterminer l'intensité du champ magnétique, et les références temporelle et spatiale relatives aux électrons.

Détermination de l'origine du détecteur

Nous avons représenté sur les figures 4.12a et 4.12b, les positions mesurées Y et Z du point d'impact des électrons sur le détecteur, en fonction de leur temps de vol. Les coordonnées du point de collision correspondent aux positions des noeuds observés pour les temps de vol égaux à un nombre entier de périodes cyclotroniques. L'incertitude sur la mesure de chacune des deux coordonnées résulte de l'imprécision sur le repérage des noeuds de position. On estime une imprécision de l'ordre de 1 canal, ce qui équivaut à environ 300 μm.

Détermination de l'intensité du champ magnétique

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 3, la période cyclotronique dépend de l'intensité du champ magnétique suivant la relation:



(a) Y=f(Temps de vol) (b) Z=f(Temps de vol)

FIG. 4.12 – *Détermination de l'origine des positions. Les noeuds de positions observés pour les temps de vol égaux à un nombre entier de période cyclotronique ($T_{cyclo.}$) correspondent à la position initiale d'émission des électrons (origine des positions).*

$$T_{cyclo.} = 2\pi \frac{m}{|q|B} \tag{4.14}$$

La mesure de l'écart temporel séparant deux noeuds de position permet de déterminer expérimentalement la période cyclotronique (cf. figure 4.12), dont on extrait la valeur du champ magnétique à partir de la relation précédente. Afin, de déterminer précisément la valeur de la période (et donc celle du champ), nous avons réalisé une pré-expérience en utilisant une intensité du champ électrique d'extraction suffisamment faible pour que la largeur de la gamme des temps de vol des électrons recouvre plusieurs périodes cyclotroniques. Comme pour la mesure de l'origine des positions, la principale source d'incertitude provient du repérage des pics de temps de vol correspondant aux noeuds de positions. L'imprécision sur la mesure n'excédant pas un canal de temps (0.5 ns), l'incertitude sur le champ magnétique qui en résulte est de l'ordre de 0.45 Gauss.

Détermination de l'origine temporelle des électrons

La méthode employée pour déterminer l'origine temporelle des ions, s'applique difficilement au cas des électrons. En effet, tant que l'on ne détecte pas d'ions chargés

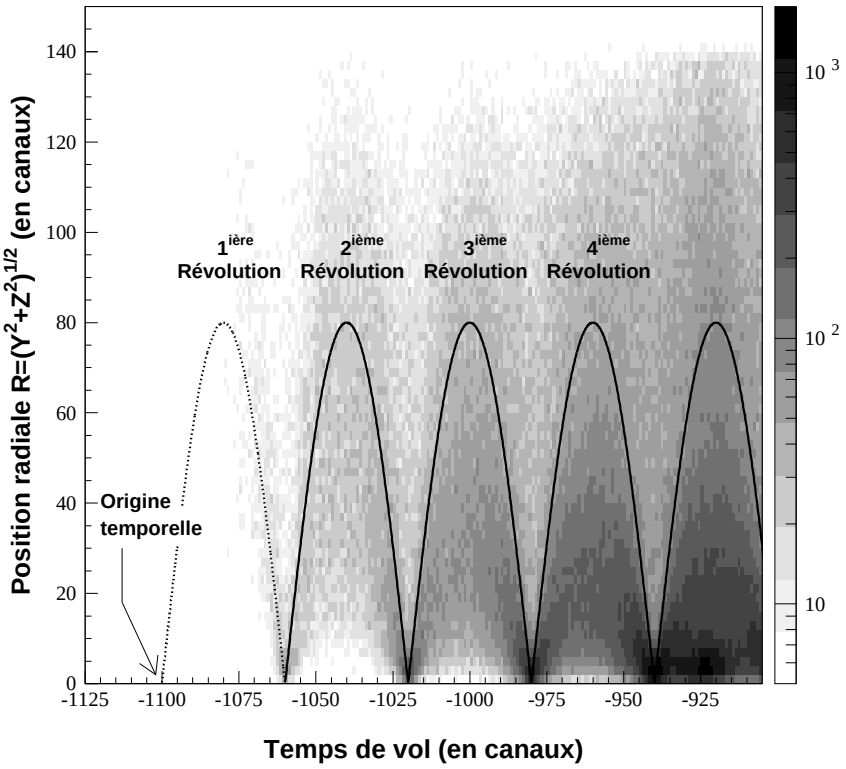


FIG. 4.13 – *Détermination de l'origine temporelle des électrons. Connaissant la valeur de la période cyclotronique et le nombre de révolutions complètes effectuées par les électrons avant de rencontrer le détecteur, l'origine temporelle est déduite du premier noeud de positions mesuré.*

négativement, nous ne disposons que d'un seul point pour déterminer les coefficients de la relation $T = a\sqrt{m/q} + T_{origine}$. Aussi, dans le prolongement de la méthode utilisée pour la mesure du champ magnétique et des coordonnées de l'origine spatiale, l'origine temporelle est déterminée en tirant profit des caractéristiques induites par le champ magnétique. Comme le schématise la figure 4.13, l'écart temporel séparant l'origine absolue de la collision, du premier noeud de positions mesuré, est égale à un nombre entier de périodes cyclotroniques. Connaissant le nombre de révolutions complètes effectuées par l'électron avant de rencontrer le détecteur, l'origine temporelle est donc déduite de la position temporelle du premier noeud mesuré. Il en découle alors que l'incertitude sur la mesure de l'instant de la collision est équivalente à celle sur la période cyclotronique.

4.2.4 Détermination de la vitesse longitudinale des molécules dans le jet, et des dimensions de la zone de collision

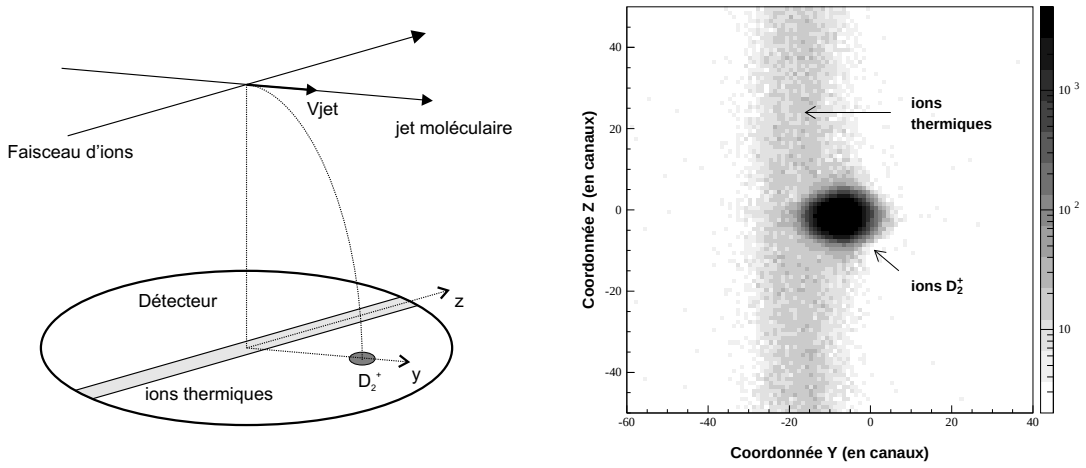
La vitesse moyenne du jet supersonique, ainsi que les dimensions de la zone d'interaction peuvent être déterminées expérimentalement à partir des observables mesurées (*Temps de vol*, *Positions*) des événements d'ionisation non dissociative conduisant à la formation de l'ion moléculaire D_2^+. En négligeant d'une part le recul engendré par l'émission de l'électron, et d'autre part le moment transféré par le projectile, les ions D_2^+ sont produits en tout point du volume d'interaction sans modification de leur vitesse de translation initiale. Sous l'effet de cette vitesse d'entraînement, la position moyenne suivant l'axe du jet de leurs points d'impact au niveau du détecteur à localisation est décalée par rapport à l'origine de la collision, dont la coordonnée y_0 est déterminée à partir de la trace formée par les ions thermiques (cf. figure 4.14).

Vitesse moyenne longitudinale du jet

La figure 4.15 représente les spectres des distributions de position suivant l'axe du jet (axe y) des ions moléculaires D_2^+ et des ions thermiques. Le rapport entre la distance séparant le centre des deux distributions, et le temps de vol des ions D_2^+ est égale à la vitesse longitudinale V_{jet} des molécules D_2 dans le jet supersonique. Pour le jet de molécules D_2 utilisé, et pour un champ d'extraction de 30.1 V/cm, le déplacement mesuré est de l'ordre de 2.72 mm ($\pm$ 0.28 mm), tandis que le temps de vol des ions D_2^+ vaut 1486 ns ($\pm$ 0.5 ns). Il en résulte une vitesse du jet de 1830 m/s ($\pm$ 190 m/s).

Dimension de la zone de collision

Les dimensions de la section (Ly, Lz) de la zone de collision sont définies respectivement par les sections géométriques du jet moléculaire et du faisceau projectile. Ces dimensions peuvent être estimées à partir des distributions de position de l'ion moléculaire D_2^+. En effet, les largeurs de ces distributions résultent d'une part du déplacement induit par les distributions de vitesse initiale des ions, et d'autre part, des dimensions (Ly, Lz). Si l'on néglige les dispersions de vitesse longitudinale et transverse du jet autour des vitesses moyennes (respectivement de l'ordre de 9 m/s et 1m/s [Jar95]), nous pouvons considérer que la largeur des distributions de vitesse initiale des ions D_2^+ résulte uniquement du moment transféré par le projectile. Pour le domaine de vitesse considéré, les énergies transférées étant de l'ordre du milli-electonVolt [Jar95], le déplacement latéral des ions D_2^+ résultant de ces énergies n'excède pas 200 μm. Il en découle alors que les largeurs des distributions de position des ions D_2^+ au niveau du détecteur peuvent être attribuées uniquement aux dimensions (Ly, Lz) de la zone de collision. La figure 4.16 représente



(a) Schéma de principe (b) Image des positions sur le détecteur

FIG. 4.14 – *La vitesse d'entraînement V_{jet} du jet supersonique engendre un déplacement dans la direction du jet de la position moyenne des points d'impact des ions D_2^+, par rapport à l'origine spatiale de la collision (repérée par la position moyenne des impacts des ions moléculaires thermiques sur le détecteur). La figure b représente l'image des positions d'impact des ions thermiques (trace suivant l'axe z) et des ions D_2^+ (tache intense noire) sur le détecteur.*

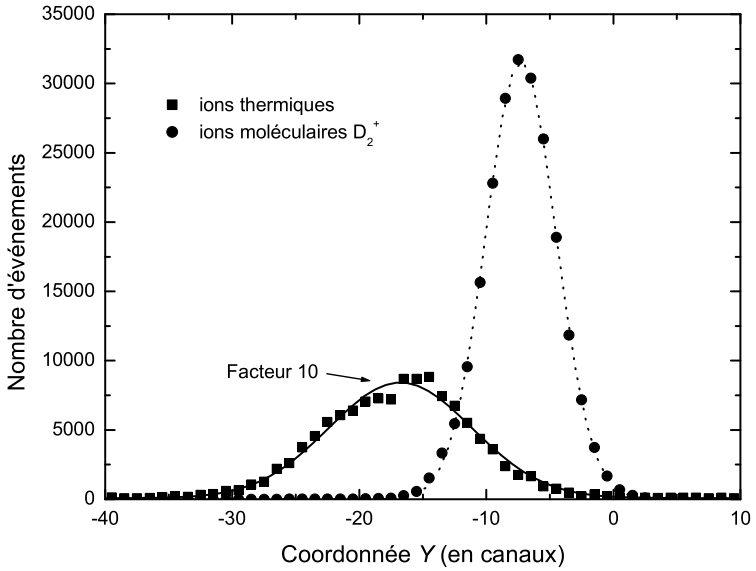


FIG. 4.15 – *Distribution des positions d'impact des ions thermiques et des ions D_2^+, suivant la direction du jet. Le décalage mesuré entre ces deux distributions permet de déterminer la vitesse d'entraînement des molécules dans le jet.*

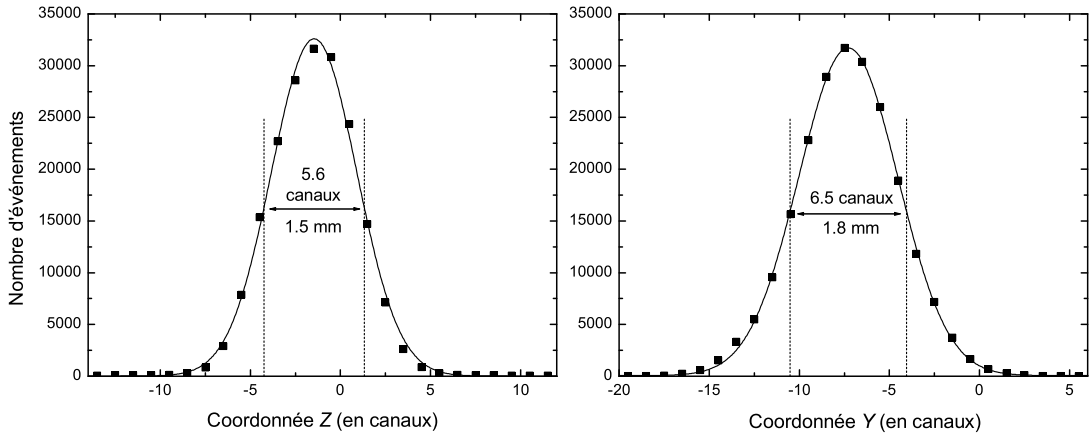


FIG. 4.16 – *Distributions des positions d'impact des ions moléculaires D_2^+ sur le détecteur. Les diamètres du jet moléculaire et du faisceau projectile au niveau de la zone de collision correspondent respectivement aux largeurs des distributions suivant les axes z et y.*

les distributions des positions d'impact des ions D_2^+ suivant les axes (y,z), définissant respectivement la direction du jet moléculaire, et le faisceau projectile. Le diamètre du jet moléculaire mesuré au niveau de la zone de collision est donc de l'ordre de 1.5 mm ($\pm$ 0.3 mm), tandis que celui du faisceau projectile est environ égal à 1.8 mm ($\pm$ 0.3 mm).

4.3 Sélection des différents processus d'ionisation

Les processus d'ionisation non-dissociative, de double ionisation et d'ionisation dissociative conduisant à des arrangements finaux distincts peuvent être isolés à partir des observables mesurées des ions détectés.

4.3.1 Sélection du processus d'ionisation non-dissociative

Le processus de simple ionisation non-dissociative est directement isolé des autres processus, en sélectionnant le pic de temps de vol des ions D_2^+ qui en résultent. Comme le montre la figure 4.2, pour la géométrie du spectromètre et l'intensité du champ électrique employées, la distribution des temps de vol des ions moléculaires D_2^+ est distinctement séparée de celles correspondant aux ions D^+, ou aux ions issus de molécules présentes dans le gaz résiduel (H^+, H_2^+).

4.3.2 Sélection du processus de double ionisation

Le processus de double ionisation peut être séparé des autres processus, en tirant partie de la corrélation vectorielle existant entre les deux fragments D^+ produits lors de la collision. Cette corrélation est une conséquence de la loi de conservation de la quantité de mouvement appliquée à la dissociation de l'ion moléculaire D_2^{2+}. En négligeant le recul lié à l'émission des électrons, la description formelle de la loi de conservation dans le repère lié au spectromètre s'exprime par la relation :

$$m_{D^+}\overrightarrow{V_1}(D^+) + m_{D^+}\overrightarrow{V_2}(D^+) = 2m_{D^+}\overrightarrow{V_{jet}} \tag{4.15}$$

où $\overrightarrow{V_1}(D^+)$ et $\overrightarrow{V_2}(D^+)$ représentent les vecteurs vitesse initiale de chacun des fragments, m_{D^+} la masse de l'ion D^+, et V_{jet} la vitesse des molécules dans le jet. La décomposition de la relation (4.15) suivant l'axe du spectromètre s'écrit :

$$\overrightarrow{V_{0x1}}(D^+) + \overrightarrow{V_{0x2}}(D^+) = 0 \tag{4.16}$$

Dans le cadre de l'approximation linéaire (cf. paragraphe 3.4.1 et annexe A), la relation précédente entre les vitesses des fragments, peut s'étendre de façon simplifiée à leurs temps de vol T_1^i et T_2^i. On montre alors :

$$T_1^i + T_2^i - 2T_0^i = 0 \tag{4.17}$$

où T_0^i est le temps de vol d'un ion D^+ d'énergie initiale nulle. La corrélation entre T_1^i et T_2^i est clairement mise en évidence sur la figure 4.17 où le temps de vol T_2^i de l'ion émis à l'opposé du détecteur est représenté en fonction du temps de vol T_1^i de l'ion émis vers le détecteur. En pratique, le processus de double ionisation est donc isolé en sélectionnant l'ensemble des événements vérifiant la relation (4.17).

4.3.3 Sélection du processus d'ionisation dissociative

Contrairement aux processus précédents, le processus d'ionisation dissociative (incluant les processus de simple ionisation dissociative, d'ionisation excitation et de double excitation autoionisante dissociative) qui conduit à la formation d'un ion D^+ et d'un atome de deutérium, ne peut pas être isolé directement à partir des observables mesurées des ion D^+. En effet, comme nous l'avons observé sur la figure 4.2, le domaine temporel sur lequel s'étend le pic des ions D^+ est pollué non seulement par le pic des ions HD^+ résultant de collisions avec la proportion de molécules HD initialement contenues dans la bouteille de D_2, mais également par les distributions de temps de vol des ions H^+ et

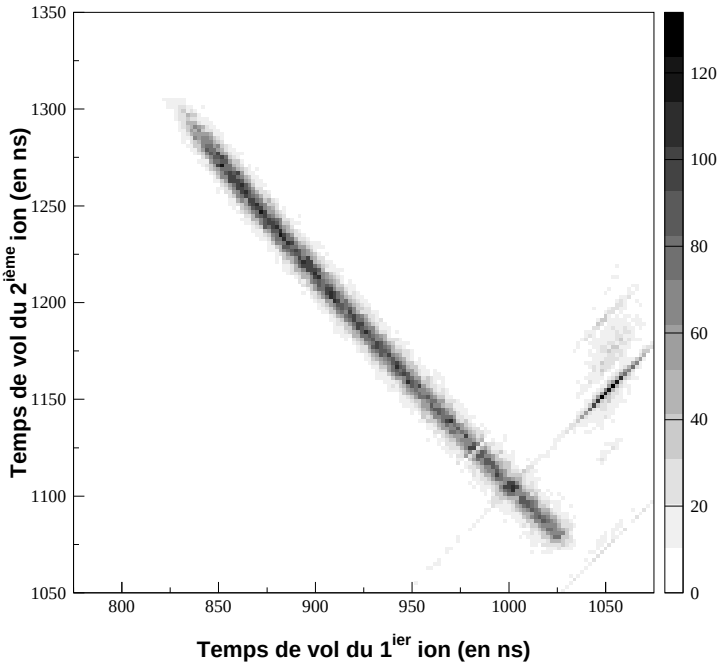


FIG. 4.17 – *Temps de vol de l'ion D^+ émis à l'opposé du détecteur ($2^{ième}$ ion détecté), en fonction du temps de vol de l'ion émis vers le détecteur (1^{ier} ion détecté). La corrélation observée découle directement de la conservation de la quantité de mouvement gouvernant la dissociation de l'ion moléculaire D_2^{2+}.*

H_2^+ produits lors de collisions avec le gaz résiduel. Les méthodes mises en oeuvre pour éliminer ces différentes pollutions diffèrent en fonction de l'origine de celles-ci.

Traitement de la pollution due au gaz résiduel

La contribution des ions H^+ et H_2^+ est directement soustraite des spectres des observables significatives (temps de vol, position, énergie ou angle d'émission) à partir des spectres de fond mesurés séparément. Compte tenu des durées d'acquisition différentes entre les mesures effectuées avec et sans le jet moléculaire, un facteur multiplicatif doit être appliqué aux spectres de fond avant la soustraction. La valeur de ce facteur est déterminée en normalisant le pic des ions H^+ des spectres de temps de vol obtenus en présence et sans le jet de molécule D_2 (cf. figure 4.18).
La contribution du fond à soustraire évolue en fonction de l'énergie des ions mesurés et de leurs angles d'émission par rapport à la direction du faisceau. La figure 4.19 représente la distribution en énergie et la distribution angulaire de la pollution due au gaz résiduel. Notons bien que ces spectres ne représentent pas les distributions en angle et en énergie réelles des ions H^+ et H_2^+ produits lors de l'interaction avec le gaz résiduel, dans la

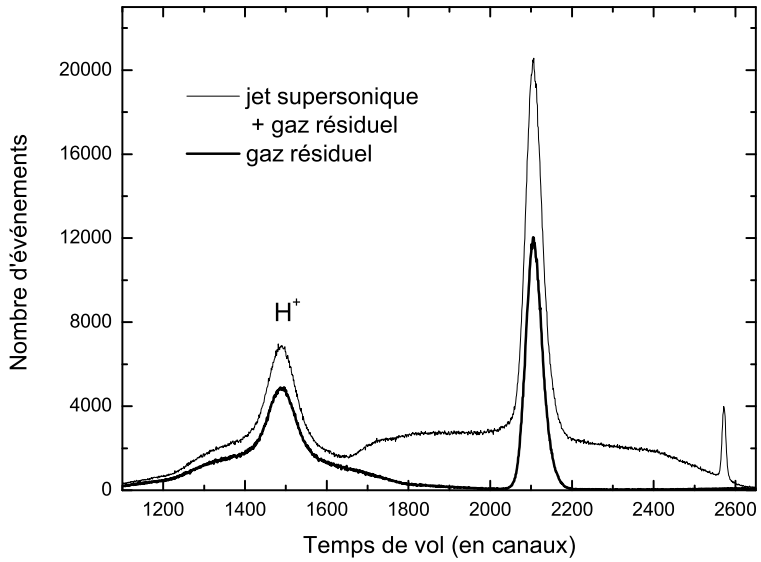
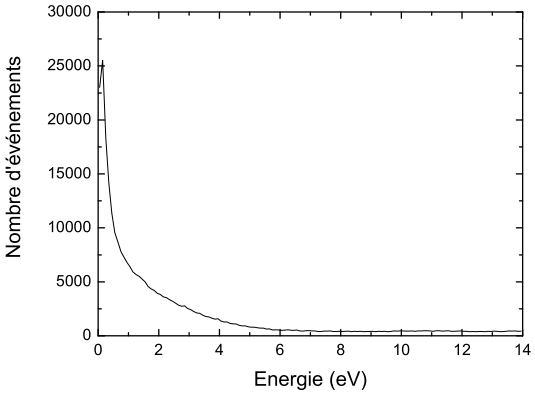


FIG. 4.18 – *Spectre de temps de vol des ions produits en présence et sans le jet supersonique. Le facteur multiplicatif appliqué aux spectres de fond est déterminé en normalisant le pic de temps de vol des ions H^+ des deux spectres ci-dessus.*

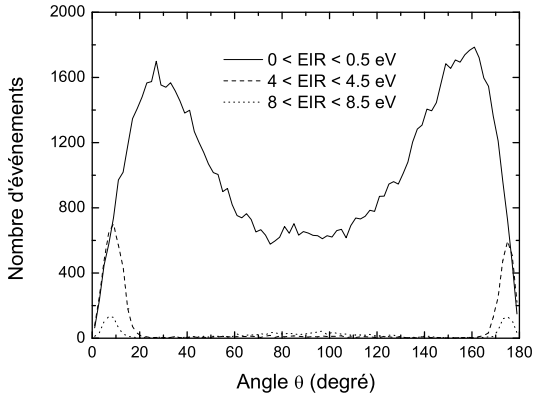
mesure où le traitement analytique dont ils découlent est effectué en tenant compte des caractéristiques d'émission des ions D^+ (origines des positions). Comme l'indique la figure 4.19*a*, la contribution du fond est prédominante pour les énergies des ions inférieures à 1 eV. D'autre part, comme on peut s'y attendre, excepté pour les basses énergies, la pollution des distributions angulaires par le fond affectera les angles proches de 0 et 180 degrés par rapport à la direction du faisceau. Nous pouvons dès à présent garder à l'esprit que les distributions des observables significatives des électrons et des ions D^+ conditionnées par les grandes énergies de ces derniers (et notamment pour les directions d'émission orthogonales à la direction du faisceau), s'affranchissent de la contribution du fond.

Traitement de la contamination isotopique due aux molécules *HD*

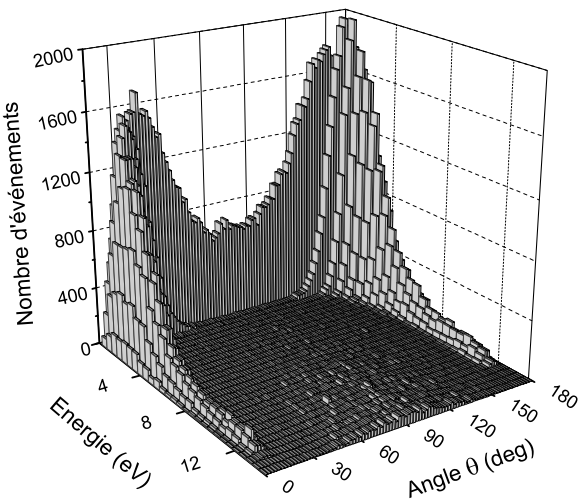
La procédure mise en oeuvre précédemment ne peut évidemment pas être reconduite pour supprimer la contribution des ions HD^+, dans la mesure où les molécules *HD* à l'origine de cette contamination isotopique sont présentes dans le jet supersonique. La méthode employée pour s'affranchir de cette pollution a donc consisté à exclure du traitement analytique ultérieur (calcul des énergies et des angles d'émission) l'ensemble des événements dont les observables (*temps de vol*, *positions*) correspondent à celles des ions HD^+. Cette démarche engendre par conséquent la perte d'une partie des événements résultant du processus d'ionisation dissociative. Toutefois, compte tenu du fait que la



(a) Distribution en énergie du fond



(b) Distribution angulaire pour différents domaines en énergie du fond



(c) Distribution angulaire du fond en fonction de l'énergie

FIG. 4.19 – *Distribution en énergie et distribution angulaire par rapport à la direction du faisceau, des ions produits par interaction avec le gaz résiduel (fond).*

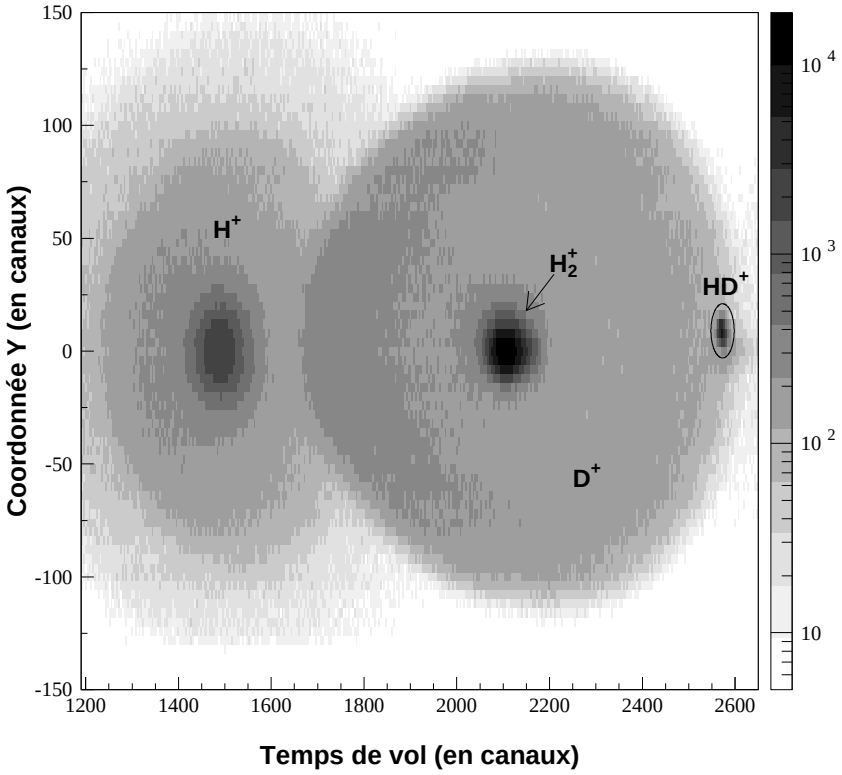


FIG. 4.20 – *Coordonnée suivant l'axe du jet des points d'impact des ions sur le détecteur en fonction de leur temps de vol. La répartition des points d'impact des ions HD^+ sur le détecteur (mise en évidence ici par la coordonnée Y) étant très localisée, la proportion des événements d'ionisation dissociative exclus du traitement reste insignifiante.*

répartition des points d'impact des ions HD^+ au niveau du détecteur est très localisée (cf. figure 4.20), la proportion des événements perdus reste insignifiante. La détermination quantitative des dimensions de cette 'zone morte' a été réalisée à l'aide du programme de simulation. Elle représente une perte d'efficacité de $10^{-4}\pi$ stéradians pour des ions D^+ d'énergie comprise entre 11.6 et 11.8 eV.

4.4 Efficacité de détection des particules

4.4.1 Cas des ions

Pour l'intensité du champ électrique employé (3010 V/m), l'ensemble des ions D^+ d'énergie inférieure à 12 eV émis dans un angle solide de 4π stéradians sont collectés sur la surface du détecteur.

4.4.2 Cas des électrons

Pour les caractéristiques du spectromètre choisies (géométrie, intensité des champs), l'ensemble des électrons d'énergie inférieure à 55 eV émis dans un angle solide de 4π stéradians sont collectés sur le détecteur. Au delà de cette limite, les électrons émis à l'opposé du détecteur possèdent suffisamment d'énergie pour sortir de la zone d'extraction des ions, et sont par conséquent exclus de l'analyse. Quoi qu'il en soit, faute d'une statistique suffisante pour les électrons d'énergie supérieure à la limite précédente, nos résultats seront limités au domaine d'énergie compris entre 0 et 55 eV.
Pour la gamme d'énergie considérée, les distributions des grandeurs représentatives (énergie, angle d'émission) doivent néanmoins être corrigées de la perte d'efficacité liée à l'utilisation du champ magnétique. Rappelons que la relation de bijectivité entre l'énergie de l'électron et ses observables mesurées (*Temps de vol*, *Positions*) n'est plus vérifiée pour les événements dont les observables correspondent à un noeud de position (cf. figure 4.12). Par conséquent, les événements dont le temps de vol est voisin d'un nombre entier de périodes cyclotroniques sont exclus du traitement analytique.
L'évolution du taux d'événements exclus en fonction de l'énergie de l'électron, obtenue à l'aide du programme de simulation[4], est présentée sur la figure 4.21. Seules les énergies

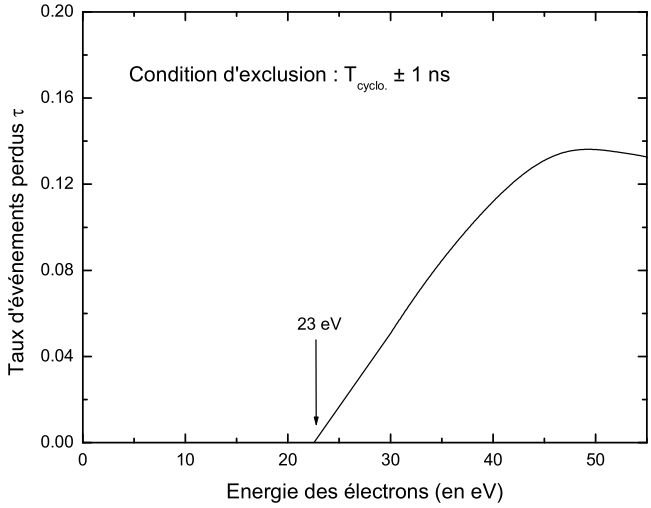


FIG. 4.21 – *Taux d'événements perdus en fonction de l'énergie de l'électron. Ces taux ont été obtenus à l'aide du programme de simulation en rejetant l'ensemble des événements dont le temps de vol est égal à un nombre entier de périodes cyclotroniques (± 1 ns).*

4. Pour l'émission simulée de N électrons d'énergie donnée dans un angle solide de 4π stéradians, le taux d'événements exclus du traitement est donné par le rapport entre le nombre d'événements dont le temps de vol est égal à la période cyclotronique ± 1 ns, et le nombre d'événements total N.

supérieures à 23 eV sont affectées par cette perte d'efficacité. En pratique, les distributions d'énergie et angulaire sont corrigées en appliquant un facteur de correction *fc* aux nombres d'événements contenus dans chaque canal, dont la valeur dépend du taux d'événements exclus τ par la relation :

$$fc = \frac{1}{1-\tau} \tag{4.18}$$

A titre d'exemple, nous avons représenté sur la figure 4.22 les valeurs du facteur de correction appliqué aux distributions angulaires mesurées pour des électrons d'énergie de 30 et 50 eV.

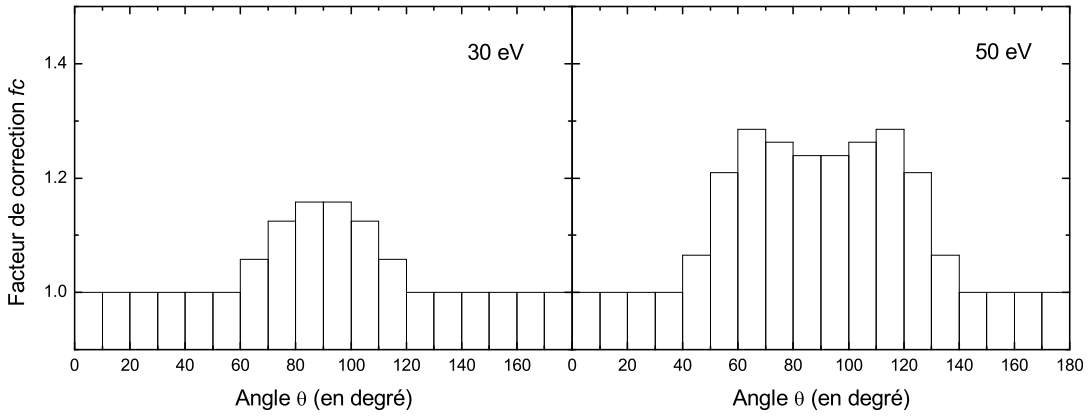


FIG. 4.22 – *Facteur de correction fc appliqué aux distributions angulaires mesurées pour des électrons de 30 et 50 eV.*

4.5 Précision sur la mesure des énergies et des angles d'émission

Les précisions sur la mesure de l'énergie et de l'angle d'émission θ des particules chargées produites lors de la collision (électron, ion D^+) sont déterminées à partir du programme de simulation (cf. Annexe C), en incluant dans le traitement analytique l'ensemble des incertitudes impliquées dans la mesure (les incertitudes sur la détermination des intensités des champs et des origines spatiales et temporelles, ainsi que l'incertitude sur la mesure des temps par le convertisseur temps numérique).

4.5.1 Précision sur la mesure de l'énergie

La précision sur la mesure de l'énergie des ions D^+ et des électrons est rapportée sur la figure 4.23. Cette dernière est comparée à la précision *'théorique'* du dispositif qui tient compte uniquement des résolutions spatiale et temporelle (largeur de la zone de collision, pas de codage des temps). La différence entre ces deux précisions est due à l'ensemble des incertitudes résultant de la détermination des intensités des champs, et des origines spatiales et temporelles des observables significatives (*Temps*, *Positions*). Pour les ions D^+, les incertitudes précédentes conduisent à une précision totale de plus de 5 %. En ce qui concerne les électrons d'énergie inférieure à 50 eV, la contribution des incertitudes de mesure mène à une précision totale sur la mesure de l'énergie d'environ 15 %.

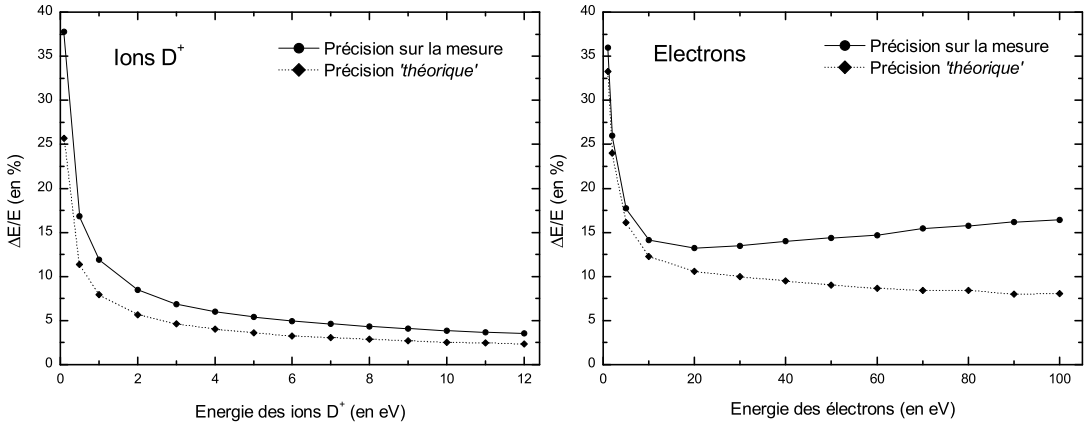


FIG. 4.23 – *Précision sur la mesure de l'énergie des électrons et des ions D^+.*

4.5.2 Précision sur la mesure des angles

Détermination de l'incertitude sur la mesure des angles

L'incertitude sur la mesure des angles d'émission θ (par rapport à la direction du projectile) pour différentes énergies des particules est présentée sur la figure 4.24. Comme précédemment, l'incertitude sur la mesure est comparée à l'incertitude *'théorique'* du dispositif. Dans le cas des ions D^+, l'incertitude sur la mesure des angles diminue avec l'énergie de la particule. L'incertitude est inférieure à 4 degrés pour une énergie égale à 1 eV, et atteint un minimum de 1 degré pour une énergie de 10 eV. En ce qui concerne les électrons, l'incertitude sur la mesure de leurs angles d'émission θ n'excède pas 5 degrés, quelle que soit leur énergie. Notons que les incertitudes sur la détermination des constantes

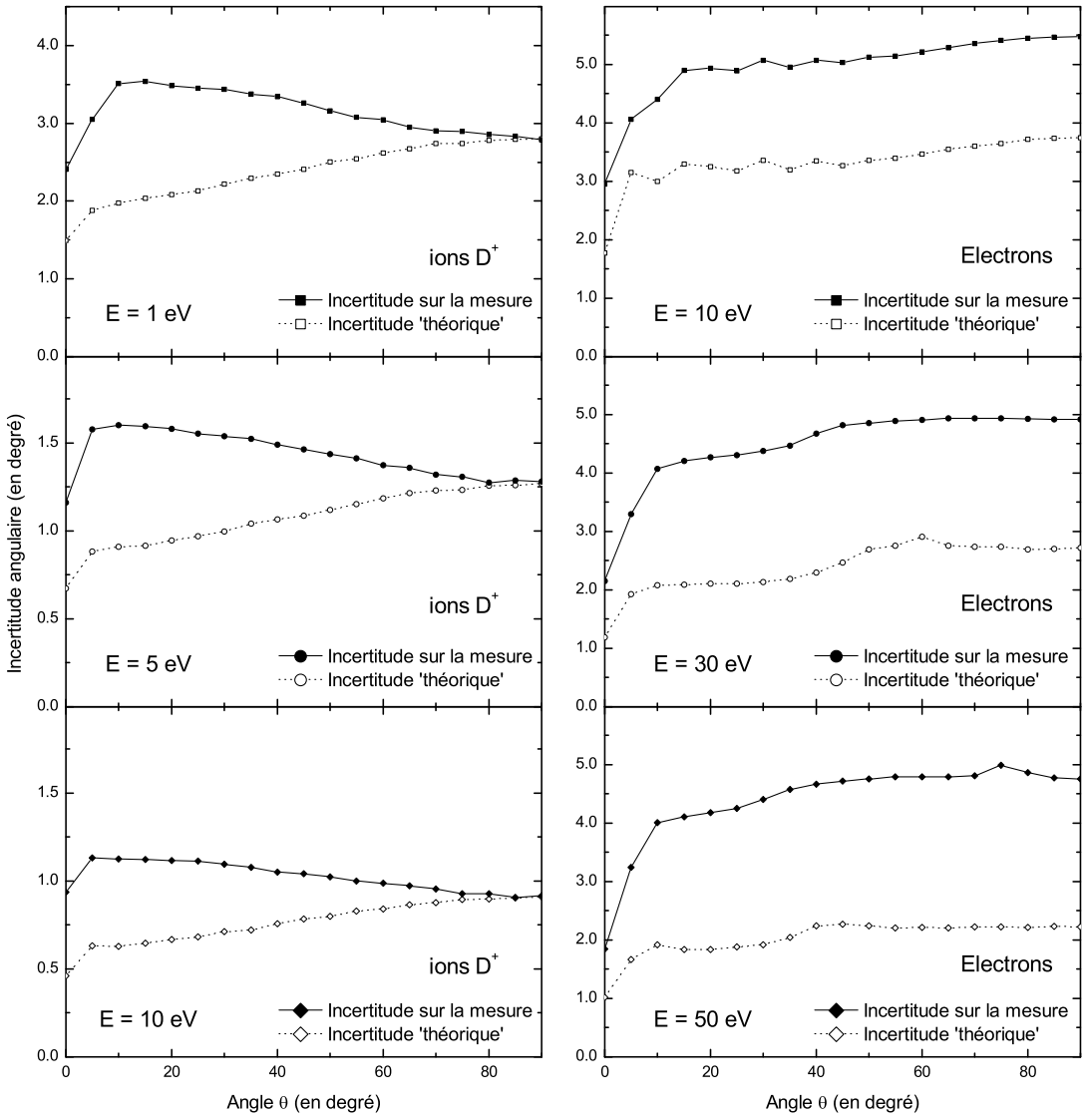


FIG. 4.24 – *Incertitude sur la mesure des angles d'émission θ pour différentes énergies des ions D^+ et des électrons.*

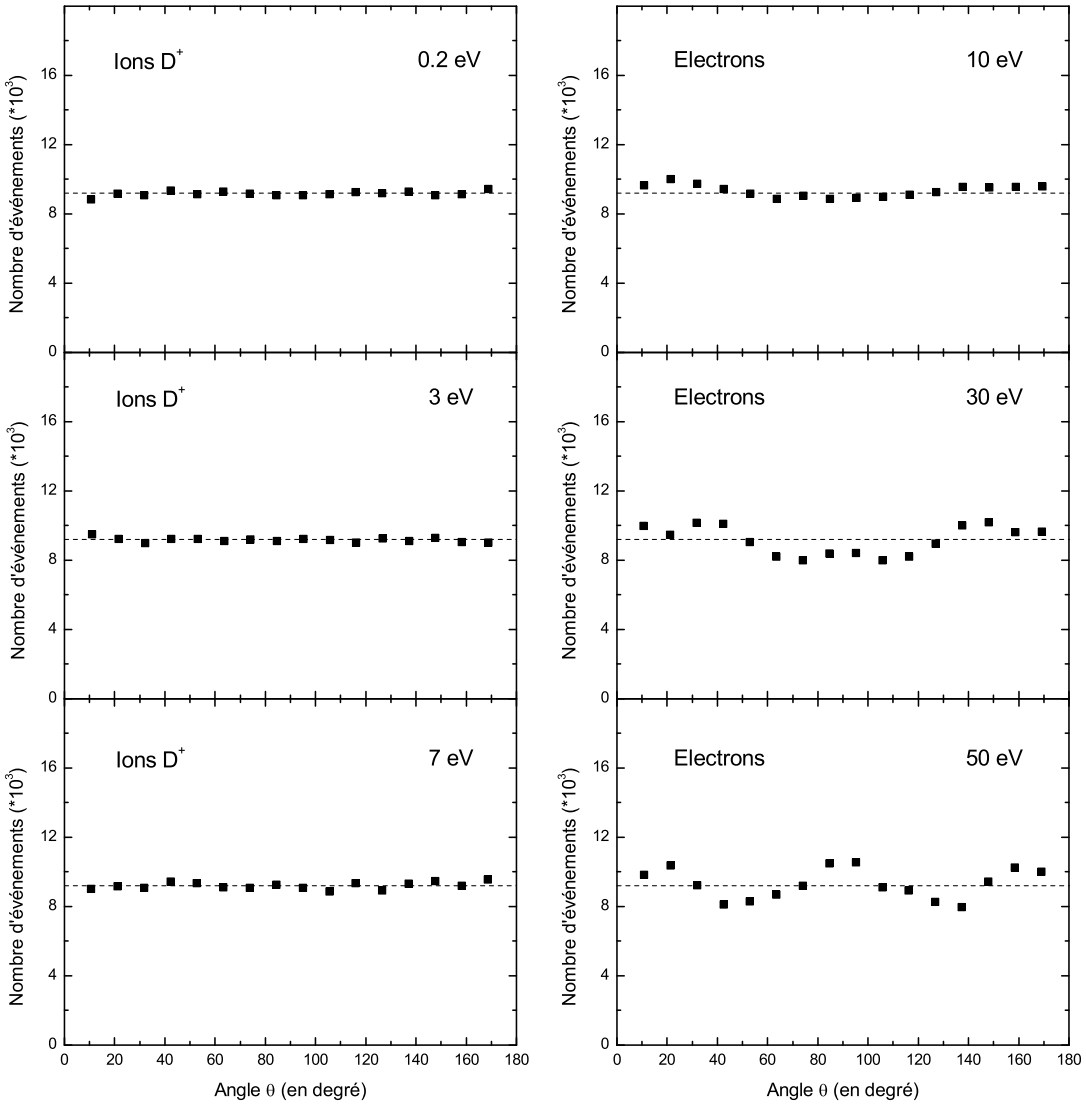


FIG. 4.25 – *Distributions angulaires simulées pour des ions D^+ et des électrons d'énergie donnée.*

de mesure conduisent à une incertitude totale sur la mesure des angles, 2 fois supérieure à l'incertitude *'théorique'*.

Effet des incertitudes de mesure sur les distributions

L'effet des incertitudes et des résolutions de mesure sur les distributions angulaires mesurées a été étudié à l'aide du programme de simulation. La méthode a consisté à simuler la mesure d'une émission isotrope d'une particule d'énergie donnée, en incluant dans le traitement analytique l'ensemble des incertitudes et des résolutions. Les distributions simulées pour quelques énergies des ions D^+ et des électrons sont rapportées sur la figure 4.25. Dans l'ensemble, ces distributions reflètent très correctement le caractère isotrope de l'émission. Notons toutefois que pour des électrons d'énergie égale à 30 et 50 eV, les distributions présentent quelques fluctuations autour de la valeur moyenne (de l'ordre de 10 %). Par conséquent, pour ces énergies, nous pouvons retenir le fait que notre dispositif ne permet pas d'observer des phénomènes physiques qui conduisent à des variations sur les distributions en angle des électrons inférieures à 10 %.

4.6 Conclusion

L'étape d'analyse des données doit permettre de déterminer les grandeurs représentatives (énergie, angle d'émission) des particules résultant d'un processus physique donné. Le protocole mis en place à cette fin s'articule autour des grandes lignes suivantes :

- Détermination des grandeurs significatives (*Temps de vol*, *Positions*) et des constantes de mesure (intensité des champs) dont dépendent l'énergie et l'angle d'émission des particules détectées;
- Séparation des différents processus physiques qui conduisent à la formation des particules détectées, en exploitant les caractéristiques de leurs grandeurs significatives (*Temps de vol*, *Positions*);
- Identification, et éventuellement correction, de l'efficacité de détection des particules;
- Détermination des précisions sur la mesure de l'énergie et des angles d'émission;

Les méthodes d'analyse que nous avons mises en oeuvre ont largement bénéficié du support fourni par le programme de simulation que nous avons développé (cf. Annexe C). En effet, ce dernier a été employé d'une part pour corriger les distributions d'énergie et angulaire de la perte d'efficacité liée à l'utilisation du champ magnétique, et d'autre part pour déterminer les précisions sur la détermination de l'énergie, et des angles d'émission. Dans le domaine d'énergie des différentes particules auquel nous nous limiterons (0-12 eV pour les ions D^+, et 0-55 eV pour les électrons), la précision sur la mesure de l'énergie

est de l'ordre de 5 % pour les ions, et d'environ 15 % pour les électrons. D'autre part, l'incertitude sur la mesure de l'angle d'émission θ par rapport au projectile n'excède pas 4 degrés pour les ions, et 5 degrés pour les électrons.
Le chapitre suivant est consacré à la présentation des résultats obtenus pour l'étude du système 13.6 MeV/u S^{15+} + D_2. Les résultats seront présentés en termes de corrélation vectorielle entre les particules chargées (électron, ion D^+) émises suite à la collision.

Chapitre 5

Etude du système 13.6 MeV/u S^{15+}-D_2, par la mesure des corrélations vectorielles

Sommaire

5.1 Les différents processus d'ionisation : rappel 126

5.2 Corrélation en énergie 127

5.2.1 Distribution en énergie des fragments D^+ 127

5.2.2 Distribution en énergie des électrons 130

5.2.3 Diagramme de corrélation en énergie 131

5.2.4 Etude quantitative de la contribution des différents processus d'ionisation 134

5.2.5 Conclusions 140

5.3 Corrélation angulaire 141

5.3.1 Etude de l'émission électronique par la méthode CDW-EIS . . 142

5.3.2 Section efficace d'émission électronique différentielle en angle et en énergie 149

L'existence des nombreuses voies d'ionisation possibles lors de l'interaction entre un ion et la molécule H_2 (ou son équivalent isotopique D_2), a motivé un grand nombre d'études ces dernières années. D'après les différents résultats que nous avons rapportés dans le chapitre 1, l'ensemble de ces processus a été décrit en s'appuyant sur la mesure des grandeurs caractéristiques dynamiques (énergie, angle d'émission) des fragments ioniques, ou des électrons produits lors de la collision. Dans la continuité de ces travaux, la mesure des corrélations vectorielles entre les vecteurs impulsions des protons (deutons) et des

électrons formés (corrélation en énergie, corrélation angulaire) s'avère être une approche plus puissante pour la compréhension de la dynamique de la fragmentation. A ce jour, le nombre d'études rapportant ce type de mesure en corrélation reste faible [DBJ+98, HE02, LLB+03]. Toutes ces études, réalisées dans le cadre de la photoionisation, se sont attachées à décrire les caractéristiques du processus d'ionisation impliquant uniquement quelques états des ions moléculaires H_2^+ et H_2^{2+}. Dans ce chapitre, nous nous proposons de présenter nos résultats obtenus pour une mesure complète des corrélations entre les vecteurs impulsions de l'un des deutons et de l'un des électrons produits lors de la collision entre un ion S^{15+} à 13.6 MeV/u et une molécule D_2.

5.1 Les différents processus d'ionisation : rappel

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 1, si l'on ne considère que ce qu'il advient de la molécule cible, plusieurs processus d'ionisation sont susceptibles de se produire lors de l'interaction entre un ion et la molécule D_2. Ces différents processus peuvent être classés en fonction du nombre d'électrons impliqués. On distingue les processus pour lesquels un seul électron de la cible est actif :

- **le processus de simple ionisation non-dissociative (SIND)** qui conduit à la formation d'un ion moléculaire D_2^+ dans son état fondamental $X^2\Sigma_g^+(1s\sigma_g)$ et à l'émission d'un électron dans le continuum :

$$S^{15+} + D_2 \longrightarrow S^{15+} + D_2^+ + e^- \tag{5.1}$$

- **le processus de simple ionisation dissociative (SID)** conduisant à la formation d'un ion D^+, d'un atome de deutérium dans son état fondamental, et à l'émission d'un électron :

$$S^{15+} + D_2 \longrightarrow S^{15+} + D(1s) + D^+ + e^- \tag{5.2}$$

des processus impliquant les deux électrons de la cible :

- **le processus d'ionisation excitation (IE)** menant à un arrangement final constitué d'un atome de deutérium dans son état fondamental ou dans un état excité, d'un ion D^+, et à l'émission d'un électron :

$$S^{15+} + D_2 \longrightarrow S^{15+} + D(n\ell) + D^+ + e^- \tag{5.3}$$

- **le processus de double ionisation (DI)** menant à un arrangement final constitué de deux ions D^+, et à l'émission de deux électrons :

$$S^{15+} + D_2 \longrightarrow S^{15+} + D^+ + D^+ + e^- + e^- \tag{5.4}$$

– **le processus de double excitation autoionisante (AI)**. Dans ce cas, la molécule dite *'superexcitée'* [Pla62] se désexcite par effet Auger, pour conduire à la formation d'un ion moléculaire D_2^+ dans un état excité, ou dans son état fondamental :

$$S^{15+} + D_2 \longrightarrow S^{15+} + \underline{D_2^{**}} \tag{5.5}$$

$$\hookrightarrow D^+ + D(n\ell) + e^- \tag{5.6}$$

Mis à part le processus de simple ionisation non-dissociative (SIND), l'ensemble des autres processus d'ionisation conduisent à la formation d'au moins un ion D^+ et un électron. La détection en coïncidence de ces deux particules nous a donc permis d'effectuer des mesures de corrélation : corrélation en énergie et corrélation en angle.

5.2 Corrélation en énergie

Le diagramme de corrélation des énergies cinétiques des ions D^+ et des électrons produits par les différents processus d'ionisation dissociative décrits précédemment est présenté sur la figure 5.1. L'axe des abscisses et l'axe des ordonnées rapportent respectivement l'énergie cinétique de l'ion D^+ et de l'électron produits lors de la collision. Dans le cas d'un événement résultant du processus de double ionisation pour lequel deux ions et deux électrons sont détectés, le couple (électron, ion) retenu lors de la construction du diagramme est constitué à partir du premier ion et du premier électron détectés. D'autre part, la troisième dimension repérée par l'échelle de couleur représente le nombre d'événements associé à la cellule ($\mathrm{d}E_{D^+}$, $\mathrm{d}E_e$), où $\mathrm{d}E_{D^+}$ et $\mathrm{d}E_e$ représentent respectivement le pas de mesure de l'énergie des ions et des électrons.
Afin d'éclairer notre compréhension du diagramme de corrélation précédent, commençons dans un premier temps par nous intéresser aux distributions d'énergie cinétique des ions D^+ et des électrons indépendamment l'une de l'autre.

5.2.1 Distribution en énergie des fragments D^+

La distribution en énergie cinétique des ions D^+ mesurée est représentée sur la figure 5.2[1]. Le spectre met en évidence la présence de plusieurs structures, dont l'origine a déjà été discutée à partir des distributions en énergie théoriques des ions D^+ résultant de la

1. La distribution en énergie des ions correspond à la projection du diagramme de corrélation sur l'axe des abscisses.

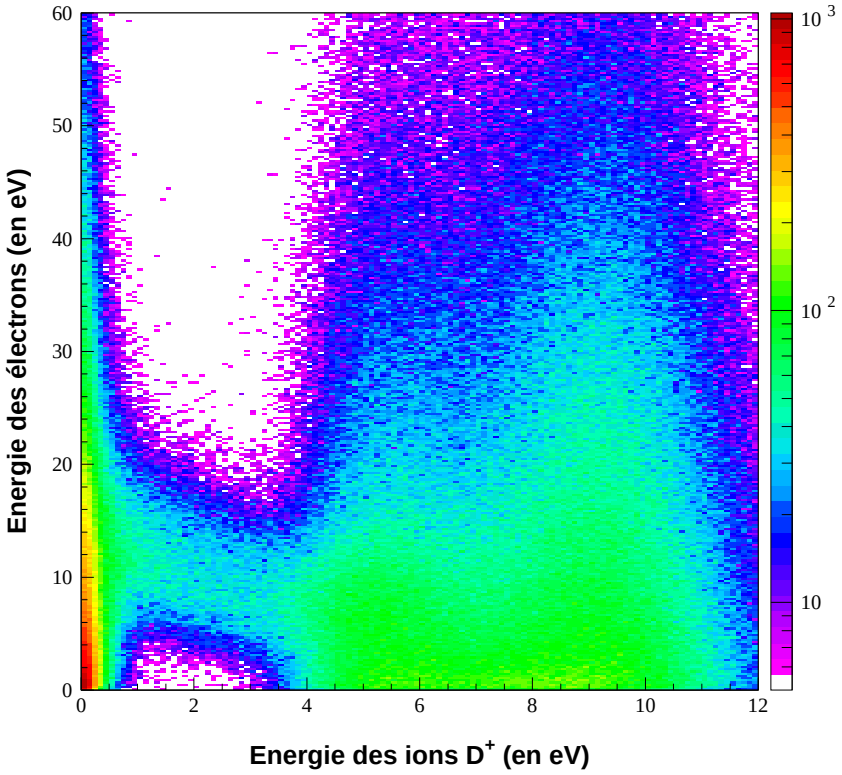


FIG. 5.1 – *Diagramme de corrélation des énergies cinétiques des ions D^+ et des électrons produits lors de la collision entre un ion S^{15+} à 13.6 MeV/u et la molécule D_2.*

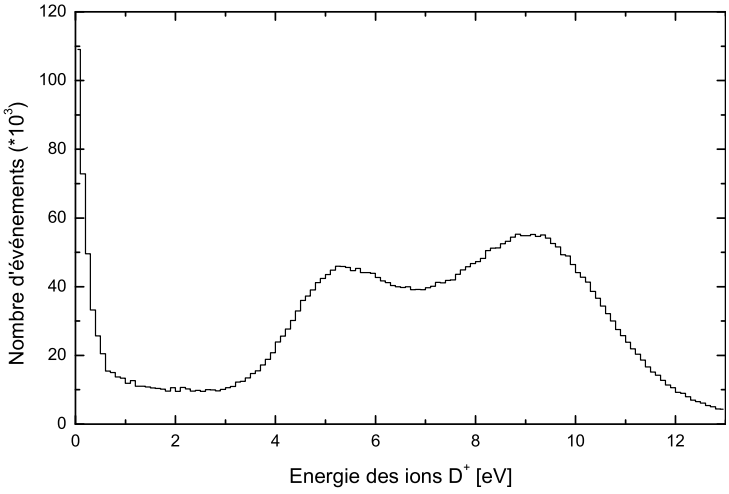


FIG. 5.2 – *Distribution d'énergie des ions D^+ produits par les différents processus d'ionisation (SID, IE, DI et AI).*

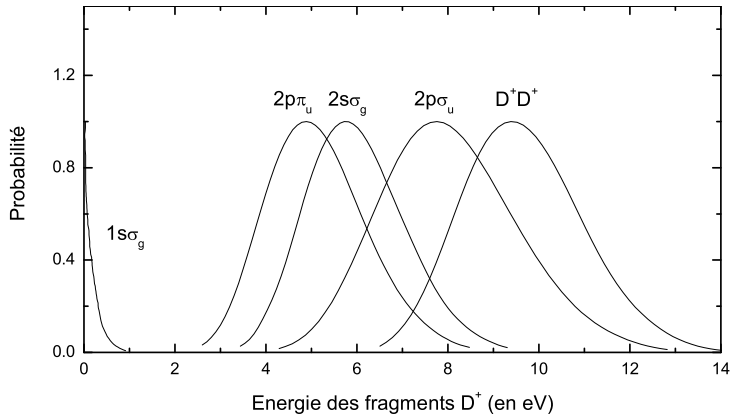


FIG. 5.3 – *Distribution d'énergie cinétique des ions D^+ pour quelques états des ions moléculaires D_2^+ et D_2^{2+}, obtenues par la méthode des projections [CJP36].*

dissociation des ions moléculaires D_2^+ ou D_2^{2+}, obtenues par la méthode des projections (cf. paragraphe 1.2.1). Les distributions obtenues par cette méthode pour quelques états des ions moléculaires D_2^+ et D_2^{2+} sont présentées sur la figure 5.3, tandis que les énergies cinétiques moyennes des ions D^+, pour ces différents états peuplés, sont rapportées dans le tableau 5.1. Selon les prédictions de la méthode, la dissociation de l'ion moléculaire D_2^+

Etat de l'ion moléculaire	**Energie du fragment D^+ (eV)**
$D_2^+\ ^2\Sigma_g^+(1s\sigma_g)$	< 0.5
$D_2^{+*}\ ^2\Sigma_u^+(2p\sigma_u)$	7.9
$D_2^{+*}\ ^2\Pi_u(2p\pi_u)$	5.0
$D_2^{+*}\ ^2\Sigma_g^+(2s\sigma_g)$	5.8
D_2^{2+}	9.7

TAB. 5.1 – *Energie cinétique la plus probable emportée par le fragment D^+ (dans le référentiel du centre de masse) lors de la dissociation de la cible ionisée, pour les premiers états de l'ion moléculaire D_2^+, et pour l'ion D_2^{2+}.*

dans son état électronique fondamental $^2\Sigma_g^+(1s\sigma_g)$ conduit à la formation de fragments D^+ dont l'énergie cinétique n'excède pas 0.5 eV. En revanche, les énergies cinétiques des fragments D^+ produits lors de la fragmentation de l'ion D_2^+ dans un état électronique excité, ou bien de l'ion D_2^{2+} sont supérieures à 3 eV. Ces distributions confirment donc clairement le fait que le processus de simple ionisation dissociative (SID) peut être isolé des processus d'ionisation-excitation (IE) et double ionisation (DI) à l'aide des distributions en énergie cinétique des ions D^+.

Toutefois, la seule contribution de ces différents processus ne suffit pas à expliquer l'exis-

tence de fragments dont l'énergie s'étale entre 1 et 3 eV. Il a donc été suggéré par différents auteurs [EWDE90, EWDE91, LYSL87, SLL90], que les ions D^+ possédant de telles énergies cinétiques résultent du processus d'autoionisation dissociative, consécutivement à la double excitation de la molécule. Si à ce jour, leur suggestion a été vérifiée dans le cadre de la photoionisation [LLB$^+$03, IHU96, SM99a], pour l'instant aucune étude expérimentale n'a prouvé le fait que des états doublement excités soient peuplés lors d'une collision entre un ion et la molécule D_2.

5.2.2 Distribution en énergie des électrons

La distribution en énergie des électrons produits par l'ensemble des processus d'ionisation dissociatifs est présentée sur la figure 5.4. La distribution mesurée, semblable

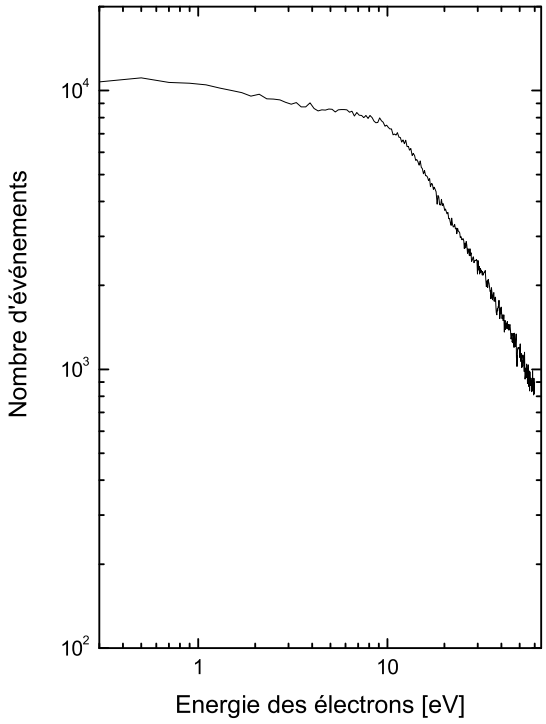


FIG. 5.4 – *Distribution d'énergie des électrons produits par l'ensemble des processus d'ionisation dissociative pour le système collisionnel 13.6 MeV/amu* $S^{15+} - D_2$.

aux distributions typiques d'énergie d'électrons, émis dans le continuum à la suite d'une collision à grand paramètre d'impact entre un ion et une cible atomique ou moléculaire (cf. figure 1.15), se caractérise par une décroissance monotone de la section efficace d'ionisation dissociative pour une énergie croissante des électrons. D'autre part, la distribution met en évidence la présence d'une structure dans la gamme d'énergie allant de 4 à 15 eV, associée à la production d'électrons Auger.

5.2.3 Diagramme de corrélation en énergie

Compte tenu des principales caractéristiques des distributions en énergie des fragments D^+ et des électrons mesurées séparément, nous pouvons à présent aborder la description précise de la figure 5.1.
D'après la loi de conservation de l'énergie, l'énergie totale E_T transférée par le projectile à la molécule se répartit en énergie cinétique emportée par les particules produites lors de la collision (E_{e^-} pour les électrons, E_{D^+} pour le deuton, et E_D pour l'atome de deutérium), et en énergie potentielle E_P correspondant à la limite de dissociation atteinte, selon la relation :

$$E_T = E_{e^-} + E_{D^+} + E_D + E_p \tag{5.7}$$

L'énergie libérée par la fragmentation de l'ion moléculaire D_2^+ sous forme d'énergie cinétique emportée par chacun des fragments D^+ et D est répartie en fonction du rapport entre leur masse m_{D^+}/m_D. En considérant ce rapport égal à 1, la relation précédente s'exprime sous la forme :

$$E_{e^-} = -2E_{D^+} + E_T - E_p \tag{5.8}$$

Dans le cas d'un processus de double excitation des électrons de la cible, suivi par un processus d'autoionisation par effet Auger, l'énergie E_T transférée par le projectile à la molécule obéit aux règles de quantification imposées par l'écart énergétique existant entre les niveaux d'énergie de la molécule. Pour un état moléculaire initialement excité et une limite de dissociation donnés, les énergies cinétiques emportées par l'électron émis et le fragment D^+ sont donc reliées par la relation (5.8). En fonction du temps de vie de l'état initialement peuplé, l'électron et le fragment D^+ se partagent continuellement l'énergie $E_T - E_p$, formant ainsi une trace rectiligne sur le diagramme de corrélation élargie en conséquence de la distribution initiale de la distance internucléaire (région Franck-Condon), et de la résolution sur la mesure des énergies (cf. figure 5.5). La bande observée sur le diagramme de corrélation mesuré (cf. figure 5.1), dans le domaine d'énergie des fragments D^+ compris entre 0.5 et 3.5 eV, est donc la somme de toutes les traces formées par l'ensemble des transitions permises entre les différents états excités de la molécule D_2 et les états dissociatifs de l'ion moléculaire D_2^+.
Dans le domaine d'énergie des fragments D^+ inférieure à 0.7 eV et supérieure à 3.5 eV où les processus non-résonnants SID, IE et DI prédominent, la corrélation entre les énergies des deux particules détectées, n'est plus aussi marquée. La relation (5.8) reste bien évidemment vérifiée. Toutefois, l'énergie totale transférée par le projectile à la molécule n'est cette fois pas quantifiée. Pour une limite de dissociation donnée, l'énergie de l'électron est donc déterminée à partir de l'énergie totale E_T transférée par le projectile à la molécule, et de l'énergie cinétique emportée par les fragments (cf. figure 5.6).

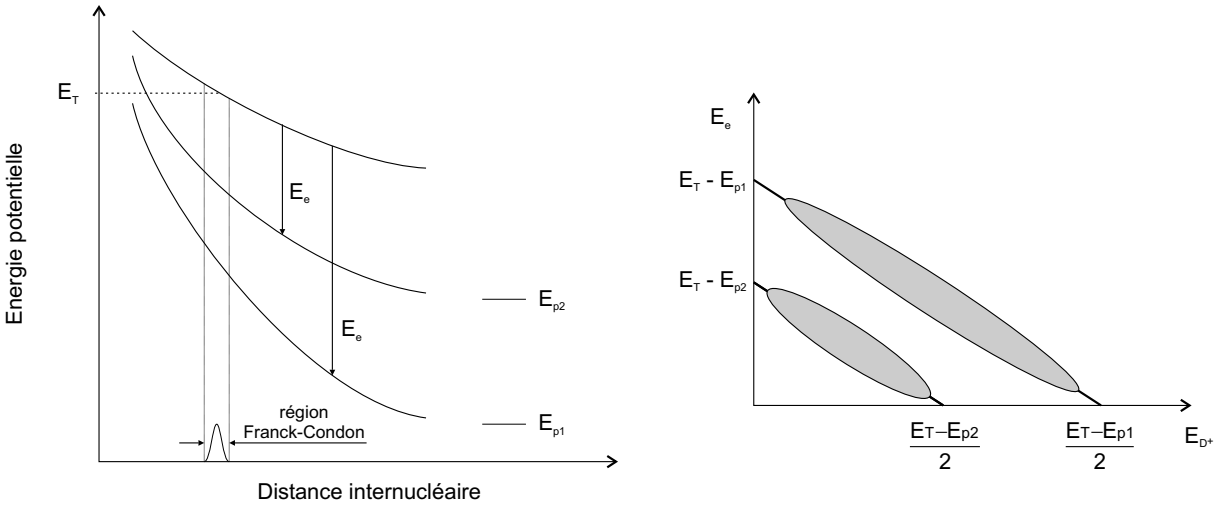


FIG. 5.5 – ***Cas d'un processus de double excitation autoionisant***. *Diagramme de corrélation schématique entre l'énergie cinétique de l'électron et celle du fragment D^+. Pour un état initial peuplé et une limite de dissociation donnés, la relation entre l'énergie cinétique de l'électron et du fragment fixées par la relation* (5.8) *se traduit par un segment (de pente -2) sur le diagramme, dont la largeur résulte de la distribution initiale de la distance internucléaire.*

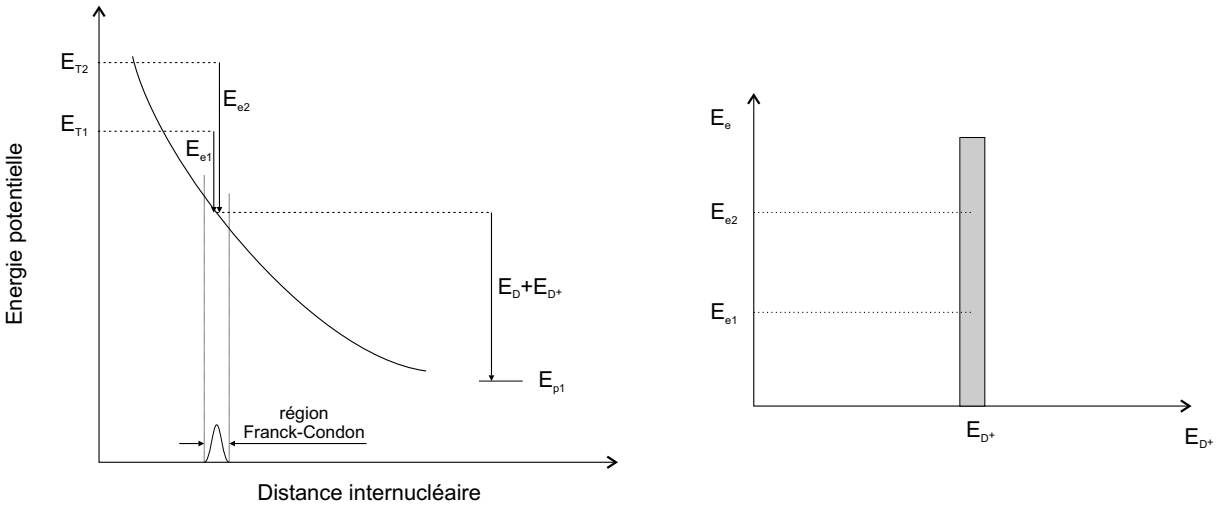


FIG. 5.6 – ***Cas d'un processus d'ionisation directe***. *Diagramme de corrélation schématique entre l'énergie cinétique de l'électron et celle du fragment D^+. La distribution d'énergie transférée par le projectile est continue, tandis que pour une limite de dissociation donnée, l'énergie cinétique des fragments est fixée. Par conséquent, la relation* (5.8) *se traduit sur le diagramme par un continuum d'énergie des électrons.*

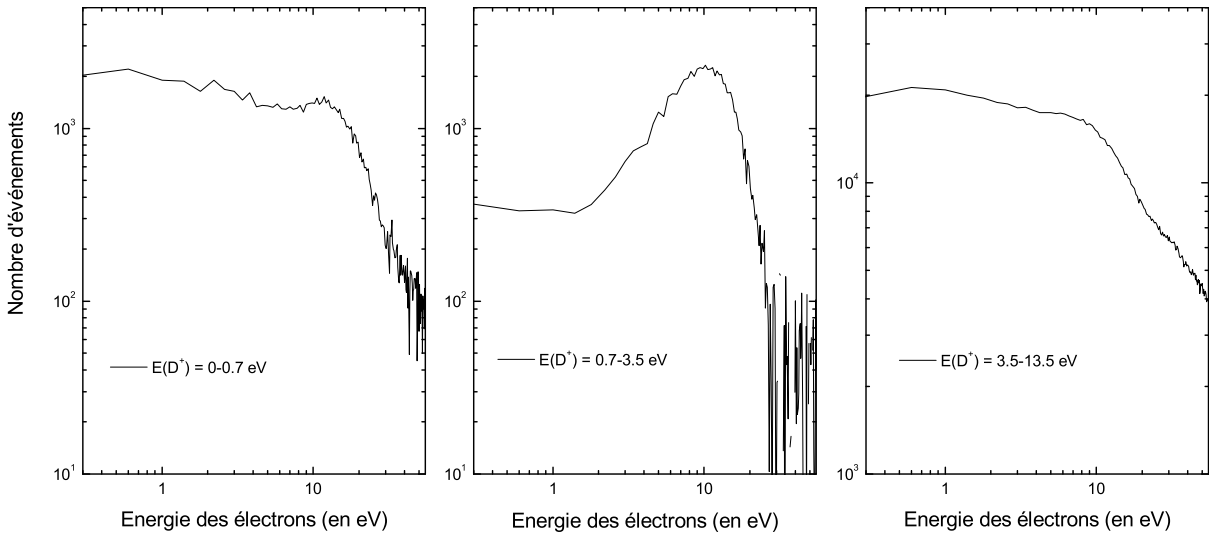


FIG. 5.7 – *Distributions d'énergie des électrons mesurées pour différents domaines en énergie des fragments* D^+.

Les distributions d'énergie des électrons mesurées pour les différents domaines d'énergie des fragments D^+ sont représentées sur la figure 5.7. La distribution d'énergie des électrons correspondant aux énergies de fragments D^+ compris entre 0.7 et 3.5 eV, met clairement en évidence la présence d'un pic associé à la formation d'électrons Auger. En revanche, les distributions d'énergie correspondant aux énergies de fragments D^+ inférieures à 0.7 eV ou supérieures à 3.5 eV se présentent sous la forme d'un continuum d'énergie. On remarquera toutefois, la présence d'une structure localisée sur ces distributions, caractéristique de la formation d'électron Auger par le processus d'autoionisation. Par conséquent, comme le laisse penser le diagramme de corrélation, le processus d'autoionisation contribue à la formation de fragments D^+ dont l'énergie s'étale dans les domaines où les processus SID, IE et DI sont considérés comme majoritaires.
Le diagramme de corrélation en énergie permet donc de mettre en évidence deux résultats importants :

- d'une part, il montre clairement que des états doublement excités de la molécule D_2 peuvent être peuplés lors de la collision entre un ion multi-chargé et la molécule;
- d'autre part, il indique que le processus d'autoionisation dissociatif contribue aussi à la formation de fragments D^+ dont l'énergie est supérieure à 3.5 eV et inférieure à 0.7 eV.

Cette dernière constatation permet donc de conclure que la simple mesure des distribution d'énergie des fragments D^+ ne suffit pas pour déterminer la contribution précise de chacun des processus, dès lors que la contribution du processus d'autoionisation n'est pas négligeable.

5.2.4 Etude quantitative de la contribution des différents processus d'ionisation

La contribution des différents processus d'ionisation au processus global d'ionisation dissociative est déterminée à partir de l'étude quantitative du diagramme de corrélation en énergie. Dans ce paragraphe, nous commencerons par décrire les différentes méthodes mises en oeuvre pour déterminer le nombre d'événements correspondant à chacun de ces processus. Nous pouvons dès à présent mentionner le fait que ce nombre est déterminé à partir des distributions en énergie des électrons mesurées pour une gamme d'énergie des fragments D^+ donnée. Puis, à partir de ces nombres d'événements, nous déterminerons les sections efficaces relatives entre les différents processus d'ionisation.

Contribution du processus SID

Le nombre d'événements correspondant au processus de simple ionisation dissociative est déterminé en ajustant la forme du continuum d'énergie des électrons qui en résulte, dans le domaine d'énergie des fragments inférieure à 0.7 eV (cf. figure 5.8).
Compte tenu de la différence entre les ordres de grandeur des durées caractéristiques du processus d'ionisation (10^{-16} s) et du processus de fragmentation (10^{-14} s), nous pouvons considérer que la distribution d'énergie des électrons correspondant au processus de simple ionisation est indépendante du devenir de l'ion moléculaire D_2^+, que cette simple ionisation soit dissociative ou non. Dans le cadre de cette hypothèse, la distribution d'énergie des électrons correspondant au processus SIND peut alors être employée pour ajuster précisément le continuum d'énergie produit par le processus SID. Le facteur multiplicatif d'ajustement appliqué à la distribution mesurée correspond au rapport entre la section efficace du processus SID et celle du processus SIND. Selon les résultats obtenus par Ben-Itzhak *et al.* [BIKC+96] (cf. chapitre 1), la valeur de ce rapport ne dépend que du recouvrement entre les fonctions d'onde de la molécule et de l'ion moléculaire D_2^+. Par conséquent, ne dépendant ni de la vitesse du projectile, ni de sa charge, le facteur mesuré par Ben-Itzhak, égal à 0.485 % (± 0.036 %) dans le cas de la molécule D_2, a été employé pour ajuster la distribution du processus SIND.
Le nombre d'événements correspondant au processus SID est ensuite déterminé en sommant le nombre d'événements contenus sous la courbe d'ajustement. L'incertitude sur la valeur de ce nombre, est quant à elle obtenue en combinant quadratiquement l'incertitude résultant de l'ajustement et celle résultant de la soustraction du fond (cf. chapitre 4), chacune d'entre elles étant de l'ordre de ± 7 %.

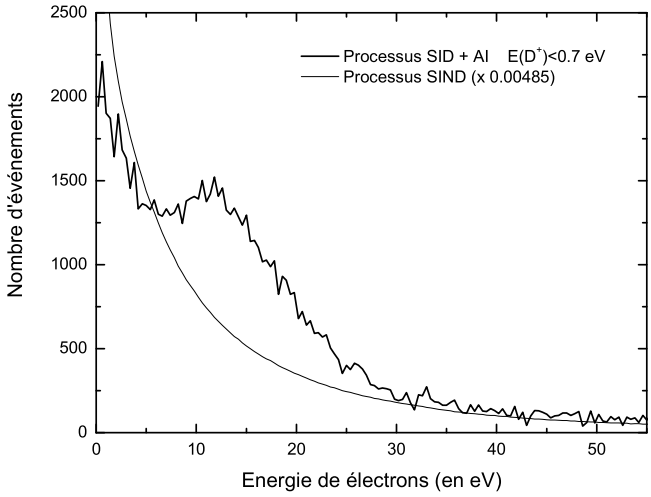


FIG. 5.8 – *Distributions d'énergie des électrons mesurées pour des fragments D^+ d'énergie inférieure à 0.7 eV.*

Contribution du processus AI

La détermination du nombre d'événements correspondant au processus AI nécessite de traiter indépendamment différents domaines d'énergie des fragments D^+. Comme nous l'indique le diagramme de corrélation, les fragments D^+ d'énergie comprise entre 0.7 et 3.5 eV sont produits exclusivement par le processus AI. En revanche, en dehors de ce domaine, la contribution du processus AI s'ajoute à celle du processus de simple ionisation dissociative pour les énergies des fragments inférieures à 0.7 eV, et à celle du processus d'ionisation-excitation pour les énergies supérieures à 3.5 eV. Pour ces énergies, la procédure mise en oeuvre pour extraire le nombre d'événements correspondant au processus AI, consiste à soustraire aux distributions mesurées, la forme du continuum d'énergie des électrons produits par les différents processus non-résonnants, de façon à extraire le pic Auger caractéristique du processus AI. Les profils des continuums d'énergie soustraits ont été choisis de façon à reproduire au mieux les distributions d'énergie résultant des différents processus non-résonnants. Dans le domaine d'énergie des fragments inférieur à 0.7 eV, comme nous l'avons mentionné dans le paragraphe précédent, le continuum d'énergie caractéristique du processus de simple ionisation dissociative (SID) est reproduit à partir de la distribution d'énergie des électrons produits par le processus de simple ionisation non-dissociative (SIND). Dans le domaine d'énergie des fragments supérieure à 3.5 eV, le profil du continuum soustrait correspond à la distribution d'énergie des électrons mesurée pour un domaine d'énergie des fragments où les contributions des processus d'autoionisation et de double ionisation sont négligeables (entre 7.0 et 7.5 eV).

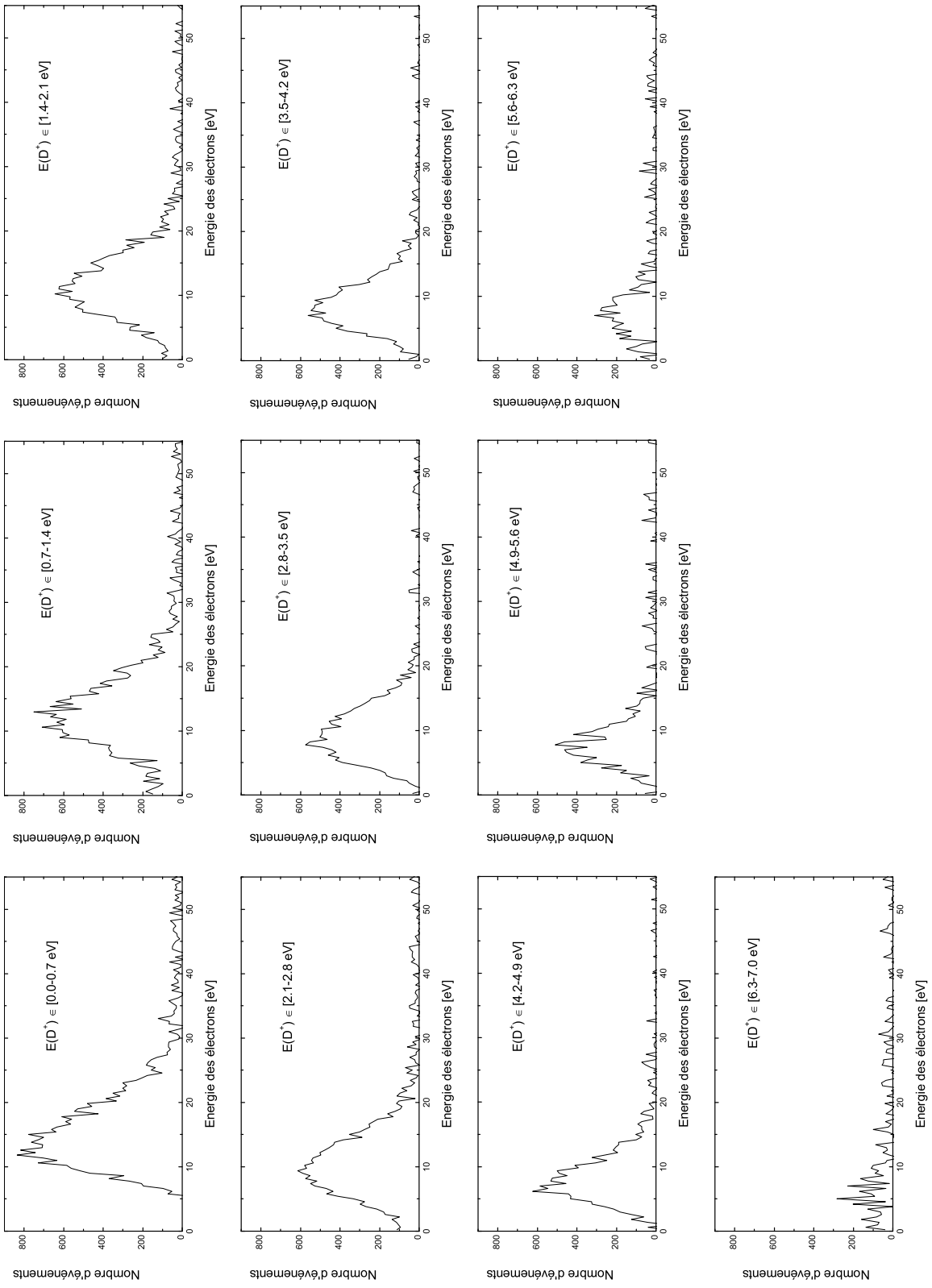


FIG. 5.9 – *Distributions d'énergie des électrons Auger mesurées pour différents domaines d'énergie des fragments D^+.*

La figure 5.9 présente les distributions d'énergie des électrons Auger déduites, pour différents domaines d'énergie des fragments D^+. Le nombre d'événements correspondant au processus AI pour chaque domaine d'énergie des fragments est ensuite déterminé en intégrant le nombre d'événements contenus dans chacun des pics. L'incertitude sur la détermination du nombre d'événements pour une énergie des fragments D^+ donnée, tient compte de l'incertitude statistique, de l'incertitude engendrée par les soustractions du continuum d'énergie des électrons et du fond.

Contribution du processus DI

Le nombre d'événements correspondant au processus de double ionisation, isolé sans ambiguïté selon la méthode décrite dans le chapitre 4 (cf. paragraphe 4.3.2), est déterminé en sommant le nombre d'événements contenus dans la distribution d'énergie du premier électron détecté. On notera toutefois que cette distribution a été corrigée d'une perte d'efficacité de détection que nous avons pu constater pour les fragments d'énergie supérieure à 9 eV, dont la coordonnée Y de la position d'impact sur le détecteur se situe au delà d'un diamètre limite de 60 mm par rapport au centre du détecteur. Cette perte d'efficacité due à un réglage trop restrictif des seuils des discriminateurs à fraction constante (cf. 2.6.1), est mise en évidence sur la distribution de l'angle d'émission φ, attendue isotrope pour des raisons de symétrie, représentée sur la figure 5.10. En pratique, la méthode que nous avons mise en oeuvre pour s'affranchir de cette perte d'efficacité a donc consisté à déterminer le pourcentage d'événements perdus en fonction de l'énergie du fragment D^+ (cf. figure 5.11) en estimant le nombre d'événements contenus dans les '*creux*' de la distribution de l'angle d'émission φ. Il a ensuite été tenu compte de la proportion d'événements manquants par tranche d'énergie du fragment D^+.

Pour finir, on notera que cette perte d'efficacité est clairement visible sur la distribution de l'angle φ si l'origine de la perte est liée à la coordonnée Y de la position d'impact. En revanche, une même perte d'efficacité liée cette fois à la coordonnée Z, se répartit uniformément sur la distribution de l'angle, et ne peut donc être ni observée ni estimée. Nous considérerons qu'elle est du même ordre de grandeur (environ 15 %), ce qui constitue alors l'incertitude sur le nombre total d'événements correspondant au processus DI.

Contribution du processus IE

Le nombre d'événements correspondant au processus IE est déterminé à partir du nombre d'événements contenus dans la distribution d'énergie des électrons mesurée pour la gamme d'énergie des fragments compris entre 3.5 et 13.0 eV, auquel nous avons soustrait d'une part le nombre partiel d'événements correspondant au processus AI, et d'autre part

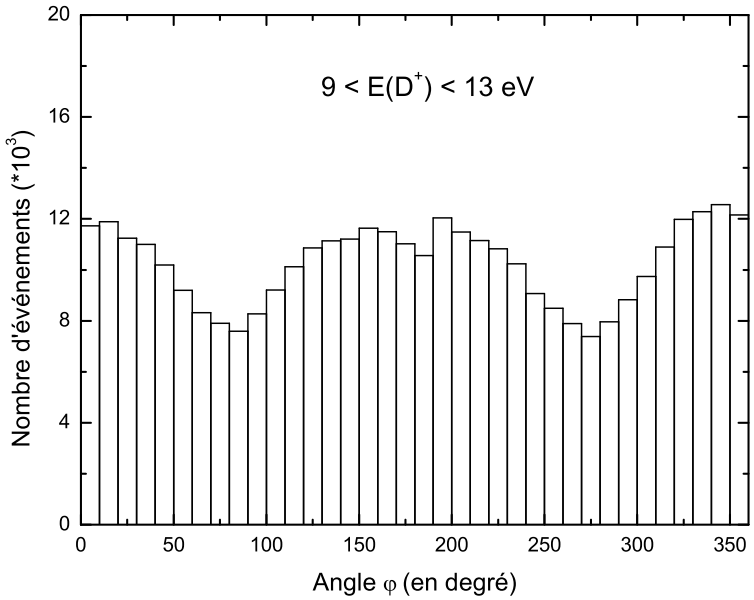


FIG. 5.10 – *Distribution de l'angle φ des fragments D^+ d'énergie comprise entre 9 et 13 eV. La distribution met en évidence une perte d'efficacité pour les angles d'émission proche de 90 et 270 degrés.*

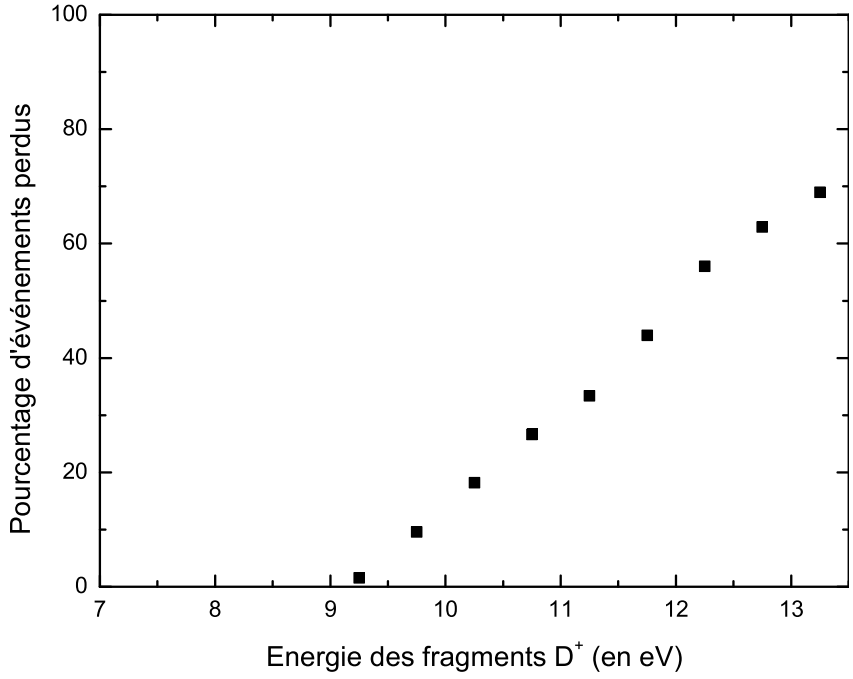


FIG. 5.11 – *Pourcentage d'événements perdus en fonction de l'énergie des fragments D^+.*

le nombre d'événements correspondant au processus DI. Notons également que compte tenu de la perte d'efficacité observée pour les énergies des fragments supérieures à 9 eV, la distribution d'énergie des électrons est corrigée selon le même principe que celui présenté précédemment. L'incertitude sur le nombre d'événements du processus IE résulte par conséquent des incertitudes sur les différents nombres impliqués dans sa détermination : l'incertitude sur le nombre d'événements contenus dans la distribution d'énergie des électrons (15 %), l'incertitude sur le nombre d'événements d'autoionisation, l'incertitude sur le nombre d'événements du processus DI.

Rapports entre les contributions des différents processus

Les rapports entre les contributions des différents processus sont reportés dans le tableau 5.2. La contribution des processus impliqués dans ces rapports est déterminée en divisant le nombre d'événements correspondant à chacun d'entre eux, par l'efficacité de détection d'un électron et d'un fragment D^+. On notera que l'efficacité de détection d'une particule résulte d'une part de l'efficacité de détection des galettes à micro-canaux, et d'autre part de la transparence des grilles du spectromètre [2]. Selon les données des constructeurs, l'efficacité des galettes s'élève à 57%, tandis que la transparence des grilles atteint 95 %, ce qui conduit à une efficacité ε_D de détection d'une particule égale à :

$$\varepsilon_D = 0.57 \times (0.95)^2 = 0.514$$

En ce qui concerne les processus SIND, SID, AI et IE, qui conduisent à la formation d'un électron et d'un ion (D_2^+ ou D^+), l'efficacité de détection d'un électron et d'un fragment D^+ est donc égale à ε_D^2. En revanche, pour ce qui est du processus DI qui conduit à la formation de deux électrons et de deux deutons, l'efficacité de détection d'au moins un électron et un ion D^+ est donnée par la valeur du terme $(\varepsilon_D^2 + 2\varepsilon_D(1-\varepsilon_D))^2$.
Ces différents rapports indiquent clairement que le processus d'ionisation majoritaire est le processus de simple ionisation non dissociative (92.0 %), tandis que l'ensemble des voies d'ionisation conduisant à la fragmentation de l'ion moléculaire D_2^+ ne représente que 8.0 % du processus global d'ionisation. Par ailleurs, le processus d'ionisation dissociative majoritaire est le processus d'ionisation excitation, dont la contribution s'élève à 79.5 % du processus global d'ionisation dissociative. On notera également que la contribution du processus d'autoionisation dissociative est environ deux fois supérieure à celle de la simple ionisation dissociative, ou celle de la double ionisation. Enfin, à partir des rapports précédents, le rapport entre les processus impliquant 2 électrons et 1 électron

2. Rappelons que chaque partie du spectromètre est constituée de deux grilles, situées entre la zone d'extraction et la zone de vol libre, et entre la zone de vol libre et la zone de post-accélération.

	Rapport mesuré (en %)
Par rapport au processus global d'ionisation :	
Processus non-dissociatif	92.0 ± 1.2
Processus dissociatif	8.0 ± 1.4
Par rapport au processus global d'ionisation dissociative :	
Processus SID	5.5 ± 1.3
Processus AI	10.0 ± 1.8
Processus IE	79.5 ± 4.2
Processus DI	5.0 ± 1.5

TAB. 5.2 – *Rapport entre les contributions des différents processus d'ionisation produits lors de la collision entre un ion S^{15+} à 13.6 MeV/u et la molécule D_2.*

de la cible s'élève à 8.2 ± 1.4, tandis que la valeur théorique obtenue à partir du modèle de Krishnakumar *et al.* (cf. paragraphe 1.2.2 du chapitre 1) pour un ion projectile S^{15+} à 13.6 MeV/u vaut 5.9 %.
L'évolution des contributions des différents processus en fonction de l'énergie des fragments est rapportée sur la figure 5.12. Les distributions d'énergie des processus SI et IE sont déterminées par soustraction des distributions d'énergie correspondant aux processus AI et DI à la distribution globale. On note que la distribution d'énergie des fragments produits par le processus AI comprise entre 0 et 7 eV s'étale dans les domaines d'énergie où les processus IE et SI prédominent. La contribution du processus AI à la formation de fragments d'énergie inférieure à 0.7 eV s'élève à 32 %. Par ailleurs, les contributions des processus AI, IE et DI à la formation de fragments d'énergie supérieure à 3 eV s'élèvent respectivement à 4.6 %, 89.8 % et 5.6 %.

5.2.5 Conclusions

La mesure des corrélations en énergie entre le fragment D^+ et l'électron produit à la suite de l'interaction entre un ion S^{15+} à 13.6 MeV/u sur la molécule D_2, permet de dégager plusieurs résultats importants :

- d'une part, elle permet de mettre clairement évidence le fait que des états doublement excités de la molécule peuvent être peuplés lors de la collision. La voie de désexcitation observée correspond à l'émission d'un électron Auger, suivie par la dissociation de la molécule ;
- d'autre part, elle permet également de déterminer la contribution des différents

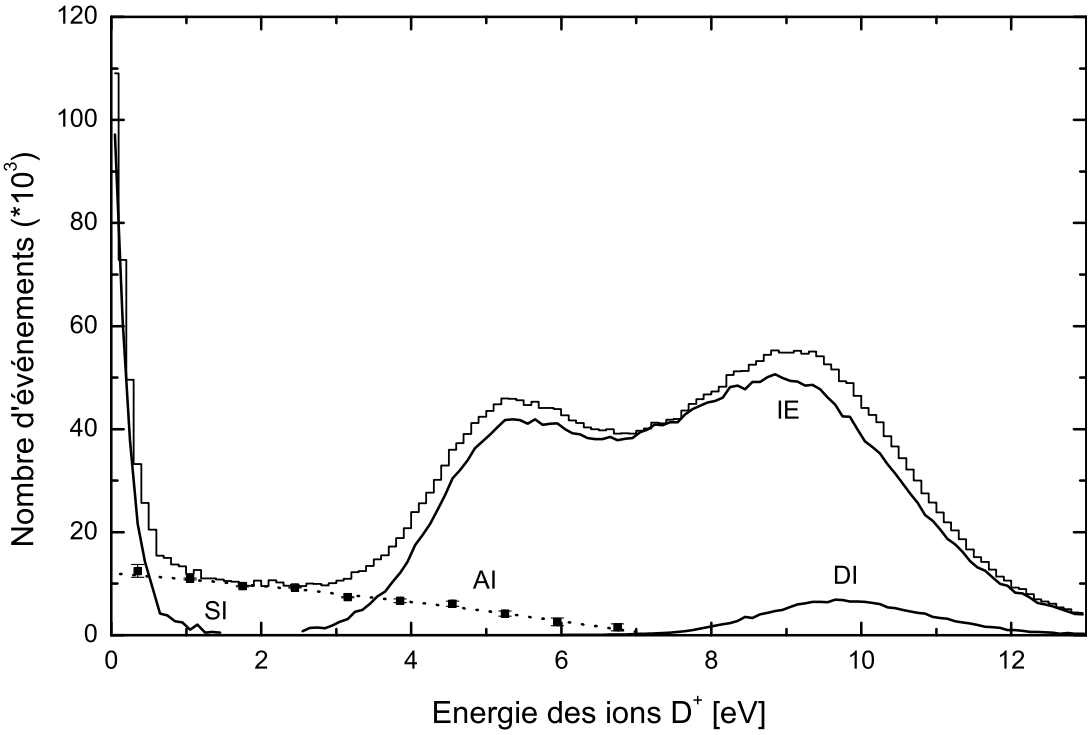


FIG. 5.12 – *Distribution d'énergie des fragments produits par les différents processus d'ionisation dissociatif (SI, AI, IE, DI).*

processus d'ionisation dissociative impliqués lors de la collision (SID, AI, IE, DI). On observe alors que le processus d'ionisation excitation est le processus majoritaire ;

– elle permet enfin d'extraire les distributions d'énergie des fragments D^+ produits par chacun de ces processus.

5.3 Corrélation angulaire

L'étude des corrélations angulaires entre l'électron et le fragment D^+ produits lors de la collision, consiste à décrire l'émission électronique dans le repère de la molécule. Cette problématique est abordée par les deux approches théorique et expérimentale. Le traitement théorique repose sur la méthode dite Continuum-Distorted-Wave-Eikonal-Initial-State (CDW-EIS), qui comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 1, décrit très correctement l'émission électronique dans le champ coulombien créé par les noyaux cible et projectile. La mesure expérimentale des distributions angulaires de l'électron dans le repère de la molécule, quant à elle, repose sur l'approximation dite du recul axial [Zar67], valable si la durée caractéristique de la fragmentation de la molécule est très nettement inférieure à sa période de rotation (10^{-10} s). Dans ce cas, l'orientation de la molécule est déterminée *a posteriori* à partir de la direction d'émission du fragment D^+.

5.3.1 Etude de l'émission électronique par la méthode CDW-EIS

Formalisme du modèle

Le modèle développé, valable dans le domaine des énergies intermédiaires jusqu'aux hautes énergies du projectile [FPR91], est basé sur une théorie perturbative. Dans le formalisme du modèle CDW-EIS, le champ coulombien créé par le noyau projectile est inclus dans la forme des fonctions d'ondes électroniques. D'autre part, le modèle repose sur l'approximation du paramètre d'impact. Dans le cadre de cette approximation, le mouvement des noyaux est découplé de celui des électrons actifs. Ainsi, la trajectoire du projectile est décrite classiquement par deux paramètres : le paramètre d'impact $\vec{b}$, et sa vitesse $\vec{v}$ tels que $\vec{b}.\vec{v} = 0$.
Dans le but de simplifier le modèle, un électron de la cible est considéré comme étant passif et gelé dans son état fondamental. Ainsi, l'évolution de l'électron actif dans le potentiel dépendant du temps dû au mouvement des noyaux est décrite quantiquement par l'équation de Schrödinger électronique :

$$\left[H_{el} - i\frac{\partial}{\partial t}\right]\chi = 0 \tag{5.9}$$

avec

$$H_{el} = -\frac{1}{2}\nabla^2 - \frac{Z_T}{x_1} - \frac{Z_T}{x_2} - \frac{Z_P}{s} \tag{5.10}$$

où Z_T et Z_P représentent respectivement la charge des noyaux cible et projectile, x_1 (x_2) la position de l'électron actif par rapport au centre 1 (2) de la molécule, et s sa position par rapport au noyau projectile (cf. figure 5.13).

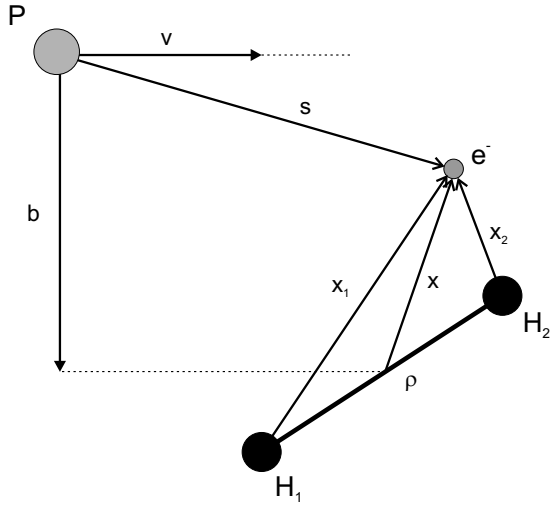


FIG. 5.13 – *Paramétrisation du mouvement des partenaires de la collision.*

Dans le modèle, les fonctions d'ondes distordues $\chi_{i,f}^{+,-}$ initiale et finale de l'électron actif proposées s'écrivent sous la forme :

$$\chi_{i,f}^{+,-} = \varphi_{i,f}\mathcal{L}_{i,f}^{+,-} \tag{5.11}$$

où χ_i^+ (χ_f^-) représente la fonction d'onde initiale (finale) de l'électron actif dans l'état lié (continuum), et $\mathcal{L}_i^+$ ($\mathcal{L}_f^-$) correspond au facteur de distorsion dû au champ coulombien créé par le noyau projectile dans la voie d'entrée (sortie).

Etat initial :

Dans l'approximation CDW-EIS, le facteur de distorsion dans la voie d'entrée est donné par le terme :

$$\mathcal{L}_i^+(\overrightarrow{s}) = \exp\left(-i\frac{Z_P}{v}\ln(vs + \overrightarrow{v}.\overrightarrow{s})\right) \tag{5.12}$$

La fonction d'onde initiale de l'électron actif dans son état lié est quant à elle définie par une combinaison linéaire d'orbitales atomiques, obtenue par un calcul variationnel :

$$\varphi_i(\overrightarrow{x},t) \simeq (\xi_1(\overrightarrow{x}_1) + \xi_2(\overrightarrow{x}_2))\, e^{-i\epsilon_i t} \tag{5.13}$$

où ϵ_i est l'énergie de l'électron actif dans l'état lié (dont la valeur correspond à celle de la simple ionisation de H_2 mesurée expérimentalement, $\epsilon_i = -0.566$ u.a.), et

$$\xi_j(\overrightarrow{x}_j) = N_i(\rho)\left(\frac{Z^3}{\pi}\right)^{1/2} exp(-Zx_j) \qquad j = 1{,}2 \tag{5.14}$$

Le facteur de normalisation $N_i(\rho)$ pour une distance internucléaire d'équilibre $\rho = 1.4$ vaut 0.5459, tandis que la charge effective du noyau est fixée à la valeur 1.193 [GRFS02].

Etat final :

Le facteur de distorsion est dans ce cas donné par le terme :

$$\mathcal{L}_f^-(\overrightarrow{s}) = N(\zeta)\,{}_1F_1(-i\zeta;1;-ips - i\overrightarrow{p}.\overrightarrow{s}) \tag{5.15}$$

$\overrightarrow{p}$ étant le moment de l'électron par rapport au projectile, $N(\zeta) = exp(\pi\zeta/2)\Gamma(1+i\zeta)$, et $\zeta = Z_p/p$.

Dans l'hypothèse où l'électron émis d'un des centres de la molécule ne ressent que le potentiel créé par celui-ci, l'autre étant totalement écranté par l'électron passif, la fonction d'onde de l'électron actif émis dans le continuum moléculaire final est représentée par:

$$\varphi_f\left(\overrightarrow{x},t\right) = \sum_{j=1}^{2} \phi\left(\overrightarrow{x}_j\right) e^{-i\epsilon_f t + i\beta_j \overrightarrow{k}.\overrightarrow{\rho}/2} \tag{5.16}$$

où $\epsilon_f = k^2/2$ est l'énergie de l'électron émis, $\overrightarrow{k}$ son moment, $\beta_1 = -1$,$\beta_2 = +1$, et :

$$\phi\left(\overrightarrow{x}_j\right) = (2\pi)^{-3/2} e^{i\overrightarrow{k}.\overrightarrow{x}_j} N(\gamma)\,{}_1F_1\left(-i\gamma; 1; -ikx_j - i\overrightarrow{k}.\overrightarrow{x}_j\right) \tag{5.17}$$

avec, $\gamma = Z_{eff}/k$, et $Z_{eff} = \sqrt{-2\epsilon_i}$.

Amplitude de transition :

Pour les fonctions d'onde initiale et finale précédentes, l'amplitude de transition peut alors s'écrire sous la forme :

$$\mathcal{A}_{if}^{+}\left(\overrightarrow{b},\overrightarrow{\rho}\right) = -i\int_{-\infty}^{+\infty} dt \left\langle \chi_f^{-} \left| \left(H_{el} - i\frac{\partial}{\partial t}\right)^{\dagger} \right| \chi_i^{+} \right\rangle \tag{5.18}$$

L'équation précédente conduit à la forme générale suivante [GRFS02] :

$$\mathcal{A}_{if}^{+}\left(\overrightarrow{b},\overrightarrow{\rho}\right) \cong -i\sum_{j=1}^{2} e^{-i\beta_j(\overrightarrow{k}.\overrightarrow{\rho} - q_z\rho z)/2} \mathcal{A}_{if}^{eff,+}\left(\overrightarrow{b_j}\right) \tag{5.19}$$

où $\overrightarrow{b_j}$ est le paramètre d'impact par rapport au noyau j de la molécule, $q_z = \Delta\epsilon_{fi}/v$ la composante selon l'axe z du moment transféré $\overrightarrow{q} = -\overrightarrow{\eta} - q_z\hat{v}$, et $\Delta\epsilon_{fi} = \epsilon_f - \epsilon_i$. Le terme $\mathcal{A}_{if}^{eff,+}$, correspond à l'amplitude de transition pour le cas d'un atome ayant une charge effective Z_{eff}.

D'un point de vue analytique, il est plus simple de travailler avec la transformée de Fourier de l'amplitude de transition, dont le carré du module est donné par :

$$|R_{if}^{M,+}(\overrightarrow{\eta},\overrightarrow{\rho})|^2 = 2\left(1 + cos((\overrightarrow{k} + \overrightarrow{q}).\overrightarrow{\rho})\right)|R_{if}^{eff,+}(\overrightarrow{\eta})|^2 \tag{5.20}$$

où $R_{if}^{eff,+}$ est la transformée de Fourier de $\mathcal{A}_{if}^{eff,+}$.

Les sections efficaces multi-différentielles par rapport au moment k et aux angles d'émission (θ_e, φ_e) de l'électron, ainsi que par rapport à la direction de l'axe de la molécule définie par les angles (θ_ρ,φ_ρ), sont déterminées à partir de l'intégrale du terme $|R_{if}^{M,+}(\overrightarrow{\eta},\overrightarrow{\rho})|^2$ sur le moment transféré transverse η :

$$\frac{d\sigma^5}{dk d\theta_e d\varphi_e d\theta_\rho d\varphi_\rho} = \int |R_{if}^{M,+}(\overrightarrow{\eta},\overrightarrow{\rho})|^2 d\vec{\eta} \tag{5.21}$$

Etude de l'émission électronique

D'après la relation (5.20), les différences notables entre les sections efficaces atomique et moléculaire résultent du terme $cos((\overrightarrow{k} + \overrightarrow{q}).\overrightarrow{\rho})$, que nous appellerons par la suite *'terme d'interférence'*. Dans la mesure où plusieurs variables interviennent dans ce terme (k,θ_e,φ_e,θ_ρ,φ_ρ), plusieurs configurations d'émission peuvent être étudiées. Par la suite, les caractéristiques induites par la géométrie de la cible moléculaire seront étudiées uniquement dans le cas où l'axe de la molécule, la direction de propagation de l'électron émis, et celle du projectile appartiennent au même plan. En d'autres termes, nous nous placerons dans la situation où la différence entre les angles azimutaux $\varphi_e - \varphi_\rho$ est nulle.

Les figures 5.14 et 5.15 présentent les sections efficaces différentielles en angle θ_e de l'électron émis par rapport à la direction du projectile, pour une orientation de l'axe de la molécule fixe et égale à 0 et 90°. Les résultats obtenus pour la molécule sont comparés à ceux correspondant à l'atome d'hydrogène (multipliés par un facteur égal à 2). Pour les différentes énergies des électrons considérées, les distributions atomique et moléculaire rapportent une émission prépondérante à 90°, typique d'une émission dipolaire. Toutefois, dans le cas moléculaire, des structures apparaissent pour les angles proches de 0 et 180°. Il est facile de vérifier que ces structures résultent du terme d'interférence. En effet, lorsque la molécule est alignée avec la direction du projectile, l'argument contenu dans le cosinus de l'équation (5.20) devient indépendant du moment transféré transverse η, et peut donc être extrait de l'intégrale sur η qui conduit à la détermination de la section efficace différentielle. Par conséquent, dans la mesure où l'intégrale du terme $R_{if}^{eff,+}$ correspond simplement à une émission dipolaire, les structures observées résultent donc du terme cosinus. Dans ce cas, il est alors possible de déterminer exactement les positions des minima et maxima correspondant aux interférences destructives et constructives. Par exemple, pour des électrons d'énergie égale à 100 eV, les minima observés sur la figure 5.14 apparaissent aux angles de 26.6° et 139.5°. Lorsque la molécule est perpendiculaire à la direction du faisceau, l'argument contenu dans le cosinus dépend cette fois du moment transféré transverse. Dans ce cas, la relation entre les structures observées et le terme d'interférence n'est plus aussi directe, mais peut toutefois être mise en évidence à partir d'une expression simplifiée de l'équation (5.21). Compte tenu du fait que la contribution majoritaire de l'intégrale correspond au domaine où η est proche de 0 [LFG$^+$02], l'expression simplifiée est obtenue en négligeant η dans l'expression du terme d'interférence, ce qui permet alors de sortir ce terme de l'intégrale sur η. Les résultats de cette approximation, rapportés sur la figure 5.15, indiquent clairement que les lobes observés sur les distributions calculées dans le cas moléculaire correspondent à ceux obtenus par le modèle simplifié, ce qui confirme à nouveau que les structures résultent du terme d'interférence.

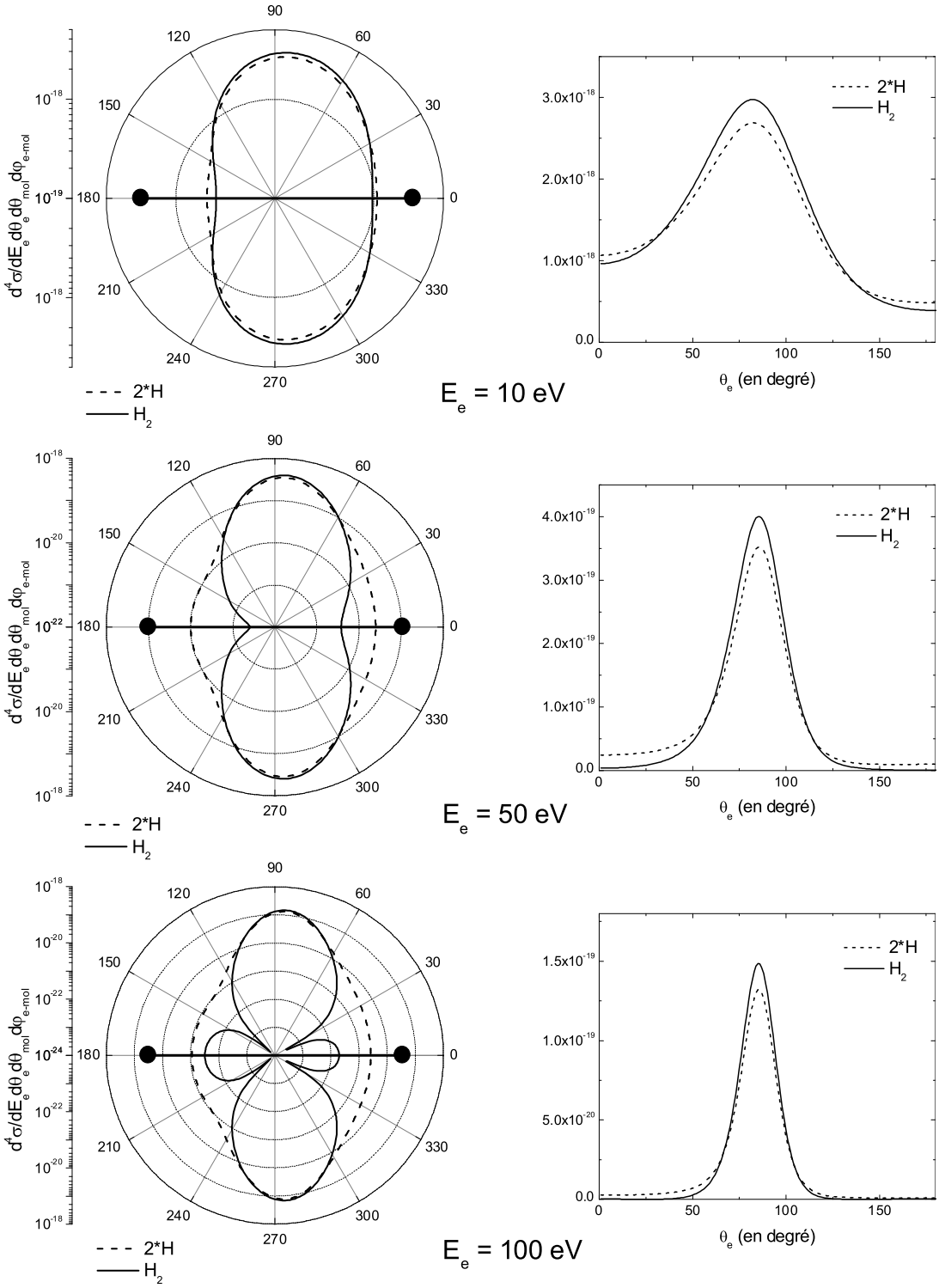


FIG. 5.14 – *Distributions angulaires des électrons par rapport à la direction du projectile obtenues par la méthode CDW-EIS, dans le cas où* ***la molécule est alignée avec la direction du faisceau*** ***(θ_ρ = 0 degré)****. Plusieurs énergies des électrons sont considérées : 10, 50, 100 eV. La courbe continue correspond au cas moléculaire, tandis que la courbe en pointillés représente celui de l'atome. Les distributions sont représentées en échelle logarithmique sur les graphiques polaires, et en linéaire sur les graphiques cartésiens.*

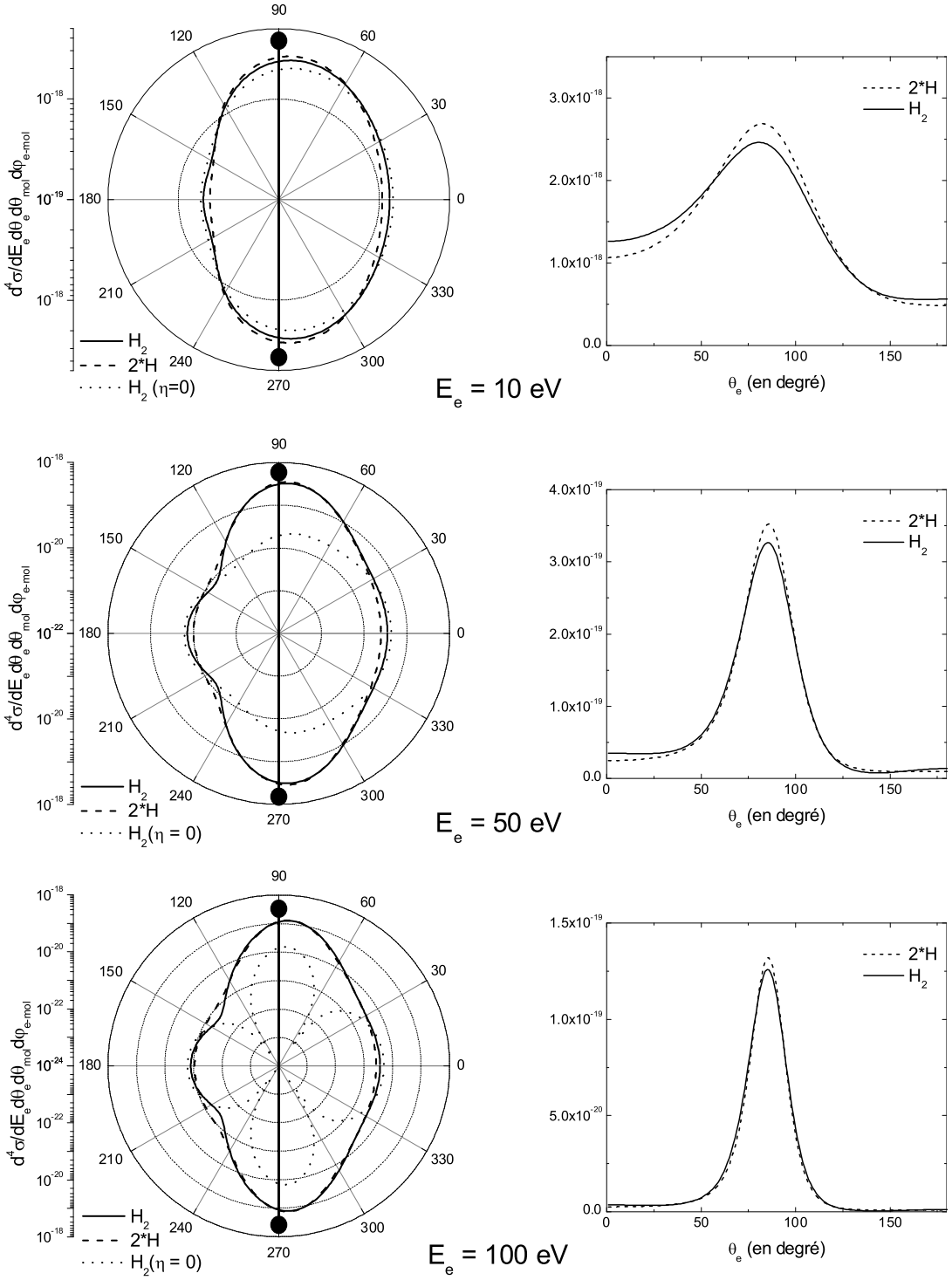


FIG. 5.15 – *Distributions angulaires des électrons par rapport à la direction du projectile obtenues par la méthode CDW-EIS, dans le cas où* ***la molécule est perpendiculaire à la direction du faisceau*** (θ_ρ ***= 90 degrés)***. *Les énergies des électrons considérées sont : 10, 50, 100 eV. La courbe continue correspond au cas moléculaire, la courbe tiret représente celui de l'atome, tandis que la courbe en pointillés correspond au cas moléculaire dans l'approximation simplifiée (η=0). Les distributions sont représentées en échelle logarithmique sur les graphiques polaires, et en linéaire sur les graphiques cartésiens.*

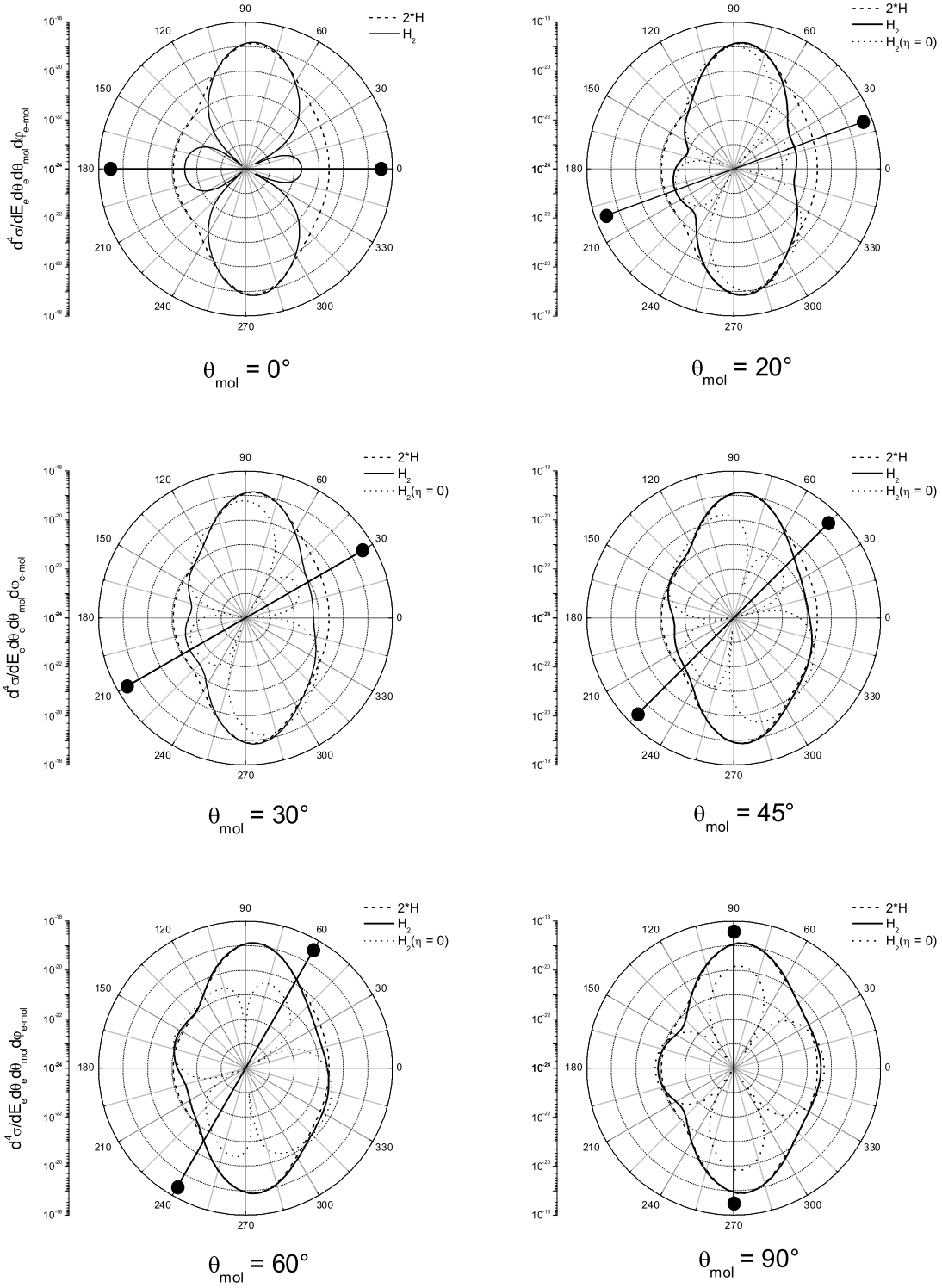


FIG. 5.16 – *Distributions angulaires des électrons d'énergie égale à 100 eV pour différentes orientations de l'axe moléculaire par rapport à la direction du projectile, obtenues par la méthode CDW-EIS. La courbe continue correspond au cas moléculaire, la courbe tiret représente celui de l'atome, tandis que la courbe en pointillés correspond au cas moléculaire dans l'approximation simplifiée (η=0).*

Toutefois, on notera que les extrema d'interférence ne sont plus aussi marqués que dans le cas de la molécule alignée avec la direction de propagation du projectile. La position de ces extrema dépendant de la valeur de η, nous comprenons alors que l'intégration sur le moment transféré transverse η brouille les structures.
La figure 5.16 présente les distributions angulaires d'émission électronique par rapport à la direction du projectile pour des électrons d'énergie égale à 100 eV, en fonction de l'orientation de la molécule. Pour comprendre l'évolution des structures, nous avons rapporté également les distributions angulaires résultant de l'approximation décrite précédemment (en posant $\eta = 0$ dans le terme cosinus). La forme des distributions angulaires pour le cas moléculaire résulte donc de la superposition de la forme typique d'une émission dipolaire (provenant du terme $R_{if}^{A,+}$), et du motif d'interférence, dont le profil reste pratiquement inchangé dans le référentiel de la molécule.

5.3.2 Section efficace d'émission électronique différentielle en angle et en énergie

Les distributions angulaires expérimentales d'émission électronique par rapport à la direction du faisceau, pour une orientation de la molécule et une énergie de l'électron données, ont été mesurées dans le cas du processus d'ionisation excitation, pour lequel la statistique permet une mesure multi-différentielle. En pratique, le processus IE a été isolé à partir des distributions d'énergie des fragments D^+, en sélectionnant les énergies des fragments comprises entre 4 et 13 eV. Dans ce domaine d'énergie, nous avons vu précédemment que la somme des contributions des deux processus AI et DI à la formation des fragments D^+ s'élève à environ 10 %. Bien qu'en pratique, il soit possible de déterminer, puis de soustraire la forme de leurs contributions aux distributions angulaires d'émission électronique, la statistique nous en a toutefois empêchés.
Les sections efficaces multi-différentielles expérimentales présentées sur les figures 5.17 et 5.18 sur une échelle relative, sont comparées à celles prédites par le modèle CDW-EIS pour les cas atomique et moléculaire. La figure 5.17 présente les sections efficaces pour différentes énergies des électrons (10, 30 et 50 eV), dans le cas d'une orientation fixe de l'axe de la molécule perpendiculaire à la direction du projectile, tandis que la figure 5.18 rapporte les sections efficaces pour différentes orientations de la molécule par rapport à la direction du projectile, et pour une énergie de l'électron égale à 10 eV. Sans permettre de trancher distinctement entre le cas atomique et le cas moléculaire, les distributions multi-différentielles expérimentales présentent un bon accord général avec les distributions théoriques, sur tout le domaine en énergie et en angle considéré. Une analyse plus approfondie permet cependant de mettre en évidence un écart systématique entre

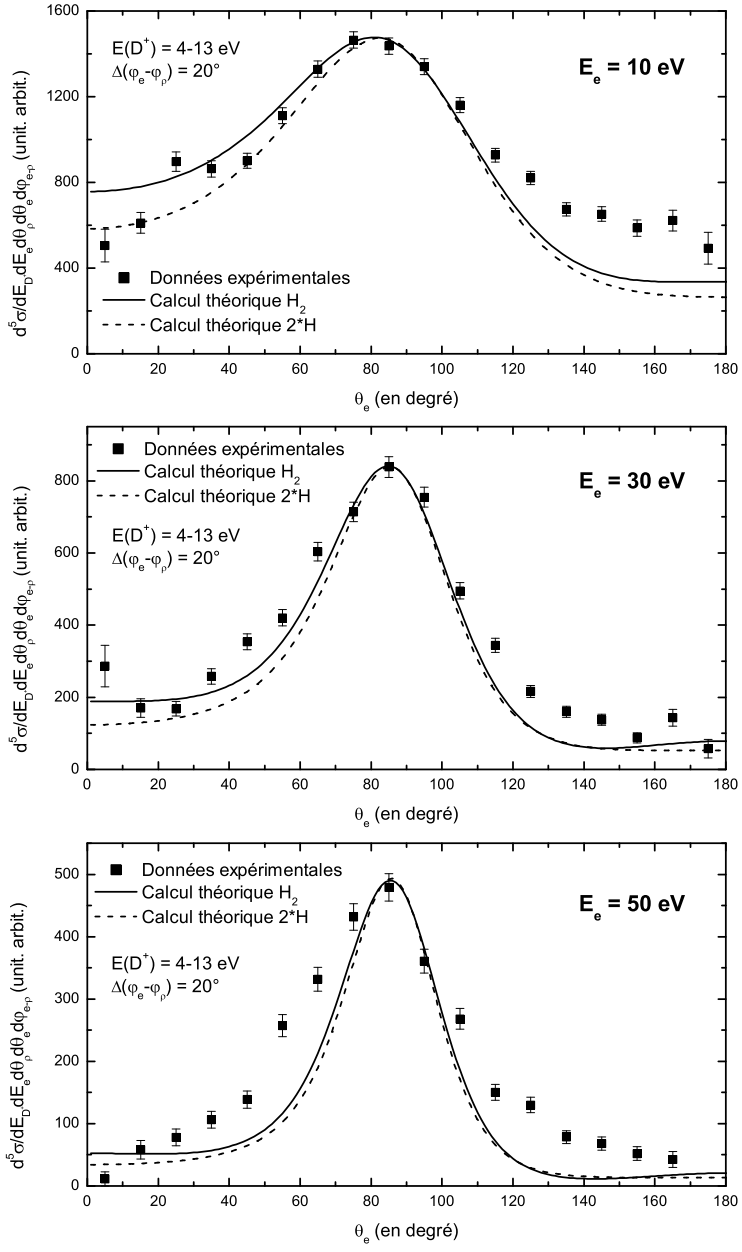


FIG. 5.17 – *Distributions angulaires des électrons d'énergie égale à* ***10, 30 et 50 eV****, pour une* ***orientation de l'axe moléculaire perpendiculaire à la direction du projectile*** *(θ_ρ =* ***90 degrés****). Les données expérimentales (représentées par les points) sont comparées aux résultats théoriques obtenus par la méthode CDW-EIS (les courbes continue et discontinue représentent respectivement les cas moléculaire et atomique).*

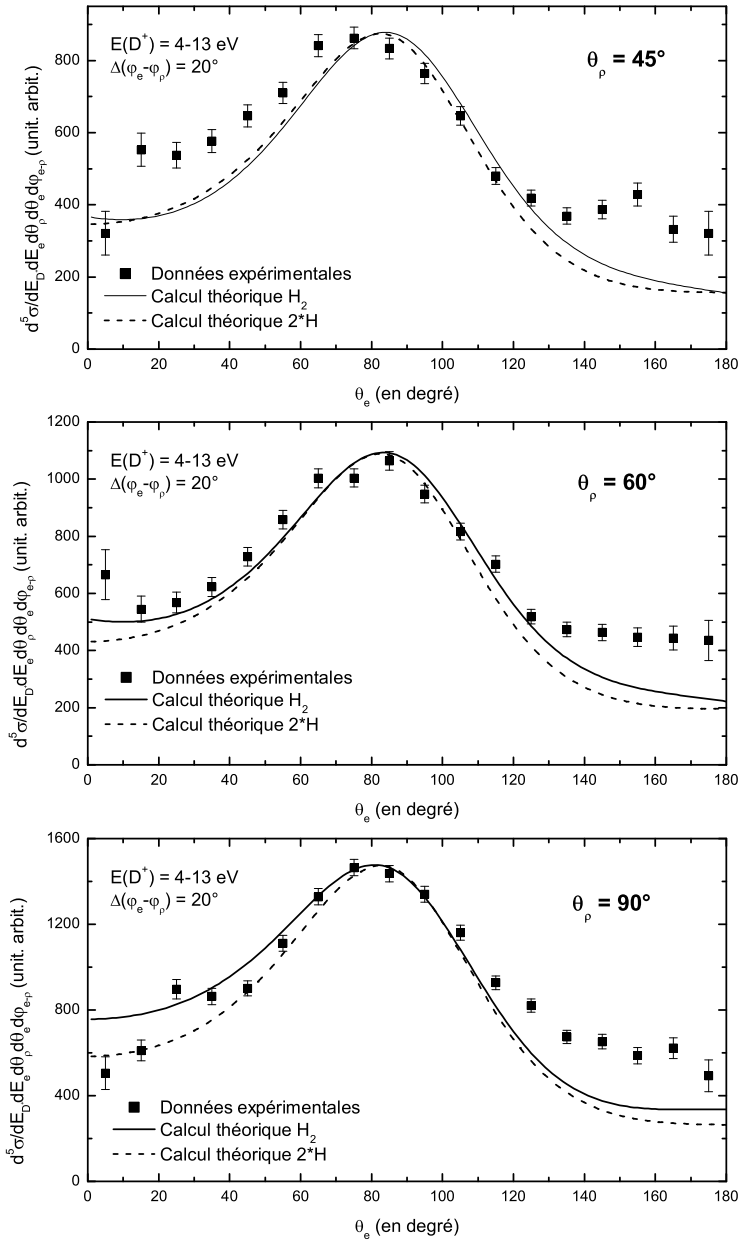


FIG. 5.18 – *Distributions angulaires des électrons d'énergie égale à* ***10 eV****, pour* ***différentes orientations de l'axe moléculaire*** *par rapport à la direction du projectile (*θ_ρ *=* ***45, 60 et 90 degrés****). Les données expérimentales (représentées par les points) sont comparées aux résultats théoriques obtenus par la méthode CDW-EIS (les courbes continue et discontinue représentent respectivement les cas moléculaire et atomique).*

les résultats expérimentaux et théoriques pour les angles d'émission dans la direction opposée à celle du projectile. Plusieurs raisons peuvent être à l'origine de ce désaccord. D'un point de vue théorique, comme nous l'avons décrit dans le formalisme du modèle, l'électron émis dans le continuum moléculaire ressent l'influence d'un seul centre, l'autre centre étant totalement écranté par l'électron passif. Cette représentation présente ses limites dans le domaine des faibles énergies de l'électron ionisé, pour lesquelles l'électron est susceptible de ressentir le potentiel créé par chacun des deux centres. Enfin, rappelons que le processus de simple ionisation décrit par le modèle théorique considère le deuxième électron comme étant gelé dans son état fondamental. Ce processus diffère du processus d'ionisation excitation (où les deux électrons de la cible sont actifs et participent à la dissociation de l'ion moléculaire) inclus dans les données expérimentales, ici comparées au calcul théorique.

Conclusion

Ce travail de thèse a consisté à décrire les caractéristiques de l'émission électronique induite par impact d'ion multichargé rapide sur la molécule D_2. Dans le régime de vitesse du projectile considéré (S^{15+} à 13.6 MeV/u), le processus primaire prépondérant pour le dépôt d'énergie est l'ionisation de la molécule. Parmi les différents mécanismes d'ionisation, plusieurs conduisent à la fragmentation de l'ion moléculaire D_2^+ résultant. On distingue alors les mécanismes de :

- simple ionisation non-dissociative (SIND) conduisant à la formation d'un électron et d'un ion D_2^+ ;
- simple ionisation dissociative (SID), de double excitation autoionisante (AI) et de d'ionisation d'excitation (IE) qui conduisent à la formation d'un électron, d'un atome de deutérium et d'un ion D^+ ;
- double ionisation (DI) conduisant à la formation de deux électrons et deux ions D^+.

Hormis le processus SIND, tous les autres processus conduisent à la formation d'au moins un électron et un ion D^+. Ainsi, ces derniers mécanismes d'ionisation ont été étudiés par la mesure des corrélations vectorielles entre les vecteurs impulsion de l'électron et du fragment D^+.

Cette étude a nécessité la réalisation d'un dispositif expérimental permettant la mesure en coïncidence du vecteur impulsion de toutes les particules chargées produites lors de la collision (électron, ion de recul ou fragment). Le dispositif expérimental s'appuie sur les techniques d'imagerie utilisées dans le domaine de la spectroscopie d'ion de recul. Le champ électrique utilisé dans ce type de spectroscopie pour extraire les ions vers un détecteur sensible en position, est ici couplé à un champ magnétique uniforme permettant de confiner les électrons de grande énergie sur la surface d'un deuxième détecteur sensible en position. Un tel dispositif présente alors l'avantage de permettre d'accéder à un angle solide de collection de l'ordre de 4π stéradians pour des électrons et des fragments D^+ d'énergies atteignant respectivement 55 eV et 12 eV, tout en conservant une bonne précision sur la mesure de leur énergie et de leur angle d'émission. *Via* la mesure de leur temps de vol et de leur position d'impact sur les détecteurs sensibles en position, les vecteurs impulsions des différentes particules sont déterminés, permettant ainsi d'accéder à

leur énergie et leur direction d'émission par rapport au faisceau. Rappelons d'autre part que dans le cadre de l'approximation du recul axial, valable si la durée caractéristique de la fragmentation de la molécule est très petite devant sa période de rotation (10^{-10} s), l'orientation de la molécule par rapport à la direction du faisceau peut être déduite *a posteriori* de la direction d'émission des fragments D^+.

Dans un premier temps, la corrélation entre l'énergie de l'électron et celle du fragment D^+ produits, nous a permis de déterminer la contribution des différents mécanismes décrits précédemment au processus global d'ionisation. Nous avons montré que le processus majoritaire à 92 % est le processus de simple ionisation non-dissociative, tandis que 8 % du processus global d'ionisation conduit à la dissociation de la molécule. Le processus d'ionisation dissociative est dominé par la contribution du mécanisme d'ionisation-excitation (79.5 %), la part des mécanismes d'autoionisation dissociative, de simple ionisation dissociative, et de double ionisation représentant respectivement 10 %, 5.5 % et 5 %. Les corrélations en énergie nous ont permis d'autre part, de séparer sans ambiguïté les distributions d'énergie cinétique des fragments D^+ correspondant aux mécanismes précédents. Les fragments D^+ d'énergie inférieure à 0.5 eV sont produits à 70 % par le processus SID et 30 % par le processus AI, ceux d'énergie supérieure à 3.5 eV résultent à 90 % du processus IE, 5.5 % du processus DI et 4.5 % du processus AI, tandis que les fragments d'énergie comprise entre 0.5 et 3.5 eV sont produits exclusivement par le processus AI.

Dans un deuxième temps, l'analyse spatiale des corrélations vectorielles conduit aux distributions angulaires d'émission électronique par rapport à la direction du faisceau, pour une orientation de la molécule et une énergie de l'électron données. Ces sections efficaces multi-différentielles ont été décrites par les deux approches théorique et expérimentale. Le modèle théorique est basé sur la méthode dite Continuum Distorted Wave-Eikonal Initial State (CDW-EIS), qui permet de décrire avec précision les caractéristiques de l'émission électronique dans le champ coulombien créé par les noyaux cible et projectile. Les résultats théoriques mettent en évidence l'existence d'effets d'interférence sur les sections efficaces d'ionisation différentielles en angle et en énergie de l'électron, provenant du fait que les deux atomes de la molécule contribuent de façon cohérente à l'émission électronique. Sur un plan expérimental, bien que ne permettant pas de distinguer ces effets du fait de leur faiblesse relative, les résultats présentent un bon accord général avec les résultats théoriques compte tenu de la nature différentielle des sections efficaces. A un niveau plus approfondi, le désaccord observé entre les résultats théoriques et expérimentaux pourraient résulter, selon nos hypothèses, du rôle joué par le deuxième électron de la cible. Rappelons que le modèle théorique repose sur une approximation à électrons indépendants, où le deuxième électron est considéré comme étant passif, et gelé dans son état fondamental, tandis que les sections efficaces différentielles en angle

expérimentales ont été mesurées pour le cas du processus d'ionisation excitation.

Les résultats obtenus durant cette thèse laissent encore de nombreuses questions ouvertes, dont certaines font actuellement l'objet d'analyses complémentaires.
Une description plus précise des mécanismes de collision pourrait être atteinte en déterminant la contribution des différents états peuplés de la molécule D_2 et de l'ion moléculaire D_2^+. D'un point de vue expérimental, nous avons déjà déterminé les probabilités relatives de peuplement de l'état fondamental de l'ion D_2^+ et l'état dissociatif de l'ion D_2^{2+}, correspondant respectivement à la contribution des processus SI (SID+SIND) et DI. En ce qui concerne les états excités de la molécule D_2 et de l'ion moléculaire D_2^+, nous pouvons dès à présent donner de premières mesures de leurs contributions à partir des distributions d'énergie des fragments D^+ associées à chacun des deux processus AI et IE. La démarche, semblable à celle qui fut initialement effectuée par les auteurs impliqués dans la mesure des distributions d'énergie des fragments (cf. chapitre 1), consiste à ajuster les distributions des fragments obtenues par la méthode des projections sur les distributions mesurées. Cette analyse est actuellement en cours. De plus, sur un plan théorique, nous pouvons également signaler que la problématique consistant à déterminer la contribution des différents états de la molécule D_2 et de l'ion moléculaire D_2^+ fait actuellement l'objet d'une étude par l'équipe de Fernando Martín à Madrid.
D'autre part, dans la perspective d'une meilleure comparaison avec les études théoriques que nous avons exposées dans le chapitre 1, la détermination des sections efficaces différentielles en angle d'émission des fragments D^+ par rapport à la direction du projectile pourrait également être d'un grand intérêt. Malgré le fait que nous n'ayons pas pu effectuer ces mesures pour des raisons techniques (provenant de la perte d'efficacité observée pour les fragments d'énergie supérieure à 9 eV), ces sections efficaces sont mesurables à l'aide de notre dispositif expérimental.
Enfin, la comparaison entre les sections efficaces mesurées et théoriques différentielles en angle et en énergie des électrons pour une orientation de la molécule donnée, bénéficierait d'une plus grande précision si la mesure était effectuée pour le processus de simple ionisation dissociative. Bien que nécessitant une longue durée d'acquisition (la durée d'acquisition nécessaire pour effectuer une mesure ayant la même statistique que celle obtenue pour nos résultats concernant le processus IE, doit être d'environ 10 jours), cette mesure est techniquement envisageable à l'aide de notre dispositif, compte tenu du fait que le processus SID peut être parfaitement isolé des autres processus, pour des énergies d'électron supérieures à environ 30 eV (cf. diagramme de corrélation).

Annexes et Références

Annexe A

Equations du mouvement

Sommaire

A.1 Configuration du spectromètre 159
A.2 Mise en équation 160
A.3 Action du champ magnétique 162
A.3.1 Détermination des positions 162
A.3.2 Inversion positions-vitesses initiales transverses 163
A.4 Action du champ électrique 163
A.4.1 Détermination du temps de vol 164
A.4.2 Inversion Temps-vitesse initiale longitudinale 166

Nous décrirons dans cette annexe les équations régissant le mouvement d'une particule chargée émise dans le volume du double spectromètre de vitesse. Comme nous l'avons mentionné dans les chapitres précédents (en particulier dans le chapitre 3), ces équations permettent de déterminer le vecteur vitesse initiale de chacune des particules, à partir des observables mesurées: le temps de vol et les coordonnées des positions sur le détecteur à localisation. Après un bref rappel de la constitution du spectromètre choisie pour l'étude du système S^{15+} sur D_2, nous déterminerons formellement les équations du mouvement de chacune des particules (électron, fragment). Enfin, nous décrirons les méthodes mises en oeuvre pour obtenir les composantes du vecteur vitesse à partir de ces équations.

A.1 Configuration du spectromètre

Celui-ci, représenté sur la figure A.1 et décrit en détail dans le chapitre 2, comporte deux parties positionnées verticalement. Une partie est utilisée pour extraire et détecter

les électrons (et éventuellement les particules de charge négative), tandis que l'autre est attribuée à la détection des fragments de charge positive. Le repère ($\vec{x}$, $\vec{y}$, $\vec{z}$) choisi est également indiqué sur la figure : les axes ($\vec{y}$, $\vec{z}$) sont situés dans le plan horizontal transverse au spectromètre, et représentent respectivement la direction du jet supersonique et celle du faisceau projectile.
D'autre part, l'ensemble du spectromètre baigne dans deux champs : un champ électrique $\vec{E}$ ayant différentes intensités en fonction des régions (cf. chapitre 2 et 3), et un champ magnétique $\vec{B}$ uniforme. Le champ magnétique pointe vers le détecteur d'électron, tandis que le champ électrique est orienté vers le détecteur des ions.

A.2 Mise en équation

Dans ces conditions, une particule de charge q, de masse m, et de vitesse $\vec{v}$ sera alors soumise à la force de Lorentz:

$$\overrightarrow{F} = q\left(\overrightarrow{E} + \overrightarrow{v} \wedge \overrightarrow{B}\right) \tag{A.1}$$

Nous traiterons le cas général, dans lequel, la particule peut avoir n'importe quelle charge (positive ou négative), et le champ magnétique n'importe quel sens par rapport à l'axe $\vec{x}$. Si l'on décompose la relation précédente dans le repère lié au spectromètre, il vient:

$$\overrightarrow{F} = s|q|\left[\begin{pmatrix} \mathrm{E(x)} \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \mathrm{V}_x \\ \mathrm{V}_y \\ \mathrm{V}_z \end{pmatrix} \wedge \begin{pmatrix} \mathrm{SB} \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}\right] \tag{A.2}$$

avec $s = 1$ pour une particule de charge positive (-1 pour une charge négative), et $S = 1$ pour un champ $\vec{B}$ dans le même sens que l'axe $\vec{x}$ (-1 pour un sens opposé). En appliquant le principe fondamental de la dynamique, il vient après décomposition dans le repère du spectromètre :

$$ma_x = F_x = s|q|E(x) \tag{A.3}$$

$$ma_y = F_y = s|q|SBV_z \tag{A.4}$$

$$ma_z = F_z = -s|q|SBV_y \tag{A.5}$$

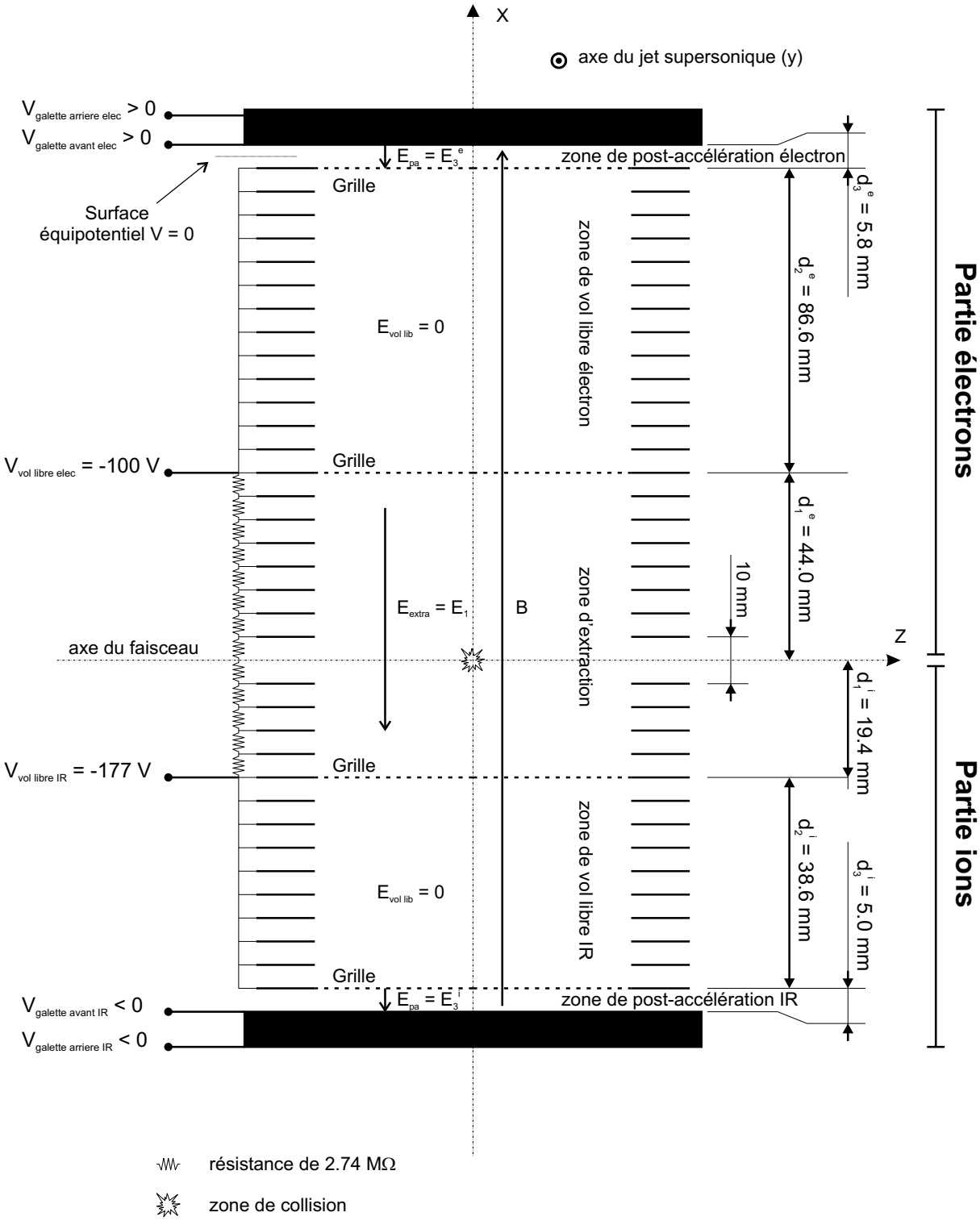


FIG. A.1 – *Double spectromètre de vitesse. La description détaillée a été faite dans les chapitres 2 et 3.*

A.3 Action du champ magnétique

Les équations (A.4) et (A.5) traduisent le mouvement de la particule sous l'influence du champ magnétique. On remarque que ces équations sont couplées. Toutefois, on peut résoudre ce système différentiel, en réécrivant les équations sous la forme :

$$m\dot{V}_y = s|q|SBV_z \tag{A.6}$$
$$m\dot{V}_z = -s|q|SBV_y \tag{A.7}$$

A.3.1 Détermination des positions

En dérivant l'équation (A.6), et en remplaçant $\dot{V}_z$ par l'équation (A.7), il vient :

$$\ddot{V}_y = -(sS)^2 \left(\frac{|q|B}{m}\right)^2 V_y = -\left(\frac{|q|B}{m}\right)^2 V_y \tag{A.8}$$

dont la solution est de la forme:

$$V_y = Acos(\omega_0 t) + Bsin(\omega_0 t) \qquad \text{avec} \qquad \omega_0 = \frac{|q|B}{m} \tag{A.9}$$

A et B étant des constantes d'intégration. La forme de V_z s'obtient alors à partir de l'équation (A.7):

$$V_z = -sS\left[Asin(\omega_0 t) - Bcos(\omega_0 t)\right] \tag{A.10}$$

Les constantes d'intégration découlent des conditions initiales: à $t = 0$ les vitesses V_y et V_z ont les valeurs respectives V_{0y} et V_{0z}. Les vitesses transverses à l'axe du spectromètre ont alors les formes générales suivantes :

$$V_y(t) = V_{0y}cos(\omega_0 t) + sSV_{0z}sin(\omega_0 t) \tag{A.11}$$
$$V_z(t) = V_{0z}cos(\omega_0 t) - sSV_{0y}sin(\omega_0 t) \tag{A.12}$$

En intégrant les deux équations précédentes, et en utilisant les conditions initiales suivantes : $Y(t=0) = y_0$ et $Z(t=0) = z_0$, on obtient la forme générale des positions $Y(t)$ et $Z(t)$:

$$\mathbf{Y(t)} = \frac{\mathbf{1}}{\omega_\mathbf{0}}\left[\mathbf{V_{0y}}\mathbf{sin}(\omega_\mathbf{0}\mathbf{t}) + \mathbf{sSV_{0z}}(\mathbf{1} - \mathbf{cos}(\omega_\mathbf{0}\mathbf{t}))\right] + \mathbf{y_0} \tag{A.13}$$

$$\mathbf{Z(t)} = \frac{\mathbf{1}}{\omega_\mathbf{0}}\left[\mathbf{V_{0z}}\mathbf{sin}(\omega_\mathbf{0}\mathbf{t}) - \mathbf{sSV_{0y}}(\mathbf{1} - \mathbf{cos}(\omega_\mathbf{0}\mathbf{t}))\right] + \mathbf{z_0} \tag{A.14}$$

A.3.2 Inversion positions-vitesses initiales transverses

Les deux équations (A.13) et (A.14) montrent la dépendance des positions (Y, Z) en fonction des vitesses initiales transverses (V_{0y}, V_{0z}). A partir de ces positions, on peut donc remonter aux composantes transversales de la vitesse initiale de la particule. Cela s'obtient de manière relativement simple si on transforme les expressions générales de $Y(t)$ et $Z(t)$ en une équation matricielle :

$$\begin{pmatrix} \text{Y-}y_0 \\ \text{Z-}z_0 \end{pmatrix} = \frac{1}{\omega_0} \begin{pmatrix} sin(\omega_0 t) & sS\,(1-cos(\omega_0 t)) \\ -sS\,(1-cos(\omega_0 t)) & sin(\omega_0 t) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} V_{0y} \\ V_{0z} \end{pmatrix} \tag{A.15}$$

Ce qui peut se représenter sous la forme :

$$A = \frac{1}{\omega_0} MB \tag{A.16}$$

A étant la matrice position, B la matrice de vitesse initiale transverse, et M la matrice de passage de B à A. Il vient :

$$B = \omega_0 M^{-1} A \tag{A.17}$$

avec,

$$M^{-1} = \frac{M^t}{det(M)} \tag{A.18}$$

M^t étant la transposée de la matrice M, et $det(M)$ son déterminant. Les formes générales de V_{0y} et V_{0z} en découlent alors :

$$\mathbf{V_{0y}} = \frac{\omega_0}{\mathbf{2\,(1-cos(\omega_0 t))}} \left[\mathbf{sin}(\omega_0 \mathbf{t})\,(\mathbf{Y}-\mathbf{y_0}) - \mathbf{sS\,(1-cos(\omega_0 t))\,(Z-z_0)}\right] \tag{A.19}$$

$$\mathbf{V_{0z}} = \frac{\omega_0}{\mathbf{2\,(1-cos(\omega_0 t))}} \left[\mathbf{sin}(\omega_0 \mathbf{t})\,(\mathbf{Z}-\mathbf{z_0}) + \mathbf{sS\,(1-cos(\omega_0 t))\,(Y-y_0)}\right] \tag{A.20}$$

A.4 Action du champ électrique

Comme nous allons le voir, le temps de vol T de la particule peut être déterminé à partir de l'équation (A.3) de son mouvement selon l'axe du spectromètre (axe $\vec{x}$). Compte tenu des différentes intensités des champs régnant dans les zones d'extraction, de vol libre, et de post-accélération, la détermination formelle de T nécessite alors de calculer

séparément le temps passé dans chacune d'entre elles.

A.4.1 Détermination du temps de vol

Zone d'extraction

Le champ électrique $\vec{E_1} = -E_1\vec{x}$ qui règne dans cette zone, a pour but d'extraire les particules de la zone de collision vers le détecteur. En réécrivant l'équation (A.3), il vient:

Cas des électrons	**Cas des ions**
$m\dot{V_x} = q\,(-E_1) = \lvert q\rvert E_1$ (A.21)	$m\dot{V_x} = q\,(-E_1) = -\lvert q\rvert E_1$ (A.22)

Par intégration de cette dernière équation, et en prenant comme condition initiale $V_x(t = 0) = V_{0x}$, il vient :

$V_x(t) = \frac{\lvert q\rvert E_1}{m}t + V_{0x}$ (A.23)	$V_x(t) = -\frac{\lvert q\rvert E_1}{m}t + V_{0x}$ (A.24)

De la même façon, en prenant $X\,(t = 0) = x_0$, on en déduit la forme générale de la position:

$X_{ext}(t) = \frac{\lvert q\rvert E_1}{2m}t^2 + V_{0x}t + x_0$ (A.25)	$X_{ext}(t) = -\frac{\lvert q\rvert E_1}{2m}t^2 + V_{0x}t + x_0$ (A.26)

Nous pouvons alors en déduire le temps nécessaire à la particule pour parcourir la zone d'extraction. Par inversion de l'équation précédente, il vient:

$T^e_{ext} = \frac{m}{\lvert q\rvert E_1}\left(- V_{0x} + \sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2\lvert q\rvert E_1}{m}\,(d^e_1 - x_0)}\right)$ (A.27)	$T^i_{ext} = \frac{m}{\lvert q\rvert E_1}\left(+ V_{0x} + \sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2\lvert q\rvert E_1}{m}\,(d^i_1 + x_0)}\right)$ (A.28)

Zone de vol libre

La géométrie du spectromètre ayant été établie de manière à remplir les conditions "$Wiley - McLaren$" [WM55] (cf. chapitre 2 et 3), il convient de juxtaposer une zone de vol libre, zone sans champ électrique, à la suite de la zone d'extraction. L'étude du mouvement est donc relativement simple, puisque :

$$m\dot{V_x} = 0 \qquad \Leftrightarrow \qquad V_x = constante = V_x\,(T_{ext}) \tag{A.29}$$

Dés lors,

$$X_{vl}(t) = V_x\left(T^e_{ext}\right)t + d^e_1 = +\sqrt{V^2_{0x} + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^e_1 - x_0\right)}t + d^e_1 \quad (A.30)$$

$$X_{vl}(t) = V_x\left(T^i_{ext}\right)t - d^i_1 = -\sqrt{V^2_{0x} + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^i_1 + x_0\right)}t - d^i_1 \quad (A.31)$$

Le temps de vol de la particule dans la zone de vol libre s'exprime donc sous la forme:

$$T^e_{vl} = \frac{d^e_2}{\sqrt{V^2_{0x} + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^e_1 - x_0\right)}} \quad (A.32)$$

$$T^i_{vl} = \frac{d^i_2}{\sqrt{V^2_{0x} + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^i_1 + x_0\right)}} \quad (A.33)$$

Zone de post-accélération

De manière à augmenter l'efficacité des galettes micro-canaux, nous avons ajouté une zone de post-accélération juste avant ces dernières (cf. chapitre 2). Un champ fort $\vec{E_3} = -E_3\vec{x}$ est alors appliqué dans cette zone. Les équations du mouvement vont être les mêmes que pour la zone d'extraction, en tenant compte des conditions initiales suivantes:

$$x^e_{init} = d^e_1 + d^e_2 \quad (A.34)$$

$$V^e_{init} = \sqrt{V^2_{0x} + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^e_1 - x_0\right)} \quad (A.35)$$

$$x^i_{init} = -d^i_1 - d^i_2 \quad (A.36)$$

$$V^i_{init} = -\sqrt{V^2_{0x} + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^i_1 + x_0\right)} \quad (A.37)$$

Il vient alors:

$$X_{pa}(t) = \frac{|q|E^e_3}{2m}t^2 + V^e_{init}t + x^e_{init} \quad (A.38)$$

$$X_{pa}(t) = -\frac{|q|E^i_3}{2m}t^2 + V^i_{init}t + x^i_{init} \quad (A.39)$$

De la même façon que pour la zone d'extraction, on en déduit le temps de vol dans la zone de post-accélération:

$$T^e_{pa} = \frac{m}{|q|E^e_3}\left(-\sqrt{V^2_{0x} + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^e_1 - x_0\right)} + \sqrt{V^2_{0x} + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^e_1 - x_0\right) + \frac{2|q|E^e_3}{m}d^e_3}\right) \quad (A.40)$$

$$T^i_{pa} = \frac{m}{|q|E^i_3}\left(-\sqrt{V^2_{0x} + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^i_1 + x_0\right)} + \sqrt{V^2_{0x} + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^i_1 + x_0\right) + \frac{2|q|E^i_3}{m}d^i_3}\right) \quad (A.41)$$

Temps de vol

Le temps de vol de chaque particule est donc la somme de ces trois temps:

$$\text{Temps de vol} = \mathrm{T^{e,i}} = \mathrm{T^{e,i}_{ext}} + \mathrm{T^{e,i}_{vl}} + \mathrm{T^{e,i}_{pa}} \tag{A.42}$$

Pour les électrons :

$$T^e = \frac{m}{|q|E_1}\left(-V_{0x} + \sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^e - x_0\right)}\right) + \frac{d_2^e}{\sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^e - x_0\right)}} + \frac{m}{|q|E_3^e}\left(-\sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^e - x_0\right)} + \sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^e - x_0\right) + \frac{2|q|E_3^e}{m}d_3^e}\right) \tag{A.43}$$

Pour les ions :

$$T^i = \frac{m}{|q|E_1}\left(V_{0x} + \sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^i + x_0\right)}\right) + \frac{d_2^i}{\sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^i + x_0\right)}} + \frac{m}{|q|E_3^i}\left(-\sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^i + x_0\right)} + \sqrt{V_{0x}^2 + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d_1^i + x_0\right) + \frac{2|q|E_3^i}{m}d_3^i}\right) \tag{A.44}$$

A.4.2 Inversion Temps-vitesse initiale longitudinale

La mesure expérimentale nous donne accès au temps de vol T de la particule qui, comme le montrent les équations (A.43) et (A.44), est fonction de la composante de vitesse initiale V_{0x} de la particule. En pratique, la composante V_{0x} peut être déterminée numériquement. Toutefois, dans le cadre de certaines approximations, il est possible d'obtenir une solution analytique approchée de l'expression de V_{0x} en fonction de T. Une première approximation consiste à prendre en compte le fait que l'énergie cinétique initiale de la particule peut être relativement faible par rapport à son énergie potentielle initiale dans la zone d'extraction. D'autre part, une deuxième approximation repose sur le fait que la largeur de la distribution des temps de vol des particules dans la zone de post-accélération, est étroite par rapport au temps de vol total, ce qui permet alors de supposer ce temps T_{pa} constant.

Approximation linéaire

Dans le cas où l'énergie cinétique initiale de la particule est négligeable devant son énergie potentielle initiale dans le champ d'extraction, les équations (A.43) et (A.44) peuvent alors se mettre sous la forme :

$$T^e_{lin} = -\frac{m}{|q|E_1}V_{0x} + T^e_0 \qquad \text{(A.45)}$$

$$T^i_{lin} = \frac{m}{|q|E_1}V_{0x} + T^i_0 \qquad \text{(A.46)}$$

L'inversion devient alors triviale.

$$V_{0x} = -\frac{|q|E_1}{m}\left(T^e_{lin} - T^e_0\right) \qquad \text{(A.47)}$$

$$V_{0x} = \frac{|q|E_1}{m}\left(T^i_{lin} - T^i_0\right) \qquad \text{(A.48)}$$

Approximation du terme constant

Dans la mesure où la zone de post-accélération est caractérisée par une dimension faible devant le reste du spectromètre, ainsi qu'un champ fort, la largeur de la distribution de temps de vol dans cette zone, comme le montre les figures A.2*(a,b)*, est étroite devant le pas de codage des temps de vol (0.5 ns). On peut donc supposer le temps T_{pa} constant. L'équation du temps de vol se simplifie, il vient :

Pour les électrons :

$$T^e - T^e_{pa} = \frac{m}{|q|E_1}\left(-V_{0x} + \sqrt{V^2_{0x} + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^e_1 - x_0\right)}\right) + \frac{d^e_2}{\sqrt{V^2_{0x} + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^e_1 - x_0\right)}} \qquad \text{(A.49)}$$

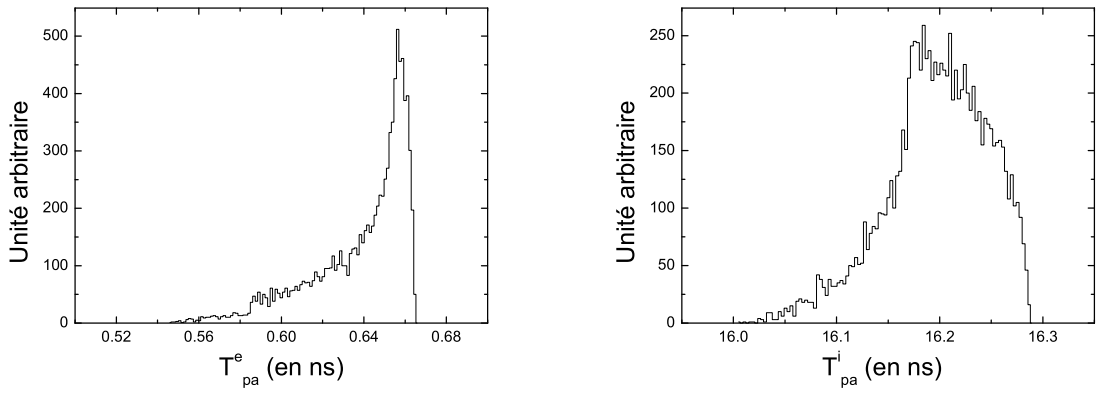
Pour les ions :

$$T^i - T^i_{pa} = \frac{m}{|q|E_1}\left(V_{0x} + \sqrt{V^2_{0x} + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^i_1 + x_0\right)}\right) + \frac{d^i_2}{\sqrt{V^2_{0x} + \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^i_1 + x_0\right)}} \qquad \text{(A.50)}$$

En posant :

$$\begin{aligned} x_e &= V_{0x} \\ A_e &= \frac{m}{|q|E_1} \\ B_e &= \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^e_1 - x_0\right) \\ C_e &= d^e_2 \\ T'_e &= T^e - T^e_{pa} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} x_i &= -V_{0x} \\ A_i &= \frac{m}{|q|E_1} \\ B_i &= \frac{2|q|E_1}{m}\left(d^i_1 + x_0\right) \\ C_i &= d^i_2 \\ T'_i &= T^i - T^i_{pa} \end{aligned}$$



(a) Electrons d'énergie comprise dans la gamme (0,100) eV

(b) Fragments D^+ d'énergie comprise dans la gamme (0,10) eV

FIG. A.2 – *Distribution des temps de vol dans la zone de post-accélération, pour des particules émises de façon isotrope dans le spectromètre.*

Chacune des équations (A.49) et (A.50) peut alors s'écrire sous la forme:

$$T'_{e,i} = A_{e,i}\left(-x_{e,i} + \sqrt{x_{e,i}^2 + B_{e,i}}\right) + \frac{C_{e,i}}{\sqrt{x_{e,i}^2 + B_{e,i}}} \tag{A.51}$$

On en déduit:

$$x_{e,i}^3 + \frac{(T_{e,i}'^2 - A_{e,i}^2 B_{e,i} - 2A_{e,i}C_{e,i})}{2A_{e,i}T'_{e,i}} x_{e,i}^2 + B_{e,i}x_{e,i} + \frac{B_{e,i}T_{e,i}'^2 - (A_{e,i}B_{e,i} + C_{e,i})^2}{2A_{e,i}T'_{e,i}} = 0 \tag{A.52}$$

ou plus simplement,

$$x_{e,i}^3 + a_{e,i}x_{e,i}^2 + b_{e,i}x_{e,i} + c_{e,i} = 0 \tag{A.53}$$

avec,

$$a_{e,i} = \frac{(T_{e,i}'^2 - A_{e,i}^2 B_{e,i} - 2A_{e,i}C_{e,i})}{2A_{e,i}T'_{e,i}}$$

$$b_{e,i} = B_{e,i}$$

$$c_{e,i} = \frac{B_{e,i}T_{e,i}'^2 - (A_{e,i}B_{e,i} + C_{e,i})^2}{2A_{e,i}T'_{e,i}}$$

Formules de Cardano

Cette équation du 3^{ieme} degré peut être résolue en utilisant les formules de Cardano [HS98].
En posant,

$$p_{e,i} = \frac{3b_{e,i} - a_{e,i}^2}{3}$$
$$q_{e,i} = c_{e,i} + \frac{2a_{e,i}^3}{27} - \frac{a_{e,i}b_{e,i}}{3}$$
$$D_{e,i} = \left(\frac{p_{e,i}}{3}\right)^3 + \left(\frac{q_{e,i}}{2}\right)^2$$

Les solutions données par Cardano sont de la forme:

$$x_{e,i}^1 = -\frac{a_{e,i}}{3} + u_{e,i} + v_{e,i} \tag{A.54}$$
$$x_{e,i}^{2,3} = -\frac{a_{e,i}}{3} - \frac{u_{e,i} + v_{e,i}}{2} \pm \sqrt{3}\frac{u_{e,i} - v_{e,i}}{2}j \tag{A.55}$$

où

$$u_{e,i} = \sqrt[3]{-\frac{q_{e,i}}{2} + \sqrt{D_{e,i}}} \qquad et \qquad v_{e,i} = \sqrt[3]{-\frac{q_{e,i}}{2} - \sqrt{D_{e,i}}} \tag{A.56}$$

La solution réelle unique de notre équation est donc :

$$V_{0x}^e = -\frac{a_e}{3} + u_e + v_e \tag{A.57}$$

$$V_{0x}^i = -\left(-\frac{a_i}{3} + u_i + v_i\right) \tag{A.58}$$

Annexe B

Détermination des angles d'émission (θ, φ) des particules

Sommaire

B.1 Définition des angles d'émission (θ, φ) 171

B.2 Relation entre les angles (θ, φ) et les composantes du vecteur vitesse initiale (V_{0x}, V_{0y}, V_{0z}) 172

B.1 Définition des angles d'émission (θ, φ)

La direction d'émission d'une particule animée d'une vitesse initiale $\vec{V}$ peut être définie à partir des deux angles (θ, φ) représentés sur la figure B.1. θ correspond à l'angle entre la direction d'émission de la particule et la direction du faisceau projectile, tandis que φ représente l'angle entre l'axe du spectromètre (axe x) et la composante $\vec{V}_{xy}$ du vecteur vitesse initiale de la particule, dans le plan ($\vec{x}$, $\vec{y}$) de symétrie du système.
Ces deux angles sont déterminés à partir des composantes du vecteur vitesse initiale (V_{0x}, V_{0y}, V_{0z}) définies dans le repère ($\vec{x}$, $\vec{y}$, $\vec{z}$) lié au spectromètre (l'axe x représentant l'axe du spectromètre, l'axe y la direction du jet supersonique, et l'axe z la direction du faisceau projectile).

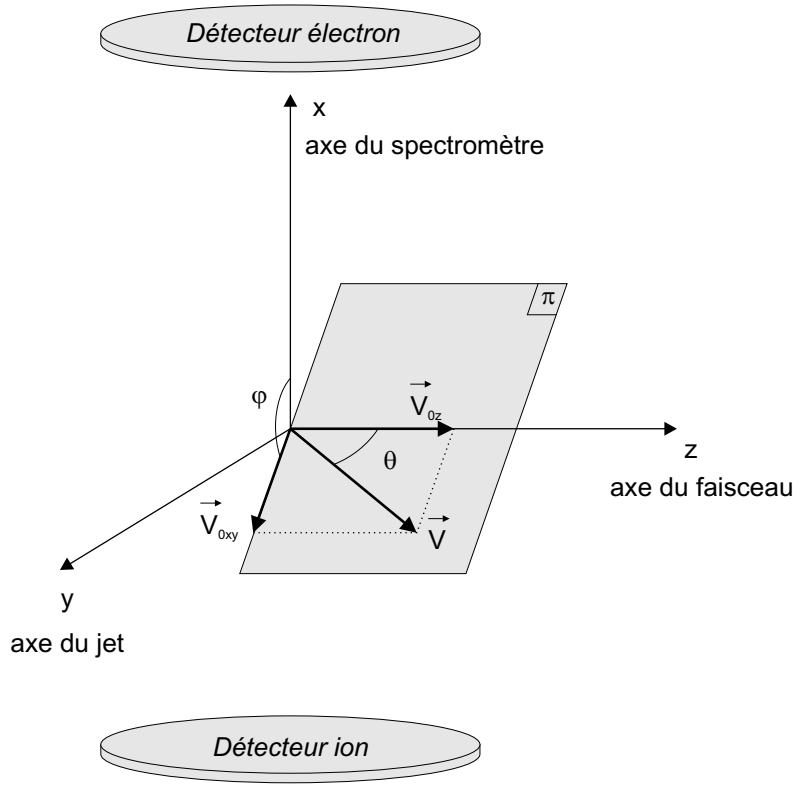


FIG. B.1 – *Définition des angles d'émission (θ, φ) d'une particule (électron, ion) animée d'une vitesse initiale $\vec{V}$.*

B.2 Relation entre les angles (θ, φ) et les composantes du vecteur vitesse initiale (V_{0x}, V_{0y}, V_{0z})

Angle θ

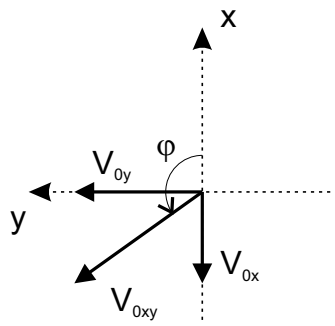
Comme l'indique la figure B.1, l'angle θ entre la direction d'émission de la particule et celle du faisceau projectile découle de la relation suivante :

$$\theta = acos\left(\frac{V_{0z}}{V}\right) = acos\left(\frac{V_{0z}}{\sqrt{V_{0x}^2 + V_{0y}^2 + V_{0z}^2}}\right) \tag{B.1}$$

où V est le module du vecteur vitesse initiale de la particule.

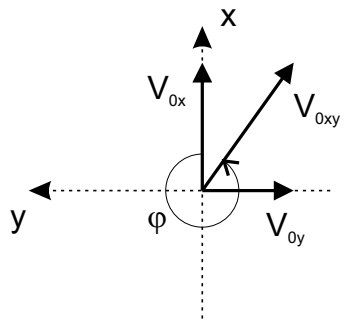
Angle φ

L'angle φ est quant à lui déterminé à partir des composantes V_{0x} et V_{0y} du vecteur vitesse initiale de la particule. En posant $V_{0xy} = \sqrt{V_{0x}^2 + V_{0y}^2}$, il vient :



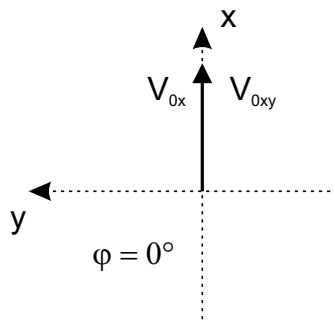
si $V_{0y} > 0$ alors :

$$\varphi = acos\left(\frac{V_{0x}}{V_{0xy}}\right) = acos\left(\frac{V_{0x}}{\sqrt{V_{0x}^2 + V_{0y}^2}}\right) \quad \text{(B.2)}$$



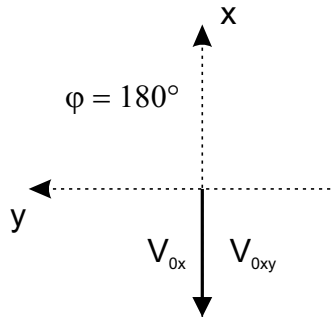
si $V_{0y} < 0$ alors :

$$\varphi = 360 - acos\left(\frac{V_{0x}}{V_{0xy}}\right) = 360 - acos\left(\frac{V_{0x}}{\sqrt{V_{0x}^2 + V_{0y}^2}}\right) \quad \text{(B.3)}$$



si $V_{0y} = 0$ et $V_{0x} > 0$ alors :

$$\varphi = 0 \quad \text{(B.4)}$$



si $V_{0y} = 0$ et $V_{0x} < 0$ alors :

$$\varphi = 180 \quad \text{(B.5)}$$

Annexe C

Programme de simulation Monte Carlo

Sommaire

C.1 Présentation du programme 175
C.2 Structure du programme 177

Le programme de simulation développé a pour fonction de déterminer les caractéristiques des observables significatives mesurées directement ou indirectement à l'aide du dispositif expérimental (*Temps de vol*, *Positions*, *Energie*, *Angles d'émission*), pour une configuration donnée de l'appareil (géométrie du spectromètre, intensité des champs, pas de codage du TDC). Les intérêts d'un tel outil sont donc multiples. D'une part, il apporte un soutien important lors de la phase d'optimisation du spectromètre de vitesse. D'autre part, il permet de tester la validité des programmes d'analyse des données enregistrées en cours d'expérience.

C.1 Présentation du programme

L'interface graphique du programme de simulation, développé sous l'environnement Labview (National Instruments), est présentée sur la figure C.1. Cette interface comporte plusieurs zones d'entrée accessibles par l'utilisateur :

- un menu *'Paramètres d'entrée'* permettant d'accéder aux différentes interfaces d'entrée (par exemple l'interface *'Type de particle'*);
- un menu *'Visualisation'* permettant d'accéder aux différents spectres mono- ou bidimensionnels (cf. figure C.2);

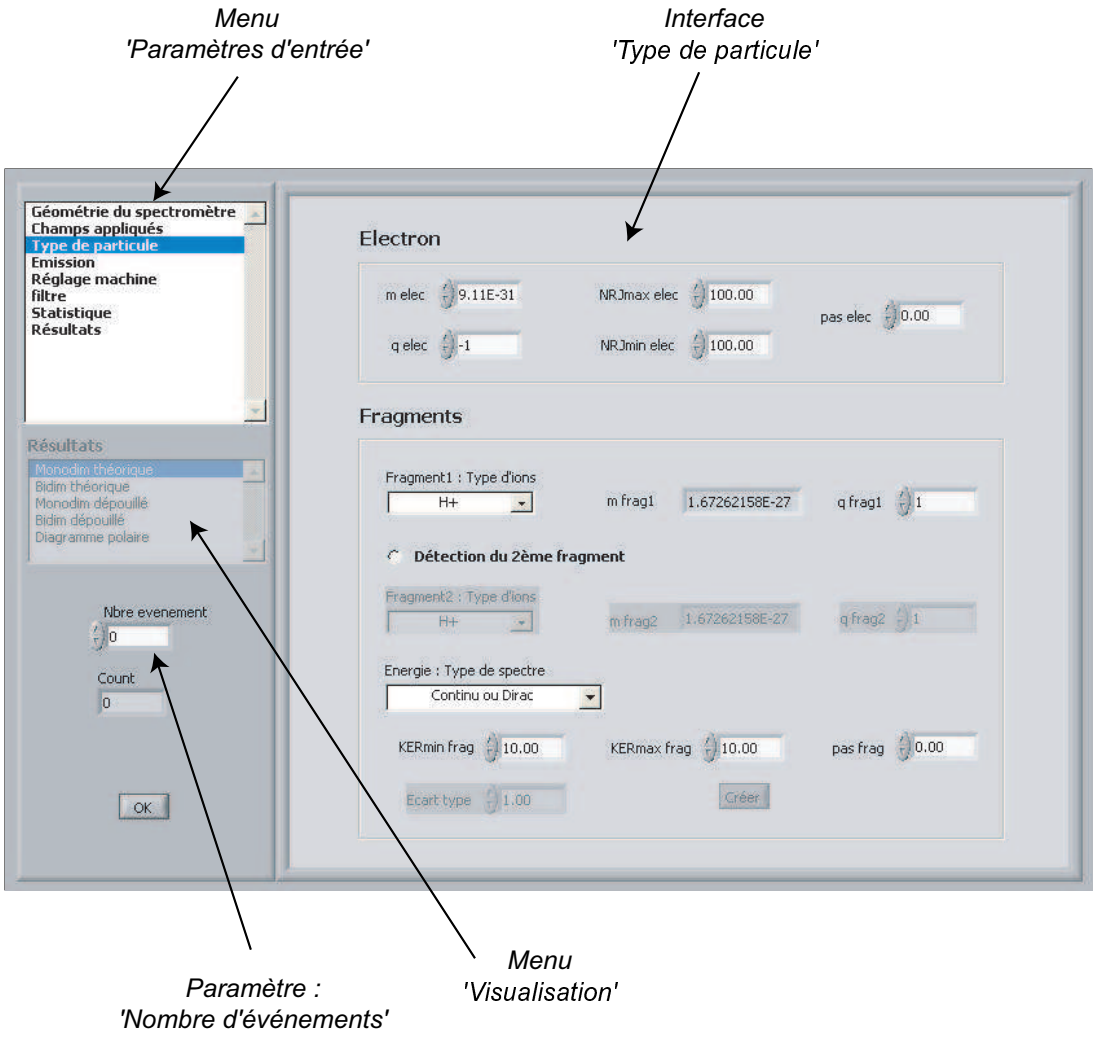


FIG. C.1 – *Interface graphique du programme de simulation.*

– un boîte d'entrée permettant de définir le nombre d'événements simulés.

Cette interface permet donc à l'utilisateur de spécifier l'ensemble des caractéristiques du dispositif expérimental : dimensions de chaque zone du spectromètre, intensité des champs électriques et magnétique, et pas de codage du convertisseur temps numérique. D'autre part, le programme offre également la possibilité de définir les caractéristiques cinématiques des particules (électrons, ions) émises dans le volume du spectromètre. Leur énergie et leurs angles d'émission (θ, φ) peuvent aussi bien être fixés par une constante, que définis par une distribution. Ainsi, différents types d'émission peuvent être simulés : isotrope, dipolaire par rapport à la direction du faisceau incident, ou bien par rapport à l'axe moléculaire. Si un paramètre cinématique de la particule est défini par une distribution, il est enfin possible de spécifier un nombre d'événements simulés. Ce nombre n'est *a priori* pas limité, hormis par le temps de calcul des observables significatives. Ce temps fluctue en fonction des caractéristiques de la station de travail sur laquelle tourne

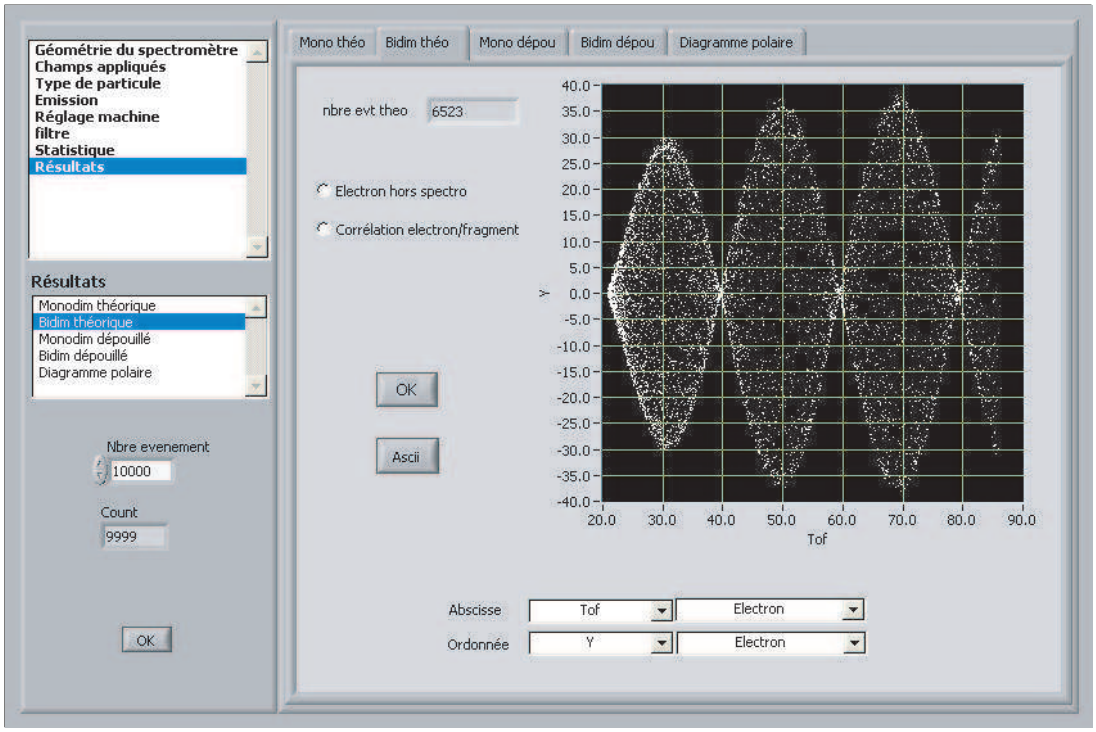


FIG. C.2 – *Interface graphique de la visualisation des résultats.*

le programme. Pour référence, sur un ordinateur standard ayant un processeur de 1 GHz et 256 Mo de mémoire Ram, la simulation de 10^5 événements nécessite un temps de calcul de l'ordre de 2 minutes.

Pour terminer cette présentation, mentionnons le fait que le programme offre la possibilité d'observer directement les spectres mono-dimensionnels des différentes observables significatives, ou bien les spectres bi-dimensionnels d'une observable en fonction d'une autre (cf. figure C.2). Ces différents spectres peuvent être déterminés pour les observables dites *'dépouillées'* et *'théoriques'*, obtenues respectivement avec ou sans la prise en compte des différentes incertitudes et résolutions de mesure (incertitudes sur la valeurs des champs, pas de codage du TDC, ...).

C.2 Structure du programme

La structure du programme est représentée sur la figure C.3. Elle est constituée de trois niveaux :

- un niveau correspondant à la détermination des observables significatives (*Temps de vol*, *Positions*) à partir des caractéristiques du dispositif et des particules;
- un niveau associé à la discrétisation des observables précédentes, reflétant leur mesure par le dispositif;

– un dernier niveau dont la fonction consiste à déterminer les observables significatives (*énergie*, *angles d'émission*) à partir des observables (*Temps de vol*, *Positions*) discrétisées.

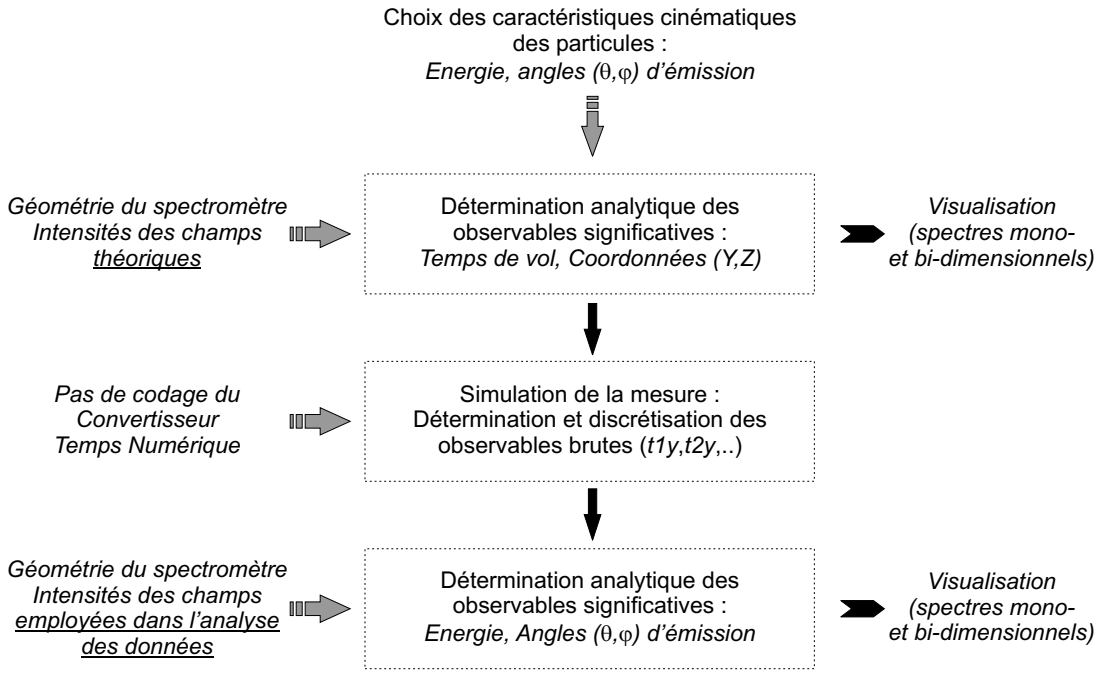


FIG. C.3 – *Structure du programme de simulation.*

Références bibliographiques

[BF73] R. Browning and J. Fryar. Dissociative photoionization of H_2 and D_2 through the $1s\sigma_g$ ionic state. *J. Phys. B : At. Mol. Phys.*, 6:364–371, 1973.

[BIKC$^+$96] I. Ben-Itzhak, Vidhya Krishnamurthi, K. D. Carnes, H. Aliabadi, H. Knudsen, U. Mikkelsen, and B. D. Esry. Ionization and excitation of hydrogen molecules by fast proton impact. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 29:L21–L28, 1996.

[BJRJ80] M. D. Burrows, L. C. McIntyre Jr., S. R. Ryan, and W. E. Lamb Jr. Dissociative ionization of H_2, D_2 and HD using electron-impact excitation. *Phys. Rev. A*, 21(6):1841, 1980.

[BKS$^+$96] B. Bapat, E. Krishnakumar, C. P. Safvan, M. J. Singh, S. K. Goel, and R. Shanker. Two-electron processes in the ionization of H_2 and D_2 by fast protons. *Phys. Rev. A*, 54(4):2925, 1996.

[BN00] D. Bodea and L. Nagy. Double excitation of the hydrogen molecule by fast charged particle impact. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 33:L27–L36, 2000.

[BRK96] B. Bapat, F. A. Rajgara, and E. Krishnakumar. Dissociative ionisation of D_2 by fast fully stripped lithium ions. *Nucl. Instrum. Methods B*, 108:243–246, 1996.

[BS01] J. S. Briggs and N. Stolterfoht. Interference structures in photo- and particle-impact ionization of molecular hydrogen. *in XXII ICPEAC, Abstracts of Papers, edited by S. Datz et al. (Rinton Press, Princeton, N.J.)*, page 565, 2001.

[Cam70] R. Campargue. *Etude par simple et double exctraction de jets supersoniques purs ou dopés, des effets intervenant dans la formation d'un faisceau moléculaire de haute intensité et d'énergie comprise entre 0 et 25 eV.* PhD thesis, Faculté des sciences de Paris, 1970.

[Cam84] R. Campargue. Progress in overexpanded supersonic jets and skimmed molecular beams in free-jet zones of silence. *Journal of Physical Chemistry*, 88(20):4466–4474, 1984.

[CBR99] S. E. Corchs, H. F. Busnengo, and R. D. Rivarola. Importance of the multicenter character of molecular aggregates in the theoretical description of the charge transfer process. *Nucl. Instrums. Methods B*, 149:247–256, 1999.

[CCF+93] S. Cheng, C. L. Cocke, V. Frohne, E. Y. Kamber, J. H. McGuire, and Y. Wang. Angular distribution of dissociated deuterons by impact of 2-16 MeV O^{8+}. *Phys. Rev. A*, 47(5):3923, 1993.

[CCK+90] S. Cheng, C. L. Cocke, E. Y. Kamber, C. C. Hsu, and S. L. Varghese. Measurement of electron capture and ionization cross sections for D_2 in collision with fast O^{8+} ions. *Phys. Rev. A*, 42(1):214, 1990.

[CF66] H. D. Cohen and U. Fano. Interference in the photo-ionization of molecules. *Phys. Rev.*, 150(1):30, 1966.

[CJP36] A. S. Coolidge, H. M. James, and R. D. Present. A study of the Franck-Condon principle. *J. Chem. Phys.*, 4:193–211, 1936.

[CM73a] A. Crowe and J. W. McConkey. Dissociative ionization by electron impact I. protons from H_2. *J. Phys. B : At. Mol. Phys.*, 6:2088–2107, 1973.

[CM73b] A. Crowe and J. W. McConkey. Experimental evidence for new dissociation channels in electron-impact ionization of H_2. *Phys. Rev. Lett.*, 31(4):192, 1973.

[Com23] A. H. Compton. The spectrum of scattered X-ray. *Phys. Rev.*, 22:409, 1923.

[Con28] E. U. Condon. Nuclear motions associated with electron transitions in diatomic molecules. *Phy. Rev.*, 32:858, December 1928.

[DBJ+98] R. Dörner, H. Bräuning, O. Jagutzki, V. Mergel, M. Achler, R. Moshammer, J. M. Feagin, T. Osipov, A Bräuning-Demian, L. Spielberger, J. H. McGuire, M. H. Prior, N. Berrah, J. D. Bozek, C. L. Cocke, and H. Schmidt-Böcking. Double photoionization of spatially aligned D_2. *Phys. Rev. Lett.*, 81(26):5776, 1998.

[DD78] J. L. Dehmer and D. Dill. Photoion angular distributions in dissociative photoionization of H_2 at 304 Å. *Phys. Rev. A*, 18(1):164, 1978.

[DK63] G. H. Dunn and L. J. Kieffer. Dissociative ionization of H_2 : a study of angular distributions and energy distributions of resultant fast protons. *Phys. Rev.*, 132(5):2109, 1963.

[EEW+91] R. L. Ezell, A. K. Edwards, R. M. Wood, M. W. Dittmann, J. F. Browning, and M. A. Mangan. Molecular orientation dependence for projectile-H_2 collisions. *Nucl. Instrum. Methods B*, 56/57:292–294, 1991.

[EWDE90] A. K. Edwards, R. M. Wood, J. L. Davis, and R. L. Ezell. Collisional ionization and excitation of H_2 : Two-electron processes. *Phys. Rev. A*, 42(3):1367, 1990.

[EWDE91] A. K. Edwards, R. M. Wood, J. L. Davis, and R. L. Ezell. Erratum : Collisional ionization and excitation of H_2 : Two-electron processes [Phys. Rev. A 42,1367 (1990)]. *Phys. Rev. A*, 44(1):797, 1991.

[EWE85a] A. K. Edwards, R. M. Wood, and R. L. Ezell. Double ionization of H_2 by fast H^+ and D^+ projectiles. *Phys. Rev. A*, 31(1):99, 1985.

[EWE85b] A. K. Edwards, R. M. Wood, and R. L. Ezell. Double ionization of H_2 by fast He^+ projectiles. *Phys. Rev. A*, 31(6):3972, 1985.

[EWE85c] A. K. Edwards, R. M. Wood, and R. L. Ezell. Double ionization of H_2 caused by two sequential projectile-electron collisions. *Phys. Rev. A*, 32(3):1873, 1985.

[EWE86] A. K. Edwards, R. M. Wood, and R. L. Ezell. Nondissociative ionization and double ionization of H_2 by H^+ and He^+ projectiles. *Phys. Rev. A*, 34(5):4411, 1986.

[EWE90] A. K. Edwards, R. M. Wood, and R. L. Ezell. Single and double ionization of H_2 by He^{2+}. *Phys. Rev. A*, 42(3):1799, 1990.

[EWME92] A. K. Edwards, R. M. Wood, M. A. Mangan, and R. L. Ezell. Collisional ionization and excitation of H_2 : Dependence on the orientation of the internuclear axis. *Phys. Rev. A*, 46(11):6970, 1992.

[EWS77] A. K. Edwards, R. M. Wood, and M. F. Steuer. Production of H^+ fragments from H_2 by fast projectiles. *Phys. Rev. A*, 16(4):1385, 1977.

[Flé99] X. Fléchard. *Etude des processus de capture électronique par spectroscopie d'impulsion d'ions de recul pour les systèmes collisionnels C^{6+} + He et Ne^{10+} + He à basse énergie*. PhD thesis, Université de Caen, 1999.

[FLS65] R. Feynman, R. B. Leighton, and M. Sands. *The Feynman Lectures on Physics*, volume III. Addison-Wesley, Reading, MA, 1965.

[FM01] J. Fernández and F. Martín. Autoionizing $^1\Sigma_u^+$ and $^1\Pi_u$ states of H_2 above the third and fourth ionization thresholds. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 34:4141, 2001.

[FPR91] P. D. Fainstein, V. H. Ponce, and R. D. Rivarola. Two-centre effects in ionization by ion impact. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 24:3091–3119, 1991.

[Gan] http://www.ganil.fr.

[GRFS02] M. E. Galassi, R. D. Rivarola, P. D. Fainstein, and N. Stolterfoht. Young-type interference patterns in electron emission spectra produced by impact of swift ions on H_2 molecules. *Phys. Rev. A*, 66:052705, 2002.

[GS75] J. L. Gardner and J. A. R. Samson. Proton kinetic-energy distributions from dissociative photoionization of hydrogen. *Phys. Rev. A*, 12(4):1404, 1975.

[GS00] I. S. Gilmore and M. P. Seah. Ion detection efficiency in SIMS : Dependencies on energy, mass and composition for microchannel plates used in mass spectrometry. *Int. J. Mass Spectrom.*, 202:217–229, 2000.

[HAL+03] S. Hossain, A. S. Alnaser, A. L. Landers, D. J. Pole, H. Knutson, A. Robison, B. Stamper, N. Stolterfoht, and J. A. Tanis. Interference effects in electron emission from H_2 by 3 and 5 MeV H^+ impact. *Nucl. Instrums. Methods B*, 205:484–487, 2003.

[HE02] Y. Hikosaka and J. H. D. Eland. Molecular frame photoelectron angular distributions in photoionization of H_2 into the H_2^+ (n=2) states. *Chem. Phys.*, 277:53–59, 2002.

[HS98] J.W. Harris and H. Stocker. *Handbook of Mathematics and Computational Science*. Springer, 1998.

[IHU96] K. Ito, R. I. Hall, and M. Ukai. Dissociative photoionization of H_2 and D_2 in the energy region of 25-45 eV. *J. Chem. Phys.*, 104(21):8449–8457, 1996.

[Jar95] P. Jardin. *Etude des mécanismes élémentaires de transfert d'énergie au cours d'une collision entre un ion lourd rapide multi-chargé et un atome neutre*. PhD thesis, CEA, 1995.

[JMUP+98] 0. Jagutzki, V. Mergel, K. Ullman-Pfleger, L. Spielberger, U. Meyer, R. Dörner, and H. Schmidt-Böcking. Fast position and time resolved read-out of micro-channelplates with the delay-line technique for single particle and photon detection. *Proc. SPIE, Imaging Spectrometry IV, M.R. Descour, S.S. Shen, Eds*, 3438:322, 1998.

[KBRK94] E. Krishnakumar, B. Bapat, F. A. Rajgara, and M. Krishnamurthy. Dissociative ionization of H_2 by fast fully stripped ions. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 27:L777–L784, 1994.

[KD67] L. J. Kieffer and G. H. Dunn. Dissociative ionization of H_2 and D_2. *Phys. Rev.*, 158(1):61, 1967.

[KSM86] W. Kołos, K. Szalewicz, and H. J. Monkhorst. New born-oppenheimer potential energy curve and vibrational energies for the electronic ground state of the hydrogen molecule. *J. Chem. Phys.*, 84(6):3278, 1986.

[KUH97] N. Kouchi, M. Ukai, and Y. Hatano. Dissociation dynamics of superexcited molecular hydrogen. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 30:2319, 1997.

[Leo87] W.R. Leo. *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments.* Springer, 1987.

[LFG+02] G. Laurent, P. D. Fainstein, M. E. Galassi, R. D. Rivarola, L. Adoui, and A. Cassimi. Orientation and interference effects in single ionization of H_2 by fast ions. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 35:L495–L501, 2002.

[LLB+00] A. Lafosse, M. Lebech, J.C. Brenot, P.M. Guyon, O. Jagutzki, L. Spielberger, M. Vervloet, J.C. Houver, and D. Dowek. Vector correlations in dissociative photoionization of diatomic molecules in the VUV range : Strong anisotropies in electron emission from spatially oriented NO molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 84(26):5987, 2000.

[LLB+03] A. Lafosse, M. Lebech, J. C. Brenot, P. M. Guyon, L. Spielberger, O. Jagutzki, J. C. Houver, and D. Dowek. Molecular frame photoelectron angular distributions in dissociative photoionization of H_2 in the region of the Q_1 and Q_2 doubly excited states. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 36:4683–4702, 2003.

[LWA+01] A. Landers, T. Weber, I. Ali, A. Cassimi, M. Hattass, O. Jagutzki, A. Nauert, T. Osipov, A. Staudte, M.H. Prior, H. Schmidt Böcking, C.L. Cocke, and R. Dörner. Photoelectron diffraction mapping : Molecules illuminated from within. *Phys. Rev. Lett.*, 87:013002, 2001.

[LYSL87] B. G. Lindsay, F. B. Yousif, F. R. Simpson, and C. J. Latimer. The dissociative ionisation of hydrogen by 5-25 kev protons : energy spectra and angular distribution of fragment ions. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 20:2759, 1987.

[MUU+96] R. Moshammer, J. Ullrich, M. Unverzagt, W. Schmitt, and B. Schmidt-Böcking. A 4π recoil-ion electron momentum analyzer: A high-resolution 'microscope' for the investigation of the dynamics of atomic, molecular and nuclear reactions. *NIM B*, 108(4):425–445, March 1996.

[NKPH02] L. Nagy, L. Kocbach, K. Póra, and J. P. Hansen. Interference effects in the ionization of H_2 by fast charged projectiles. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 35:L453–L459, 2002.

[NV92a] L. Nagy and L. Végh. Ionization of molecular hydrogen by proton impact. I. Single ionization. *Phys. Rev. A*, 46(1):284, 1992.

[NV92b] L. Nagy and L. Végh. Ionization of molecular hydrogen by proton impact. II. Two-electron processes. *Phys. Rev. A*, 46(1):290, 1992.

[NV94a] L. Nagy and L. Végh. Electronic correlation in the ionization of molecular hydrogen. *Phys. Rev. A*, 50(5):3984, 1994.

[NV94b] L. Nagy and L. Végh. Two-electron processes in ionization of molecular hydrogen. *Nucl. Instrum. Methods B*, 86:165, 1994.

[Pla62] R. L. Platzman. Superexcited states of molecules. *Radiation Research*, 17:419, 1962.

[PTM69] L. J. Puckett, G. O. Taylor, and D. W. Martin. Cross sections for ion and electron production in gases by 0.15-1.00 MeV hydrogen and helium ions and atoms. *Phys. Rev.*, 178(1):271, 1969.

[RDT+83] M. E. Rudd, R. D. Dubois, L. H. Toburen, C. A. Ratcliffe, and T. V. Goffe. Cross sections for ionization of gases by 5-4000 keV protons and for electron capture by 5-150 keV protons. *Phys. Rev. A*, 28(6):3244, 1983.

[RGID85] M. E. Rudd, T. V. Goffe, A. Itoh, and R. D. Dubois. Cross sections for ionization of gases by 10-2000 keV He^+ ions and for electron capture and loss by 5-350 keV He^+ ions. *Phys. Rev. A*, 32(2):829, 1985.

[Roe] http://www.roentdek.com.

[SACD75] J. A. D. Stockdale, V. E. Anderson, A. E. Carter, and L. Deleanu. Dissociative ionization of molecules by electron impact. I. Apparatus and kinetic energy distributions of D^+ ions from D_2. *J. Chem. Phys.*, 63(9):3886, 1975.

[SB79] S. Strathdee and R. Browning. Dissociative photoionisation of H_2 : proton kinetic energy spectra. *J. Phys. B : At. Mol. Phys.*, 12(11):1789–1804, 1979.

[SCG+99] N. Stolterfoht, J. Y. Chesnel, M. Grether, J. A. Tanis, B. Skogvall, F. Frémont, D. Lecler, D. Hennecart, X. Husson, J. P. Grandin, Cs. Koncz, L. Gulyás, and B. Sulik. Two- and three-body effects in single ionization of Li by 95-MeV/amu Ar^{18+} projectiles : Analogies with photoionization. *Phys. Rev. A*, 59:1262, 1999.

[SDR97] N. Stolterfoht, R. D. Dubois, and R. D. Rivarola. *Electron Emission in Heavy Ion-Atom Collisions*. Springer, 1997.

[SFK+03] N. Saito, A. De Fanis, K. Kubozuka, M Machida, M Takahashi, H. Yoshida, I.H. Suzuki, A. Cassimi, A. Czasch, L. Schimdt, R. Dörner, K. Wang, B. Zimmermann, V. McKoy, I. Koyano, and K. Ueda. Carbon K-shell photoelectron angular distribution from fixed-in-space CO_2 molecules. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 36:25, 2003.

[SG82] M. B. Shah and H. B. Gilbody. Ionisation of H_2 by fast protons and multiply charged ions of He, Li, C, N, and O. *J. Phys. B : At. Mol. Phys.*, 15:3441–3453, 1982.

[Sha71] T. E. Sharp. Potential energie curves for molecular hydrogen and its ions. *At. Data*, 2:119, 1971.

[SLL90] O. G. Savage, B. G. Lindsay, and C. J. Latimer. The role of two-electron excited states in the single and double ionization of hydrogen by fast helium ions. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 23:4313–4320, 1990.

[SM97] I. Sánchez and F. Martín. The doubly excited states of the H_2 molecule. *J. Chem. Phys.*, 106(18):7720, 1997.

[SM99a] I. Sánchez and F. Martín. Dissociative photoionization of H_2 and D_2 by (30-37)-ev photons via $^1\Pi_u$ states. *Phys. Rev. A*, 60(3):2200, 1999.

[SM99b] I. Sánchez and F. Martín. Doubly excited autoionizing states of H_2 above the second ionization threshold : the Q_2 resonance series. *J. Chem. Phys.*, 110(14):6702, 1999.

[SMF+03] M. Schulz, R. Moshammer, D. Fischer, H. Kollmus, D.H. Madison, S. Jones, and J. Ullrich. Three-dimensional imaging of atomic four-body processes. *Nature*, 422:48–50, March 2003.

[SMG89] M. B. Shah, P. McCallion, and H. B. Gilbody. Ionisation and electron capture in collisions of slow H^+ and He^{2+} ions with hydrogen. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 22:3983–3988, 1989.

[SPS+95] N. Stolterfoht, H. Platten, G. Schiwietz, D. Schneider, L. Gulyás, P. D. Fainstein, and A. Salin. Two-center electron emission in collisions of fast, highly charged ions with He : Experiment and theory. *Phys. Rev. A*, 52:3796, 1995.

[SSG+03] N. Stolterfoht, B. Sulik, L. Gulyás, B. Skogvall, J. Y. Chesnel, F. Frémont, D. Hennecart, A. Cassimi, L. Adoui, S. Hossain, and J. A. Tanis. Interference effects in electron emission from H_2 by 68-MeV/u Kr^{33+} impact : Dependence on the emission angle. *Phys. Rev. A*, 67:030702, 2003.

[SSH+01] N. Stolterfoht, B. Sulik, V. Hoffmann, B. Skogvall, J. Y. Chesnel, J. Rangama, F. Frémont, D. Hennecart, A. Cassimi, X. Husson, A. L. Landers, J. A. Tanis, M. E. Galassi, and R. D. Rivarola. Evidence for interference effects in electron emission from H_2 colliding with 60 MeV/u Kr^{34+} ions. *Phys. Rev. Lett.*, 87(2):023201, 2001.

[SW88] S.E. Sobottka and M.B. Williams. Delay line readout of microchannel plates. *IEEE Trans. Nucl. Science*, 35:348, 1988.

[TG60] T. F. Tuan and E. Gerjuoy. Charge transfer in molecular hydrogen. *Phys. Rev.*, 117(3):756, 1960.

[TRGR01] L. C. Tribedy, P. Richard, L. Gulyás, and M. E. Rudd. Two-center on low-energy electron emission in collisions of 1-MeV/u bare ions with atomic hy-

drogen, molecular hydrogen, and helium : II. H_2 and He. *Phys. Rev. A*, 63:062724, 2001.

[WB99] M. Walter and J. S. Briggs. Photo-double ionization of molecular hydrogen. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 32:2487–2501, 1999.

[WBICK99] E. Wells, I. Ben-Itzhak, K. D. Carnes, and Vidhya Krishnamurthi. Effect of the projectile charge on the ionization and excitation of hydrogen molecules by fast ion impact. *Phys. Rev. A*, 60(5):3734, 1999.

[WES77] R. M. Wood, A. K. Edwards, and M. F. Steuer. Dissociative ionization of H_2 and D_2 produced by bombardment with fast He^+ ions. *Phys. Rev. A*, 15(4):1433, 1977.

[WM55] W.C. Wiley and I.H. McLaren. Time-of-flight mass spectrometer with improved resolution. *Rev. Sci. Instr.*, 26:1150, 1955.

[WWB+03] T. Weber, M. Weckenbrock, M. Balser, L. Schmidt, O. Jagutzki, W. Arnold, O. Hohn, M. Schöffler, E. Arenholz, T. Young, T. Osipov, L. Foucar, A. De Fanis, R. Dìez Muiño, H. Schmidt-Böcking, C.L. Cocke, M.H. Prior, and R. Dörner. Auger electron emission from fixed-in-space CO. *Phys. Rev. Lett.*, 90(15):153003, 2003.

[YLL88] F. B. Yousif, B. G. Lindsay, and C. J. Latimer. The double ionisation of hydrogen by 5-30 keV protons. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 21:4157–4164, 1988.

[You07] T. Young. *A Course of Lectures on Natural Philosophy and the Mechanical Arts*. J. Johnson, London, 1807.

[Zar67] R. N. Zare. Dissociation of H_2^+ by electron impact : calculated angular distribution. *J. Chem. Phys.*, 47(1):204, 1967.

[ZRW+94] T. J. M. Zouros, P. Richard, K. L. Wong, H. I. Hidmi, J. M. Sanders, C. Liao, S. Grabbe, and C. P. Bhalla. Projectile-charge-state dependence of 0° binary-encounter electron production in 30-MeV $O^{q+} + O_2$ collisions. *Phys. Rev. A*, 49:3155, 1994.

Etude de l'émission électronique induite par impact d'ion multichargé sur la molécule D_2

Résumé

Les différents mécanismes d'ionisation dissociative consécutifs à la collision entre un ion projectile multichargé (S^{15+} 13.6 MeV/u) et la molécule D_2, ont été étudiés à partir des corrélations vectorielles entre les vecteurs impulsions de fragments D^+ et d'électrons produits. Le travail a donc dans un premier temps consisté à développer un dispositif expérimental capable de détecter en coïncidence toutes les particules chargées produites lors d'une collision. La mesure de leur vecteur impulsion, qui permet d'accéder à leur énergie cinétique et leur direction d'émission initiale par rapport à celle du faisceau, combine les techniques de temps de vol et de localisation. La corrélation entre les énergies cinétiques des fragments et des électrons produits permet d'une part de déterminer la contribution de chacun des mécanismes d'ionisation dissociative au processus global d'ionisation, et d'autre part de séparer sans ambiguïté les distributions d'énergie cinétique des fragments D^+ correspondant à chacun de ces mécanismes. Enfin, l'analyse spatiale des corrélations vectorielles conduit aux distributions angulaires d'émission électronique par rapport à la direction du faisceau, pour une orientation de l'axe de la molécule et une énergie de l'électron données. Les distributions mesurées sont comparées à celles obtenues par le modèle théorique CDW-EIS.

Electron emission following fast ion-D_2 collision

Abstract

Dissociative ionisation mechanisms induced in collisions involving a highly charged ion (S^{15+} 13.6 MeV/u) and a molecular deuterium target, have been studied through momentum vector correlations of both the D^+ fragments and the electrons produced. An experimental apparatus has been developed in order to detect in coincidence all the charged particles produced during the collision. Measurement of their momentum vectors, which allows to determine both their kinetic energy and direction of emission with respect to the projectile one, combines Time of Flight, Position Sensitive Detection, and multi-coïncidence techniques. The correlation of the fragment and electron kinetic energies enables not only to determine branching ratios between the dissociative ionisation pathways, but also to separate unambigously kinetic energy distributions of fragments associated to each process. Finally, angular distributions of ejected electrons, as a function of the orientation of the molecular axis with respect to the projectile direction are deduced from the spatial correlation. Measurements are compared to theoretical angular distributions obtained using the CDW-EIS method.

Mots-clés

Interaction Ion-Molécule - Molécule d'hydrogène - Ionisation - Dynamique moléculaire

Discipline

Milieux dilués et optique fondamentale

Laboratoire

Centre Interdisciplinaire de Recherches Ions Lasers (CIRIL)
CIRIL-GANIL
Rue Claude Bloch, BP 5133, 14070 Caen cedex 5