



**HAL**  
open science

# Couplage entre un piège magnéto-optique et un spectromètre d'impulsion d'ions de recul ; applications aux collisions ions-atomes

J. Blicq

► **To cite this version:**

J. Blicq. Couplage entre un piège magnéto-optique et un spectromètre d'impulsion d'ions de recul ; applications aux collisions ions-atomes. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université de Caen, 2008. Français. NNT : . tel-00339513

**HAL Id: tel-00339513**

**<https://theses.hal.science/tel-00339513>**

Submitted on 18 Nov 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.



# UNIVERSITE de CAEN/BASSE-NORMANDIE

U. F. R. : SCIENCES

ECOLE DOCTORALE SIMEM

**THESE**

présentée par

**M. Jérémy Blicq**

et soutenue

**le 22 octobre 2008**

en vue de l'obtention du

**DOCTORAT de l'UNIVERSITE de CAEN**  
**Spécialité : Milieux Dilués et Optique Fondamentale**

**(Arrêté du 7 août 2006)**

**Couplage entre un piège magnéto – optique et un spectromètre d'impulsion  
d'ions de recul ; application aux collisions ions – atomes**

## **MEMBRES du JURY**

- M. Brett D. DePaola, Professeur, Kansas State University (rapporteur)
- M. Philippe Roncin, Directeur de Recherche CNRS, Université de Paris XI (rapporteur)
- M. Paul Indelicato, Directeur de Recherche CNRS, Université Pierre et Marie Curie
- M. Xavier Fléchar, Chargé de Recherche CNRS, Université de Caen Basse-Normandie
- M. Bernard Pons, Maître de Conférences, Université de Bordeaux 1
- M. Jean-Claude Steckmeyer, Directeur de Recherche CNRS, Université de Caen Basse-Normandie (directeur de thèse)
- M. Dominique Hennecart, Chargé de Recherche CNRS, Université de Caen Basse-Normandie (co-directeur de thèse)

*A mes parents, Jonathan, Mathilde et Sophie*

*Mots, profits d'un quart d'heure arrachés à l'arbre calciné du langage, entre les bons jours et les bonnes nuits, portes d'entrée et de sortie, entrée d'un corridor qui va de nulle part à nulle part.*

Octavio Paz

J'exprime toute ma reconnaissance, toute ma gratitude, aux écoles de la République, à leurs enseignants qui m'ont instruit, encouragé, sermonné, délivré, relevé, lancé.

J'exprime ma reconnaissance respectueuse à l'assemblée savante et scientifique qui a fait l'exégèse de ma thèse : M. le Docteur J.-C. Steckmeyer, M. le Docteur D. Hennecart, M. le Docteur P. Roncin, M. le Professeur B. DePaola, M. le Docteur P. Indelicato, M. le Docteur B. Pons, et M. le Docteur X. Fléchard.

Plus particulièrement, je remercie M. le Docteur J.-C. Steckmeyer d'avoir dirigé ma thèse. Je lui présente aussi mes excuses pour le charivari et la turbulence occasionnels dans les couloirs du laboratoire en présence de M. le Professeur G. Ban.

Je remercie aussi M. le Docteur D. Hennecart d'avoir dirigé ma thèse, d'avoir été le Capitaine avisé du navire alors que simple moussaillon j'appréhendais l'océan de la physique des collisions. Merci pour tous ces éclaircissements théoriques et expérimentaux.

J'exprime aussi ma reconnaissance à M. le Docteur B. Pons pour sa collaboration.

Je témoigne aussi ma gratitude à M. le Professeur B. DePaola, tant pour son accueil à Manhattan, pour les discussions scientifiques profondes, que pour son humanité et sa sympathie. Thanks for everything, Brett. I will not forget the b-magnet conference.

Enfin, je ne peux que remercier M. le Docteur X. Fléchard, pour sa sympathie, sa patience, sa compréhension, tout son enseignement scientifique quotidien. Simple Padawan, il a fait de moi un jeune Jedi. Merci pour tout, Xavier, après trois années à se côtoyer quotidiennement, je ne peux malheureusement évoquer que certains bons moments, comme nos expériences sous une chaleur tropicale dans la salle MOT, nos bières vespérales, la conférence de Fribourg, et notre stage Mégajoule. Encore merci.

Je pense que le chemin des remerciements passe d'abord par ceux qui ont fait vivre le projet MOT. Un grand merci à ch'tiot biloute Christophe, pour les quintaux de brides montées, ses expertises du vide, et nos discussions patoisantes. Merci à cet ambassadeur du Nord. Je remercie aussi Hervé pour sa disponibilité et toute l'électronique consommée, engloutie par l'expérience. Merci à Jean-François pour ce champ magnétique de haute voltige et ses nombreux diagnostics. Merci à Jean et à Thierry d'avoir été patients quand j'arrivais penaud dans leur bureau. Merci à David, Jérôme et Thierry pour tous leurs dépannages informatiques. Merci à Laurent pour ses interventions d'urgence, et surtout pour sa bonne humeur à l'intérieur et à l'extérieur du laboratoire. Merci à Yoann pour son aide, fréquente et polyvalente, et sa gentillesse, sans oublier son ami Francky. Merci aussi à Sandrine, notre gentille bibliothécaire. Un grand merci aussi au groupe des mécaniciens : Philippe, Franck, Luc, Yvan, Hugues, et le très regretté Jean-Marc. Enfin, un grand merci aussi aux secrétaires qui m'ont guidé dans les méandres de l'administration : Evelyne, Aurélie, Catherine et Michelle.

Je remercie aussi les physiciens du CIMAP de la collaboration, à savoir Sylvain et Hervé pour leur précieuse aide, et Amine, dont la gentillesse n'a d'égale que ses conseils perspicaces, et dont les godilles n'ont d'égales que son légendaire sourire dévastateur chez les jeunes Slovaques. Amine, les conférences, c'était "ratar" !

Continuant mon détour hors du LPC, je remercie Bernd et Christiane de m'avoir ouvert les horizons enrichissants des conférences ITS LEIF, tant sur le plan intellectuel que sur le plan humain. J'en profite pour remercier Richard, Virgile, Patrick, Jimmy, Bruno, Laurent et tous les autres compagnons de soirées en conférence. Désolé pour la menthe à l'eau à minuit.

Sans aller aux quatre coins de l'Europe des conférences, je remercie les principaux organisateurs des repas de Noël du LPC, Benjamin, David et Laurent. Ces repas, avec le

séminaire de Cabourg, resteront des moments inoubliables ! Je remercie aussi mes coéquipiers éphémères de tournois footballistiques, Emmanuel, Miguel, mon coach Philippe, Philippe, Hicham, Olivier et Laurent. Par ailleurs, je remercie d'autres figures emblématiques de mes trois années au LPC : Jérôme, Julien, l'élégant Nigel, Linda, Etienne, Franck et Pierre. Grande mention spéciale au roi du Pink Jérôme. Mention particulière aussi à François-René et Jean-Luc. Le café crevettes ce sera pour une autre fois. Merci à tous les membres du LPC.

A la frontière de la science et de la nuit, je commencerai à remercier le greffier Francis, mon collègue de bureau, qui m'a prouvé que l'homme de Néanderthal pouvait s'adapter à la société de l'Internet. Demain, dès l'aube... Puis je remercierai mon co-détenu Bibite, invétéré tueur de trolls et grand nostalgique des légendes phocéennes. Je remercierai aussi Dark Fender pour une soirée cataclysmique. Merci à Kouskous pour... la soirée sur le port, l'écho du lac, les apéros à 17 heures, honesty, bref, toutes les soirées SAV. Merci à Gandro Barlino pour son accent transalpin, le bordel qu'il a causé au LPC pendant un an, la journée dans le Cotentin, toutes les soirées norvégiennes, bref, toutes les soirées estampillées Capitan. Merci au petit lapin Greg, celui qui m'a lancé dans les soirées caennaises, sur les routes de l'Orne, merci pour le dentifrice, la porte traversée et les soirées de physique. On est vraiment tous de la poussière d'étoiles. Sinon, euh, t'es goudou ? Enfin, un énorme merci aux habitués de chez Toni, à ceux du Vertigo, et aux thésards et post-doc du CRISMAT, notamment pour le carnaval 2007.

Pour conclure mes remerciements avec la partie caennaise de ma vie, je dirais : "*Quelle que soit la maigreur de l'éléphant, n'oublie pas que ses couilles remplissent une marmite.*" Merci à Fatou, fervente admiratrice de Francky Vincent, de Charles Taylor, d'Aimé Césaire et du Guadeloupéen, pour l'entretien quotidien de mes abdominaux. Qu'évoquer ? Doudou Bruni ? Nikos et Dimitris en Crête ? La figue ? Les délires sont trop nombreux. Juste merci.

*Avant la perruque et le justaucorps  
il y eut l'eau, les fleuves artériels  
et il y eut l'onde lustrée des cordillères*

Pablo Neruda

Je clorai ce préambule à ma thèse en remerciant toute ma famille et tous mes amis de Lille et Paris. Il y a certaines gratitudes qui se passent de mots.

La thèse présentée dans ce manuscrit vise à comprendre un petit fragment de la Nature.

*Va prendre tes leçons dans la Nature.*

Léonard de Vinci

<b>1</b>	<b>INTRODUCTION .....</b>	<b>3</b>
1.1	CONTEXTE SCIENTIFIQUE ET MOTIVATIONS EN PHYSIQUE ATOMIQUE .....	3
1.2	CONTEXTE SCIENTIFIQUE ET MOTIVATIONS EN PHYSIQUE NUCLEAIRE .....	3
1.3	SPECTROSCOPIE D'IMPULSION D'IONS DE RECOL .....	3
1.4	LA TECHNIQUE MOTRIMS .....	3
1.4.1	<i>Préambule</i> .....	3
1.4.2	<i>Dynamique électronique</i> .....	3
1.4.2.1	Capture et ionisation d'électrons de couches internes et externes du sodium par impact protonique ....	3
1.4.2.2	Transfert électronique lors de collisions $O^{6+} + Na(3s)$ .....	3
1.4.2.3	Capture électronique à partir d'atomes de sodium excités .....	3
1.4.3	<i>Sections efficaces différentielles de capture électronique</i> .....	3
1.4.3.1	Cibles de $Na(3s)$ et $Na(3p)$ .....	3
1.4.3.1.1	$Li^+ + Na(3s, 3p)$ .....	3
1.4.3.1.2	$Na^+ + Na(3s, 3p)$ .....	3
1.4.3.1.3	$K^+ + Na(3s, 3p)$ .....	3
1.4.3.1.4	$H^+ + Na(3s)$ .....	3
1.4.3.2	Collisions avec des cibles de $Rb(5s)$ et $Rb(5p)$ .....	3
1.4.3.3	$O^{6+} + Na(3s)$ .....	3
1.4.4	<i>Sonde de la dynamique des états excités</i> .....	3
1.4.5	<i>Dynamique quantique à plusieurs corps</i> .....	3
1.4.6	<i>Autres applications de la technique MOTRIMS</i> .....	3
1.5	PLAN DE LA DISSERTATION .....	3
<b>2</b>	<b>METHODES THEORIQUES .....</b>	<b>3</b>
2.1	INTRODUCTION .....	3
2.2	METHODE QUANTIQUE .....	3
2.2.1	<i>Préambule</i> .....	3
2.2.2	<i>Formalisme de la CRC (Common Reaction Coordinate, en anglais)</i> .....	3
2.2.2.1	Systèmes de Jacobi .....	3
2.2.2.2	Fonction d'onde totale .....	3
2.2.2.3	Construction de la CRC en zones asymptotiques .....	3
2.2.2.4	Construction de la CRC en zone moléculaire .....	3
2.2.2.5	Fonction d'onde totale asymptotique dans le formalisme de la CRC .....	3
2.2.3	<i>Traitement quantique de la collision</i> .....	3
2.2.3.1	Equations couplées .....	3
2.2.3.2	Diabatisation de Smith de la base moléculaire .....	3
2.3	METHODE SEMI – CLASSIQUE .....	3
2.3.1	<i>Introduction</i> .....	3
2.3.2	<i>Formalisme CTF (Common Translation Factor, en anglais)</i> .....	3
2.3.3	<i>Alternative au traitement semi – classique moléculaire</i> .....	3
2.3.4	<i>Discussion</i> .....	3
2.4	APPLICATION AU SYSTEME $Na^+ + Rb$ .....	3
2.4.1	<i>Potentiel modèle</i> .....	3
2.4.1.1	Potentiel modèle employé .....	3
2.4.1.2	Expression du potentiel modèle .....	3
2.4.1.3	Application aux atomes Na et Rb .....	3
2.4.2	<i>Calcul moléculaire</i> .....	3
2.4.2.1	Choix de la base .....	3
2.4.2.2	Diagrammes de corrélation et couplages .....	3
<b>3</b>	<b>MOTRIMS .....</b>	<b>3</b>
3.1	SPECTROSCOPIE D'IMPULSION D'IONS DE RECOL .....	3
3.1.1	<i>Introduction</i> .....	3
3.1.2	<i>Spectroscopie d'impulsion d'ions de recul</i> .....	3
3.1.2.1	Concept général .....	3
3.1.2.2	Cinématique .....	3
3.1.2.3	Composante transverse de l'impulsion de l'ion de recul .....	3
3.1.2.4	Composante longitudinale de l'impulsion de l'ion de recul .....	3
3.1.2.5	Discussion .....	3
3.1.3	<i>Le spectromètre d'impulsion d'ions de recul</i> .....	3
3.1.3.1	Temps de vol .....	3

3.1.3.2	Calcul de l'impulsion de l'ion de recul.....	3
3.1.3.3	Spectromètre à champ d'extraction inhomogène .....	3
3.2	MOT.....	3
3.2.1	<i>Introduction</i> .....	3
3.2.2	<i>Fondements historiques</i> .....	3
3.2.3	<i>Refroidissement laser et piégeage magnéto – optique</i> .....	3
3.2.3.1	Refroidissement des atomes .....	3
3.2.3.2	Piégeage des atomes.....	3
3.2.3.3	Généralisation à trois dimensions.....	3
3.2.4	<i>Piégeage magnéto – optique du rubidium</i> .....	3
3.3	MOTRIMS.....	3
3.3.1	<i>Introduction à la technique MOTRIMS</i> .....	3
3.3.1.1	La technique MOTRIMS comme extension de la technique COLTRIMS .....	3
3.3.1.2	Le champ d'application de la technique MOTRIMS .....	3
3.3.1.3	Description générale du dispositif .....	3
3.3.1.3.1	Extraction longitudinale.....	3
3.3.1.3.2	Extraction transverse.....	3
3.3.1.3.3	Reaction microscope.....	3
3.3.2	<i>Sections efficaces relatives totales de transfert électronique</i> .....	3
3.3.3	<i>Sections efficaces absolues</i> .....	3
3.3.4	<i>Fraction excitée</i> .....	3
3.3.5	<i>Commentaires conclusifs</i> .....	3
<b>4</b>	<b>DISPOSITIF EXPERIMENTAL .....</b>	<b>3</b>
4.1	INTRODUCTION .....	3
4.2	LE PIEGE MAGNETO – OPTIQUE .....	3
4.2.1	<i>Le système laser</i> .....	3
4.2.2	<i>Stabilisation en fréquence</i> .....	3
4.2.3	<i>Chambre du piège</i> .....	3
4.2.4	<i>Caractéristiques du nuage d'atomes froids</i> .....	3
4.2.4.1	Calibration de la caméra CCD.....	3
4.2.4.2	Mesure des caractéristiques du nuage d'atomes froids.....	3
4.2.4.3	Transformée inverse d'Abel.....	3
4.3	COMMUTATION RAPIDE DU CHAMP MAGNETIQUE .....	3
4.4	LA LIGNE DE PROJECTILES .....	3
4.4.1	<i>Etude de la ligne de projectiles ioniques</i> .....	3
4.4.2	<i>Le détecteur des projectiles neutralisés</i> .....	3
4.5	LE SPECTROMETRE D'IONS DE RECU.....	3
4.5.1	<i>Le détecteur d'ions de recul</i> .....	3
4.5.2	<i>Le spectromètre d'impulsion d'ions de recul</i> .....	3
4.5.2.1	Constitution mécanique du spectromètre d'impulsion d'ions de recul .....	3
4.5.2.2	Champ d'extraction inhomogène.....	3
4.5.2.3	Simulations du spectromètre .....	3
4.5.2.3.1	Configuration initiale des ions .....	3
4.5.2.3.2	Méthode de simulation.....	3
4.5.2.3.3	Résultats de simulation .....	3
4.5.2.3.4	Conclusions relatives aux simulations.....	3
4.6	SYSTEME D'ACQUISITION DE DONNEES.....	3
4.6.1	<i>Reconstruction de l'impulsion de l'ion de recul</i> .....	3
<b>5</b>	<b>RESULTATS EXPERIMENTAUX.....</b>	<b>3</b>
5.1	INTRODUCTION .....	3
5.2	METHODE D'ANALYSE DES RESULTATS .....	3
5.2.1	<i>Résultats bruts</i> .....	3
5.2.2	<i>Filtres analytiques</i> .....	3
5.2.3	<i>Evènements sans champ magnétique</i> .....	3
5.2.4	<i>Cibles dans l'état fondamental et dans l'état excité</i> .....	3
5.2.5	<i>Détermination de sections efficaces différentielles</i> .....	3
5.2.5.1	Sections efficaces différentielles en $P_{R//}^f$ .....	3
5.2.5.2	Sections efficaces totales relatives et fractions excitées .....	3

5.2.5.3	Sections efficaces doublement différentielles en $P_{R//}^f$ et en $P_{R\perp}^f$ .....	3
5.3	RESULTATS ET DISCUSSION.....	3
5.3.1	<i>Performances instrumentales du dispositif expérimental</i> .....	3
5.3.2	<i>Fraction excitée</i> .....	3
5.3.3	<i>Résultats expérimentaux et théoriques</i> .....	3
5.3.3.1	Sections efficaces différentielles en $Q$ de réaction .....	3
5.3.3.1.1	Données physiques expérimentales .....	3
5.3.3.1.2	Confrontation avec la théorie .....	3
5.3.3.2	Sections efficaces différentielles en $Q$ de réaction et en angle de diffusion .....	3
5.3.4	<i>Discussion scientifique</i> .....	3
5.3.4.1	Résumé des résultats et des comparaisons.....	3
5.3.4.2	Sources d'erreurs possibles venant de la théorie .....	3
5.3.4.2.1	Première source d'erreur possible liée à la méthode semi – classique .....	3
5.3.4.2.2	Seconde source d'erreur possible liée aux potentiels modèle.....	3
5.3.4.2.3	Conclusions.....	3
5.3.4.3	Sources d'erreurs possibles venant de l'expérience.....	3
5.3.4.3.1	Non symétrie cylindrique du spectromètre.....	3
5.3.4.3.2	Présence de champs (électriques et/ou magnétiques) parasites .....	3
5.3.4.3.3	Orientation accidentelle de la cible .....	3
5.3.4.3.4	Conclusions.....	3
5.3.5	<i>Conclusion sur les résultats de sections efficaces différentielles</i> .....	3
<b>6</b>	<b>CONCLUSION ET PERSPECTIVES.....</b>	<b>3</b>
6.1	CONCLUSIONS SUR CETTE EXPERIENCE.....	3
6.2	PERSPECTIVES .....	3
6.2.1	<i>Mise en place d'une double grille</i> .....	3
6.2.2	<i>Mesures de fraction excitée</i> .....	3
6.2.3	<i>Cibles anisotropes : alignement et orientation</i> .....	3
6.2.4	<i>Sections efficaces absolues</i> .....	3
6.2.5	<i>Applications futures de la technique MOTRIMS</i> .....	3
6.2.5.1	Collisions électroniques.....	3
6.2.5.2	Photo – ionisation et ionisation photo – associative .....	3
6.2.5.3	Piégeage d'atomes radioactifs .....	3
<b>7</b>	<b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES .....</b>	<b>3</b>
<b>8</b>	<b>ANNEXE : CALCUL DES INCERTITUDES .....</b>	<b>3</b>
8.1	INCERTITUDES SUR LES AIRES DES SPECTRES DE SECTIONS EFFICACES DIFFERENTIELLES EN $P_{R//}^f$ .....	3
8.2	INCERTITUDES SUR LES SECTIONS EFFICACES RELATIVES DIFFERENTIELLES EN $Q$ DE REACTION .....	3



# 1 Introduction

La physique tente de connaître un objet particulier, celui de la Nature. Son étymologie grecque rappelle cette vocation. Sans faire de tort aux antiques civilisations de l'Égypte, de Babylone ou d'autres illustres contrées, fondatrices d'une astronomie millénaire, la "science de la nature" garde son sens originel de l'époque hellénistique jusqu'à l'avènement de la physique moderne de Galilée. Sa dénomination antique désigne la connaissance de toute la nature matérielle.

Alors que l'Europe s'ouvre au monde et sort des torpeurs médiévales, le principe d'inertie de Galilée sacre symboliquement, et arbitrairement, la physique moderne et restreint sa signification. Le cartésianisme puis la physique classique newtonienne développent ses concepts. Aujourd'hui, la physique décrit quantitativement et conceptuellement les composants fondamentaux de l'univers, les forces qui s'y exercent et leurs effets.

Quatre champs composent la physique contemporaine et étudient chacun un objet distinct. L'astrophysique a pour objet la connaissance des phénomènes et des constituants astronomiques tels que les galaxies. La physique de la matière condensée étudie des objets macroscopiques au travers, par exemple, de la physique du solide ou des matériaux. Ensuite, un troisième champ regroupe la physique atomique, la physique moléculaire et l'optique fondamentale. Enfin, la physique nucléaire et la physique des particules s'intéressent aux constituants subatomiques.

La physique contemporaine s'appuie sur une méthodologie éprouvée pour approcher la connaissance de ses objets, en s'affranchissant le plus possible des limites des capacités cognitives de ses utilisateurs. Ses deux axes méthodologiques sont la théorie et l'expérience. L'expérience n'accepte que les résultats mesurables et reproductibles, puis infirme ou confirme les hypothèses formulées par la théorie dans un cadre cohérent. L'expérience essaie de mettre en évidence le fait, d'amener le phénomène dans le champ cognitif de l'homme, tandis que la théorie essaie d'interpréter le fait, de le maîtriser, de le classer, et de prédire d'autres faits consécutifs ou causaux. La prédiction résume toute la puissance de la physique.

Le travail transcrit dans cette thèse est un travail expérimental de physique atomique. Il s'inscrit dans une collaboration avec des théoriciens dont les résultats sont aussi mentionnés. Cependant, la raison d'être de cette expérience trouve des motivations en physique atomique et aussi en physique des particules.

La physique atomique décrypte les phénomènes induits par les atomes et leurs constituants, mais aussi les ions, les électrons, et les photons. Elle s'apparente intimement à la physique moléculaire et à l'optique fondamentale. Des théories extrêmement précises et des données expérimentales à haute résolution décrivent la structure électronique des particules atomiques.

Cependant, une compréhension approfondie des processus dynamiques lors de collisions atomiques fait largement défaut. Une collision est un choc entre deux corps, dont l'un, au moins, est en mouvement. En physique, deux particules entrent en collision lorsqu'elles interagissent via un potentiel. De ce potentiel dérive une force qui modifie conséquemment la trajectoire d'au moins l'une des deux particules. L'étude des trajectoires peut aboutir à la connaissance du potentiel et ainsi intéresser la communauté des physiciens.

Cette connaissance incomplète des processus dynamiques provient, d'une part, des problèmes théoriques pour décrire les réactions à plusieurs particules quantiques dépendantes du temps, et, d'autre part, des difficultés expérimentales à élaborer des expériences complètes où tous les paramètres sont accessibles. D'un point de vue théorique, ceci peut paraître surprenant dans la mesure où le potentiel d'interaction d'un système atomique est exactement

connu. Le manque de compréhension des processus dynamiques pour des systèmes atomiques à plusieurs particules contraste, de manière troublante, avec le monde quotidien, dont ces processus sont à la base, comme, par exemple, les réactions chimiques et les systèmes biologiques.

Le retrait d'un électron suite à la collision entre une cible atomique ou moléculaire et un ion peut illustrer un problème dynamique à plusieurs corps quantiques. Au moins trois particules participent à la collision, à savoir un ou plusieurs électrons, le cœur de la cible et le projectile. Les processus inhérents sont la capture électronique et l'ionisation. La capture électronique, aussi appelée échange de charge, transfert de charge ou transfert électronique, signifie qu'un projectile ionique capture un ou plusieurs électrons depuis une cible neutre vers des états liés du projectile. Lors d'un processus d'ionisation, le projectile ionique expulse un ou plusieurs électrons du cortège électronique de la cible sans les capturer, et les électrons expulsés deviennent des électrons libres dans le continuum. Un photon peut aussi induire un mécanisme d'ionisation lors d'un phénomène appelé photo – ionisation.

Depuis trente ans, les efforts se concentrent sur l'exploration de systèmes dynamiques simples n'impliquant que trois corps quantiques, à l'aide d'expériences cinématiquement complètes. Tous les vecteurs d'impulsion des états finaux y sont déterminés. Les corps impliqués peuvent être des particules élémentaires comme les photons ou les électrons, ou des particules plus complexes comme les ions. De nombreuses études de simple ionisation de l'atome d'hydrogène induite par un impact électronique, notée ( $e, 2e$ ), réalisées depuis 1979 [Weigold 1979], ou de double ionisation de l'hélium suite à un impact photonique, notée ( $\gamma, 2e$ ), réalisées depuis 1993 et revues par Briggs et Schmidt [Briggs 2000], avancèrent profondément la compréhension des problèmes dynamiques à trois corps. Dans certains cas, les simulations résolurent exactement le problème, comme, par exemple, pour un photon incident à de faibles énergies d'impact [Rescigno 1999]. Cependant, de troublants désaccords entre des résultats expérimentaux et des prédictions de notables théories apparurent dans les systèmes à quatre corps, avec essentiellement trois particules actives, comme la simple ionisation de l'hélium par l'impact d'un ion rapide [Schulz 2003]. Cette remarque vaut également pour les premières expériences cinématiquement complètes de double ionisation de l'hélium par impact électronique [Taouil 1998, Dorn 1999, Dorn 2001], qui exhibèrent les impressionnantes difficultés de compréhension pour l'interaction coulombienne mutuelle de quatre particules quantiques. Ainsi, les études actuelles axées sur les problèmes dynamiques à trois corps, impliquant, par exemple, des projectiles ioniques et des cibles plus lourdes que l'hydrogène ou l'hélium, renforcent et peaufinent les connaissances des problèmes dynamiques. En revanche, les études portant sur les problèmes dynamiques à quatre corps quantiques, aux avant-gardes, jouent aussi un rôle décisif dans la compréhension des problèmes dynamiques.

Les enjeux fondamentaux de physique des particules, introduits ici de manière non exhaustive, sont autres. La physique nucléaire, comme branche de la physique des particules, déchiffre et traduit les phénomènes induits par le noyau atomique, constitué de protons et de neutrons. Les mesures de précision sur la structure nucléaire sont essentielles pour une meilleure compréhension des noyaux et des interactions intrinsèques entre protons et neutrons. Par ailleurs, l'un des enjeux majeurs de la physique des particules est de tester le Modèle Standard. Ce modèle décrit les particules élémentaires et inclut dans un même cadre formel trois des quatre interactions fondamentales : l'interaction électromagnétique, l'interaction nucléaire forte et l'interaction nucléaire faible. Toute interaction s'effectue par l'échange d'un ou plusieurs bosons. L'interaction électromagnétique, par exemple, s'effectue par l'échange du photon. Malgré le consensus nimbant ce cadre théorique et les belles prédictions avérées par des expériences ultérieures, le Modèle Standard présente quelques défaillances, avec pour exemple notoire l'échec d'une description quantique de la gravitation.

De nouvelles extensions et de nouvelles théories participent à la physique "au-delà du Modèle Standard", selon l'expression consacrée. Deux types d'expériences viennent épauler et contraindre la théorie. Le premier type implique des expériences à hautes énergies, avec pour but la recherche du boson de Higgs, tandis que le second type implique des mesures de précision en physique nucléaire.

## 1.1 Contexte scientifique et motivations en physique atomique

Le processus de capture électronique joue un rôle significatif lors de collisions avec une cible solide. Etudier ce phénomène donne accès à un grand nombre d'investigations comme, par exemple, l'étude de l'endommagement des matériaux sous irradiation. Outre son aspect fondamental, cette étude ouvre la voie à la compréhension des mécanismes conduisant au vieillissement prématuré des enceintes de confinement du combustible nucléaire. L'industrie des semi-conducteurs demande également une profonde connaissance des surfaces isolantes ou métalliques. Les ions représentent un outil sophistiqué pour diagnostiquer ou pour modifier l'état des surfaces. L'éventail des phénomènes, comprenant notamment l'implantation ionique, la pulvérisation [Aumayr 2004] et la création de structures nanométriques [Aumayr 2008, El-Said 2008], est large. Le projectile diffusé a aussi fait l'objet d'études approfondies en physique fondamentale [Rousseau 2007, Schüller 2007]. Ce faisant, la cible solide sert de réservoir d'électrons pouvant être capturés dans des hauts états de Rydberg du projectile et laissant ses couches internes vides. La notion d'atome creux [Briand 1990] apparaît alors. Ce dernier se stabilise énergétiquement de manière non exclusive soit par déclin radiatif, soit par auto ionisation. La mesure de la longueur d'onde des photons émis au cours du déclin radiatif par spectroscopie de photon, ou la mesure de l'énergie des électrons émis au cours de l'auto ionisation par spectroscopie d'électron, permet de connaître la population des états multiplement excités du projectile. Il en découle l'obtention d'informations sur la structure atomique du projectile et sur les mécanismes de la collision.

Le processus de transfert électronique intervient aussi lors de collisions avec des cibles plus simples, des cibles gazeuses. Ces cibles décennales sont encore utilisées pour étudier les interactions entre des ions et des atomes. La physique atomique fondamentale trouve indéniablement son souffle depuis quelques décennies dans ces études, qui consistent non seulement à obtenir des données sur la structure des espèces multiplement chargées, comme, par exemple, les niveaux d'énergie et les probabilités de transition, à vérifier les effets relativistes, et à tester la théorie de l'électrodynamique quantique. Mais ces études consistent aussi à connaître les mécanismes gouvernant la collision, à tester les différents modèles théoriques de collisions, et à fournir des données caractéristiques de la collision telles que les sections efficaces. Ces études ont pour ambition de comprendre les objets mesurés et de fournir des modèles simplifiés de situations complexes. L'aval applicatif débouche notamment sur le développement de lasers X et UV.

Le processus de capture électronique joue aussi un rôle non négligeable dans tous les environnements constitués de particules neutres et chargées, voire hautement chargées. La recherche scientifique fondamentale, théorique et expérimentale, cherche à comprendre ces environnements, appelés plasmas. La population des états électroniques excités, qui décroissent par un canal radiatif, représente un aspect important de la capture électronique. Le spectre d'émission photonique, qui résulte du déclin de cette excitation, peut symboliser le processus primaire de capture et être utilisé pour sonder les propriétés des plasmas.

Un exemple de ces environnements, dont la capture électronique est la clef de voûte, est les plasmas créés au sein des tokamaks, dont le développement actuel vise à contrôler la fusion thermonucléaire comme source d'énergie civile. De hautes températures, de l'ordre de  $10^8$  à

$10^9$  K, sont utilisées pour obtenir la fusion du deutérium  $^2\text{H}$  et du tritium  $^3\text{H}$ . Les hautes températures provoquent la présence d'ions hautement chargés, issus d'espèces atomiques parasites dans le plasma. Ces impuretés aux conséquences néfastes diluent le combustible nucléaire et refroidissent le plasma. Ce phénomène de perte radiative, dû aux photons de déclin radiatif qui suivent la capture et ne sont pas réabsorbés par le plasma, a initialement motivé les études de collisions d'ions multiples chargés. Dans la mesure où l'émission photonique induite par la capture informe des constituants du plasma, elle peut servir de diagnostic de façon passive, ou active par l'injection de faisceaux neutres rapides [Isler 1978, Rice 1986, von Hellermann 1991, Wolfrum 1993, Isler 1994, O'Mullane 1999] pour obtenir des profils de densité du plasma, les concentrations d'impuretés, leurs profils de vitesses, et des profils de température. Une autre voie importante est le devenir des particules  $\alpha$  nées de la fusion, leur caractérisation, la mesure de leur ralentissement, leur transport et leur distribution d'états de charge. Ceci requiert la connaissance exacte des processus de capture électronique impliquant ces particules  $\alpha$  [von Hellermann 1993, Hoekstra 2007].

Par ailleurs, les processus de transfert électronique interviennent aussi dans les plasmas astrophysiques. Ils jouent un rôle déterminant dans l'analyse des raies d'excitation observées sur les nébuleuses planétaires ou dans les nuages interstellaires froids. L'échange de charge est aussi déterminant pour analyser des espèces très ionisées, impliquées dans l'interprétation de spectres observés sur des plasmas plus chauds tels que les plasmas coronaux [Pequinot 1988, Fuselier 1991, Kallman 1994]. De récents efforts étayèrent la compréhension de l'interaction entre les ions hautement chargés des vents solaires et les constituants atomiques et moléculaires des atmosphères cométaires qui émettent du rayonnement X. Peu de temps après la première observation de cette émission cométaire de rayons X [Lisse 1996], Cravens [Cravens 1997] réalisa que cette émission résultait du transfert électronique entre les ions hautement chargés des vents solaires et les particules neutres du gaz caudal des comètes. La raie d'émission du rayonnement X peut être reliée aux propriétés du vent solaire et de la comète, par exemple la vitesse du vent stellaire [Beiersdorfer 2001, Bodewits 2004].

Le phénomène d'échange de charge intervient aussi dans le développement des lasers X et UV. De nombreuses méthodes l'utilisent pour peupler les états très excités d'espèces hautement ionisées, provoquant ainsi l'inversion de population nécessaire à l'amplification laser [Matthews 1995].

Une autre manifestation des processus de capture électronique et d'ionisation se trouve dans les dommages causés aux tissus humains par des radiations ou de lourdes particules. Tout au long du chemin parcouru par la radiation primaire apparaissent des particules secondaires telles que des électrons et des ions. C'est l'interaction entre ces particules secondaires et les structures biologiques comme les brins d'ADN qui peuvent causer des dommages biologiques majeurs [de Vries 2003, Schlathölter 2004].

C'est dans ce contexte que le dispositif expérimental décrit dans la suite de ce manuscrit a été réalisé afin d'étudier le processus d'échange de charge.

## 1.2 Contexte scientifique et motivations en physique nucléaire

Deux axes majeurs constituent les études de structure nucléaire. Le premier axe englobe les mesures de rayons de charge dans les noyaux à halo, tandis que le second s'intéresse aux mesures de corrélations dans la décroissance  $\alpha$ .

Les isotopes à faible durée de vie comme  $^6\text{He}$  et  $^8\text{He}$  présentent un halo de neutrons faiblement liés autour d'un cœur de  $^4\text{He}$  [Tanihata 1992], encore nommé particule  $\alpha$ . Cette vérification expérimentale diffère du modèle initial de la goutte d'eau, où les neutrons et protons se répartissent de façon homogène dans le noyau. La déviation des rayons de charge

par rapport à celui de  ${}^4\text{He}$  donne accès à l'interaction entre le halo de faible densité et le cœur. Les mesures de rayons de charge constituent donc une belle opportunité pour sonder cette interaction. De récentes expériences déterminèrent les rayons de charge de  ${}^6\text{He}$  [Wang 2004] et  ${}^8\text{He}$  [Mueller 2007].

Ensuite, la compréhension du processus de décroissance  $\alpha$  passe par l'étude des distributions angulaires dans l'émission  $\alpha$  de noyaux déformés. Delion *et al.* [Delion 1994] proposèrent qu'une anisotropie de l'émission  $\alpha$  pourrait résulter du passage par effet tunnel au travers d'une barrière de potentiel variant avec l'angle par rapport à l'axe de symétrie du noyau.

Les tests du Modèle Standard se divisent en deux groupes. Le premier groupe étudie les effets de non conservation de parité et de violation de symétrie par renversement du temps. Le second mesure les corrélations dans la décroissance  $\beta$ .

Les effets de non conservation de parité se manifestent notamment lors de l'échange de bosons  $Z^0$  entre les électrons et le noyau de l'atome, ainsi que dans la présence d'un moment anapolaire du noyau. Les phénomènes révélés lors des expériences menées [Bennett 1999, Wood 1997] favorisent les atomes lourds comme le césium. Par ailleurs, depuis la découverte de violation de charge et de parité dans les mésons K, les sources de violation de symétrie par renversement du temps préoccupent les chercheurs. La présence d'un moment dipolaire électrique (EDM) du neutron ou de l'électron en serait une manifestation indiscutable. Si divers facteurs autorisent un EDM atomique intrinsèque, Sandars [Sandars 1967] montra qu'avec certains atomes l'EDM de l'électron peut induire un EDM atomique global bien supérieur. Sa valeur est conditionnée par le numéro atomique et favorise donc les atomes lourds. La limite actuelle d'un EDM atomique, obtenue sur le mercure, est en accord avec une valeur nulle [Jacobs 1993].

Enfin, la décroissance  $\beta$  constitue un objet unique et facile d'accès pour étudier l'interaction nucléaire faible et un pan de la physique au-delà du Modèle Standard. Des expériences prometteuses [Gorelov 2005] ont ouvert la voie à des mesures de précision pour mesurer le paramètre de corrélation angulaire bêta – neutrino.

Pour l'ensemble de ces sujets de recherche de physique nucléaire qui nécessitent des mesures de précision, le piégeage magnéto – optique des noyaux d'intérêt constitue l'une des meilleures pistes expérimentales. A l'avenir, le dispositif décrit dans ce manuscrit pourra participer à de telles expériences.

### 1.3 Spectroscopie d'impulsion d'ions de recul

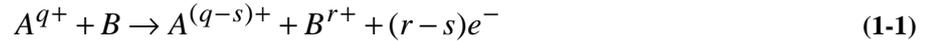
La rigueur méthodologique de la recherche en physique impose de constants échanges entre la théorie et l'expérience. Alors que l'expérience révèle les phénomènes de la Nature, la théorie tente, d'une part, d'interpréter les faits expérimentaux, et, d'autre part, de prédire d'autres faits causaux ou consécutifs. Des modèles théoriques permettent de décrire qualitativement et semi – quantitativement le comportement de systèmes complexes, et leurs prédictions sont comparées aux expériences.

Certaines applications de physique atomique nécessitent la connaissance de sections efficaces de transfert électronique et des états excités peuplés après le transfert. De plus, la compréhension des mécanismes d'échange de charge alimente les modèles théoriques et leur donne une limite réaliste plus claire à interpréter.

Lors d'une collision entre un ion simplement ou multiplement chargé et une cible atomique, trois processus physiques différents peuvent intervenir, nommément l'ionisation de la cible, l'excitation de la cible, ou l'échange de charge de la cible vers le projectile. L'importance relative de ces processus dépend de la grandeur de la vitesse de l'ion projectile  $v_p$  devant la

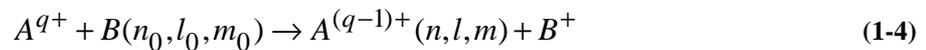
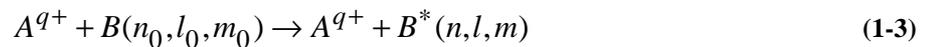
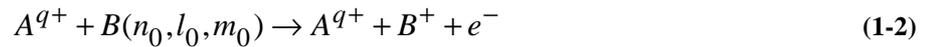
vitesse  $v_0$  des électrons actifs de l'atome cible. L'excitation domine dans le domaine des hautes vitesses ( $v_p \gg v_0$ ), et, dans le domaine des vitesses intermédiaires ( $v_p \approx v_0$ ), concurrence les deux autres processus. Dans le domaine des basses énergies de projectile ( $v_p \ll v_0$ ), le processus majeur est l'échange de charge. Le travail décrit dans ce manuscrit se place dans ce dernier régime de vitesses.

Dans le cas plus général d'un projectile ionique multiplement chargé entrant en collision avec un atome, l'expression de la collision, dans laquelle les états de charge de toutes les particules sont spécifiés, peut se résumer de la manière suivante :



Cette expression signifie que le projectile diffusé d'un angle  $\theta$  a capturé  $s$  électrons orbitant autour de la cible atomique, tandis que  $r - s$  électrons ont été expulsés vers le continuum lors de l'impact. La cible a perdu  $r$  électrons. Il est à noter que le projectile et la cible peuvent avoir des états de peuplement électronique excités après la collision. Lors d'une collision non résonante, l'énergie interne du système subit une variation appelée  $Q$  de réaction.

Plus spécifiquement, en se restreignant aux processus n'impliquant qu'un seul électron actif lors de la collision, les expressions menant au retrait ou à l'excitation d'un électron de la cible peuvent se résumer de la sorte :



pour les processus de simple ionisation, d'excitation de la cible, et de simple capture électronique, respectivement. La principale différence concernant l'excitation est que la cible reste neutre. Pour les deux autres processus, la cible ionisée s'appelle désormais ion de recul. Dans le cas de la simple capture, le projectile diffusé ne peut se désexciter que par transition radiative en émettant des photons caractéristiques de l'état de capture. Le travail de ce manuscrit concerne la simple capture électronique.

Cependant, le cas de la double capture électronique, qui met en jeu deux électrons actifs de la cible, présente l'intérêt de l'originalité des voies de déclin du projectile excité. Les deux électrons transférés peuplent des états excités sur le projectile. Cet état doublement excité emprunte soit la voie du déclin radiatif accompagné de l'émission de photons, aboutissant à une double capture stabilisée, soit la voie de l'auto – ionisation où l'un des deux électrons capturés est émis dans le continuum par effet Auger, aboutissant ainsi à une double capture auto – ionisante. L'évocation de cette situation physique ne vise qu'à clarifier le contexte de ce travail.

Les expériences pionnières sur l'échange de charge induit par une collision avec des ions multiplement chargés consistèrent en des mesures de sections efficaces totales de capture multiple [Klinger 1975]. Lors de ces expériences, les expérimentateurs ne détectèrent que le projectile diffusé sans tenir compte de la perte des électrons capturés par l'auto – ionisation du projectile, alors que ce processus n'est pas négligeable dans le cas de la capture multiple. D'autres équipes réalisèrent par la suite de nouvelles expériences plus sophistiquées [Cocke 1981, Müller 1983, Liljeby 1986], qui consistaient à mesurer en coïncidence l'état de charge

des projectiles diffusés et des ions de recul. Les fractions relatives des états de charge créés durant la collision ou les sections efficaces absolues purent être déterminées en fonction du nombre d'électrons capturés à la cible et du nombre d'électrons stabilisés sur le projectile. Ces résultats expérimentaux permirent de tester et d'étendre le modèle classique de la barrière coulombienne [Bohr 1954, Ryufuku 1980, Niehaus 1986].

Les expériences suivantes analysèrent plus finement les collisions. Plusieurs techniques bourgeonnantes collectèrent des informations sur les états peuplés par la capture électronique ainsi que sur les mécanismes physiques impliqués. Ces différentes techniques sont la spectroscopie de gain d'énergie, la spectroscopie d'électrons Auger, la spectroscopie de photons, et la spectroscopie d'impulsion d'ions de recul.

Othani *et al.* [Othani 1982] inaugurèrent l'étude de la capture électronique par spectroscopie de gain d'énergie. Ils déterminèrent le peuplement des états excités sur le projectile après la simple capture intervenant pour les systèmes  $C^{6+} + He$  et  $O^{7+} + He$ . Cependant, la technique de spectroscopie de gain d'énergie nécessite des faisceaux d'ions projectiles bien définis en énergie. De plus, la double capture auto – ionisante provoque un élargissement des raies dû à un effet cinématique lié à l'éjection de l'électron dans le continuum, rendant ainsi difficile l'identification des états peuplés et des mécanismes. Pour s'affranchir de ce problème, une équipe française monta un dispositif permettant de mesurer simultanément le gain d'énergie et l'angle de diffusion du projectile en coïncidence avec l'ion de recul [Barat 1987]. Les contributions de la simple capture, de la double capture stabilisée et de la double capture auto – ionisante furent bien séparées. Grâce aux mesures de sections efficaces différentielles, ce groupe contribua beaucoup à la compréhension des mécanismes de capture pour un grand nombre de systèmes de collisions [Barat 1990, Barat 1992, Gaboriaud 1993, Guillemot 1990, Laurent 1987, Roncin 1986-1997]. Une équipe suédoise utilisa aussi cette technique pour étudier la simple et la double capture par des projectiles très chargés  $Ar^{q+}$ , avec  $15 \ll q \ll 18$  [Cederquist 1995]. Enfin, il faut noter que cette technique fut utilisée lors d'expériences de diffusion anisotropique du projectile sur des cibles alignées et orientées à l'aide de lasers [Aumayr 1992, Dowek 1990, Houver 1992].

Plusieurs équipes développèrent parallèlement la spectroscopie d'électron Auger pour étudier les processus de capture multiple. Ce type de capture aboutit effectivement à des états multiplement excités qui se désexcitent préférentiellement par auto – ionisation. Depuis les premiers travaux de Bordenave-Montesquieu *et al.* [Bordenave-Montesquieu 1984], plusieurs groupes utilisèrent la spectroscopie d'électron pour étudier la double capture [Stolterfoht 1986, Mann 1987a, Mann 1987b, Mann 1987c, Mack 1987, Sakaue 1990, Sakaue 1991]. Leur attention se focalisa sur les processus ayant lieu après la collision [van der Straten 1986, Morgenstern 1990, Bordenave-Montesquieu 1987, Bordenave-Montesquieu 1994], sur le rôle joué par l'interaction diélectronique [Stolterfoht 1986-1993, Winter 1987, Frémont 1992-1994, Chesnel 1996-1998] et sur la dépendance angulaire de l'électron éjecté [Moretto-Capelle 1990, Holt 1991, Frémont 1992, Frémont 1994] qui permet de déterminer les sections efficaces différentielles [Khemliche 1995]. Cependant, les effets ayant lieu après la collision, qui dégradent la résolution, limitent la méthode. Il en est de même pour l'analyse de la voie de double capture auto – ionisante, sans connexion avec les voies de simple capture et de double capture stabilisée. Benoit-Cattin *et al.* [Benoit-Cattin 1988] tentèrent une étude de la capture multiple, mais devant la complexité des spectres, due au grand nombre de voies ouvertes, d'autres expérimentateurs utilisèrent une technique de coïncidence entre les électrons et l'ion de recul [Posthumus 1992a, Posthumus 1992b, Moretto-Capelle 1998].

D'autres équipes expérimentales développèrent une troisième technique fondée sur la détection des photons créés par la désexcitation des états après la collision. Certaines l'utilisèrent pour étudier les processus de simple capture [Dijkkamp 1984-1985, Boduch 1989-1992, Martin 1989-1990, Suraud 1991, Druetta 1986-1995, Bliman 1992, Jacquet 1993], dont

les états excités induits déclinent par transition radiative. Grâce à la grande résolution de cette méthode, ces expériences permirent de compléter les données de structure atomique sur les ions multiples chargés, et de déterminer les sections efficaces de simple capture pour un grand nombre de systèmes de collisions. Les effets du cœur du projectile sur la distribution en  $l$  des états de capture furent mis en évidence [Rieger 1995, Jacquet 1995, Lauhlé 1997a, Lauhlé 1997c], et Hoekstra *et al.* [Hoekstra 1993a] observèrent également l'excitation de la cible. De plus, la mesure de la polarisation des raies émises lors du processus de simple capture permet de déterminer le degré d'alignement des états produits et de sonder les mécanismes mis en jeu [Schippers 1995, Lauhlé 1995, Lauhlé 1997b]. Néanmoins, les expérimentateurs se penchèrent moins sur le processus de double capture, à cause des états doublement excités et auto-ionisants, nés de ce processus. Généralement, la présence de nombreuses raies de simple capture handicape l'interprétation des spectres de double capture obtenus par cette technique. Un groupe français résolut principalement ce problème [Martin 1993-1995, Chen 1996]. L'utilisation d'une technique de coïncidence entre les photons et les ions de recul leur permit de montrer que pour certains systèmes de collision, la population d'états de Rydberg était responsable des forts taux de stabilisation observés. La spectroscopie de photons montra également que, pour des captures à plus de deux électrons, une fraction non négligeable des électrons capturés pouvait se stabiliser sur le projectile.

Enfin, Ullrich et Schmidt-Böcking [Ullrich 1987a, Ullrich 1987b, Ullrich 1988a, Ullrich 1988b] développèrent la dernière technique, la spectroscopie d'impulsion d'ions de recul. Cette technique permet de réaliser des expériences cinématiquement complètes, tout en procurant dans une grande gamme d'énergie une bonne résolution sur les angles de diffusion et sur les  $Q$  de réaction. Certains expérimentateurs l'utilisèrent avec succès lors de l'étude de l'ionisation [Wu 1995a, Jardin 1993-1996, Cocke 1991]. Un groupe américain commença à étudier la capture électronique et détermina des  $Q$  de réaction et des angles de diffusion moyens [Ali 1992]. En revanche, l'apport de cibles très froides comme les jets supersoniques développa considérablement cette technique [Wu 1995b, Mergel 1995a, Mergel 1995b, Ullrich 1994, Duponchel 1997, Cassimi 1996, Flécharde 1997] et donna naissance à la technique COLTRIMS ("COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy" en anglais). Plusieurs revues successives [Ullrich 1997, Dörner 2000, Ullrich 2003] dépeignent excellemment cette technique.

## 1.4 La technique MOTRIMS

### 1.4.1 Préambule

Malgré ses succès expérimentaux, les cibles traditionnelles des jets supersoniques limitèrent la technique COLTRIMS. Cette dernière fournit des cibles froides de l'ordre de 0.1 K, voire au-delà, et limite ainsi la résolution des expériences de collisions. De plus, pour des expériences à haute résolution, la palette des espèces de cibles atomiques est limitée aux gaz rares (He, Ne et Ar). Pour s'affranchir de ces limitations, certains expérimentateurs étendirent la méthode COLTRIMS en combinant un piège magnéto-optique et un spectromètre d'impulsion d'ions de recul. Cette réunion de deux instruments fut nommée MOTRIMS, pour "Magneto Optical Trap Recoil Ion Momentum Spectroscopy". Les cibles atomiques obtenues par cette nouvelle technique atteignent des températures en deçà de 1 mK, i. e. de deux à trois ordres de grandeur inférieurs à celles de la technique COLTRIMS. La dispersion en impulsion due à la température des cibles tombe à  $\approx 0.01$  u.a. de manière équivalente dans toutes les directions de l'espace. De plus, la technique MOTRIMS élargit l'éventail des cibles

atomiques. Les espèces piégées couvrent les familles des alcalins, alcalinoterreux et gaz rares. Néanmoins, les espèces les plus faciles à piéger appartiennent à la famille des alcalins. Enfin, comme des lasers réalisent le piégeage optique, l'expérimentateur utilisant la technique MOTRIMS possède l'option d'étudier des collisions avec des cibles excitées.

Wolf et Helm [Wolf 1997, Wolf 2000] montèrent le dispositif pionnier associant un piège magnéto – optique et un spectromètre d'impulsion, en mesurant les énergies des ions de recul, issus d'atomes de rubidium ionisés par des photons. Trois groupes développèrent réellement la technique MOTRIMS. Le groupe danois [van der Poel 2001a-b] utilisa un piège de sodium Na pour étudier la diffraction de Fraunhofer lors de simples captures électroniques par des ions  $\text{Li}^+$ . Le groupe américain [Fléhard 2001] utilisa un piège de rubidium Rb pour mesurer principalement le spectre de  $Q$  de réaction lors du simple transfert électronique pour les collisions  $\text{Cs}^+ + \text{Rb}$ . Enfin, le groupe hollandais [Turkstra 2001a-b] utilisa aussi un piège de sodium et étudia la capture multiple lors des collisions  $\text{O}^{6+} + \text{Na}$ . Ces trois équipes couvrent de nombreuses autres études de collisions et formèrent le berceau de la technique MOTRIMS, excellemment dépeinte par DePaola *et al.* [DePaola 2008].

## 1.4.2 Dynamique électronique

Cette partie a pour ambition de donner une vue d'ensemble sur les expériences utilisant la technique MOTRIMS et étudiant des collisions entre des ions simplement ou multiples chargés et des cibles atomiques froides de sodium. Le groupe de physique atomique de KVI à Groningen réalisa la majeure partie des travaux mentionnés.

### 1.4.2.1 Capture et ionisation d'électrons de couches internes et externes du sodium par impact protonique

Le premier sujet traite de collisions entre des projectiles protoniques  $\text{H}^+$  et des cibles de sodium, dans leur état fondamental, refroidies à l'aide d'un piège magnéto – optique. Ces collisions provoquent des captures électroniques à partir de couches internes ou externes du sodium, ou des transferts électroniques de la cible vers le continuum d'ionisation.

En première approximation, le système proton/atome de sodium peut être considéré comme un système à un seul électron ; c'est donc un système idéal pour tester les modèles à un seul électron. C'est aussi la raison pour laquelle ce système fut intensément étudié dans le passé, aussi bien expérimentalement [Aumayr 1987a, Aumayr 1987b, Dowek 1990, Dubois 1985, Ebel 1987] que théoriquement [Fritsch 1991, Jain 1995, Lundy 1996], par différentes méthodes, aboutissant même à la détermination de sections efficaces totales de capture électronique. Ces études révélèrent, qu'à basse énergie, c'est presque exclusivement l'orbitale  $3s$  de l'état fondamental du sodium qui participe à la dynamique de l'interaction, tandis qu'à énergie de collision croissante les orbitales  $2p$  et  $2s$  des couches internes sont de plus en plus impliquées. Ces découvertes invalidèrent donc le choix d'utiliser des modèles à un seul électron. Néanmoins, les expérimentateurs suspectaient déjà les couches internes d'intervenir dans la dynamique de l'interaction, car, au-delà d'énergies de collisions à 20 keV, la section efficace totale de capture électronique ne diminuait pas comme le prédisaient les modèles à un seul électron, mais restait élevée. Cependant, les expériences passées ne pouvaient pas distinguer les contributions des couches internes et de la couche externe.

Knoop *et al.* [Knoop 2004] investirent le sujet en utilisant la technique MOTRIMS. Leurs mesures ne distinguèrent pas seulement ces différentes contributions grâce à la résolution de son spectre en  $Q$  de réaction et à des mesures avec un faible bruit de fond, mais elles

révélèrent aussi le rôle actif de l'électron de la couche externe dans les processus de capture à partir des couches internes. Ce dernier reste dans l'orbitale  $3s$ , ou il est promu de façon équiprobable dans l'orbitale  $3p$ , ce qui prouve qu'il n'est pas un simple spectateur lors du transfert de charge. Il faut remarquer que des effets à deux électrons actifs prennent aussi de l'importance à faible énergie de collision, comme les processus de « transfer excitation », et ne sont pas uniquement limités au domaine des hautes énergies de collision.

Knoop *et al.* [Knoop 2004] déterminèrent aussi les sections efficaces absolues des processus évoqués pour un éventail d'énergies de collision. Elles montrent qu'à énergie croissante la capture d'électrons de couches internes devient de plus en plus importante. Les résultats théoriques de ces mêmes processus [Zapukhlyak 2005], plutôt comparés avec succès, prédisent même que la capture d'électrons de couches internes supplante la capture de l'électron périphérique au-delà d'énergies de collision à 40 keV avec des projectiles protoniques.

Knoop *et al.* [Knoop 2006a] poursuivirent leurs investigations et explorèrent la gamme énergétique comprise entre 6 et 25 keV pour les protons incidents. Ils ne regardèrent que les captures électroniques à partir de la couche interne  $Na(2p)$ . A haute énergie, l'électron périphérique  $3s$  se comporte comme un électron spectateur, tandis que pour des énergies inférieures à 16 keV il semble être impliqué dans la dynamique de la collision, étant promu dans l'orbitale  $3p$  avec une forte probabilité.

La résolution des mesures expérimentales de Knoop *et al.* [Knoop 2006a] permit même de distinguer les différentes couches électroniques peuplées sur l'atome d'hydrogène. Les sections efficaces de ces différents peuplements furent mesurées pour une gamme d'énergies de collisions, et comparées avec succès aux résultats théoriques inspirés de la méthode TC-BGM ("Two-Center Basis Generator Method") [Fritsch 1984, Shingal 1986, Shingal 1987].

De plus, ces dernières mesures donnèrent les sections efficaces absolues d'ionisation du  $Na(3s)$  pour un panel d'énergies d'impacts protoniques, de 2 à 100 keV. Là encore, la technique MOTRIMS se démarqua des mesures passées [O'Hare 1975, Dubois 1986] en distinguant l'ionisation à partir des couches internes, négligeable, et de la couche externe du sodium. Elle facilita l'étude de trois processus différents d'ionisation qui décrivent plus finement la dynamique de l'électron périphérique éjecté vers le continuum : ce dernier reste proche de la cible (à haute énergie) ou du projectile (à basse énergie), soit il se balance entre les deux sur le point selle du potentiel coulombien ("saddle point mechanism" en anglais) [Olson 1986, Pieksma 1994, Pieksma 1997]. Pour une gamme d'énergie entre 4 et 25 keV des projectiles protoniques, les expériences utilisant la technique MOTRIMS montrèrent qu'aucun de ces trois processus d'ionisation ne domine clairement.

#### 1.4.2.2 Transfert électronique lors de collisions $O^{6+} + Na(3s)$

Le deuxième sujet traite de collisions entre des ions projectiles multiplement chargés  $O^{6+}$  et des cibles atomiques froides de sodium. D'abord, la technique MOTRIMS présente les avantages ataviques de la spectroscopie d'impulsion d'ions de recul pour étudier ce type de collisions, et elle ne pâtit donc pas d'éventuels effets inhérents à l'état multiplement excité du projectile après la collision, comme l'effet Auger ou l'autoionisation. Par ailleurs, la bonne résolution en énergie de la technique MOTRIMS est particulièrement souhaitable pour étudier les collisions mettant en jeu des ions projectiles multiplement chargés. Dans la mesure où les électrons capturés lors de telles collisions peuplent des états excités voisins, les différents processus impliqués nécessitent une bonne résolution en énergie pour être distingués les uns des autres.

Les collisions entre ions multiples chargés et atomes alcalins furent, par le passé, principalement étudiées du point de vue expérimental par la spectroscopie de photons [Schlatmann 1993, Schippers 1994, Schippers 1995, Schippers 1996, Lembo 1985, Hoekstra 1993, Jacquet 2000, Bazin 2002], exploitant le fait qu'un électron capturé lors de ces collisions peuple souvent des états excités. La théorie qui s'attela à ces systèmes se basa principalement sur des calculs Monte-Carlo de trajectoire classique (CTMC) [Pascale 1990, Schippers 1994, Schippers 1996, Hoekstra 1993, Jacquet 2000, Bazin 2002, Olson 1992, Cornelius 2000].

Turkstra *et al.* [Turkstra 2001b] utilisèrent les premiers la technique MOTRIMS pour étudier le système  $O^{6+} + Na$ . Knoop *et al.* [Knoop 2005a] complétèrent cette étude de façon plus détaillée et confronta ses résultats aux prédictions théoriques.

A une énergie de collision de 7.5 keV/uma, la simple capture électronique domine largement tandis que les processus provoquant des captures de plus de quatre électrons ne semblent pas exister. Le dispositif hollandais, grâce à sa bonne résolution en énergie, discrimina les états  $O^{5+}(nl)$  peuplés après une simple capture pour une énergie de collision comprise entre 1 et 9 keV/uma. Les états tels que  $5 \leq n \leq 9$  sont facilement discernables, et l'état  $O^{5+}(7l)$  est le canal le plus emprunté. Des résultats similaires avec des projectiles  $C^{6+}$  indiquent que le cœur électronique  $(1s)^2$  de  $O^{6+}$  voile une partie de la charge nucléaire, et que ces deux électrons n'influent pas sur le mécanisme de capture électronique. Grâce à la bonne résolution en énergie de son dispositif, Knoop *et al.* déterminèrent les sections efficaces relatives de chaque état  $O^{5+}(nl)$ . Alors que la section efficace de simple capture électronique du canal dominant  $O^{5+}(7l)$  décroît avec une énergie croissante de collision, celles des autres canaux augmentent, de façon très prononcée notamment pour les orbitales  $n=5$  et  $n \geq 9$ . Des éléments d'explication sont donnés par les distributions d'impulsion transverse des ions de recul  $Na^+$ . L'électron capturé peuple le niveau  $n=5$  lors de collisions à grands angles de diffusion, indiquant que le transfert électronique a lieu pour de petites distances internucléaires. Ceci est donc cohérent avec le fait que ce niveau est de plus en plus peuplé à énergie de collision croissante. Pour l'électron peuplant les niveaux  $n \geq 9$ , le transfert électronique a lieu pour de petits angles de diffusion et de grandes distances internucléaires. Ceci est remarquable et pourrait s'expliquer par un croisement des énergies potentielles et un couplage de type couplage de Demkov [Demkov 1964] pour de grandes distances de séparation entre les noyaux. Par ailleurs, l'observation de populations significatives dans les niveaux très excités  $He^+(nl)$ , avec  $n \geq 4$ , lors de collisions  $He^{2+} + Na(3s)$ , vient soutenir cette interprétation [Knoop 2005b]. Le lecteur voit ainsi toute l'importance des distributions en impulsion transverse des ions de recul pour l'identification des mécanismes de transfert électronique.

### 1.4.2.3 Capture électronique à partir d'atomes de sodium excités

Ce troisième sujet met en exergue la faculté d'un dispositif MOTRIMS à préparer les cibles atomiques froides dans deux états distincts. Des atomes dans l'état fondamental composent en grande partie le nuage d'atomes froids, tandis qu'une fraction d'atomes excités, typiquement comprise entre 15 et 30%, forme le reste. Les données relatives au niveau fondamental sont disponibles, sur une courte période de temps, en coupant les lasers de piégeage. Les données relatives au niveau excité sont conséquemment disponibles en soustrayant celles de l'état fondamental.

Knoop *et al.* [Knoop 2006a] se servirent de cette particularité expérimentale pour étudier les systèmes  $He^{2+} + Na(3p)$  et  $O^{6+} + Na(3p)$ , dont les cibles sont des atomes excités de sodium. Ils discriminèrent là aussi les états  $O^{5+}(nl)$  issus de la simple capture électronique. Dans cette

situation, les états facilement discernables sont tels que  $7 \leq n \leq 11$ , le canal  $O^{5+}(9l)$  étant le plus emprunté. Comme conséquence de son énergie de liaison plus faible, l'électron excité est transféré vers des états  $O^{5+}(nl)$  plus excités. En ce qui concerne le canal principal, l'électron capturé à partir de cibles excitées peuple le niveau  $9l$ , alors qu'il peuple préférentiellement le niveau  $7l$  quand il est capturé à partir de cibles dans l'état fondamental.

### 1.4.3 Sections efficaces différentielles de capture électronique

Cette partie s'attache à montrer l'avantage indéniable de la méthode MOTRIMS au travers de l'étude des sections efficaces différentielles angulaires des processus de transfert électronique. Cette étude a lieu pour des collisions à basse énergie, de l'ordre du keV, entre des cibles alcalines froides et des projectiles protoniques et ioniques, simplement et multiplement chargés. L'auteur donne un florilège des résultats obtenus.

#### 1.4.3.1 Cibles de $Na(3s)$ et $Na(3p)$

De nombreux groupes explorèrent, depuis de nombreuses années, les mécanismes de transfert électronique lors de collisions entre ions alcalins et atomes alcalins. Une revue récente [Andersen 2001] inventorie leurs travaux, complets et détaillés. Plus spécifiquement, un article plus récent [Dowek 2002] référence les travaux sur des cibles de sodium bombardées par des protons et des ions alcalins. Ces études débouchèrent sur un accord très satisfaisant entre des recherches expérimentales sophistiquées d'un côté, et d'élégantes théories basées sur l'approche close-coupling utilisant une grande base d'orbitales atomiques et/ou moléculaires. Néanmoins, les oscillations rapides des sections efficaces différentielles angulaires prédites par ces théories échappèrent à la confrontation expérimentale, les techniques conventionnelles étant incapables de résoudre ces structures. L'auteur propose de montrer comment la technique MOTRIMS dépassa cet obstacle, en présentant les résultats de sections efficaces différentielles angulaires très résolues.

##### 1.4.3.1.1 $Li^+ + Na(3s, 3p)$

Van der Poel *et al.* [van der Poel 2002] obtinrent la distribution en impulsion longitudinale des ions de reculs  $Na^+$  pour des collisions avec des projectiles  $Li^+$  à 1 keV/uma. La bonne résolution du spectre autorisa la distinction des canaux  $Na(3s) \rightarrow Li(2s)$  et  $Na(3s) \rightarrow Li(2p)$ . De précédentes études montrèrent que le canal  $Na(3s) \rightarrow Li(2s)$ , quasi résonant et dominant la dynamique de l'interaction à cette énergie, est emprunté par l'électron transféré pour de grands paramètres d'impact, typiquement de l'ordre de la dizaine d'unités atomiques.

Van der Poel *et al.* [van der Poel 2001], auparavant, avaient fait l'analogie entre une collision avec un projectile diffusé après capture électronique, et la diffraction de Fraunhofer, très connue en optique classique. La diffraction de Fraunhofer (i. e. en champ lointain) est l'une des manifestations les plus spectaculaires de la nature ondulatoire de la lumière. Quand un faisceau, issu d'une source de lumière cohérente de longueur d'onde  $\lambda$ , passe à travers un trou de rayon  $r$ , le réseau formé sur un plan distant consiste en un pic central entouré de cercles concentriques avec un espacement angulaire quasi équidistant de  $\Delta\theta = \frac{\lambda}{2r}$ . Par analogie, si une onde de matière atomique est confinée par une ouverture, un réseau de diffraction du type Fraunhofer devrait apparaître en champ lointain.

Dans [van der Poel 2002], les projectiles  ${}^6\text{Li}^+$  ont une vitesse de 0.2 u.a. correspondant à une longueur d'onde de de Broglie d'environ  $\lambda = 150$  fm. Avec un diamètre effectif  $D = 20$  u.a. centré sur la cible  $\text{Na}(3s)$ , la largeur angulaire prédite pour les anneaux de diffraction en champ lointain est le rapport entre ces deux paramètres,  $\lambda/D = 1.5 \times 10^{-4}$  rad. Il faut noter que la technique MOTRIMS est capable de résoudre une telle largeur angulaire.

Van der Poel *et al.* obtinrent, pour cinq vitesses de projectiles allant de 0.135 à 0.4 u.a. et pour le canal  $\text{Na}(3s) \rightarrow \text{Li}(2s)$ , de remarquables réseaux de diffusion angulaire où les anneaux de diffraction en champ lointain sont clairement visibles. Par ailleurs, une comparaison quantitative entre les sections efficaces différentielles ainsi obtenues et les prédictions théoriques, fondées sur des calculs d'orbitales atomiques et moléculaires, montra un excellent accord.

Pour le canal  $\text{Na}(3s) \rightarrow \text{Li}(2p)$  et la même gamme de vitesses de projectiles, van der Poel *et al.* obtinrent aussi des structures de diffraction pour les sections efficaces différentielles, mais la statistique limitée ne permit pas de conclure sur le caractère de ces oscillations rapides. Par ailleurs, les calculs utilisant des orbitales atomiques ne reproduisent pas les mesures expérimentales, et seuls les calculs utilisant des orbitales moléculaires parviennent à un accord avec l'expérience à de basses énergies de collision.

Les électrons transférés depuis l'état excité  $\text{Na}(3p)$ , orienté de manière isotrope, peuplent préférentiellement l'état  $\text{Li}(2p)$ . Les sections efficaces différentielles angulaires, obtenues avec les expériences de van der Poel *et al.*, s'accordèrent relativement bien avec les prédictions théoriques, même si les calculs utilisant des orbitales moléculaires tendent à prévoir des angles de diffusion trop petits.

Ainsi, les expériences de van der Poel *et al.* confirmèrent, d'une part, la nature ondulatoire de la matière. D'autre part, elles permirent l'accès au rayon de croisement entre les courbes de potentiel du projectile et de la cible lors d'une collision. En effet, ce rayon de croisement correspond à la distance à laquelle la capture électronique a lieu, et, par analogie, au rayon de l'objet diffractant. Il est donc directement déduit de  $\Delta\theta$ .

#### 1.4.3.1.2 $\text{Na}^+ + \text{Na}(3s, 3p)$

Van der Poel *et al.* [van der Poel 2001] explorèrent aussi les systèmes  $\text{Na}^+ + \text{Na}(3s, 3p)$  à partir d'un nuage d'atomes froids contenant environ 25% d'atomes excités  $\text{Na}(3p)$ . La masse plus grande des projectiles de ce système, comparée à celle du lithium précédemment vu, induit une plus grande résolution de diffusion angulaire. Pour ce type de collisions, les principaux canaux empruntés par les électrons de transfert sont les canaux résonants  $\text{Na}(3s) \rightarrow \text{Na}(3s)$  et  $\text{Na}(3p) \rightarrow \text{Na}(3p)$ , ce dernier ayant une section efficace 1.5 fois plus grande que celle du premier canal. Les sections efficaces différentielles angulaires, mesurées expérimentalement, concordent raisonnablement avec les prédictions théoriques des calculs utilisant des orbitales atomiques.

#### 1.4.3.1.3 $\text{K}^+ + \text{Na}(3s, 3p)$

Van der Poel *et al.* [van der Poel 2001] firent aussi des mesures avec des projectiles  $\text{K}^+$  ayant une vitesse de 0.06 ua. A cette énergie de collision et dans les limites expérimentales, aucun électron n'est transféré à partir de l'état  $\text{Na}(3s)$ . Le canal  $\text{Na}(3p) \rightarrow \text{K}(4p)$  domine le processus de transfert électronique, mais le canal  $\text{Na}(3p) \rightarrow \text{K}(4s)$  apporte aussi une faible

contribution. Les sections efficaces différentielles angulaires du canal principal montrent que, typiquement, les angles de diffusion sont inférieurs à 0.2 mrad.

#### 1.4.3.1.4 $H^+ + Na(3s)$

Knoop *et al.* [Knoop 2006b] s'intéressèrent aussi aux différences de sections efficaces différentielles angulaires pour les captures électroniques à partir de la couche interne  $Na(2p)$  et de la couche périphérique  $Na(3s)$ , utilisant des projectiles protoniques à 14 keV. Les deux mécanismes,  $H^+ + Na(3s) \rightarrow H(n=2) + Na^+(2p^6)$  et  $H^+ + Na(3s) \rightarrow H(n=1) + Na^+(2p^53p)$ , respectivement à partir de la couche externe et de la couche interne  $2p$ , se comportent différemment, le premier correspondant à de très petits angles de diffusion, et le second présentant des structures oscillantes jusqu'à de grands angles de diffusion. Supposant que le réseau d'anneaux de la capture électronique, depuis la couche interne du sodium, est l'expression de la diffraction en champ lointain, exposée au paragraphe précédent, et trouvant la longueur d'onde de de Broglie  $\lambda = 240$  fm pour le faisceau de protons, l'espacement angulaire observé  $\Delta\theta$  d'environ 1.2 mrad correspond à un rayon de capture  $R$ , pour la couche  $Na(2p)$ , d'environ 2 u.a., déduit de la relation  $\Delta\theta = \frac{\lambda}{2R}$ .

#### 1.4.3.2 Collisions avec des cibles de $Rb(5s)$ et $Rb(5p)$

Nguyen *et al.* [Nguyen 2004a] utilisèrent différentes espèces de projectiles ( $Rb^+$ ,  $K^+$ ,  $Li^+$ ) lors de collisions à 7 keV avec des cibles de rubidium dans l'état fondamental  $5s$  et dans l'état excité  $5p$ . Les principaux canaux de transfert électronique sont les canaux résonants  $Rb(5s) \rightarrow Rb(5s)$  et  $Rb(5p) \rightarrow Rb(5p)$  dans le cas de projectiles de rubidium. Dans le cas de projectiles de potassium, les canaux les plus empruntés sont  $Rb(5s) \rightarrow K(4s)$  et  $Rb(5p) \rightarrow K(4p)$ , et dans le cas du lithium, ce sont les canaux  $Rb(5s) \rightarrow Li(2s)$  et  $Rb(5p) \rightarrow Li(2p)$ . Hormis le cas de projectiles de rubidium, aucune structure oscillante n'apparaît clairement dans les sections efficaces différentielles angulaires, et il semble que la limite de résolution de la technique MOTRIMS soit atteinte. Malheureusement, aucune prédiction théorique n'est pour l'heure disponible.

Lors d'une étape précédente, le même groupe expérimental [Lee 2002] étudia le système  $Na^+ + Rb(5s, 5p)$  à des énergies de collisions de 2, 5 et 7 keV, et cette fois-ci confronta ses résultats à des prédictions théoriques. Dans ce système, les principaux canaux sont  $Rb(5s) \rightarrow Na(3p)$  et  $Rb(5p) \rightarrow Na(3p)$ , mais les canaux  $Rb(5s) \rightarrow Na(3s)$  et  $Rb(5p) \rightarrow Na(4s)$  apportent une contribution non négligeable. Les mesures de sections efficaces différentielles angulaires de ces canaux présentent un accord plutôt bon avec la théorie.

#### 1.4.3.3 $O^{6+} + Na(3s)$

Les résultats de sections efficaces différentielles angulaires, pour le système  $O^{6+} + Na(3s)$ , mènent à la compréhension des différents mouvements de populations électroniques aboutissant à la double capture vers les états  $O^{4+}(3nl')$  [Knoop 2006b]. Les mesures d'impulsions des ions de recul  $Na^{2+}$  montrent, dans un premier temps, que les niveaux  $O^{4+}(3l3l')$  et  $O^{4+}(3lnl', n \geq 6)$  sont majoritairement peuplés, les états  $O^{4+}(3l4l')$  et  $O^{4+}(3l5l')$  l'étant moins. Les sections efficaces différentielles angulaires des deux configurations électroniques les plus peuplées révèlent que le peuplement de l'état  $O^{4+}(3l3l')$  a lieu à de

grands angles de diffusion, i. e. de petites distances internucléaires, tandis que celui des états  $O^{4+}(3lnl', n \geq 6)$  a lieu à de grandes distances entre les noyaux. L'analyse théorique des courbes d'énergie potentielle corrobore ces résultats et débouche sur des conclusions scientifiques. La population de l'état  $O^{4+}(3l3l')$  a en effet lieu à de petits paramètres d'impact, inférieurs à 5 u.a., lors d'un processus en une seule étape impliquant deux électrons, i. e. par un couplage direct avec l'état initial. Enfin, les doubles transferts électroniques vers les états  $O^{4+}(3l6l')$  et  $O^{4+}(3l7l')$  ont effectivement lieu à de grands paramètres d'impact, supérieurs à 10 u.a., via deux transitions n'impliquant qu'un seul électron à la fois.

#### 1.4.4 Sonde de la dynamique des états excités

La technique MOTRIMS n'est pas seulement un instrument sophistiqué capable de mesurer des phénomènes subtils lors de processus de capture électronique, elle ne sert pas non plus uniquement à décrypter les mouvements de populations électroniques lors de collisions à basse énergie, mais elle sonde aussi la dynamique d'états excités, préparés par le piégeage magnéto – optique, franchissant ainsi les frontières de la communauté des collisions et poussant timidement les portes des communautés des atomes froids et de l'optique quantique.

La capacité de la technique MOTRIMS à mesurer la fraction excitée d'un nuage d'atomes froids en fait un puissant outil. Etant donné que les temps de collisions sont extrêmement courts, même pour des énergies de collision de quelques keV, l'expérimentateur peut mesurer la dynamique des populations d'atomes sur des échelles de temps beaucoup plus courtes que les temps de vie de désexcitation radiative du système. L'utilisateur de la technique MOTRIMS accède à cette dynamique en mesurant un spectre en  $Q$  de réaction en fonction du temps.

Brédy *et al.* [Brédy 2003] sondèrent la dynamique des populations atomiques  $5s$  et  $5p$  d'un piège de  $^{87}\text{Rb}$ . Après que Shah *et al.* [Shah 2005] mesurèrent la section efficace relative totale de capture électronique à partir du niveau  $\text{Rb}(4d)$  lors de collisions avec des ions  $\text{Na}^+$  à 7 keV, la dynamique des populations du système  $\text{Rb}(5s) - \text{Rb}(5p) - \text{Rb}(4d)$  était accessible. Gearba *et al.* [Gearba 2007] choisirent de mesurer le transfert cohérent de populations de ce système à l'aide du passage adiabatique Raman stimulé, "stimulated Raman adiabatic passage" en anglais (STIRAP), que Bergmann *et al.* [Bergmann 1998] et Süptitz *et al.* [Süptitz 1997], parmi d'autres, explorèrent théoriquement et expérimentalement sans utiliser la technique MOTRIMS. La méthodologie de la technique MOTRIMS montra clairement l'évolution au cours du temps des populations des trois niveaux avec une résolution temporelle de quelques nanosecondes, contrairement aux méthodes passées.

#### 1.4.5 Dynamique quantique à plusieurs corps

La dynamique quantique de plusieurs particules corrélées ne concerne pas uniquement la physique pure, mais aussi des domaines variés comme, par exemple, la biologie moléculaire et les réactions de cassure d'un brin d'ADN. Dans ce contexte, l'exploration de réactions atomiques fondamentales joue un rôle central, dans la mesure où l'interaction coulombienne est exactement connue, où le nombre de particules actives peut être totalement contrôlé, et où les états quantiques initiaux et finaux peuvent être complètement déterminés pour des réactions d'une complexité limitée.

De nombreuses études, récemment revues et compilées [Briggs 2000], avancèrent la compréhension des problèmes dynamiques à trois corps. Cependant, les premières expériences, cinématiquement complètes, de double ionisation de l'hélium par impact

électronique [Taouil 1998, Dorn 1999, Dorn 2001] montrèrent les lacunes de savoir de la communauté scientifique pour les systèmes à quatre particules quantiques subissant l'interaction coulombienne. C'est pourquoi d'autres expériences du même type avec des cibles d'hélium, comme la double excitation [Htwe 1994], ou l'ionisation d'un électron accompagnée de l'excitation simultanée de l'autre [Sakhelashvili 2005], jouent un rôle important dans l'avancée des connaissances. Des expériences impliquant des bombardements ioniques offrirait des opportunités similaires pour comprendre ces phénomènes, et la technique MOTRIMS est aux avant-postes pour ces expériences.

#### 1.4.6 Autres applications de la technique MOTRIMS

Les applications actuelles de la technique MOTRIMS concernent la physique nucléaire et les études de corrélations angulaires bêta – neutrino. Plusieurs dispositifs expérimentaux [Crane 2000, Crane 2001, Scielzo 2004, Gorelov 2005, Vetter 2008] combinent ainsi un piège magnéto – optique où est piégée une espèce radioactive et la détection d'ions de recul.

Quant aux applications futures éventuelles, elles concernent notamment des expériences de photo – ionisation et d'ionisation photo – associative. Dans le premier cas, le nuage d'atomes froids sert de cible à des photons projectiles ; dans le second, des photons produisent des molécules photo – associées qui servent de cibles à des projectiles ioniques. Enfin, la technique MOTRIMS peut être aussi employée lors d'études de capture électronique avec des cibles orientées.

### 1.5 Plan de la dissertation

La majeure partie du travail effectué au cours de cette thèse a concerné la conception puis le test d'un nouveau dispositif expérimental dédié à la technique MOTRIMS.

La thèse transcrite dans ce manuscrit relate une expérience de collisions de physique atomique. Le système étudié est la collision entre des ions projectiles  $\text{Na}^+$  et des atomes froids de rubidium, dans le régime des basses énergies de projectiles. Seule la simple capture électronique est envisagée. Bien que l'environnement de cette expérience appartienne entièrement à la physique atomique, il ne faut pas oublier que ce projet naquit grâce aux visions à long terme de physiciens nucléaires. En effet, ceux-ci spéculèrent sur les expériences réalisables dans leur discipline avec un piège magnéto – optique. Ces dernières, foisonnantes, couvrent les domaines de la structure nucléaire, avec notamment l'étude des noyaux à halo, et des tests du Modèle Standard, avec notamment l'étude des corrélations angulaires lors de décroissances bêta. Ainsi, ce dernier domaine cité, qui profite déjà des possibilités de la technique MOTRIMS, constitue le pont reliant la physique nucléaire à la physique atomique.

Dans une optique scientifique et empirique tout aussi ambitieuse que les domaines énoncés, cette thèse se cantonne donc à la physique atomique. La problématique de ce travail était de savoir si, d'abord, ce nouveau dispositif MOTRIMS construit des fondations mécaniques jusqu'au système d'acquisition des données, pouvait être plus performant que ses aînés sur certains points techniques, et si, ensuite, il était capable d'apporter des informations inédites sur le système de collisions étudié.

La première partie de ce manuscrit retrace, de manière non exhaustive, les modèles nés de la confrontation constructive entre les nombreuses expériences évoquées et la théorie, pour aboutir à la présentation de la méthode théorique comparée aux résultats expérimentaux obtenus.

La deuxième partie présente la convergence du piégeage magnéto – optique et de la spectroscopie d'impulsion d'ions de recul, qui accoucha de la technique MOTRIMS. L'auteur de ce manuscrit y donne une vue globale, détaillée, complète et concise de cette technique grâce à la revue rassembleuse, clarifiante et profonde de DePaola *et al.* [DePaola 2008].

La troisième partie décrit le dispositif expérimental, essentiellement constitué d'un piège magnéto – optique et d'un spectromètre d'impulsion. Cette partie décrit aussi tous les détails techniques, indispensables à la rigueur empirique, aboutissant à l'analyse des mesures réalisées.

La dernière partie s'attache à mettre en forme les résultats expérimentaux obtenus pour le simple transfert électronique  $\text{Na}^+ + \text{Rb} \rightarrow \text{Na} + \text{Rb}^+$ . Ces derniers sont comparés aux calculs théoriques lors d'une discussion la plus constructive possible.



## 2 Méthodes théoriques

### 2.1 Introduction

La nature se révèle à l'homme par des phénomènes matérialistes. Elle se révèle d'abord à ses sens, puis à sa raison. Dans un but, souvent inconscient, dont l'essence est de dominer son environnement, l'être pensant cherche à comprendre le monde et la matière qui l'entourent. Ses sens constituent son premier instrument de mesure, alors que la logique et la non contradiction, seul principe qui ne nécessite aucune démonstration, forment ses outils primaires de réflexion. Sans dogme préétabli, la confrontation entre la mesure et la réflexion est à la base de toute explication cohérente. Parfois même, cette confrontation raisonnée accouche d'une prédiction, preuve impérieuse de la compréhension et de la domination d'un phénomène.

La science moderne s'inspire, le plus souvent, de ces mécanismes. Le champ de mesures est plus vaste, l'instrumentation plus sophistiquée, et de nombreux modèles élégants soutiennent et facilitent l'intellect, mais les fondements de l'exploration du savoir restent identiques.

Ainsi, la méthodologie scientifique en physique impose une confrontation constructive entre l'expérience et les modèles théoriques. Des modèles classiques décrivent les collisions entre des ions et des atomes et les phénomènes inhérents tout au long du XX<sup>e</sup> siècle. Ces modèles, parallèles aux modèles quantiques et semi – classiques aussi introduits au cours du XX<sup>e</sup> siècle, sont encore employés aujourd'hui et leur utilisation présente principalement un double avantage. Non seulement une approche intuitive les caractérise, mais ils possèdent aussi un domaine de validité à haute énergie de projectile.

Thomas [Thomas 1927] construisit un modèle basé sur la mécanique classique pour décrire les mécanismes de transition électronique et trouver les dépendances en fonction des paramètres d'une collision entre un ion projectile et une cible atomique. Il décrivit la capture d'un électron lié par un projectile comme un événement à double diffusion. Ce mécanisme de diffusion fut expérimentalement observé par Horsdal – Pedersen *et al.* [Horsdal – Pedersen 1983], Vogt *et al.* [Vogt 1986] et Mergel *et al.* [Mergel 1997].

Bohr [Bohr 1954] introduisit par la suite l'un des modèles les plus simples pour décrire la simple capture électronique lors de collisions entre des ions multiples chargés et des atomes : le modèle de la barrière coulombienne. Plusieurs théoriciens suivirent la même voie et complétèrent ce modèle [Ryufuku 1980, Knudsen 1981, Barany 1985, Niehaus 1986], notamment en introduisant une description de la capture multiple. Ce modèle, couramment utilisé, décrit plutôt correctement la capture électronique et propose une compréhension intuitive des collisions entre ions et atomes. Sa simplicité explique son succès. Par ailleurs, deux principales hypothèses justifient ce modèle. Selon la première, deux puits de potentiel caractérisent respectivement le projectile et la cible, séparés par une barrière de potentiel coulombien. Un électron ne peut transiter d'un puits à l'autre que classiquement, i. e. si son énergie est supérieure à la barrière coulombienne. La deuxième hypothèse suppose que les électrons sont indépendants et qu'ils se déplacent librement dans le puits de potentiel moléculaire, formé par l'ion et l'atome, lors de la phase d'approche du projectile.

Enfin, un autre modèle s'attachait à décrire classiquement les collisions entre des ions et des atomes. La méthode de la trajectoire Monte Carlo classique repose sur le calcul classique des trajectoires de toutes les particules impliquées dans la collision. L'avantage de cette méthode classique est qu'elle prend en compte, de façon consistante, les sections efficaces de capture

électronique et d'ionisation dans les mêmes calculs. De plus, cette méthode est particulièrement utile pour le domaine des vitesses de collision comparables aux vitesses des électrons actifs des atomes cibles, là où les théories quantiques sont difficiles à appliquer. De nombreux théoriciens employèrent, complétèrent et affinèrent cette méthode [Abrines 1966, Olson 1977, Salop 1977, Salop 1979, Olson 1981, Reinhold 1986, Hennecart 2005], et Olson *et al.* [Olson 1987, Olson 1989, Pascale 1990] développèrent même une méthode à  $n$  corps (nCTMC), dans laquelle tous les électrons actifs sont incorporés, pour étudier les processus de capture multiple et d'ionisation multiple.

Les modèles quantiques, parfois approximés en méthodes semi – classiques, naquirent presque en même temps que les modèles classiques et se développèrent parallèlement jusqu'aujourd'hui. Alors que les modèles classiques obtiennent de probants résultats pour des vitesses de projectiles comparables ou supérieures aux vitesses des électrons actifs, les modèles quantiques sont bien mieux appropriés pour rendre compte des mécanismes induits par la collision aux faibles vitesses de projectiles. Dans ce dernier régime de vitesses, cela résulte en des temps d'interaction longs entre le projectile et la cible sur une échelle de temps électronique. Pendant la collision, les électrons se répartissent entre le projectile et la cible, formant une quasi – molécule pendant une partie de l'interaction. Ainsi, le domaine des basses vitesses est également appelé domaine moléculaire. L'approximation selon laquelle le projectile et la cible forment une quasi – molécule, supposant aussi que les électrons ont le temps de s'adapter au mouvement des noyaux, s'appelle approximation de Born – Oppenheimer ou approximation adiabatique.

Oppenheimer [Oppenheimer 1928] et Brinkman et Kramers [Brinkman 1930] appliquèrent les premiers la mécanique quantique à l'échange de charge lors de collisions entre des ions et des atomes au travers d'une théorie avec perturbation. Cependant, à des énergies inférieures à 50 keV, les sections efficaces de capture électronique sont grandes et les méthodes de perturbation ne sont pas appropriées. Massey et Smith [Massey 1933] présentèrent la première théorie sans perturbation, basée sur le développement de la fonction d'onde électronique en une série d'orbitales moléculaires. A cause de la puissance de calcul requise, l'application de cette méthode ne fut possible que plus tard. Aujourd'hui, ces calculs de "close-coupling" (couplage de canaux, en français), fondés sur une base finie d'orbitales atomiques ou moléculaires, fournissent la description quantique la plus répandue des processus de transfert de charge et d'ionisation à basses énergies de collisions.

Dans ces calculs, il est éminemment important d'inclure le plus possible d'états dans la base. Pour le processus de transfert de charge, de nombreux états finaux sont généralement peuplés, et le choix d'une grande base s'avère donc nécessaire. Lors de vitesses de collisions proches de la vitesse orbitale de l'électron actif, le processus d'échange de charge peuple particulièrement une grande distribution d'états finaux. La taille d'une base est généralement limitée par le temps de calcul.

Les théoriciens appliquèrent surtout les méthodes de close-coupling aux transitions à un seul électron, i. e. la simple capture électronique, l'excitation ou l'ionisation. Bien qu'ils soient répandus, les calculs sur des collisions entre ions et alcalins, à des énergies de l'ordre du keV, sont limités à de faibles états de charge du projectile. Les études sur des états de charge multiple sont rares [Schweinzer 1994]. La combinaison d'ions multiples chargés et de cibles atomiques alcalines est une tâche particulièrement lourde, car l'échange de charge a lieu sur des couches du projectile à grand nombre quantique principal  $n$ . Cependant, l'augmentation de puissance des calculateurs actuels limite de moins en moins ces exigeants calculs. De nombreuses revues détaillées [Bransden 1992, Fritsch 1991, Ovchinnikov 2004, Kimura 1989] rapportent les différentes méthodes théoriques fondées sur ces calculs.

Néanmoins, au sein des méthodes semi – classiques employées dans les modèles quantiques, la méthode de Landau – Zener [Landau 1932, Zener 1932] se détache par sa

simplicité et par son importance historique. Elle fut spécifiquement développée pour traiter le problème des croisements de courbes de potentiel à distance finie  $R$ . De tels croisements apparaissent pour des systèmes de collision impliquant des ions fortement chargés à cause des natures très différentes des courbes de potentiels initial et final. Des ions et des atomes neutres, par exemple, créent un potentiel attractif de polarisation dans le canal d'entrée, tandis que deux ions créent un fort potentiel répulsif coulombien dans le canal de capture électronique de sortie. Les théoriciens appliquèrent donc surtout le modèle de Landau – Zener lors du transfert de charge entre des ions fortement chargés et des atomes d'hydrogène ou d'hélium [Olson 1976, Kimura 1984, Janev 1985]. Enfin, Nikitin [Nikitin 1974] et Janev *et al.* [Janev 1983] déterminèrent les limites de validité de la méthode.

Par ailleurs, le travail présenté dans ce manuscrit est presque exclusivement un travail expérimental. Les résultats obtenus sont comparés à des calculs de close-coupling lors de la confrontation scientifique présentée dans la dernière partie du manuscrit. Le but de ce chapitre est donc d'introduire les principales notions du modèle quantique aboutissant à ces calculs de close-coupling. Pour cela, la présentation de la méthode quantique décrivant les collisions entre des ions projectiles et des cibles atomiques précède celle de l'approximation semi – classique de cette méthode confrontée aux résultats expérimentaux. B. Pons du CELIA de Bordeaux réalisa les calculs théoriques comparés aux résultats de ce travail.

## 2.2 Méthode quantique

La partie qui suit expose la méthode quantique employée. Cette méthode est la genèse de la méthode semi – classique présentée dans la partie éponyme. Toutes les expressions utilisent les unités atomiques.

### 2.2.1 Préambule

L'Hamiltonien total d'un système composé d'un ion et d'un atome entrant en collision s'écrit:

$$H = T + V \quad (2-1)$$

L'opérateur  $T$  décrit l'énergie cinétique des noyaux et des électrons du système, tandis que l'opérateur  $V$  symbolise l'énergie potentielle du système, incluant les interactions coulombiennes entre toutes les particules chargées, noyaux et électrons, ainsi que d'autres corrections comme l'interaction spin – orbite.

L'Hamiltonien total  $H$  vérifie l'équation de Schrödinger :

$$H\psi = E\psi \quad (2-2)$$

Un traitement non relativiste et quantique de collisions entre particules ioniques et atomiques, menant à des processus de transfert de charge et d'ionisation, repose sur la résolution de l'équation de Schrödinger dépendant du temps pour un état initial donné :

$$i \frac{\partial \psi(t)}{\partial t} = H\psi(t), \quad \psi(t_0) = \psi_0 \quad (2-3)$$

La probabilité de trouver le système après la collision dans un état  $f$ , représenté par la fonction d'onde  $\psi_f(t)$ , peut être déterminée par la projection de la fonction d'onde totale  $\psi(t)$  sur cet état, à un temps  $t$  bien après la collision quand les particules n'interagissent plus entre elles :

$$c_f = \lim_{t \rightarrow \infty} \langle \psi_f(t) | \psi(t) \rangle \quad (2-4)$$

La probabilité est donnée par  $|c_f|^2$ .

### 2.2.2 Formalisme de la CRC (Common Reaction Coordinate, en anglais)

Le formalisme de la CRC [Errea 1998] est un formalisme qui transforme le système de coordonnées d'un système où a lieu une collision entre une particule chargée et un atome. Il a plusieurs justifications. Il cherche d'abord à rationaliser le système de coordonnées d'un système de particules entrant en collision. Ensuite, il cherche à favoriser et à faciliter les simplifications calculatoires. Enfin, il vise à rendre compte de toute la collision. En effet, certaines méthodes quantiques ne tiennent pas compte de l'attachement de l'électron transféré à tel ou tel noyau du système et perdent de l'information. La description physique ne peut être qu'incomplète.

#### 2.2.2.1 Systèmes de Jacobi

Une collision entre deux particules A et B (chacune constituée d'un noyau et d'un cortège électronique), échangeant ou non un électron actif, présente trois situations physiques différentes, aussi appelées systèmes de Jacobi. Le premier système de Jacobi considère la zone asymptotique pour laquelle l'électron actif est lié à la particule A. L'ensemble constitué de la particule A et de l'électron actif s'approche ou s'éloigne de la particule B immobile. En ce sens, la figure 2.1 schématise un ion et un atome avant ou après la collision, et définit les vecteurs  $\vec{r}_A$  et  $\vec{R}_A$ . Ici l'électron actif est attaché à la particule A dont le cortège électronique n'est pas représenté. Aucune masse de l'atome A n'est négligée pour calculer le centre de masses  $CM_A$ . Le vecteur  $\vec{R}$  relie les deux centres nucléaires, et sa norme correspond donc à la distance internucléaire. L'opérateur  $T$  de l'énergie cinétique du système s'exprime alors :

$$T = -\frac{1}{2\mu_A} \nabla_{\vec{R}_A}^2 - \frac{1}{2m_A} \nabla_{\vec{r}_A}^2 \quad (2-5)$$

avec

$$\mu_A = \frac{(1 + M_A)M_B}{M_{tot}} \quad (2-6)$$

$$m_A = \frac{M_A}{1 + M_A} \quad (2-7)$$

où  $M_A$ ,  $M_B$  et  $M_{tot}$  représentent la masse de la particule A, celle de la particule B, et la masse totale du système, respectivement.

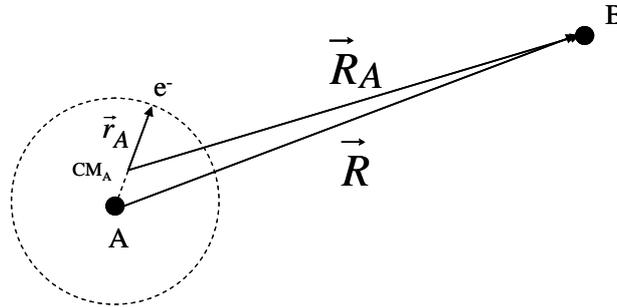


Figure 2-1 : Schéma de deux particules en phase d'approche ou d'éloignement lors d'une collision, quand l'électron actif est lié à la particule A.  $CM_A$  : centre de masses du centre A et de l'électron actif.

Le deuxième système de Jacobi considère l'autre zone asymptotique de la collision, celle pour laquelle l'électron actif est attaché à la particule B. L'ensemble constitué de la particule B et de l'électron actif s'approche ou s'éloigne de la particule A. La figure 2.2 schématise cette phase d'approche ou d'éloignement de la collision. L'opérateur  $T$  de l'énergie cinétique du système s'exprime alors :

$$T = -\frac{1}{2\mu_B} \nabla_{\vec{R}_B}^2 - \frac{1}{2m_B} \nabla_{\vec{r}_B}^2 \quad (2-8)$$

avec

$$\mu_B = \frac{(1 + M_B)M_A}{M_{tot}} \quad (2-9)$$

$$m_B = \frac{M_B}{1 + M_B} \quad (2-10)$$

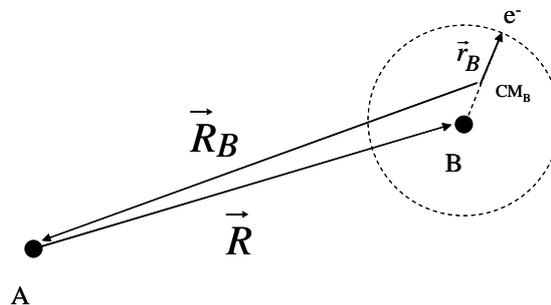


Figure 2-2 : Schéma de deux particules en phase d'approche ou d'éloignement lors d'une collision, quand l'électron actif est lié à la particule B.  $CM_B$  : centre de masses du centre B et de l'électron actif.

Le dernier système de Jacobi considère la zone moléculaire de la collision. Dans cette zone, l'électron actif n'est ni lié à la particule A, ni lié à la particule B. La figure 2.3 présente les notations vectorielles utilisées pendant la collision et la formation de la quasi molécule. Les nombres scalaires  $p$  et  $q$  sont définis par :

$$p = \frac{M_B}{M_A + M_B} \quad (2-11)$$

$$q = \frac{M_A}{M_A + M_B} \quad (2-12)$$

Dans ce cas, l'opérateur  $T$  de l'énergie cinétique du système s'exprime :

$$T = -\frac{1}{2\mu} \nabla_{\vec{R}}^2 - \frac{1}{2m} \nabla_{\vec{r}}^2 \quad (2-13)$$

avec

$$\mu = \frac{M_A M_B}{M_A + M_B} \quad (2-14)$$

$$m = \frac{(M_A + M_B) \hbar^2}{M_{tot}} \quad (2-15)$$

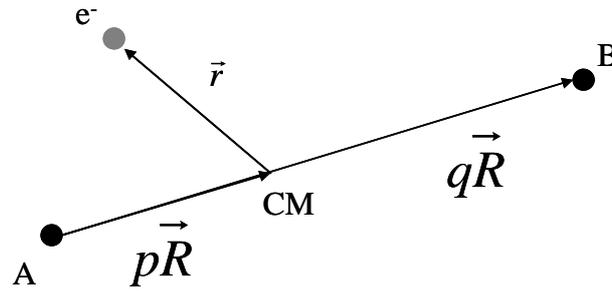


Figure 2-3 : Schéma d'un électron orbitant dans la quasi molécule. Les grandeurs  $p$  et  $q$  sont des nombres scalaires. CM : centre de masses nucléaires.

### 2.2.2.2 Fonction d'onde totale

Dans les zones asymptotiques de la collision, la fonction d'onde totale  $\psi$  qui décrit tout le système de la collision doit obéir aux conditions :

$$\psi \xrightarrow{\vec{R}_A \rightarrow \infty} \underbrace{\phi_0(\vec{r}_A) e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{R}_A}}_{(1)} + \underbrace{\sum_{f_{excitation}} \phi_f(\vec{r}_A) \frac{e^{i\vec{k}_f \cdot \vec{R}_A}}{R_A} f_f(\theta_A, \varphi_A)}_{(2)} \quad (2-16)$$

$$\psi \xrightarrow{\vec{R}_B \rightarrow \infty} \underbrace{\sum_{f' \text{ capture}} \phi_{f'}(\vec{r}_B) \frac{e^{ik_{f'} \cdot \vec{R}_B}}{R_B} f_{f'}(\theta_B, \varphi_B)}_{(3)} \quad (2-17)$$

avec

$$\frac{k_i^2}{2\mu_A} + \varepsilon_i = E \quad (2-18)$$

$$\frac{k_f^2}{2\mu_A} + \varepsilon_f = E \quad (2-19)$$

$$\frac{k_{f'}^2}{2\mu_B} + \varepsilon_{f'} = E \quad (2-20)$$

où  $\varepsilon_i$ ,  $\varepsilon_f$  et  $\varepsilon_{f'}$ , représentent les énergies électroniques quand l'électron actif est attaché à la particule A avant et après la collision, et à la particule B, respectivement.

Quand la collision n'a pas encore eu lieu, i. e. quand  $t \rightarrow -\infty$ , l'ensemble constitué de la particule A et de l'électron actif se meut vers la particule B immobile. Quand la collision a eu lieu, i. e. quand  $t \rightarrow +\infty$ , deux états quantiques se superposent : la particule A garde l'électron actif et est diffusée, et, d'autre part, la particule B a capturé l'électron actif et est diffusée. Le terme (1) décrit la particule A en mouvement autour de laquelle orbite l'électron actif, qui est donc dans un potentiel atomique. La fonction d'onde électronique  $\phi_0$  décrit l'électron dans son

état initial, tandis que le terme  $e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{R}_A}$  décrit l'onde plane de la particule A en mouvement. Les termes (2) et (3) décrivent le comportement asymptotique du système après la collision. Le terme (2) est relatif au processus d'excitation de l'électron actif qui reste sur la particule A incidente. Le terme (2) comprend aussi implicitement le processus d'ionisation de l'ensemble constitué de la particule A et de l'électron actif, car l'ionisation peut être vue comme une excitation de l'électron actif vers le continuum. Le terme (3) est relatif au processus de capture de l'électron actif, qui est transféré vers la particule B. Les fonctions d'onde électroniques  $\phi_f$  et  $\phi_{f'}$  décrivent l'électron actif qui reste sur la particule A et l'électron actif qui orbite autour

de la particule B, respectivement. Les termes  $\frac{e^{ik_f \cdot \vec{R}_A}}{R_A}$  et  $\frac{e^{ik_{f'} \cdot \vec{R}_B}}{R_B}$  décrivent les ondes sphériques de la particule A excitée qui est diffusée et la particule B qui a capturé l'électron et est diffusée, respectivement. Enfin, les termes  $f(\theta_{A,B}, \varphi_{A,B})$  sont des amplitudes de diffusion, où  $\theta_{A,B}$  représente les angles de diffusion et  $\varphi_{A,B}$  les angles azimutaux. Ces amplitudes de diffusion contiennent toutes les informations de la collision.

Néanmoins, il est impossible d'introduire, quelle que soit la distance internucléaire, un développement du type :

$$\psi = \phi_0(\vec{r}) e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{R}} + \sum_f \phi_f(\vec{r}) \frac{e^{ik_f \cdot \vec{R}}}{R} f_f(\theta, \varphi) \quad (2-21)$$

sachant que  $\vec{R}$  ne tend pas strictement vers  $\vec{R}_A$  ou  $\vec{R}_B$  lorsque l'électron actif se localise en A ou en B.

Le but du formalisme de la CRC est d'exprimer la fonction d'onde totale de la collision  $\psi$  uniquement en fonction d'un vecteur  $\vec{\xi}(\vec{r}, \vec{R})$  qui contiendra toute l'information relative aux vecteurs  $\vec{R}_A$  et  $\vec{R}_B$ , et qui respectera les conditions limites. Ce nouveau vecteur est la CRC.

### 2.2.2.3 Construction de la CRC en zones asymptotiques

Pour appréhender le formalisme de la CRC et construire ce nouveau vecteur  $\vec{\xi}(\vec{r}, \vec{R})$ , il faut d'abord introduire les vecteurs pondérés

$$\vec{\tilde{R}}_A = \sqrt{\mu_A} \vec{R}_A, \quad \vec{\tilde{R}}_B = \sqrt{\mu_B} \vec{R}_B, \quad \vec{\tilde{R}} = \sqrt{\mu} \vec{R} \quad (2-22)$$

$$\vec{\tilde{r}}_A = \sqrt{m_A} \vec{r}_A, \quad \vec{\tilde{r}}_B = \sqrt{m_B} \vec{r}_B, \quad \vec{\tilde{r}} = \sqrt{m} \vec{r} \quad (2-23)$$

de façon à rendre l'opérateur d'énergie cinétique  $T$  invariant par rapport au système de Jacobi choisi :

$$T = -\frac{1}{2} \nabla_{\vec{\tilde{R}}_A}^2 - \frac{1}{2} \nabla_{\vec{\tilde{r}}_A}^2 = -\frac{1}{2} \nabla_{\vec{\tilde{R}}_B}^2 - \frac{1}{2} \nabla_{\vec{\tilde{r}}_B}^2 = -\frac{1}{2} \nabla_{\vec{\tilde{R}}}^2 - \frac{1}{2} \nabla_{\vec{\tilde{r}}}^2 \quad (2-24)$$

Pour ce faire, il faut remarquer dans un premier lieu que le passage d'un système de coordonnées issues des vecteurs asymptotiques A ou B au système moléculaire n'est le résultat que d'une rotation d'angle  $\sigma_x$  :

$$\begin{pmatrix} \vec{\tilde{R}}_x \\ \vec{\tilde{r}}_x \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \sigma_x & \sin \sigma_x \\ -\sin \sigma_x & \cos \sigma_x \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \vec{\tilde{R}} \\ \vec{\tilde{r}} \end{pmatrix} \quad (2-25)$$

où l'indice  $x$  représente l'attachement de l'électron actif à la particule A ou B.

En effet, d'après la figure 2-1, il vient en négligeant la masse de l'électron devant  $M_A$  :

$$\vec{R}_A = \vec{R} - \frac{1}{1+M_A} \vec{r}_A \approx \vec{R} - \frac{1}{M_A} \vec{r}_A \quad (2-26)$$

Comme l'origine des coordonnées électroniques  $\vec{r}$  est prise au centre de masses nucléaires, il vient :

$$\vec{r}_A = \vec{r} + p \vec{R} \quad (2-27)$$

Comme  $p = \frac{\mu}{M_A}$ , il vient alors :

$$\bar{R}_A \approx \bar{R} - \frac{p^2}{\mu} \bar{R} - \frac{p}{\mu} \bar{r} \quad (2-28)$$

Il vient ensuite :

$$\tilde{\bar{R}}_A \approx \underbrace{\sqrt{\frac{\mu_A}{\mu}} (1 - \frac{p^2}{\mu})}_{=\alpha} \tilde{\bar{R}} - \underbrace{\sqrt{\frac{\mu_A}{m \mu}} \frac{p}{\mu}}_{=\beta} \tilde{\bar{r}} \quad (2-29)$$

où  $\alpha^2 + \beta^2 = 1$ . Le lecteur remarque ainsi la notion de rotation lors du passage d'un système de coordonnées pondérées à l'autre. En ce sens, il vient :

$$\begin{cases} \cos \sigma_A = \sqrt{\frac{\mu_A}{\mu}} (1 - \frac{p^2}{\mu}) \\ \sin \sigma_A = -\sqrt{\frac{\mu_A}{m \mu}} \frac{p}{\mu} \end{cases} \quad (2-30)$$

dont on déduit, après un développement limité :

$$\tan \sigma_A = -\frac{p}{\sqrt{\mu}} + O(\mu^{-\frac{3}{2}}) \quad (2-31)$$

De la même façon pour  $\tilde{\bar{R}}_B$ , il vient :

$$\tan \sigma_B = \frac{q}{\sqrt{\mu}} + O(\mu^{-\frac{3}{2}}) \quad (2-32)$$

Par ailleurs, la CRC pondérée  $\tilde{\xi} = \sqrt{\mu} \bar{\xi}$  s'exprime en fonction des vecteurs du système moléculaire et vérifie aussi :

$$\tilde{\xi} = \tilde{\bar{R}} \cos \sigma + \tilde{\bar{r}} \sin \sigma \quad (2-33)$$

De plus, il faut que  $\tilde{\xi}$  reproduise automatiquement les conditions asymptotiques  $\tilde{\bar{R}}_A$  et  $\tilde{\bar{R}}_B$  données par les équations (2-31) et (2-32). Il faut donc que :

$$\tan \sigma = \frac{f}{\sqrt{\mu}} \quad (2-34)$$

avec

$$f \xrightarrow[\tilde{R}_A \rightarrow \infty]{} -p \quad (2-35)$$

$$f \xrightarrow[\tilde{R}_B \rightarrow \infty]{} +q \quad (2-36)$$

Comme  $\mu$  est grand, il vient :

$$\begin{cases} \sin \sigma \approx \tan \sigma = \frac{f}{\sqrt{\mu}} \\ \cos \sigma \approx 1 - \frac{f^2}{2\mu} \end{cases} \quad (2-37)$$

Puis il vient, par substitution de (2-37) dans (2-33) :

$$\tilde{\xi} \approx \left(1 - \frac{f^2}{2\mu}\right) \tilde{R} + \frac{f}{\sqrt{\mu}} \tilde{r} \quad (2-38)$$

Enfin, comme  $\sqrt{m} \approx 1$ , on obtient la CRC :

$$\bar{\xi} = \bar{R} + \frac{1}{\mu} (f\bar{r} - \frac{1}{2} f^2 \bar{R}) \quad (2-39)$$

qui vérifie les conditions asymptotiques suivantes :

$$\lim_{\bar{R}_A \rightarrow \infty} \bar{\xi}(\bar{r}, \bar{R}) = \sqrt{\frac{\mu_A}{\mu}} \bar{R}_A \quad (2-40)$$

$$\lim_{\bar{R}_B \rightarrow \infty} \bar{\xi}(\bar{r}, \bar{R}) = \sqrt{\frac{\mu_B}{\mu}} \bar{R}_B \quad (2-41)$$

#### 2.2.2.4 Construction de la CRC en zone moléculaire

En zone non asymptotique, la CRC  $\bar{\xi}$  est de la forme :

$$\bar{\xi} = \bar{R} + \frac{1}{\mu} \bar{s}(\bar{r}, \bar{R}) \quad (2-42)$$

avec

$$\bar{s}(\bar{r}, \bar{R}) = f(\bar{r}, \bar{R})\bar{r} - \frac{1}{2} f^2(\bar{r}, \bar{R})\bar{R} \quad (2-43)$$

où  $f$  est une fonction qui remplit les conditions suivantes :

$$\lim_{\vec{R}_A \rightarrow \infty} f(\vec{r}, \vec{R}) = -p \quad (2-44)$$

$$\lim_{\vec{R}_B \rightarrow \infty} f(\vec{r}, \vec{R}) = +q \quad (2-45)$$

### 2.2.2.5 Fonction d'onde totale asymptotique dans le formalisme de la CRC

Une fois la CRC construite, il est possible d'écrire la fonction d'onde totale asymptotique qui décrit la collision si l'électron actif reste sur la particule A :

$$\psi = \phi_0(\vec{r}, \vec{\xi}) e^{i\vec{k}'_i \cdot \vec{\xi}} + \sum_{f \text{ excitation}} \phi_f(\vec{r}, \vec{\xi}) \frac{e^{ik'_f \cdot \xi}}{\xi} f_f(\theta_\xi, \varphi_\xi) \quad (2-46)$$

et si l'électron actif est capturé par la particule B :

$$\psi = \sum_{f' \text{ capture}} \phi_{f'}(\vec{r}, \vec{\xi}) \frac{e^{ik'_{f'} \cdot \xi}}{\xi} f_{f'}(\theta_\xi, \varphi_\xi) \quad (2-47)$$

où

$$\frac{k_i^2}{2\mu} + \varepsilon_i = E \quad (2-48)$$

$$\frac{k_f^2}{2\mu} + \varepsilon_f = E \quad (2-49)$$

$$\frac{k_{f'}^2}{2\mu} + \varepsilon_{f'} = E \quad (2-50)$$

Pour finir, on peut montrer que :

$$\vec{k}_i \cdot \vec{R}_A = \vec{k}'_i \cdot \vec{\xi} \quad (2-51)$$

$$\vec{k}_f \cdot \vec{R}_A = \vec{k}'_f \cdot \vec{\xi} \quad (2-52)$$

$$\vec{k}_{f'} \cdot \vec{R}_B = \vec{k}'_{f'} \cdot \vec{\xi} \quad (2-53)$$

### 2.2.3 Traitement quantique de la collision

#### 2.2.3.1 Equations couplées

Le traitement quantique de la collision consiste alors à résoudre l'équation de Schrödinger :

$$H\psi^J(\vec{r}, \vec{\xi}) = E\psi^J(\vec{r}, \vec{\xi}) \quad (2-54)$$

où  $J$  est le moment cinétique total du système, qui se conserve au cours de la collision.

Dans le formalisme quantique de la CRC, la fonction d'onde totale du système de la collision  $\psi^J$  est développée sur une base de fonctions moléculaires  $\{\phi_k(\vec{r}, \vec{\xi})\}$  de valeurs propres  $\varepsilon_k$  :

$$\psi^J(\vec{r}, \vec{\xi}) = \sum_k \chi_k^J(\vec{\xi}) \phi_k(\vec{r}, \vec{\xi}) \quad (2-55)$$

Les fonctions nucléaires  $\chi_k^J(\vec{\xi})$  s'expriment en coordonnées sphériques :

$$\chi_k^J(\vec{\xi}) = \underbrace{\frac{N}{\xi} F_k^J(\xi)}_{\text{radiale}} \underbrace{Y_{J, \Lambda_k}(\theta, \varphi)}_{\text{angulaire}} \quad (2-56)$$

et contiennent une partie radiale et une partie angulaire décrite par une harmonique sphérique dépendant de la projection  $\Lambda_k$  du moment angulaire orbital sur l'axe internucléaire.  $N$  est un facteur de normalisation.

La substitution du développement (2-55) dans l'équation de Schrödinger (2-54) mène à un ensemble d'équations couplées en  $\chi_k^J(\vec{\xi})$  en intégrant sur  $\vec{r}$ . Ces dernières mènent, en remplaçant  $\chi_k^J(\vec{\xi})$  par son expression (2-56) et en prenant la notation matricielle, à un ensemble d'équations radiales :

$$\mu^{-1} \frac{d^2}{d\xi^2} \mathbf{F}^J(\xi) + \mu^{-1} \left[ 2\mathbf{T} \frac{d}{d\xi} + \mathbf{V} + \mathbf{B} + \mathbf{Q} \right] \mathbf{F}^J(\xi) = 0 \quad (2-57)$$

où

$$T_{kj} = \left( \left\langle \phi_k \left| \frac{d}{d\xi} \right| \phi_j \right\rangle + A_{kj}^R \right) \delta_{\Lambda_k, \Lambda_j} \quad (2-58)$$

$$V_{kj} = \left( 2\mu(E - \varepsilon_j) - \frac{1}{\xi^2} (J(J+1) - \Lambda_j^2) \right) \delta_{kj} \quad (2-59)$$

$$B_{kj} = \langle \phi_k | \frac{d^2}{d\xi^2} | \phi_j \rangle \delta_{\Lambda_k, \Lambda_j} \quad (2-60)$$

$$Q_{kj} = -[J(J+1) - \Lambda_k(\Lambda_k+1)]^{1/2} \left[ \langle \phi_k | L_+ | \phi_j \rangle - \xi A_{kj}^\theta \right] \delta_{\Lambda_k, \Lambda_{j+1}} \\ - [J(J+1) - \Lambda_k(\Lambda_k-1)]^{1/2} \left[ \langle \phi_k | L_- | \phi_j \rangle + \xi A_{kj}^\theta \right] \delta_{\Lambda_k, \Lambda_{j-1}} \quad (2-61)$$

où les termes en  $O(\mu^{-1})$ ,  $O(\mu^0)$  et  $O(v^2)$  sont négligés devant les termes en  $O(\mu)$  et  $O(v)$ , avec la "vitesse" nucléaire  $v = \sqrt{2\mu E}$ .

Dans les équations (2-58) et (2-61), il apparaît des termes correctifs  $A^R$  et  $A^\theta$  des couplages radiaux et rotationnels, respectivement, dus à l'introduction de la CRC. En effet, il est bien connu [Errea 1994] que dans un calcul sans CRC où on assimilerait  $\vec{\xi}$  à  $\vec{R}$ , les couplages présentent un mauvais comportement asymptotique dû au fait qu'on ne représente pas l'effet dynamique d'attachement de l'électron au noyau ; par exemple, le couplage radial entre deux états de même symétrie corrélés au même centre est alors asymptotiquement non nul. Ici, les termes  $A^R$  et  $A^\theta$  assurent le bon comportement asymptotique [Thorson 1978].

### 2.2.3.2 Diabatisation de Smith de la base moléculaire

Des pseudo croisements apparaissent sur les courbes d'énergies potentielles adiabatiques données par les énergies propres électroniques  $\varepsilon_n(\xi)$  quand l'électron est attaché à la particule A ou B. La figure 2.4 schématise deux courbes de niveau énergétique présentant un pseudo croisement dans la région  $\xi \approx \xi_C$ .

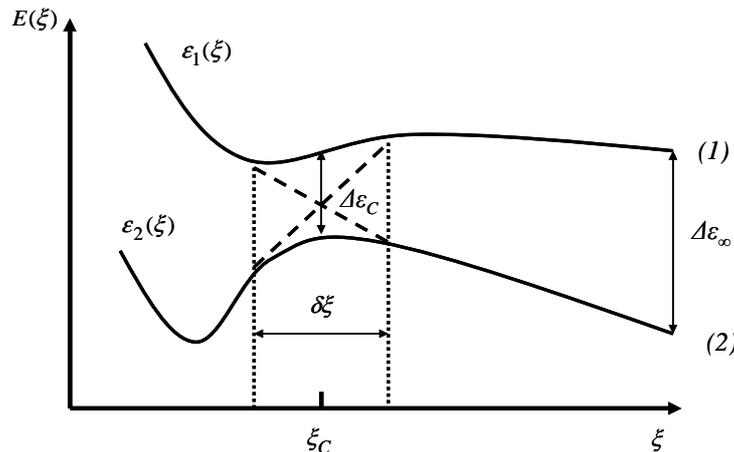


Figure 2-4 : Schéma des croisements des courbes d'énergies potentielles adiabatiques.

Les couplages radiaux peuvent présenter une forte variation locale avec  $\xi$ , empêchant une bonne résolution numérique de l'équation (2-58). Quand l'élément de matrice du couplage radial est petit comparativement à l'écart énergétique  $\Delta\varepsilon_C$  entre les deux courbes d'énergie moléculaire au niveau du pseudo croisement, la représentation adiabatique est appropriée. La réaction est quasi élastique et la probabilité de transfert au pseudo croisement est faible. Il s'agit alors d'un pseudo croisement adiabatique.

Cependant, quand l'élément de matrice du couplage radial est grand, i. e. il s'agit d'un pseudo croisement diabatique, beaucoup d'états peuvent être couplés et la résolution des équations couplées devient difficile. Dans ce cas la représentation adiabatique n'est plus appropriée, et il faut rechercher une nouvelle représentation pour laquelle les éléments de matrice du couplage radial deviennent petits. Cette nouvelle base, dont les états ne sont plus des fonctions propres de l'Hamiltonien électronique moléculaire, s'appelle base diabatique et constitue la représentation éponyme.

Il faut alors procéder à une diabatisation de Smith de la base moléculaire. Cette technique calculatoire revient à définir une base de fonctions nucléaires diabatiques  $\{F_k^{J,d}\}$  reliée à la base adiabatique  $\{F_k^J\}$  par :

$$\mathbf{F}^J = \mathbf{C}\mathbf{F}^{J,d} \quad (2-62)$$

où  $\mathbf{C}$  est une matrice (de rotation) unitaire définie par :

$$\mathbf{C} = e^{-\int_R^{\infty} \mathbf{T} dR} \quad (2-63)$$

Dans la zone asymptotique,  $\mathbf{C} = \mathbf{I}$  (où  $\mathbf{I}$  est la matrice identité) et  $\mathbf{F}^J \equiv \mathbf{F}^{J,d}$ . Dans la base diabatique, tout couplage  $\mathbf{X}$  s'exprime de la sorte :

$$\mathbf{X}^d = \mathbf{C}^{-1}\mathbf{X}\mathbf{C} \quad (2-64)$$

si bien que l'équation (2-57) devient, en représentation diabatique :

$$\frac{d^2}{d\xi^2} \mathbf{F}^{J,d} + [\mathbf{V}^d + \mathbf{Q}^d] \mathbf{F}^{J,d} = 0 \quad (2-65)$$

où

$$V_{kj}^d = \left( 2\mu E - \frac{J(J+1) - \Lambda_j^2}{\xi^2} \right) \delta_{kj} - 2\mu \langle \phi_k^d | H_{el} | \phi_j^d \rangle \quad (2-66)$$

et

$$\mathbf{Q}^d = \mathbf{C}^{-1}\mathbf{Q}\mathbf{C} \quad (2-67)$$

Dans la limite d'une base complète parfaitement diabatique où  $\mathbf{T}^d \equiv \mathbf{0}$ , on peut montrer que  $\mathbf{B}^d \equiv \left\langle \frac{d^2}{d\xi^2} \right\rangle = \mathbf{0}$ .

L'équation (2-65) est résolue numériquement, et on identifie la solution numérique asymptotique ( $R \rightarrow \infty$ ) au comportement attendu [Johnson 1973] :

$$F_k^J = j_k^J + \sum_n \eta_n^J \kappa_{nk}^J \quad (2-68)$$

où  $j_k^J$  et  $\eta_n^J$  sont les fonctions sphériques de Bessel et Neumann d'ordre  $J$ , respectivement.  $\kappa_{nk}^J$  est l'élément correspondant de la matrice de réaction  $\kappa^J$ . Il est alors possible de déterminer les éléments de la matrice de diffusion  $\mathbf{S}^J$  définie par :

$$\mathbf{S}^J = \frac{(\mathbf{I} - i\kappa^J)}{(\mathbf{I} + i\kappa^J)} \quad (2-69)$$

Enfin, la section efficace totale de transition de l'état initial  $\phi_0$  vers l'état final  $\phi_f$  est donnée par :

$$\sigma_{0f} = \frac{\pi}{k_i^2} \sum_J (2J+1) |S_{0f}^J|^2 \quad (2-70)$$

où  $\vec{k}_i$  représente l'impulsion initiale, et la section efficace différentielle en angle solide est donnée par :

$$\frac{d\sigma_{0f}}{d\Omega} = \frac{1}{4k_i^2} \left| \sum_J (2J+1) \sqrt{\frac{(J-M)!}{(J+M)!}} P_J^M(\cos\theta) [S_{0f}^J - \delta_{0f}] \right|^2 \quad (2-71)$$

où  $M = |m_0 - m_f|$  est la différence des nombres quantiques des sous états  $m$  et représente la projection du moment cinétique total sur l'axe internucléaire, et  $P_J^M(\cos\theta)$  est un polynôme de Legendre.

## 2.3 Méthode semi – classique

Cette partie expose la méthode semi – classique employée dans ce travail. Cette méthode n'est autre qu'une approximation de la méthode quantique précédemment présentée afin d'alléger les calculs purement quantiques de close-clouping.

### 2.3.1 Introduction

La partie précédente expose la méthode quantique qui décrit de façon exacte une collision entre deux particules. Cependant, une approche *ab initio* nécessite des calculs complexes en pratique, même pour les systèmes les plus simples à un seul électron, et le théoricien doit parfois utiliser des méthodes d'approximation.

Lors d'une première étape, les dynamiques nucléaires et électroniques peuvent être séparées, comme il a déjà été vu dans la méthode quantique. Le traitement quantique des mouvements électroniques et le traitement classique des mouvements nucléaires justifient l'appellation de

méthode semi – classique. La validité de cette approximation peut être montrée en considérant la longueur d'onde associée au déplacement du projectile lourd. La longueur d'onde de de Broglie  $\lambda$  d'une particule de masse  $m_P$  et de vitesse  $v$  est donnée par :

$$\lambda = \frac{1}{m_P v} \quad (2-72)$$

Pour des protons d'énergie cinétique 1 eV, ceci mène à  $\lambda \approx 0.1 \text{ ua}$ , ce qui est petit comparativement à la distance à laquelle l'interaction a lieu, comprise entre 1 et 100 ua. C'est pourquoi le déplacement du projectile de la collision peut être considéré comme une trajectoire classique pour des énergies plus grandes que 1 eV/uma. De plus, les trajectoires courbées avec des vitesses de projectile non constantes doivent être considérées à des énergies bien plus petites que 1 keV/uma. Au-delà, le déplacement nucléaire  $\vec{\ell}(t)$  peut être assimilé à une trajectoire classique rectiligne telle que :

$$\vec{\ell}(t) = \vec{b} + \vec{v}t \quad (2-73)$$

où  $\vec{b}$  représente le paramètre d'impact et  $\vec{v}$  la vitesse du projectile.

### 2.3.2 Formalisme CTF (Common Translation Factor, en anglais)

Le traitement semi – classique de la collision commence par l'approximation eikonale standard [Bransden 1992] des fonctions d'onde nucléaires  $\chi_k^J(\vec{\xi})$ , qui sont de la forme :

$$\chi_k^J(\vec{\xi}) = c_k(\ell; b) e^{i\wp_k(\vec{\xi})} \quad (2-74)$$

où la trajectoire  $\ell$  de paramètre d'impact  $b$  est introduite, et où  $\wp_k$ , qui est la solution de l'équation classique d'Hamilton – Jacobi, est donnée par l'intégrale de l'impulsion locale  $\mu v_k$  le long de la trajectoire :

$$\wp_k(\vec{\xi}) = \int \mu v_k d\ell \quad (2-75)$$

Ensuite, il est sensé d'approximer  $\wp_k$  en supposant que le module de la vitesse est constant le long de la trajectoire, et qu'il a la même valeur  $v_k = v$  pour tous les canaux. Il vient :

$$\wp_k = \mu \vec{v} \cdot \vec{\xi} \quad (2-76)$$

et en introduisant la forme analytique de la CRC de l'équation (2-42) :

$$\chi_k^J = c_k(\ell; b) e^{i\mu \vec{v} \cdot \vec{R}} e^{i\vec{v} \cdot \vec{s}(\vec{r}, \vec{R})} \quad (2-77)$$

Enfin, en remplaçant l'expression de  $\chi_k^J$  dans l'équation de Schrödinger, et en conservant les termes jusque  $O(\mu^0)$ , cela mène à l'équation semi – classique, appelée équation eikonale :

$$\left[ H_{el} - i\nu \frac{\partial}{\partial \ell} \right] \psi^S = 0 \quad (2-78)$$

où  $H_{el}$  représente l'Hamiltonien électronique moléculaire, et où :

$$\psi^S(\vec{r}, \ell; b) = e^{i\vec{v} \cdot \vec{s}(\vec{r}, \vec{R})} \sum_k c_k(\ell; b) \phi_k(\vec{r}, \vec{R}) \quad (2-79)$$

Par ailleurs, il faut définir la trajectoire nucléaire. Pour être consistant avec l'équation (2-76), une trajectoire rectiligne avec  $\nu$  constante est employée, et l'on définit un "temps semi – classique"  $t = \frac{\ell}{\nu}$ . Pour chaque valeur du paramètre d'impact  $b = \frac{J}{\mu\nu}$ , les équations semi – classiques sont de la forme :

$$\left[ H_{el} - i \frac{\partial}{\partial t} \right] \psi^S = 0 \quad (2-80)$$

avec

$$\psi^S(\vec{r}, \vec{R}(t)) = e^{iU} \sum_k a_k \phi_k(\vec{r}, \vec{R}) e^{-i \int_0^t \varepsilon_k dt'} \quad (2-81)$$

avec  $c_k(\ell; b) = a_k(t) e^{-i \int_0^t \varepsilon_k dt'}$ , en remarquant que le terme  $e^{-i \int_0^t \varepsilon_k dt'}$  est fonction propre de  $-i \frac{\partial}{\partial t}$ .

Le CTF  $e^{iU} = e^{i\vec{v} \cdot \vec{s}(\vec{r}, \vec{R})}$  apparaît dans le formalisme comme conséquence de l'approximation eikonale et de l'hypothèse d'une vitesse locale constante et indépendante de l'état quantique pour les caractéristiques de la fonction  $\phi_k$  [Riera 1996]. Il est utile de noter que la définition de la CRC mène à la forme usuelle du CTF [Errea 1994] :

$$U = f(\vec{r}, \vec{R}) \vec{v} \cdot \vec{r} - \frac{1}{2} f^2(\vec{r}, \vec{R}) \nu^2 t \quad (2-82)$$

Si l'électron actif est attaché à la particule A, il est alors à noter que :

$$e^{iU} \phi_k \xrightarrow[f \longrightarrow -p]{} \phi_k \underbrace{e^{-ip\vec{v} \cdot \vec{r} - \frac{i}{2} p^2 \nu^2 t}}_{D_A} \quad (2-83)$$

où le terme  $D_A$  traduit l'attachement dynamique de l'électron à la particule A distante de  $-p\vec{R}$  de l'origine des coordonnées. De même, si l'électron s'attache à la particule B :

$$e^{iU} \phi_k \xrightarrow{f \rightarrow +q} \phi_k e^{\underbrace{iq\vec{v}\cdot\vec{r} - \frac{i}{2}q^2v^2t}_{D_B}} \quad (2-84)$$

Dans les mêmes limites, les états moléculaires  $\phi_k$  deviennent des états atomiques attachés à la particule A ou B.

Ensuite, en insérant le développement de  $\psi^s(\vec{r}, \vec{R}(t))$  dans l'équation eikonale, il vient pour tout coefficient  $a_j$  :

$$\frac{da_j}{dt} = \sum_k a_k \left[ \langle \phi_j | -\frac{\partial}{\partial t} | \phi_k \rangle + \langle \phi_j | -\frac{1}{2} \nabla^2 U - \vec{\nabla} U \vec{\nabla} | \phi_k \rangle - i \langle \phi_j | (\nabla U)^2 + \frac{\partial U}{\partial t} | \phi_k \rangle \right] e^{-i \int (\epsilon_k - \epsilon_j) dt'} \quad (2-85)$$

Ce jeu d'équations différentielles est résolu numériquement pour obtenir la section efficace totale de transition de l'état initial  $\phi_0$  vers l'état final  $\phi_f$  :

$$\sigma_{0f} = 2\pi \int_0^\infty b P_{0f}(b) db \quad (2-86)$$

où la probabilité de transition s'exprime :

$$P_{0f}(b) = \lim_{t \rightarrow \infty} |a_f(t \rightarrow \infty; b)|^2 \quad (2-87)$$

De même, on obtient la section efficace différentielle [McCarroll 1968] en angle solide :

$$\frac{d\sigma_{0f}}{d\Omega} = k_i^2 \left| \int b j_M(2\mu v b \sin \frac{\theta}{2}) [a_f - \delta_{0f}] db \right|^2 \quad (2-88)$$

où  $j_M$  est la fonction de Bessel cylindrique d'ordre  $M$ , qui est la projection du moment cinétique total sur l'axe internucléaire.

Les couplages  $\langle \phi_j | -\frac{1}{2} \nabla^2 U - \vec{\nabla} U \vec{\nabla} | \phi_k \rangle$  sont les termes correctifs aux couplages radiaux et rotationnels (identiques à  $A^R$  et  $A^\theta$  de la CRC), et les couplages  $\langle \phi_j | (\nabla U)^2 + \frac{\partial U}{\partial t} | \phi_k \rangle$  sont des termes correctifs en  $v^2$ , qui ont été négligés dans le traitement quantique mais sont ici explicitement considérés, sachant que le traitement semi – classique est employé à  $v$  plus grand.

### 2.3.3 Alternative au traitement semi – classique moléculaire

Une alternative existe au traitement semi – classique d'une collision avec une base d'états électroniques moléculaires  $\{\phi_k(\vec{r}, \vec{R})\}$ . Cependant, cette méthode ne sera pas utilisée dans ce travail et est mentionnée pour une confrontation ultérieure avec celle de ce travail. Il s'agit d'un traitement semi – classique atomique à deux centres (TCAOCC). En ce sens,  $\psi^s$  peut être développée de la sorte :

$$\psi^s = \underbrace{\sum_n a_n(t) \phi_n^A(\vec{r}_A) D_A e^{-i \int \varepsilon_{n,A} dt'}}_{\text{excitation}} + \underbrace{\sum_m b_m(t) \phi_m^B(\vec{r}_B) D_B e^{-i \int \varepsilon_{m,B} dt'}}_{\text{capture}} \quad (2-89)$$

avec l'ajout éventuel d'un troisième terme, correspondant à un autre centre C entre les particules A et B, pour compléter les bases atomiques. Les termes  $D_A$  et  $D_B$  (et éventuellement  $D_C$ ) sont les facteurs d'ondes planes déjà explicités dans les limites de  $e^{iU}$  et traduisent l'attachement de l'électron actif au centre considéré. En introduisant le développement de  $\psi^s$  (limité aux centres A et B) dans l'équation eikonale, on obtient :

$$i \left[ \frac{da_j}{dt} + \sum_m S_{jm} \frac{db_m}{dt} e^{-i \int (\varepsilon_{m,B} - \varepsilon_{j,A}) dt'} \right] = \sum_{n \neq j} H_{jn} a_n + \sum_m K_{jm} b_m e^{-i \int (\varepsilon_{m,B} - \varepsilon_{j,A}) dt'} \quad (2-90)$$

$$i \left[ \frac{db_m}{dt} + \sum_n \overline{S_{mn}} \frac{da_n}{dt} e^{-i \int (\varepsilon_{n,A} - \varepsilon_{m,B}) dt'} \right] = \sum_{n \neq m} \overline{H_{mn}} b_n + \sum_k \overline{K_{mk}} a_k e^{-i \int (\varepsilon_{k,A} - \varepsilon_{m,B}) dt'} \quad (2-91)$$

où

$$S_{jm} = \int e^{ip\vec{v} \cdot \vec{r}} \phi_j^{A*}(\vec{r}) e^{iq\vec{v} \cdot \vec{r}} \phi_m^B(\vec{r}) d\vec{r}, \quad \overline{S_{jm}} = S_{mj}^* \quad (2-92)$$

$$H_{jn} = \int e^{ip\vec{v} \cdot \vec{r}} \phi_j^{A*}(\vec{r}) \left[ H_{el} - i \frac{\partial}{\partial t} \right] e^{-ip\vec{v} \cdot \vec{r}} \phi_n^A(\vec{r}) d\vec{r} \quad (2-93)$$

$$\overline{H_{nm}} = \int e^{-iq\vec{v} \cdot \vec{r}} \phi_n^{B*}(\vec{r}) \left[ H_{el} - i \frac{\partial}{\partial t} \right] e^{iq\vec{v} \cdot \vec{r}} \phi_m^B(\vec{r}) d\vec{r} \quad (2-94)$$

$$K_{jm} = \int e^{ip\vec{v} \cdot \vec{r}} \phi_j^{A*}(\vec{r}) \left[ H_{el} - i \frac{\partial}{\partial t} \right] e^{iq\vec{v} \cdot \vec{r}} \phi_m^B(\vec{r}) d\vec{r} \quad (2-95)$$

$$\overline{K_{mk}} = \int e^{-iq\vec{v} \cdot \vec{r}} \phi_m^{B*}(\vec{r}) \left[ H_{el} - i \frac{\partial}{\partial t} \right] e^{-ip\vec{v} \cdot \vec{r}} \phi_k^A(\vec{r}) d\vec{r} \quad (2-96)$$

Les équations (2-90) et (2-91) sont résolues numériquement. Il est certain que les développements moléculaires et atomiques sont formellement équivalents dans les zones asymptotiques. Si l'électron actif est lié à la particule A, il y a :

$$\begin{cases} \phi_k \rightarrow \varphi^A \\ e^{iU} \rightarrow D_A \\ \varepsilon_k \rightarrow \varepsilon_{k,A} \end{cases} \quad (2-97)$$

et s'il est lié à la particule B :

$$\begin{cases} \phi_k \rightarrow \varphi^B \\ e^{iU} \rightarrow D_B \\ \varepsilon_k \rightarrow \varepsilon_{k,B} \end{cases} \quad (2-98)$$

### 2.3.4 Discussion

Un éventuel inconvénient de la méthode moléculaire est que celle-ci prend en compte le canal d'ionisation, alors que la méthode atomique le traite simplement via des pseudo états sur les deux centres. Cependant, à  $v$  faible, l'ionisation est négligeable.

Par ailleurs, un éventuel inconvénient de la méthode atomique se trouve dans la "molécularisation" à  $R$  faible. L'ajout d'un troisième centre entre les particules A et B pare à ce problème. De plus, cette méthode est numériquement lourde, et l'éventuelle incomplétude de sa base peut conduire à d'irréalistes oscillations dans les sections efficaces [Kuang et Lin 1996, 1997].

## 2.4 Application au système Na<sup>+</sup> + Rb

Cette partie détaille les ingrédients calculatoires de la méthode semi – classique précédemment exposée. Cette méthode est appliquée au système Na<sup>+</sup> + Rb(5s, 5p) en tant que ce système de collisions constitue l'objet de ce travail expérimental : des projectiles ioniques de sodium bombardent des cibles de rubidium dans le régime des basses énergies de projectiles. La simple capture électronique est le phénomène physique dominant.

Deux sous parties constituent cette partie. La première sous partie s'attache à décrire les comportements asymptotiques de l'électron actif lors de la collision. En d'autres termes, il s'agit de la description de l'électron actif quand ce dernier est attaché soit à la particule A (ici l'ion Rb<sup>+</sup>) soit à la particule B (ici l'ion Na<sup>+</sup>). Cette description ne considère donc pas la zone moléculaire. En revanche, la seconde sous partie décrit le comportement de l'électron actif dans la zone moléculaire (quand Rb<sup>+</sup> et Na<sup>+</sup> sont proches et forment la quasi molécule RbNa<sup>+</sup>) et expose les outils analytiques.

### 2.4.1 Potentiel modèle

Le calcul employé n'utilise qu'un seul électron actif, i. e. l'électron de valence, et les autres électrons de cœur sont considérés comme gelés. Les interactions entre ces cœurs ioniques et l'électron actif sont représentées par l'intermédiaire d'un potentiel modèle.

Un potentiel modèle est une expression analytique, obtenue de manière semi – empirique, décrivant la structure électronique de cœur atomique. En ce sens, dans le cas d'une collision entre deux particules A et B, il décrit séparément l'interaction entre l'électron actif et chacun des deux cœurs des particules A et B.

La première sous partie présente les fondements de la méthode employée ici en rapport avec le choix du potentiel modèle utilisé. La seconde sous partie explique l'origine de l'expression du potentiel modèle employé.

#### 2.4.1.1 Potentiel modèle employé

Aymar *et al.* [Aymar 2003] inspirèrent les fondements de la méthode employée dans ce travail pour déterminer les potentiels modèle. La méthode d'Aymar *et al.*, méthode semi – classique utilisant l'approximation moléculaire, prolonge les travaux antérieurs portés sur de légers dimères alcalins [Henriet – Scavennec 1983, Henriet 1984, Magnier 1993a, Magnier 1993b] et leurs cations [Henriet 1983, Henriet 1985, Magnier 1996, Magnier 1999].

Dans cette méthode, un électron actif se déplace dans le champ créé par deux ions alcalins A et B séparés d'une distance  $R$ . Les fonctions d'onde électroniques moléculaires  $\phi_k(\vec{r}, \vec{R})$  sont fonctions propres de l'Hamiltonien électronique moléculaire  $H_{el}(\vec{r}, \vec{R})$  :

$$H_{el}(\vec{r}, \vec{R})\phi_k(\vec{r}, \vec{R}) = \varepsilon_k \phi_k(\vec{r}, \vec{R}) \quad (2-99)$$

où

$$H_{el} = T_{el} + V(\vec{r}_A) + V(\vec{r}_B) + V_{cc}(\vec{R}) + V_{pol}(\vec{r}_A, \vec{r}_B, \vec{R}) \quad (2-100)$$

où  $T_{el}$  est l'opérateur d'énergie cinétique de l'électron actif. Les opérateurs  $V(\vec{r}_A)$  et  $V(\vec{r}_B)$  décrivent l'interaction entre l'électron actif et les particules A et B, respectivement.

Le potentiel modèle  $V(r)$  de Klapisch [Klapisch 1969], indépendant du moment angulaire orbital de l'électron, est employé (par Aymar et donc dans ce travail) et donné par :

$$V(r) = -\frac{1 + (Z-1)e^{-b_1 r} + b_2 r e^{-b_3 r}}{r} \quad (2-101)$$

Dans cette expression,  $Z$  représente la charge nucléaire et les paramètres  $b_i$  sont des paramètres empiriques, ajustés pour connaître les énergies approximées de spin – orbite des états de valence des atomes alcalins. Le potentiel  $V(r)$  est attractif à courte distance  $r$  et correspond aux valeurs propres des électrons de valence ou de cœur. Cependant, les fonctions d'onde associées aux états du cœur (de la particule A ou B) sont orthogonales à celles qui décrivent les états de valence. La polarisation du cœur induite par l'électron de valence est

souvent introduite en ajoutant à  $V(r)$  un terme  $V_{pol}^{(0)}$ , qui dépend de la polarisabilité dipolaire  $\alpha_d$  de l'ion :

$$V_{pol}^{(0)} = -\frac{\alpha_d}{2r^4} f\left(\frac{r}{r_c}\right) \quad (2-102)$$

où  $f\left(\frac{r}{r_c}\right)$  est une fonction de coupure nécessaire pour éviter toute divergence à courte distance  $r$ . Cependant, ce terme ne doit pas être explicitement introduit ici, dans la mesure où les effets de polarisation du cœur sont effectivement pris en compte pendant la procédure d'optimisation de  $V(r)$  [Henriet – Scavennec 1983, Henriet 1985].

Négligeant le recouvrement et les effets d'échange, l'interaction entre les deux cœurs s'exprime :

$$V_{cc}(R) = \frac{1}{R} - \frac{\alpha_{d,A} + \alpha_{d,B}}{2R^4} - \frac{\alpha_{q,A} + \alpha_{q,B}}{2R^6} \quad (2-103)$$

où  $\alpha_d$  et  $\alpha_q$  représentent respectivement les polarisabilités dipolaires et quadrupolaires des ions A et B. Une interaction répulsive entre les cœurs à courtes distances pourrait être introduite, comme l'appliquent Pavolini *et al.* [Pavolini 1989] ou Jeung [Jeung 1997]. Aymar *et al.* ne le font pas dans le but de comparer leurs résultats à des calculs de pseudo potentiels. Il en résulte que la validité de leur méthode se restreint à des distances inter atomiques de plus de 5 unités atomiques.

La littérature relate de nombreuses formulations des effets de polarisation pour des systèmes à trois corps. Aymar *et al.* suivent la formulation de Bottcher et Dalgarno [Bottcher 1974] alors que Johann *et al.* [Johann 1996] ou Patil et Tang [Patil 2000] proposent d'autres possibilités.

### 2.4.1.2 Expression du potentiel modèle

Pour comprendre l'expression du potentiel modèle utilisé dans ce travail, il faut considérer un atome (ou un ion) comme étant "effectivement" mono électronique, i. e. seul un électron de la couche externe est actif, les  $p$  autres électrons des couches internes étant considérés (avec le noyau de charge  $Z$ ) comme un cœur ionique gelé. L'énergie potentielle  $V(r)$  de l'électron actif interagissant avec le cœur ionique doit satisfaire aux conditions :

$$\left\{ \begin{array}{l} \lim_{r \rightarrow 0} V(r) = -\frac{Z}{r} \\ \lim_{r \rightarrow \infty} V(r) = -\frac{Z-p}{r} \end{array} \right. \quad (2-104)$$

La densité volumique de charge  $D(\vec{r})$  a une symétrie sphérique :

$$D(\vec{r}) = D_r(r)D_\Omega(\Omega) \quad (2-105)$$

Par souci de simplicité, on considère de plus une distribution de charges isotrope pour laquelle  $D_{\Omega}(\Omega) = \frac{1}{4\pi}$ . La densité de charge volumique d'une sous couche de nombre quantique orbital  $l$  comportant  $q$  électrons peut alors se mettre sous la forme :

$$D(\vec{r}) = \frac{D_r(r)}{4\pi} = -\frac{q}{4\pi} |R_{nl}(r)|^2 \quad (2-106)$$

où  $R_{nl}(r)$  est la partie radiale de la fonction d'onde d'un électron sur la couche  $nl$ . Pour un atome hydrogénoïde, celle-ci se met sous la forme :

$$R_{nl}(r) = Z_{eff}^{3/2} \frac{2}{n^2} \sqrt{\frac{(n-l-1)!}{[(n+l)!]^3}} \left(\frac{2rZ_{eff}}{n}\right)^l e^{\left(\frac{-rZ_{eff}}{n}\right)} L_{n-l-1}^{2l+1}\left(\frac{2rZ_{eff}}{n}\right) \quad (2-107)$$

Les électrons de cœur étant très liés au noyau (par rapport à l'électron de valence), on suppose que les structures nodales de leurs fonctions d'onde (très concentrées autour du noyau) importent peu. Par conséquent, en ne considérant pas de nœuds ( $l = n-1$ ), la densité radiale de charge  $D_r(r)$  prend la forme :

$$D_r(r) = -q \left(\frac{2Z_{eff}}{(l+1)}\right)^{2l+3} \frac{r^{2l}}{(2l+2)!} e^{\left(\frac{-2Z_{eff}r}{(l+1)}\right)} \quad (2-108)$$

où  $Z_{eff}$  est la charge effective ressentie par l'électron de valence, soit la charge nucléaire réelle diminuée par l'écran dû aux électrons de cœur.

Le lecteur notera que l'on a bien  $\int D(\vec{r}) dr = -q$  sachant que  $\int_0^{\infty} r^2 |R_{nl}(r)|^2 dr = 1$ .

L'équation de Poisson reliant le potentiel  $V(r)$  cherché à la densité volumique de charge s'écrit :

$$\nabla_{\vec{r}}^2 V(r) = -D(\vec{r}) \quad (2-109)$$

soit

$$\frac{\partial^2}{\partial r^2} (rV(r)) = -D_r(r) \quad (2-110)$$

Etant données les conditions aux limites (2-104), on cherche  $V(r)$  sous la forme :

$$V(r) = -\frac{(Z-q)}{r} - \frac{q}{r} e^{-\alpha_l r} f_l(\alpha_l, r) \quad (2-111)$$

où  $\alpha_l = \frac{2Z_{eff}}{(l+1)}$ , et où  $f_l(\alpha_l, r)$  devra avoir une forme polynomiale afin d'assurer la condition limite à l'infini. En reportant (2-111) dans (2-110), on obtient l'équation différentielle pour  $f_l(\alpha_l, r)$  :

$$\frac{d^2 f_l(\alpha_l, r)}{dr^2} - 2\alpha_l \frac{\partial f_l(\alpha_l, r)}{\partial r} + \alpha_l^2 f_l(\alpha_l, r) = \frac{\alpha_l^{2l+3}}{(2l+2)!} r^{2l+1} \quad (2-112)$$

On cherche une solution à cette équation sous la forme :

$$f_l(\alpha_l, r) = \sum_{k=0}^{2l+1} c_k r^k \quad (2-113)$$

Soit, en reportant cette forme dans l'équation (2-112) afin de trouver l'ensemble des coefficients  $c_k$  :

$$\sum_{k=0}^{2l+1} k(k-1)c_k r^{k-2} - 2\alpha_l k c_k r^{k-1} + \alpha_l^2 c_k r^k = \frac{\alpha_l^{2l+3}}{(2l+2)!} r^{2l+1} \quad (2-114)$$

On trouve finalement, de façon générale :

$$c_k = \left(1 - \frac{k}{2l+2}\right) \frac{\alpha_l^k}{k!} \quad (2-115)$$

et donc pour  $f_l(\alpha_l, r)$  :

$$f_l(\alpha_l, r) = \sum_{k=0}^{2l+1} \left(1 - \frac{k}{2l+2}\right) \frac{\alpha_l^k r^k}{k!} \quad (2-116)$$

et pour le potentiel  $V(r)$  :

$$V(r) = -\frac{(Z-q)}{r} - \frac{q}{r} e^{-\alpha_l r} \sum_{k=0}^{2l+1} \left(1 - \frac{k}{2l+2}\right) \frac{\alpha_l^k r^k}{k!} \quad (2-117)$$

avec  $\alpha_l$ , inconnue à déterminer, dépendant explicitement du nombre quantique orbital  $l$  de la sous couche considérée.

L'expression (2-117) a été obtenue en considérant une sous couche fermée comportant  $q$  électrons autour de laquelle orbite l'électron (actif) de valence. On peut ensuite peaufiner l'expression du potentiel  $V(r)$ , toujours dans le cas d'un atome hydrogénoïde, et faire intervenir les différentes couches et sous couches fermées. De manière équivalente, plutôt que d'utiliser un potentiel par sous couches, on peut utiliser un potentiel global de la forme :

$$V(r) = -\frac{1 + (Z-1)e^{-b_1 r} + b_2 r e^{-b_3 r}}{r} \quad (2-118)$$

Enfin, pour déterminer les paramètres  $\alpha_l$  (ou  $b_i$ ), il faut résoudre l'équation de Schrödinger en introduisant l'expression du potentiel  $V(r)$  (par sous couches ou global) dans l'Hamiltonien relatif au système atomique (noyau de charge  $Z$  + couches et sous couches fermées + un électron de valence), qui s'écrit :

$$H_0 = -\frac{1}{2} \nabla_{\vec{r}}^2 - V(r) \quad (2-119)$$

Les paramètres  $\alpha_l$  (ou  $b_i$ ) sont alors déterminés de manière "variationnelle" : l'Hamiltonien est diagonalisé dans une base d'orbitales de Slater à plusieurs reprises en faisant varier les paramètres  $\alpha_l$  jusqu'à obtenir une bonne représentation des états liés relatifs à l'électron de valence (dont on connaît les énergies expérimentales).

Cependant, avant d'aller plus avant, il faut attirer l'attention, quitte à insister lourdement, sur l'importance de la complétude de la base utilisée. En effet, cette base d'orbitales de Slater doit être la plus complète possible afin que les énergies obtenues ne dépendent pas de la base utilisée.

Enfin, on juge de façon plus fine de la validité du potentiel avec les forces d'oscillateur sensibles directement aux fonctions d'onde. En effet, la force d'oscillateur associée à la transition électronique depuis un état  $a$  de fonction d'onde  $\phi_a$  vers un état  $b$  de fonction d'onde  $\phi_b$  se met sous la forme :

$$f_{ab} = \frac{2(E_b - E_a)}{3} |\mathbf{r}_{ab}|^2 \quad (2-120)$$

avec

$$\mathbf{r}_{ab} = \langle \phi_b | \vec{r} | \phi_a \rangle \quad (2-121)$$

où  $(E_b - E_a)$  est l'énergie de la transition.

### 2.4.1.3 Application aux atomes Na et Rb

Pour trouver les paramètres empiriques  $b_i$ , on utilise une base aussi complète que possible. Cette base est constituée d'orbitales de Slater "even - tempered" (STO), définies par :

$$S_i^{l,m}(r) = N r^l e^{-\alpha_i r} Y_l^m(\theta, \phi) \quad (2-122)$$

où  $N$  est un facteur de normalisation. Les harmoniques sphériques  $Y_l^m(\theta, \phi)$  décrivent la partie angulaire du vecteur de base. Les paramètres  $\alpha_i$  font partie d'une série géométrique telle que :

$$\alpha_i = \alpha_0 \beta^i, \quad 0 \leq i \leq n_{\max} \quad (2-123)$$

Pour que la base choisie soit considérée comme relativement complète,  $\alpha_0$  doit être petit, pour la représentation d'états diffus,  $\beta$  proche de 1, pour la complétude, et  $n_{\max}$  relativement grand, pour représenter les états concentrés et du continu. En pratique, le modèle fonctionne avec  $\alpha_0 = 0.0005$  et  $n_{\max} = 50$ , quelle que soit la symétrie ( $l, m$ ).

Les paramètres  $b_i$  sont optimisés en prenant comme valeurs de référence en énergie les données du NIST (National Institute of Standards and Technology) [NIST]. Ainsi, l'optimisation des modèles de potentiel donne pour le sodium ( $Z = 11$ ) :

$$b_1 = 2.81 \quad b_2 = 2.85 \quad b_3 = 2.085 \quad (2-124)$$

et donne pour le rubidium ( $Z = 37$ ) :

$$b_1 = 3.293 \quad b_2 = 5.825 \quad b_3 = 1.333 \quad (2-125)$$

Les tableaux 2-1 et 2-2 comparent les énergies de liaison expérimentales du NIST et les énergies de liaison semi-empiriques obtenues par la base STO pour Na et Rb, respectivement. L'accord est excellent. Les paramètres du potentiel modèle reproduisent donc correctement l'interaction entre l'électron actif et chaque cœur ionique.

L'autre vérification de la validité des paramètres du potentiel modèle utilisé concerne le calcul des forces d'oscillateur, présentées dans le tableau 2-3. La comparaison est faite avec les valeurs de référence de la base de données "Opacity Project" (TOPBASE) [TOPBASE]. L'accord est tout à fait satisfaisant. En revanche, seules les données relatives à Na sont tabulées, mais pas celles relatives à Rb.

Ainsi, la description physique des structures électroniques atomiques par le potentiel modèle de paramètres  $b_i$  semble suffisamment précise.

Etat $nl_j$	NIST (u.a.)	STO (u.a.)	OEDM (u.a.)
3s	-0.188 858	-0.188 645	-0.188 642
4s	-0.071 578	-0.071 682	-0.071 680
5s	-0.037 584	-0.037 640	-0.037 612
6s	-0.023 132	-0.023 162	-0.023 002
7s	-0.015 662	-0.015 680	---
8s	-0.011 304	-0.011 315	---
3p <sub>1/2</sub>	-0.111 600	-0.111 666	-0.111 663
3p <sub>3/2</sub>	-0.111 521		
4p <sub>1/2</sub>	-0.050 951	-0.051 081	-0.051 063
4p <sub>3/2</sub>	-0.050 926		
5p <sub>1/2</sub>	-0.029 202	-0.029 273	-0.029 216
5p <sub>3/2</sub>	-0.029 191		
6p <sub>1/2</sub>	-0.018 923	-0.018 964	-0.018 779
6p <sub>3/2</sub>	-0.018 917		
7p <sub>1/2</sub>	-0.013 256	-0.013 281	---
7p <sub>3/2</sub>	-0.013 252		
8p <sub>1/2</sub>	-0.009 801	-0.009 817	---
8p <sub>3/2</sub>	-0. 009 801		
3d	-0.055 936	-0.055 789	-0.055 789
4d	-0.031 442	-0.031 385	-0.031 382
5d	-0.020 106	-0.020 078	-0.020 028
6d	-0.013 952	-0.013 936	---
7d	-0.010 245	-0.010 234	---
8d	-0.007 840	-0.007 830	---
4f	-0.031 268	-0.031251	-0.031 250
5f	-0.020 010	-0.020 001	-0.019 953
6f	-0.013 895	-0.013 890	---
7f	-0.010 208	-0.010 205	---
8f	-0.007 815	-0.007 813	---

**Tableau 2-1 : Comparaison des énergies de liaison expérimentales du NIST et des énergies de liaison semi – empiriques obtenues par la base STO et la base OEDM couplée à des gaussiennes pour Na.**

Etat $nl_j$	NIST (u.a.)	STO (u.a.)	OEDM (u.a.)
5s	-0.153 468	-0.153 468	-0.153 395
6s	-0.061 776	-0.061 780	-0.061 757
7s	-0.033 623	-0.033 647	-0.033 606
8s	-0.021 160	-0.021 177	-0.021 079
9s	-0.014 543	-0.014 554	---
10s	-0.010 609	-0.010 616	---
5p <sub>1/2</sub>	-0.096 193	-0.095 075	-0.095 047
5p <sub>3/2</sub>	-0.095 110		
6p <sub>1/2</sub>	-0.045 453	-0.045 306	-0.045 183
6p <sub>3/2</sub>	-0.045 100		
7p <sub>1/2</sub>	-0.026 681	-0.026 644	-0.026 292
7p <sub>3/2</sub>	-0.026 521		
8p <sub>1/2</sub>	-0.017 569	-0.017 557	---
8p <sub>3/2</sub>	-0.017 483		
9p <sub>1/2</sub>	-0.012 447	-0.012 442	---
9p <sub>3/2</sub>	-0.012 396		
10p <sub>1/2</sub>	-0.009 281	-0.009 277	---
10p <sub>3/2</sub>	-0.009 248		
4d <sub>3/2</sub>	-0.065 316	-0.064 989	-0.064 981
4d <sub>5/2</sub>	-0.065 318		
5d <sub>3/2</sub>	-0.036 406	-0.036 368	-0.036 302
5d <sub>5/2</sub>	-0.036 393		
6d <sub>3/2</sub>	-0.022 798	-0.022 780	-0.022 487
6d <sub>5/2</sub>	-0.022 788		
7d <sub>3/2</sub>	-0.015 540	-0.015 529	---
7d <sub>5/2</sub>	-0.015 533		
8d <sub>3/2</sub>	-0.011 251	-0.011 243	---
8d <sub>5/2</sub>	-0.011 247		
9d <sub>3/2</sub>	-0.008 516	-0.008 510	---
9d <sub>5/2</sub>	-0.008 512		
10d <sub>3/2</sub>	-0.006 667	-0.006 661	---
10d <sub>5/2</sub>	-0.006 665		
4f	-0.031 433	-0.031 306	-0.031 297
5f	-0.020 107	-0.020 045	-0.019 983
6f	-0.013 955	-0.013 920	---
7f	-0.010 248	-0.010 226	---
8f	-0.007 842	-0.007 828	---

**Tableau 2-2 : Comparaison des énergies de liaison expérimentales du NIST et des énergies de liaison semi – empiriques obtenues par la base STO et la base OEDM couplée à des gaussiennes pour Rb.**

Transition	TOPBASE	B. Pons
3s → 3p	-0.975	-0.976008
3p → 4s	-0.171666	-0.168440
3p → 5s	-0.014233	-0.0137918
3s → 4p	-0.0132	-0.0135099
4s → 4p	-1.455	-1.44402
4p → 5s	-0.315	-0.311457
3s → 5p	-0.00195	-0.00198805
3p → 3d	-0.87	-0.853479
3d → 4p	-0.124	-0.112710
3p → 4d	-0.0965	-0.101009
4p → 4d	-0.973	-0.932745
4d → 5p	-0.243	-0.218730

Tableau 2-3 : Comparaison des forces d'oscillateur de la base de données TOPBASE et du potentiel modèle employé pour Na.

## 2.4.2 Calcul moléculaire

### 2.4.2.1 Choix de la base

La partie électronique de la fonction d'onde totale  $\psi^s$  se développe sur une base de fonctions OEDM ("One Electron Diatomic Molecule") [Harel 1980]  $\phi_k(\vec{r}, \vec{R})$ , de charges  $Z_{Na} = 1$  et  $Z_{Rb} = 1$ . Ces fonctions OEDM sont des fonctions représentant les états propres d'un système composé d'un électron actif se déplaçant dans le champ de deux ions, dont l'espèce atomique est du type hydrogène avec un seul électron de valence. L'introduction de toutes les fonctions OEDM, représentant asymptotiquement les énergies  $\varepsilon_{nlm}(R \rightarrow \infty)$  avec  $n \leq 5$ , aboutit à la présence de 70 fonctions OEDM.

La base de fonctions OEDM n'étant corrélée qu'à des états liés de l'atome d'hydrogène, cette méthode ne suffit pas pour obtenir une représentation convergée des états moléculaires du système  $Na^+ + Rb$ . L'ajout de gaussiennes sur les deux centres nucléaires remédie à ce problème :

$$G_i^{n_1, n_2}(r) = N x^{n_1} z^{n_2} e^{-\alpha_i r^2}, \quad 0 \leq n_1 + n_2 \leq l_{\max} \quad (2-126)$$

où  $r$  symbolise la distance entre l'électron actif et l'un des cœurs ioniques, i. e. successivement  $Na^+$  et  $Rb^+$ , et  $N$  est un facteur de normalisation. L'introduction de gaussiennes très diffuses ne s'impose pas car les fonctions OEDM les plus excitées le sont suffisamment, mais l'introduction de gaussiennes concentrées s'avère nécessaire pour compléter la base d'états liés. En pratique,  $l_{\max} = 2$ ,  $\alpha_0 = 0.03$  et  $n_{\max} = 14$ , quelle que soit la symétrie ( $n_1 + n_2$ ) considérée.

Enfin, cette base de fonctions OEDM couplées à des gaussiennes est effectivement suffisamment complète après vérification des énergies asymptotiques, consistantes avec celles obtenues avec les vecteurs de base STO. Les tableaux 2-1 et 2-2 exposent cette convergence des énergies propres obtenues avec les fonctions OEDM et les fonctions STO, qui

reproduisaient déjà correctement les énergies empiriques du NIST, pour Na et Rb, respectivement.

Dans les calculs avec une base de fonctions OEDM couplées à des gaussiennes, les niveaux avec une énergie supérieure à  $-0.02$  u.a. ne sont pas donnés car la base ne contient pas d'états assez diffus pour les représenter correctement. Cependant, dans la dynamique à basse énergie de projectile, ces états ne sont pas significativement peuplés. La base de fonctions OEDM n'est alors pas augmentée et est limitée à  $-0.02$  u.a.. Dans la dynamique, après diagonalisation, on ne garde alors qu'une base à 42 états, soit 20 états  $m=0$ , 13 états  $m=1$ , 7 états  $m=2$  et 2 états  $m=3$ .

### 2.4.2.2 Diagrammes de corrélation et couplages

Une fois la base choisie, et après vérification de sa complétude, la diagonalisation de l'Hamiltonien moléculaire  $H$  permet l'obtention des diagrammes de corrélation et des couplages.

Les figures 2-5 et 2-6 présentent respectivement les diagrammes de corrélation pour  $m=0$  et  $m=1$ . Pour  $m=0$ , on constate que l'état  $\text{Rb}(5s)$  rencontre des pseudo – croisements avec les états  $\text{Na}(3s)$  et  $\text{Na}(3p)$  vers 12 u.a. et 15 u.a., respectivement. L'état  $\text{Rb}(5p)$  rencontre des pseudo – croisements avec les états  $\text{Na}(3p)$  et  $\text{Na}(4s)$  vers 5 u.a. et 11 u.a., respectivement. Pour  $m=1$ , l'état  $\text{Rb}(5p)$  rencontre un pseudo – croisement avec l'état  $\text{Na}(3p)$  vers 15 u.a..

Les figures 2-7 et 2-8 présentent les principaux couplages pour  $\text{Na}^+ + \text{Rb}(5s)$  et  $\text{Na}^+ + \text{Rb}(5p)$ , respectivement. On notera (figure 2-7) les maxima à grand  $R$  des couplages radiaux (dont la magnitude reste cependant assez faible) correspondant aux pseudo – croisements (assez larges) visibles sur le diagramme de corrélation des états  $\text{Rb}(5s)\text{-Na}(3p0)$  et  $\text{Rb}(5s)\text{-Na}(3s)$ . On notera aussi le fort couplage rotationnel  $\text{Rb}(5s)\text{-Na}(3p1)$  à grand  $R$ . De même, on peut remarquer les optima des couplages radiaux (figure 2-8) vers 5 u.a. et 11 u.a. correspondant aux pseudo – croisements des états  $\text{Rb}(5p0)\text{-Na}(3p0)$  et  $\text{Rb}(5p0)\text{-Na}(4s)$ , respectivement.

Ainsi, la seule inspection des diagrammes de corrélation et des principaux couplages présentés permet déjà de comprendre la dynamique de la collision et de prédire quels seront les canaux de capture les plus empruntés.

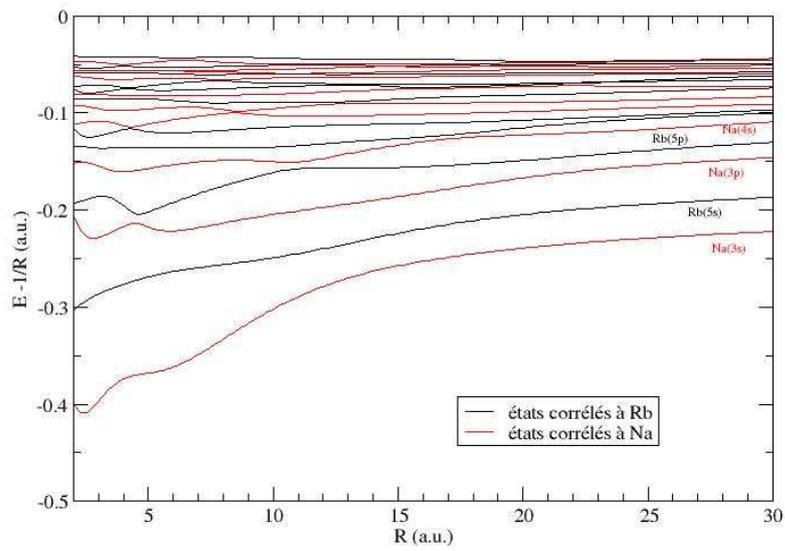


Figure 2-5 : Diagramme de corrélation pour  $m = 0$ .

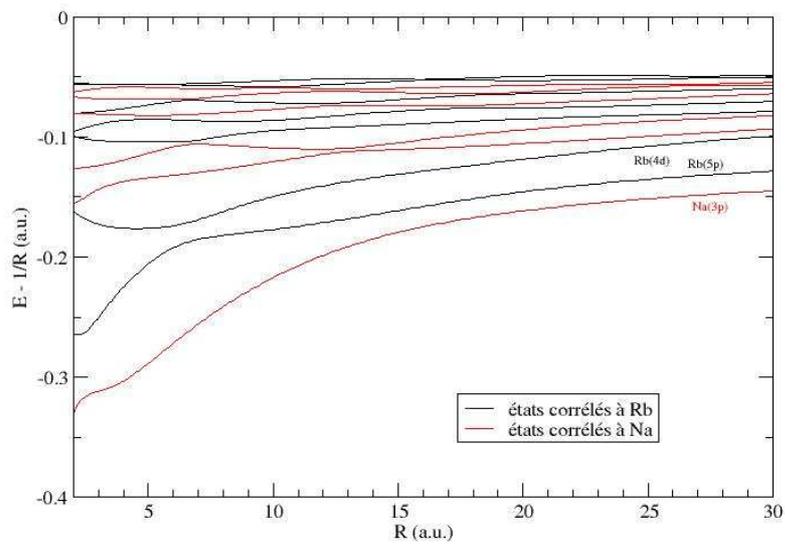


Figure 2-6 : Diagramme de corrélation pour  $m = 1$ .

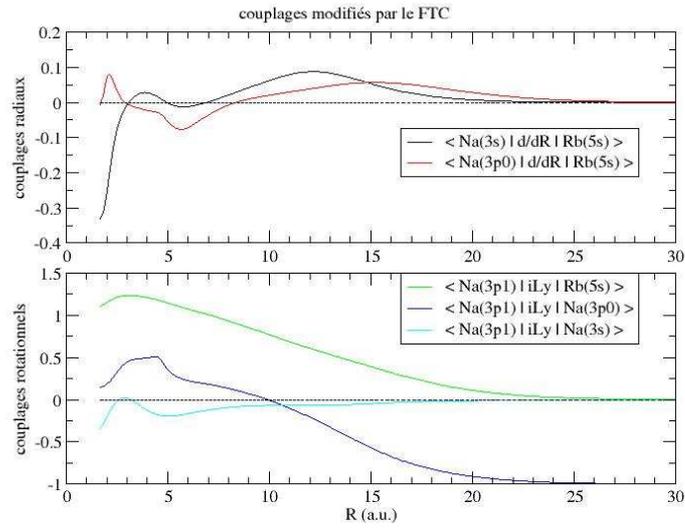


Figure 2-7 : Principaux couplages radiaux et rotationnels pour Na<sup>+</sup> + Rb(5s).

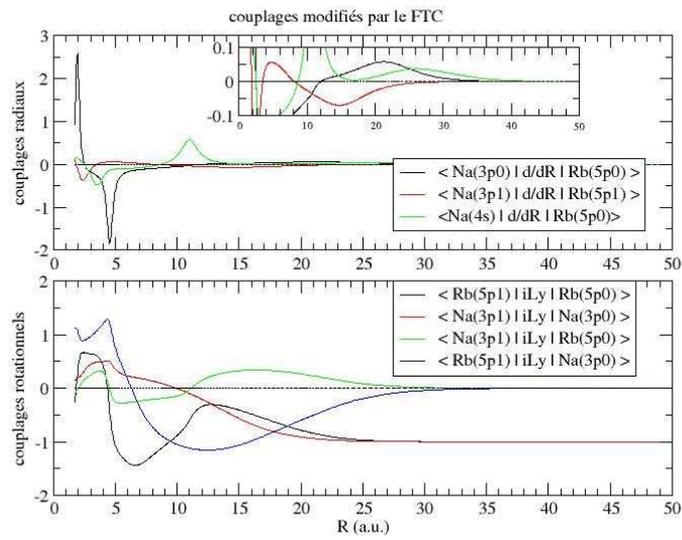


Figure 2-8 : Principaux couplages radiaux et rotationnels pour Na<sup>+</sup> + Rb(5p).

## 3 MOTRIMS

Le concept et les techniques COLTRIMS ("COLd Targets Recoil Ion Momentum Spectroscopy" en anglais, et spectroscopie d'impulsion d'ions de recul en français) furent introduits à Francfort par l'équipe du Professeur H. Schmidt-Böcking juste avant les années 1990, en particulier avec le travail de J. Ullrich et R. Dörner. La finalité de la spectroscopie d'impulsion d'ions de recul est de mesurer l'impulsion des ions de recul produits par capture électronique lors de collisions entre des projectiles ioniques et des cibles atomiques. Elle vise par là à reconstruire l'état final et la distribution des angles de déflexion des projectiles de la collision.

En utilisant des cibles issues d'un gaz statique à 30 K, ces pionniers démontrèrent que les impulsions transverses des ions de recul pouvaient être mesurées pour des angles de déflexion de projectiles dans le régime du  $\mu\text{rad}$ . Cependant, la réelle avancée pour la technique COLTRIMS survint dans les années 1990 avec l'utilisation des jets de gaz froid supersonique. Par ailleurs, des techniques plus sophistiquées d'extraction d'ions de recul utilisèrent des lentilles électrostatiques et la détection des ions de recul progressa. En ce sens, la résolution sur la mesure des impulsions d'ions de recul s'améliora considérablement, tout en conservant une efficacité de détection des ions de recul de  $4\pi$ .

Avec des spectromètres installés dans de nombreux pays, les équipes expérimentales firent des avancées majeures dans les études des angles de diffusion des projectiles et des peuplements des états lors de captures électroniques simples ou doubles, mais aussi dans les études d'autres phénomènes comme l'ionisation. Cependant, les températures de 0.1 K et au-delà des cibles froides de la technique COLTRIMS limitaient la résolution des expériences de collisions. De plus, le nombre d'espèces atomiques cibles se restreignait aux gaz rares.

Aussi l'extension de la technique COLTRIMS se poursuivit-elle au travers de la nouvelle technique MOTRIMS ("Magneto Optical Trap Recoil Ion Momentum Spectroscopy" en anglais, et spectroscopie d'impulsion d'ions de recul avec un piège magnéto – optique en français), qui consista à associer un piège magnéto – optique à un spectromètre d'impulsion d'ions de recul. Cette association fournit effectivement des cibles extrêmement froides en deçà de 1 mK, améliorant ainsi la résolution sur la mesure des impulsions d'ions de recul.

Le but de ce chapitre est de présenter la convergence entre le piège magnéto – optique et la spectrométrie d'impulsion d'ions de recul, qui donna naissance à la technique MOTRIMS.

### 3.1 Spectroscopie d'impulsion d'ions de recul

#### 3.1.1 Introduction

La finalité de l'étude des collisions entre ions et atomes est de connaître plus intimement les mécanismes mis en jeu lors du transfert d'un ou plusieurs électrons périphériques d'un atome vers les couches électroniques vides d'un ion. Pour comprendre ce phénomène appelé échange de charge, l'expérimentateur provoque volontairement des collisions entre des projectiles ioniques et des cibles atomiques. Les développements techniques de ces dernières décennies permettent aujourd'hui d'obtenir des faisceaux d'ions projectiles bien résolus en énergie. Le nombre d'espèces de projectiles et de cibles disponibles et facilement utilisables a

également crû. L'expérimentateur actuel dispose ainsi d'outils sophistiqués pour mesurer les observables nécessaires à l'étude complète des collisions entre ions et atomes.

Les charges du projectile et de l'ion de recul sont une première observable qui donne accès au nombre d'électrons capturés et au nombre d'électrons éventuellement émis par le projectile par effet Auger. Une autre observable est l'inélasticité de la collision définie comme la différence d'énergie potentielle du système induite par la collision. Elle permet aussi d'identifier les états excités sur l'ion projectile. Quant à l'angle de diffusion du projectile après la collision, il est une observable qui renseigne sur le rayon de capture, à savoir la distance la plus probable pour laquelle le transfert électronique a lieu.

Différentes techniques historiques ont permis de mesurer ces observables essentielles à la compréhension plus profonde de l'échange de charge. Il faut cependant remarquer que les premières expériences d'échange de charge entre des ions et des atomes [Fuls 1957, Ziembra 1959, Smith 1965, Pernot 1967, Baudon 1968] sont antérieures aux techniques présentées par la suite.

i) La spectroscopie en temps de vol est l'une des premières techniques à avoir appréhendé l'étude expérimentale de l'échange de charge. C'est une technique qui consiste à mesurer le temps de vol d'un ion de recul de la zone de collision au détecteur. Les ions de recul sont extraits par un champ électrostatique et typiquement détectés par un channeltron [Cocke 1979, Tawara 1989, Tonuma 1989]. Cette technique permet la séparation des différents états de charge des ions de recul ainsi qu'une détection  $4\pi$  des ions de recul. Bien qu'elle soit adaptée aux mesures de sections efficaces faibles et à l'emploi de faisceaux peu intenses, l'inélasticité de la collision et l'angle de diffusion du projectile ne sont pas mesurés.

ii) La spectroscopie de photons est une technique utilisée pour l'étude de l'échange de charge, dont le concept a été déduit de l'observation de l'émission fréquente d'un spectre photonique suite à des collisions entre ions et atomes. Les spectromètres peuvent résoudre des raies d'émission séparées de quelques angströms si bien que de nombreux états excités finaux sur le projectile peuvent être identifiés. En cas de dégénérescence des états finaux, ceux-ci peuvent être distingués dans la mesure où les désexcitations prennent des canaux différents. Pour la simple capture, des mesures de sections efficaces partielles sont effectuées [Boduch 1989, Hoekstra 1991], et la polarisation des raies peut également être étudiée [Schippers 1995, Laulhé 1995]. Cependant, la capture multiple aboutit surtout à des désexcitations par émission d'électrons et non uniquement par émission de photons. La désexcitation radiative se trouve donc défavorisée au profit de l'autoionisation, qui est un processus inaccessible pour la spectroscopie de photons. Par ailleurs, l'efficacité de détection des photons peut être améliorée en utilisant des miroirs paraboliques, mais la résolution s'en trouve dégradée [Martin 1995]. Il est aussi à noter que l'angle solide des spectromètres est petit et que les états métastables ne sont pas détectés. Enfin, la spectroscopie de photons ne donne aucune information concernant l'angle de diffusion.

iii) La spectroscopie d'électrons Auger a pour but d'analyser l'énergie des électrons issus de l'autoionisation du projectile [Stolterfoht 1987, Boudjema 1991, Bordenave-Montesquieu 1994] ou de la cible [Frémont 1996] après la collision. Cette technique spectroscopique est particulièrement adaptée pour l'étude de la double capture électronique et permet d'identifier les états excités originels des électrons Auger. C'est une technique dotée d'une grande résolution (de l'ordre de l'eV voire du dixième d'eV) qui permet donc d'obtenir des sections efficaces partielles relatives aux configurations  $nln'l'$  [Frémont 1992]. La triple capture électronique est cependant plus difficile à étudier en raison des cascades électroniques et nécessite un dispositif avec détection en coïncidence des ions de recul pour y remédier. Cette technique peut ainsi se révéler être très performante pour la capture multiple et la compréhension des processus complexes de cascades électroniques impliqués [Posthumus 1992].

iv) Une autre technique pour mesurer les observables pertinentes d'une collision est la spectroscopie de gain d'énergie. Elle consiste en une mesure précise de la variation d'énergie (ou d'impulsion) du projectile due à la collision. En ce sens, une connaissance complète de la distribution finale des états d'énergie liés sur le projectile et la cible peut être atteinte. Le degré de capture (nombre d'électrons capturés), l'angle de diffusion et le  $Q$  de réaction (l'inélasticité de la réaction) en sont directement déduits. Une revue exhaustive de cette technique expérimentale a été publiée en 1985 [Janev 1985]. Ses premiers balbutiements datent des années 1960 [Ziemba 1960, Aberth 1966] et la spectroscopie y est accomplie par une méthode de temps de vol. Plusieurs équipes [Siegel 1972, Kamber 1983, Huber 1980, McCullough 1995] ont ensuite mené des expériences impliquant des ions doublement chargés et une analyse électrostatique du changement de charge du projectile ionique. Une résolution inférieure à l'eV sur le gain d'énergie a été possible [Huber 1984, Kobayashi 1983]. Une impressionnante résolution de 10 meV a même été obtenue [Itoh 1982]. La spectroscopie de gain d'énergie a aussi été employée avec des ions multichargés (références dans [Liljeby 1983]) et pour des expériences de diffusion anisotropique du projectile sur des cibles alignées et orientées à l'aide de lasers [Aumayr 1992, Dowek 1990, Houver 1992]. Cependant, comme la résolution sur le gain d'énergie et sur l'angle de diffusion (de l'ordre du mrad) dépend de l'émittance du faisceau, cette méthode expérimentale nécessite l'emploi de faisceaux d'ions très bien résolus en énergie et très peu divergents, ce qui la limite à des collisions de basse énergie (inférieure à 30 keV). De plus, en capture multiple, l'émission d'électrons Auger altère la vitesse du projectile et le gain d'énergie mesuré n'est alors plus directement lié à l'inélasticité de la collision, ce qui peut entraîner une dégradation de la résolution. Une équipe française monta un dispositif permettant de mesurer simultanément le gain d'énergie et l'angle de diffusion du projectile en coïncidence avec l'ion de recul [Barat 1987]. Les contributions de la simple capture, de la double capture stabilisée et de la double capture auto – ionisante furent bien séparées. Grâce aux mesures de sections efficaces différentielles, ce groupe contribua beaucoup à la compréhension des mécanismes de capture pour un grand nombre de systèmes de collisions [Barat 1990, Barat 1992, Gaboriaud 1993, Guillemot 1990, Laurent 1987, Roncin 1986-1997].

Ces quatre différentes techniques sont sensibles aux effets ayant lieu après la collision et ne permettent pas toujours de remonter aux processus primaires de la collision. La spectroscopie d'impulsion d'ions de recul permet de s'affranchir de cette limitation.

### 3.1.2 Spectroscopie d'impulsion d'ions de recul

#### 3.1.2.1 Concept général

La technique de spectroscopie d'impulsion d'ions de recul a été développée dans le cadre de l'étude de collisions entre atomes et ions afin de s'affranchir de multiples contraintes, subies lors de l'utilisation de techniques précédemment décrites.

La méthode de la spectroscopie d'impulsion d'ions de recul consiste à mesurer l'impulsion des ions de recul après l'impact entre des ions projectiles et des cibles atomiques ionisées. Cette technique a notamment été motivée par le souhait de mesurer avec une grande résolution l'angle de diffusion de la collision. Traditionnellement, l'angle de diffusion des projectiles était directement mesuré par la déflexion des projectiles. Cependant, cette mesure directe était limitée par la collimation du faisceau de projectiles dont l'émittance limitait la résolution sur la mesure de l'angle de diffusion, qui était au mieux de 0.1 mrad.

La spectroscopie d'impulsion d'ions de recul a donc été développée afin d'obtenir la cinématique complète d'une collision entre un atome et un ion lors d'une simple ionisation. Hormis quelques mesures passées [Federenko 1956, Everhart 1965, Kessel 1966, McConkey 1972], l'impulsion de l'ion de recul est restée inaccessible aux expérimentateurs pendant de nombreuses années, principalement à cause des faibles énergies transmises au noyau de l'ion de recul lors de collisions entre ions et atomes ou même lors d'impacts de photons [Puckett 1976]. Après les mesures pionnières d'Ullrich et Schmidt-Böcking [Ullrich 1987a, Ullrich 1987b, Ullrich 1988a, Ullrich 1988b], il a été réalisé que de la composante perpendiculaire de la vitesse de l'ion de recul, l'angle de diffusion du projectile pouvait être déduit. Une plus grande résolution sur la mesure de l'angle de diffusion du projectile a donc pu être obtenue étant donné que cette mesure était moins sensible à la qualité du faisceau d'ions projectiles. La spectroscopie d'ions de recul n'a ensuite eu de cesse de se développer et d'être utilisée lors de nombreuses expériences. L'apport de cibles très froides comme les jets supersoniques développa considérablement cette technique [Wu 1995b, Mergel 1995a, Mergel 1995b, Ullrich 1994, Duponchel 1997, Cassimi 1996, Flécharde 1997] et permit l'accès à une grande résolution sur le  $Q$  de réaction.

Un historique complet et détaillé de la première décennie de la spectroscopie d'impulsion d'ions de recul a été écrit par Ullrich *et al.* [Ullrich 1997]. Suivirent d'autres excellentes revues [Dörner 2000, Ullrich 2003].

Ainsi, la spectroscopie d'impulsion d'ions de recul permet d'accéder à toutes les informations pertinentes d'une collision, et ce uniquement par le biais de l'impulsion des ions de recul. Son principe repose sur l'extraction des ions de recul à l'aide d'une tension accélératrice. Les ions de recul extraits traversent ensuite une région de vol libre de tout champ électrique, pour enfin atteindre un détecteur sensible à la position. L'impulsion des ions de recul est conséquemment déduite de la combinaison de leur temps de vol et de leur position sur le détecteur.

#### 3.1.2.2 Cinématique

Cette partie présente la cinématique d'une collision entre un projectile ionique et une cible atomique. Seul le cas de l'échange de charge est traité, i. e. avec transfert d'électrons depuis la cible vers le projectile. En revanche, le cas de l'ionisation n'est pas traité car il ne concerne pas ce travail. Par ailleurs, il faut noter que les angles de diffusion des projectiles sont petits lors des collisions étudiées, typiquement inférieurs à 1 mrad. De plus, le transfert d'impulsion entre la cible et le projectile est petit. Ceci aura des conséquences dans la suite de cette partie.

Toute la cinématique d'une collision entre un ion et un atome ultérieurement ionisé peut être connue grâce à l'impulsion de l'ion de recul dans le cas de l'échange de charge (mais pas dans le cas de l'ionisation). Cette affirmation peut être démontrée avec les lois fondamentales de la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement. De plus, la majorité des phénomènes observés lors de collisions entre ions et atomes a lieu à des paramètres d'impact plus grands que l'unité atomique. Il en résulte que le changement d'impulsion de l'ion de recul est faible.

Dans la suite du chapitre, toutes les expressions font appel aux unités atomiques où la masse de l'électron, la charge de l'électron et la constante  $\hbar$  sont égales à l'unité. Le repère utilisé est le repère du laboratoire.

Pour avoir accès à toute la cinématique non relativiste d'une collision entre un ion et un atome, l'étude d'un système à plusieurs corps s'impose. Dans son état initial, le système étudié se compose d'un ion projectile de masse initiale  $m_p$  et d'une cible atomique au repos

de masse initiale  $m_R$  dans le référentiel du laboratoire. Dans son état final, le système altéré se compose d'un projectile dévié de masse  $m'_P$  et d'un ion de recul de masse  $m'_R$ . La conservation de la quantité de mouvement du système impose l'égalité vectorielle suivante :

$$\mathbf{P}_P^i + \mathbf{P}_R^i = \mathbf{P}_P^f + \mathbf{P}_R^f \quad (3-1)$$

où  $\mathbf{P}_P^i$  et  $\mathbf{P}_R^i$  sont respectivement les vecteurs des quantités de mouvement du projectile et de la cible avant ( $t=i$ ) et après ( $t=f$ ) la collision (cf. figure 3-1). Comme la cible est initialement au repos, il en résulte que  $\mathbf{P}_R^i$  est un vecteur nul. La quantité de mouvement initiale du système se réduit donc à  $\mathbf{P}_P^i = m_P \mathbf{v}_P^i$ , où  $\mathbf{v}_P^i$  représente la vitesse initiale du projectile. Ensuite, on rend compte du transfert de masse (dû à l'échange de charge) en écrivant que les masses du projectile et de la cible après la collision sont respectivement égales à  $m'_P = m_P + r$  et  $m'_R = m_R - r$ , où  $r$  est le nombre d'électrons capturés par le projectile. Ainsi, il vient :

$$m_P \mathbf{v}_P^i = (m_P + r) \mathbf{v}_P^f + (m_R - r) \mathbf{v}_R^f \quad (3-2)$$

où  $\mathbf{v}_P^f$  et  $\mathbf{v}_R^f$  représentent les vitesses du projectile et de la cible après la collision, respectivement.

De même, la loi de la conservation de l'énergie impose :

$$T_P^i + T_R^i + Q = T_P^f + T_R^f \quad (3-3)$$

où  $T_P^i$  et  $T_R^i$  sont respectivement les énergies cinétiques du projectile et de la cible avant ( $t=i$ ) et après ( $t=f$ ) la collision et où  $Q$  est la différence d'énergie potentielle du système. Le facteur  $Q$  traduit l'inélasticité de la collision. Il est la différence entre l'énergie potentielle initiale et l'énergie potentielle finale du système. Si  $Q$  est strictement positif, cela correspond à une collision exothermique dans la mesure où l'état final est dans un état plus lié que l'état initial, la différence d'énergie correspondant à un gain d'énergie cinétique. Dans le cas contraire, cela correspond à une collision endothermique. Dans le cas où  $Q$  est nul, la collision est élastique et correspond à un processus résonant. Par ailleurs, il faut noter que  $T_R^i = 0$  car la cible est initialement au repos.

Tous les vecteurs de quantité de mouvement peuvent être décomposés en une composante longitudinale dirigée le long de l'axe des projectiles, et une composante transverse, perpendiculaire à l'axe des projectiles. Une collision sans émission d'électrons dans le continuum est schématisée sur la figure 3-1. Il en découle que l'équation (3-1) peut être exprimée suivant ses composantes longitudinale et transverse :

$$0 = P_{P\perp}^f + P_{R\perp}^f \quad (3-4)$$

$$P_{P\parallel}^i = P_{P\parallel}^f + P_{R\parallel}^f \quad (3-5)$$

où  $P_{P\perp}^i$  est nul par choix d'orientation de l'axe du faisceau incident de projectiles, et  $P_{R\perp}^i$  et  $P_{R//}^i$  sont nuls car la cible est initialement au repos dans le repère du laboratoire.

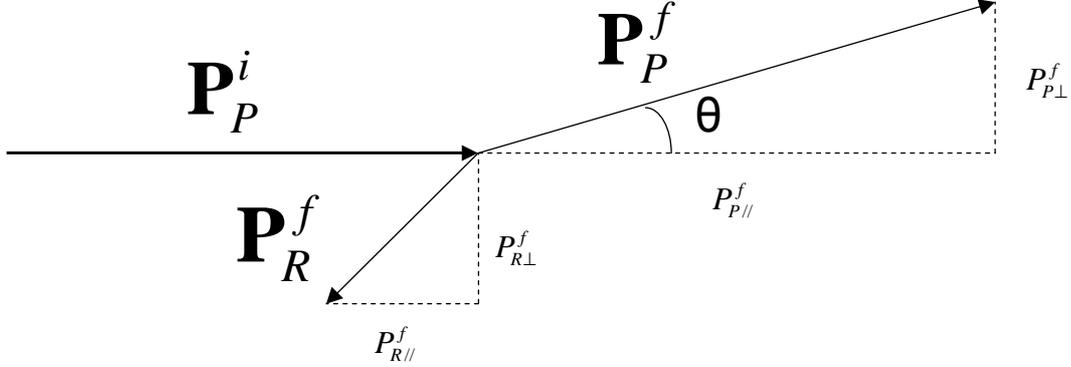


Figure 3-1 : Schéma d'illustration dans le plan de la collision des vecteurs de quantité de mouvement du projectile et de la cible (au repos avant la collision dans le repère du laboratoire) lors d'une collision sans émission d'électrons dans le continuum.  $\mathbf{P}_P^i$  et  $\mathbf{P}_P^f$  : vecteurs de quantité de mouvement du projectile respectivement avant et après la collision ;  $\mathbf{P}_R^f$  : vecteur de quantité de mouvement de la cible après la collision ; les indices // et  $\perp$  représentent respectivement les composantes longitudinales et transverses des vecteurs de quantité de mouvement ;  $\theta$  est l'angle de diffusion du projectile.

### 3.1.2.3 Composante transverse de l'impulsion de l'ion de recul

Dans le cas d'une collision sans émission d'électrons dans le continuum la relation suivante est obtenue :

$$P_{P\perp}^f = -P_{R\perp}^f \quad (3-6)$$

Cette relation traduit le fait qu'en cas de pure capture électronique, mesurer la composante transverse de l'impulsion de l'ion de recul revient à mesurer la composante transverse de l'impulsion du projectile. Or la composante transverse de l'impulsion du projectile est directement liée à l'angle de diffusion du projectile par la relation :

$$P_{P\perp}^f = P_{P//}^f \tan(\theta) \quad (3-7)$$

De plus, le transfert d'impulsion entre le projectile et la cible est petit, ce qui implique :

$$P_{P\perp}^f \approx P_{P//}^i \tan(\theta) = m_P v_P^i \tan(\theta) \quad (3-8)$$

où  $v_P^i$  est le module de la vitesse incidente du projectile. De même, puisque l'angle de diffusion du projectile est petit lors d'une collision entre un ion et un atome (typiquement,  $\theta$  est plus petit que le mrad), l'approximation  $\tan(\theta) \approx \theta$  est valide :

$$P_{P\perp}^f \approx m_P v_P^i \theta \quad (3-9)$$

Ainsi, l'angle de diffusion du projectile peut uniquement être exprimé en fonction de la composante transverse de l'ion de recul :

$$\theta = -\frac{P_{R\perp}^f}{m_P v_P^i} \quad (3-10)$$

De l'équation (3-10) la résolution sur l'angle de diffusion du projectile peut être déterminée :

$$\Delta\theta = \sqrt{\left| \frac{\partial\theta}{\partial P_{R\perp}^f} \right|^2 (\Delta P_{R\perp}^f)^2 + \left| \frac{\partial\theta}{\partial v_P^i} \right|^2 (\Delta v_P^i)^2} \quad (3-11)$$

Puis, des équations (3-10) et (3-11), la résolution sur l'angle de diffusion du projectile devient :

$$\Delta\theta = \sqrt{\frac{1}{(m_P v_P^i)^2} (\Delta P_{R\perp}^f)^2 + \left| \frac{P_{R\perp}^f}{m_P v_P^{i2}} \right|^2 (\Delta v_P^i)^2} \quad (3-12)$$

Afin de mesurer la portée de chaque terme de l'équation (3-12), l'énergie cinétique initiale du projectile  $T_P^i$  peut être introduite :

$$T_P^i = \frac{1}{2} m_P v_P^{i2} \quad (3-13)$$

Ainsi, l'équation (3-12) peut finalement être transformée à l'aide de termes plus intelligibles :

$$\Delta\theta = |\theta| \sqrt{\left( \frac{\Delta P_{R\perp}^f}{P_{R\perp}^f} \right)^2 + \left( \frac{1}{2} \frac{\Delta T_P^i}{T_P^i} \right)^2} \quad (3-14)$$

L'équation (3-14) montre que la résolution sur l'angle de diffusion du projectile est une combinaison des résolutions sur  $P_{R\perp}^f$  et sur l'énergie cinétique du projectile. Or le terme  $\frac{1}{2} \frac{\Delta T_P^i}{T_P^i}$  est typiquement de l'ordre de  $10^{-3}$  tandis que la résolution sur  $P_{R\perp}^f$  est au mieux de  $2 \times 10^{-3}$ . Il vient donc que la résolution sur l'angle de diffusion du projectile n'est limitée que par la précision sur la mesure de  $P_{R\perp}^f$  :

$$\Delta\theta = \left| \theta \frac{\Delta P_{R\perp}^f}{P_{R\perp}^f} \right| \quad (3-15)$$

### 3.1.2.4 Composante longitudinale de l'impulsion de l'ion de recul

L'expression de l'inélasticité  $Q$  en fonction de la quantité de mouvement transférée à la cible peut être établie à partir de la relation  $T_P^i + Q = T_P^f + T_R^f$ .

Dans le cas des collisions à petits angles de diffusion [Jardin 1995], l'inélasticité de la collision peut alors être déduite en mesurant la composante longitudinale de l'impulsion de l'ion de recul :

$$Q = -v_P^i P_{R//}^f - \frac{1}{2} r v_P^{i2} \quad (3-16)$$

La résolution sur la mesure de l'inélasticité de la collision s'exprime alors sous la forme suivante :

$$\Delta Q = \sqrt{\left( \left( P_{R//}^f + r v_P^i \right) \Delta v_P^i \right)^2 + \left( v_P^i \Delta P_{R//}^f \right)^2} \quad (3-17)$$

qui peut se mettre sous une autre forme :

$$\Delta Q = \sqrt{\left( \left( \frac{P_{R//}^f}{m_P v_P^i} + \frac{r}{m_P} \right) \Delta T_P^i \right)^2 + \left( v_P^i \Delta P_{R//}^f \right)^2} \quad (3-18)$$

La valeur de  $\frac{1}{2} r v_P^{i2}$  étant petite devant celle de  $Q$ , le facteur d'inélasticité s'approxime en  $Q \approx -v_P^i P_{R//}^f$ . L'expression approchée de la résolution sur la mesure de l'inélasticité peut alors s'écrire :

$$\Delta Q = \sqrt{\left( \left( -\frac{Q}{2T_P^i} + \frac{r}{m_P} \right) \Delta T_P^i \right)^2 + \left( Q \frac{\Delta P_{R//}^f}{P_{R//}^f} \right)^2} \quad (3-19)$$

Le terme  $\frac{r}{m_P}$  est toujours inférieur à  $2 \times 10^{-4}$  pour les collisions présentement étudiées.

Quant au rapport  $\frac{Q}{2T_P^i}$ , il est toujours inférieur à  $1 \times 10^{-4}$ . Ces deux précédents termes sont

négligeables devant le rapport  $\frac{\Delta P_{R//}^f}{P_{R//}^f}$  qui est au mieux de l'ordre de  $10^{-2}$  avec les dispositifs

actuels. Il vient alors que la résolution sur l'inélasticité de la collision n'est fonction que de la résolution sur la mesure de la composante longitudinale de l'impulsion de l'ion de recul :

$$\Delta Q = \left| Q \frac{\Delta P_{R//}^f}{P_{R//}^f} \right| \quad (3-20)$$

### 3.1.2.5 Discussion

Pour une étude expérimentale aboutie des processus de capture lors de collisions entre ions et atomes, il est essentiel de déterminer précisément l'inélasticité de la collision et l'angle de diffusion du projectile. L'inélasticité de la collision permet de remonter aux états liés finaux des électrons, et l'angle de diffusion du projectile renseigne sur le paramètre d'impact. Les équations (3-10) et (3-16) montrent que les paramètres essentiels d'une collision sont intimement liés aux composantes du vecteur impulsion de l'ion de recul. Ainsi, pour connaître le facteur d'inélasticité de la collision, il suffit de mesurer la composante longitudinale de l'impulsion de l'ion de recul. De même, la composante transverse de l'impulsion de l'ion de recul permet de déterminer l'angle de diffusion du projectile.

Cependant, l'étude cinématique de l'ion de recul offre les mêmes informations que celle du projectile, mais la détection de l'ion de recul présente des avantages par rapport à la détection du projectile. Ces avantages conséquents se résument en quatre points :

- Contrairement au projectile, l'ion de recul subit généralement des effets négligeables après la collision (comme la possible émission d'un photon suite à une désexcitation radiative) et conserve l'empreinte des processus primaires de la collision.
- L'efficacité de détection des ions de recul peut être de  $4\pi$  stéradians.
- La résolution sur les mesures du facteur d'inélasticité et de l'angle de diffusion ne dépend que faiblement de la qualité du faisceau de projectiles.
- L'impulsion de l'ion de recul donne accès aux petits angles de diffusion du projectile.

### 3.1.3 Le spectromètre d'impulsion d'ions de recul

La technique de spectroscopie d'impulsion d'ions de recul s'appuie sur l'élément central qu'est le spectromètre d'impulsion d'ions de recul. Il est l'instrument qui permet d'extraire les ions de recul vers un détecteur et de déterminer les composantes transverses et longitudinales des ions de recul à partir des temps de vol et des positions sur le détecteur.

Cette partie a pour but de présenter le cas d'un spectromètre d'impulsion d'ions de recul à champ d'extraction homogène avec grille. Un champ d'extraction homogène est un champ électrique sans courbure de lignes de champ. Avec ce type de spectromètre, les trajectoires des ions de recul présentent l'avantage d'avoir une expression analytique.

Un spectromètre d'impulsion d'ions de recul est principalement composé de deux parties instrumentales. La première partie sert à extraire les ions de recul produits lors d'une capture électronique. Cette région où les ions de recul sont extraits est soumise à un faible champ électrostatique créé par des électrodes. La seconde partie consiste en une région de vol libre, soumise à aucun champ électrique, à travers laquelle volent les ions de recul jusqu'au détecteur sensible à la position. Dans le cas d'un spectromètre à champ d'extraction homogène, une grille sépare la zone d'extraction et la zone de vol libre.

Des champs d'extractions homogènes et transverses au faisceau d'ions projectiles ont originellement été appliqués [Jardin 1993, Jagutzki 1995]. Un spectromètre au champ

### 3.1 Spectroscopie d'impulsion d'ions de recul

d'extraction homogène suivi d'une zone de vol libre possède un plan de focalisation temporelle. Des ions partant de positions initiales différentes dans la zone de collision mais de même vecteur impulsion arrivent sur ce plan avec le même temps de vol. Un ion produit à une distance  $\Delta z$  du centre idéal de la zone de collision, et donc pourvu d'une énergie potentielle supplémentaire dans le champ d'extraction, arrivera sur le détecteur au même instant qu'un ion de recul avec une position de départ en  $z=0$ . Pour une extraction homogène, une focalisation en temps au premier ordre des ions de recul a lieu le long du champ électrique d'extraction et à une distance de vol libre deux fois plus longue que la distance parcourue dans la zone soumise au champ électrique [Wiley 1955], comme le montre la figure 3-2.

Une fois la zone de vol libre parcourue, les ions de recul sont collectés sur un détecteur en position où trois mesures sont effectuées, à savoir les coordonnées bidimensionnelles de l'ion de recul sur le détecteur et son temps de vol depuis la zone de collision où a eu lieu la capture électronique. La figure 3-2 schématise le principe du spectromètre d'impulsion d'ions de recul pour résumer son fonctionnement. Le faisceau d'ions projectiles se propage le long de l'axe  $x$  qui constitue donc l'axe des composantes longitudinales. Toute composante transverse est donc une combinaison vectorielle de composantes suivant les axes  $y$  et  $z$ . Le champ d'extraction est colinéaire à l'axe  $z$ . L'axe de propagation des ions de recul (formés dans la zone de collision) jusqu'au détecteur en position est conséquemment l'axe  $z$ .

La mesure du temps de vol de l'ion de recul est une mesure de coïncidence déduite de la différence des temps d'arrivée de l'ion projectile et de l'ion de recul sur leurs détecteurs respectifs depuis l'instant de la collision. Le temps de vol de l'ion de recul dépend de sa composante de vitesse transverse, du rapport entre sa masse et sa charge (le temps de vol de l'ion de recul est d'autant plus court que sa masse est faible et sa charge élevée), de la géométrie du spectromètre et des champs électriques appliqués. La charge et la composante transverse selon l'axe  $z$  de la vitesse de l'ion de recul sont donc déterminées à partir de son temps de vol et des équations du mouvement de l'ion à travers la zone d'extraction puis la zone de vol libre.

La composante longitudinale de la vitesse de l'ion de recul est déduite de la position de l'ion de recul sur le détecteur et de son temps de vol dans la mesure où les champs d'extraction sont transverses au faisceau d'ions projectiles et n'ont donc aucune composante longitudinale.

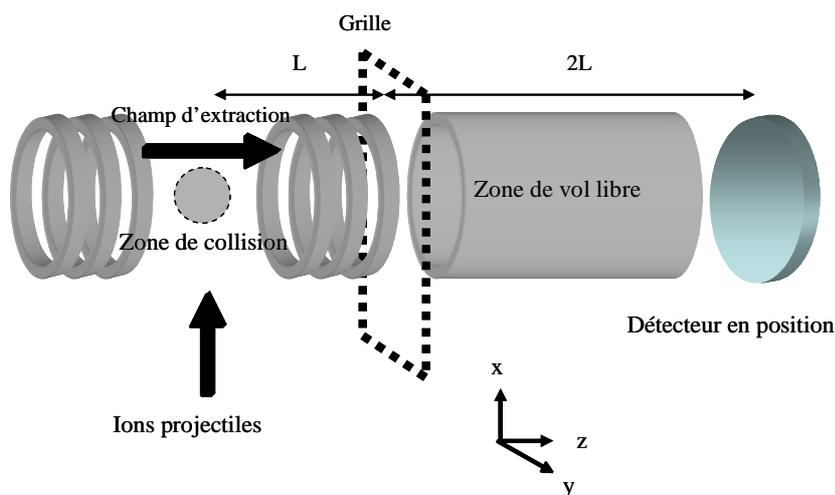


Figure 3-2 : Schéma de principe de la spectroscopie d'impulsion d'ions de recul.

### 3.1.3.1 Temps de vol

L'expression du temps de vol  $T$  de l'ion de recul de masse  $m_R$  à travers la zone d'extraction puis la zone de vol libre est la suivante :

$$T = \frac{-v_{R\perp,z} + \sqrt{v_{R\perp,z}^2 + 2z_{ext}a}}{a} + \frac{z_{vl}}{\sqrt{v_{R\perp,z}^2 + 2z_{ext}a}} \quad (3-21)$$

où  $v_{R\perp,z}$  représente la composante transverse de la vitesse de l'ion de recul selon l'axe  $z$ ,  $z_{ext}$  est la distance entre la zone de collision et l'entrée de la zone de vol libre,  $z_{vl}$  est la distance de la zone de vol libre, et  $a = \frac{rE}{m_R}$  représente l'accélération de l'ion de recul avec  $E$  le champ

électrique d'extraction. L'expression de  $v_{R\perp,z}$  est donnée par  $v_{R\perp,z} = \frac{P_{R\perp,z}^f}{m_R}$  où  $P_{R\perp,z}^f$  représente la projection de la composante transverse de l'impulsion de l'ion de recul sur l'axe  $z$ . Le premier terme de l'équation (3-21) correspond au temps nécessaire à l'ion de recul pour sortir de la zone d'extraction tandis que le second correspond au temps pour parcourir la zone de vol libre.

Comme la focalisation en temps au premier ordre des ions de recul impose  $z_{vl} \approx 2z_{ext}$ , et en supposant que  $\frac{1}{2}m_R v_{R\perp,z}^2 \ll rEz_{ext}$  étant donné que l'énergie cinétique initiale des ions de recul est faible devant l'énergie acquise lors de l'extraction, l'expression approchée du temps de vol devient après un développement limité au premier ordre :

$$T = \sqrt{\frac{8(z_{ext} + z_{vl})}{3a}} - \frac{v_{R\perp,z}}{a} = T_0 - \frac{v_{R\perp,z}}{a} \quad (3-22)$$

Le terme  $T_0$  est le temps de vol associé à un ion de recul de vitesse initiale nulle. Il dépend essentiellement de l'accélération de l'ion de recul et de ses termes sous-jacents. Le second terme permet de déterminer la composante transverse selon l'axe  $z$  de la vitesse d'un ion de temps de vol  $T$  à partir de la différence  $\Delta t = T - T_0$ . Cette différence peut être positive ou négative selon le signe de  $v_{R\perp,z}$ . L'impulsion d'un ion de recul dirigée vers le détecteur implique  $v_{R\perp,z} > 0$  et *a fortiori*  $\Delta t < 0$ . Il est aussi important de noter que  $\Delta t$  est proportionnel à  $\frac{1}{E}$ , tandis que  $T_0$  est proportionnel à  $\frac{1}{\sqrt{E}}$ . Ceci implique qu'il est toujours possible de distinguer deux ions de recul de rapport  $\frac{m_R}{r}$  différents en augmentant le champ d'extraction  $E$ .

### 3.1.3.2 Calcul de l'impulsion de l'ion de recul

Comme toute la cinématique d'une collision entre un ion et un atome est accessible via la mesure de l'impulsion de l'ion de recul, il est essentiel de pouvoir calculer ses composantes à

### 3.1 Spectroscopie d'impulsion d'ions de recul

partir de données expérimentales. Sa composante longitudinale est colinéaire à l'axe x, tandis que sa composante transverse se décompose suivant les axes y et z pour donner :

$$P_{R\perp}^f = \sqrt{(P_{R\perp,y}^f)^2 + (P_{R\perp,z}^f)^2} \quad (3-23)$$

La composante transverse selon l'axe z de l'impulsion d'ion de recul est facilement déduite de l'expression approchée du temps de vol de l'équation (3-22) :

$$P_{R\perp,z}^f = -rE(T - T_0) \quad (3-24)$$

On remarque que la composante transverse selon l'axe z de l'impulsion d'ion de recul dépend fortement du champ d'extraction et de la géométrie du système de détection. Il vient ensuite que la résolution sur la composante transverse selon l'axe z de l'impulsion d'ion de recul est fonction de la résolution sur le temps de vol de l'ion de recul :

$$\Delta P_{R\perp,z}^f = rE\Delta T \quad (3-25)$$

L'axe longitudinal, i.e. l'axe x, ainsi que l'axe y sont perpendiculaires au champ électrique d'extraction, ce qui signifie qu'aucune force extérieure n'agit dans cette direction. Cette indépendance vis-à-vis des forces extérieures a ses conséquences au niveau du détecteur en position des ions de recul. Il en résulte donc que la composante longitudinale et la composante transverse selon l'axe y de l'impulsion de l'ion de recul sont directement proportionnelles aux coordonnées de l'ion de recul sur le détecteur en position :

$$P_{R//}^f = m_R \frac{x - x_0}{T} \quad (3-26)$$

$$P_{R\perp,y}^f = m_R \frac{y - y_0}{T} \quad (3-27)$$

où x et y représentent les coordonnées de l'ion de recul sur le détecteur en position,  $x_0$  et  $y_0$  ses coordonnées initiales dans la zone de collision, et  $P_{R\perp,y}^f$  la composante transverse selon l'axe y de l'impulsion d'ion de recul. Les expressions des résolutions sur les mesures de  $P_{R//}^f$  et  $P_{R\perp,y}^f$  sont :

$$\Delta P_{R//}^f = m_R \sqrt{\left(\frac{\Delta x}{T}\right)^2 + \left(\frac{\Delta x_0}{T}\right)^2 + \left(P_{R//}^f \frac{\Delta T}{T}\right)^2} \quad (3-28)$$

$$\Delta P_{R\perp,y}^f = m_R \sqrt{\left(\frac{\Delta y}{T}\right)^2 + \left(\frac{\Delta y_0}{T}\right)^2 + \left(P_{R\perp,y}^f \frac{\Delta T}{T}\right)^2} \quad (3-29)$$

La résolution spatiale des détecteurs sensible à la position utilisés est au mieux proche de 45  $\mu\text{m}$ . La zone de collision, quant à elle, aura des dimensions de l'ordre du mm. De plus, la

résolution temporelle est inférieure à  $5 \times 10^{-6}$ . Ceci conduit donc aux expressions approchées des résolutions sur les composantes de l'impulsion d'ion de recul :

$$\Delta P_{R//}^f = m_R \frac{\Delta x_0}{T} \quad (3-30)$$

$$\Delta P_{R\perp,y}^f = m_R \frac{\Delta y_0}{T} \quad (3-31)$$

Grâce à la focalisation en temps de vol des ions de recul, les dimensions de la zone de collision n'ont qu'un faible impact sur la mesure de la composante transverse selon l'axe z de l'impulsion d'ion de recul. Cependant, les équations (3-30) et (3-31) prouvent que la taille de la zone de collision a une incidence sur les résolutions des composantes longitudinale et transverse selon l'axe y de l'impulsion d'ion de recul.

### 3.1.3.3 Spectromètre à champ d'extraction inhomogène

Afin de s'affranchir des effets de la taille de la zone de collision, l'astuce consiste à appliquer un champ d'extraction inhomogène, i. e. un champ électrique qui présente une courbure de ses lignes de champ. L'enjeu consiste à créer une lentille électrostatique qui fera converger au niveau du détecteur les ions de recul de même impulsion initiale dans la zone de collision. Par la suite, pour créer une lentille électrostatique, il faut associer un champ électrostatique faible suivi d'un champ électrostatique fort. La nouvelle configuration des lignes de champ autorise la convergence spatiale des ions de recul.

Cependant, il faut remarquer que la mise en place d'une lentille électrostatique modifie la condition de focalisation temporelle des ions de recul. Ce problème sera discuté plus avant.

## 3.2 MOT

### 3.2.1 Introduction

La mesure de faibles transferts d'impulsion entre les projectiles et les cibles (de l'ordre de 1 u.a. dans le cas de la capture) nécessite une faible agitation thermique des atomes cibles. La distribution de vitesses initiales des atomes cibles ne doit pas dégrader la résolution sur la mesure d'impulsion des ions de recul afin de résoudre différents canaux de capture lors du transfert électronique. Pour répondre à cette exigence expérimentale, il est nécessaire d'avoir des cibles extrêmement froides.

Les cibles froides sont obtenues à l'aide d'un piège magnéto – optique. Les principes du refroidissement laser et du piégeage sont exposés. La présentation du piégeage magnéto – optique du rubidium suit celle sur les fondements théoriques de cette technique.

### 3.2.2 Fondements historiques

Depuis l'avènement du laser, une des plus importantes avancées en physique atomique fut la réalisation du refroidissement laser. Cette technique permet un contrôle inouï sur des atomes

libres, jusqu'à pouvoir placer une fraction macroscopique d'atomes dans l'état quantique de plus basse énergie, avancée considérable qui fut appelé condensât de Bose – Einstein [Anderson 1995].

Plusieurs groupes introduisirent les concepts de refroidissement laser. Les premiers furent Letokhov [Letokhov 1968a, Letokhov 1968b] et Ashkin [Ashkin 1970a, Ashkin 1970b], indépendamment suivis de Hänsch et Schawlow [Hänsch 1975], puis de Wineland et Dehmelt [Wineland 1975]. Tous ces concepts reposent sur le fait que la lumière possède une impulsion [Einstein 1917] et qu'une lumière résonante peut défléchir des atomes [Lebedev 1910, Frisch 1933].

Neuhauser *et al.* [Neuhauser 1978] démontrèrent le refroidissement laser d'ions confinés dans un piège de Paul, tandis qu'Andreev *et al.* [Andreev 1981] réalisèrent le refroidissement laser d'atomes neutres en une dimension. Suivirent les démonstrations expérimentales du refroidissement laser en deux puis trois dimensions, respectivement établies en 1984 [Balykin 1984] et 1985 [Chu 1985]. Cependant, bien qu'ils fussent refroidis, les atomes n'étaient pas encore piégés. C'est à Raab *et al.* [Raab 1987] que l'on doit l'addition d'un champ magnétique inhomogène aux faisceaux laser. Ainsi naquit le piège magnéto – optique.

Les pièges magnéto – optiques alors en vigueur étaient chargés à l'aide d'un faisceau atomique. Monroe *et al.* [Monroe 1990] démontrèrent qu'il était possible de les charger à l'aide d'un gaz diffusif. Un nouveau type de piège magnéto – optique était né. Une nouvelle discipline de physique atomique était née. La collecte de millions d'atomes par seconde de nombreuses espèces (alcalins, alcalino-terreux, gaz rares et chrome), refroidis à des températures inférieures au mK, permit à d'autres expériences de se servir de ce nouvel outil exceptionnel.

Pour ce travail, un piège magnéto – optique fournit des cibles atomiques de rubidium extrêmement froides pour des projectiles ioniques.

### 3.2.3 Refroidissement laser et piégeage magnéto – optique

Le principe du refroidissement laser repose sur le fait qu'une lumière résonante peut exercer une force énorme sur un atome, jusqu'à 50000 fois la gravité, et sur le fait que cette force dépend de la vitesse de l'atome, donnée par son amplitude et sa direction.

Le phénomène élémentaire est le suivant : un atome se déplaçant à l'encontre d'un faisceau laser, dont la fréquence est légèrement décalée vers le rouge par rapport à la fréquence de résonance de l'atome, subit une force inverse à son sens de déplacement. L'effet Doppler, dû à la vitesse de l'atome, fait en sorte que l'atome en mouvement fait face à une lumière résonante. L'atome absorbe des photons du laser et les réémet ensuite dans toutes les directions. Chaque photon absorbé transmet une impulsion élémentaire à l'atome dans la direction et le sens de propagation du faisceau laser, i. e. dans le sens opposé du déplacement de l'atome. Cependant, les photons réémis transmettent de manière isotrope des impulsions élémentaires à l'atome, de sorte que pour un grand nombre de cycles absorption/émission l'impulsion résultante liée à cette réémission soit nulle. Il en résulte que les atomes se déplaçant à l'encontre du faisceau laser subissent une force de freinage et sont donc progressivement décélérés suivant la direction du faisceau. L'idée de refroidissement laser est ainsi introduite. Un atome chaud est un atome rapide. Un atome décéléré est donc un atome refroidi.

Un piège magnéto – optique utilise un système de trois paires de faisceaux laser contra – propageant disposées dans les trois directions de l'espace et combinées à un gradient de champ magnétique généré par deux bobines en configuration anti – Helmholtz (cette configuration diffère de la configuration Helmholtz par le fait que les courants des bobines sont inversés). Son principe de fonctionnement peut être approché de façon simple sur un cas

unidimensionnel mettant en jeu une transition atomique du niveau fondamental  $J = 0$  vers l'état excité  $J = 1$ , avec  $J$  le nombre quantique associé au moment cinétique total.

### 3.2.3.1 Refroidissement des atomes

Pour introduire le principe de refroidissement des atomes (cf. figure 3-3), il faut d'abord considérer un faisceau laser de fréquence  $\nu_1$  traversant une vapeur atomique susceptible d'effectuer une transition de fréquence  $\nu_0$  (passage de l'état fondamental d'énergie  $E_0$  à un état excité d'énergie  $E_1$  tel que  $\Delta E = E_1 - E_0 = h\nu_0$ , avec  $h$  la constante de Planck).

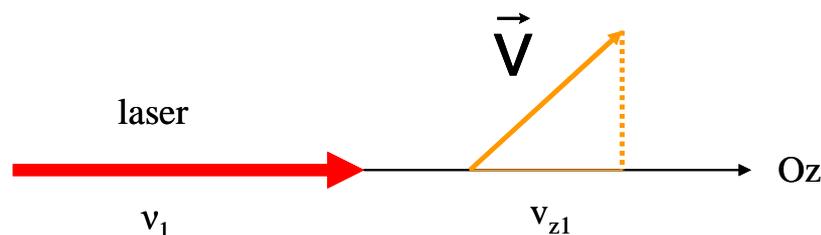


Figure 3-3 : Schéma d'introduction au refroidissement des atomes avec un laser.

En raison de l'effet Doppler, un atome en déplacement à la vitesse  $\vec{v}$  de projection  $\nu_{z1}$  dans la direction et le sens de propagation du faisceau laser (axe Oz), comme le montre le schéma de la figure X, voit une fréquence apparente  $\nu_{atome}$  inférieure à  $\nu_1$  :

$$\nu_{atome} = \nu_1 \frac{1}{1 + \frac{\nu_{z1}}{c}} \quad (3-32)$$

où  $c$  est la vitesse de la lumière. Si  $\nu_{atome} = \nu_0$ , l'atome absorbera le photon incident et passera dans l'état excité. Inversement, un atome en déplacement dans le sens opposé au faisceau voit une fréquence laser augmentée.

Il faut à présent considérer deux faisceaux contra-propageant de fréquence  $\nu_1$  inférieure à celle de la transition atomique  $\nu_0$ , avec  $\delta = \nu_0 - \nu_1$ . Sur la figure 3-4, il est clair que l'interaction entre le rayonnement et l'atome est favorisée entre le faisceau et l'atome lorsque leurs directions de propagation et de déplacement sont antiparallèles. En effet, la fréquence  $\nu_1$  du laser, choisie inférieure à celle de la transition  $\nu_0$ , sera perçue comme diminuée dans une configuration parallèle et augmentée (donc favorisant l'interaction) dans une configuration antiparallèle.

La force exercée sur les atomes permet donc de les freiner d'autant plus que leur vitesse portée par l'axe des faisceaux augmente. Il reste alors à les localiser au centre du piège.

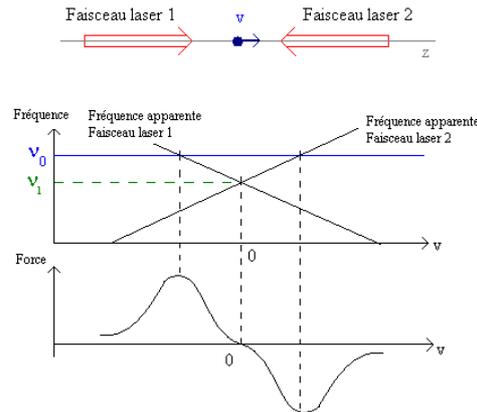


Figure 3-4 : Action de deux faisceaux contra – propageant sur des atomes en déplacement.

### 3.2.3.2 Piégeage des atomes

On peut maintenant décrire l'action du champ magnétique à l'intérieur du piège en se limitant à la classe de vitesse nulle ( $v_{z1} = 0$ ).

La présence d'un gradient de champ magnétique dirigé selon l'axe des faisceaux induit un déplacement  $\Delta E$  des niveaux ( $J = 1, m_J = \pm 1$ ) conformément à l'effet Zeeman (figure 3-5). Comme le montre la figure 3-6, les deux faisceaux contra – propageant présentent en réalité des polarisations circulaires opposées : le faisceau 1 est polarisé  $\sigma_+$  tandis que le faisceau 2 est polarisé  $\sigma_-$ . Les deux faisceaux sondent alors une transition différente : ( $J = 0$ )  $\rightarrow$  ( $J = 1, m_J = +1$ ) pour le faisceau 1, et ( $J = 0$ )  $\rightarrow$  ( $J = 1, m_J = -1$ ) pour le faisceau 2.

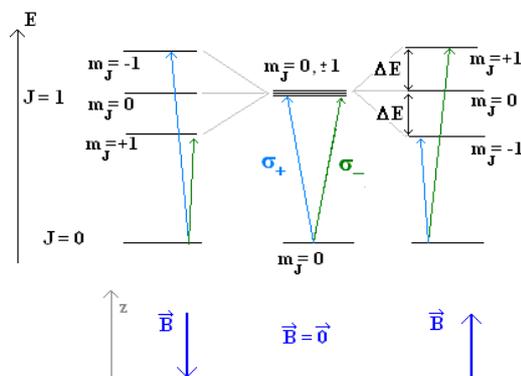


Figure 3-5 : Déplacement des sous-niveaux ( $J = 1, m_J = 0, \pm 1$ ) sous l'action d'un champ magnétique (effet Zeeman).

Le déplacement des sous-niveaux étant proportionnel au champ ( $\Delta E = g\mu_B m_J B$ , où  $g$  est le facteur de Landé, et  $\mu_B$  le magnéton de Bohr), le gradient de champ modifie les fréquences de transitions ( $J = 1, m_J = \pm 1$ ) sondées par chacune des polarisations comme le présente la figure 3-5.

Il est alors clair que la présence du champ magnétique favorisera le rappel vers le centre du piège en  $z = 0$ . Un atome à gauche du centre ( $z < 0$ ) interagira avec un laser de fréquence  $\nu_1$  polarisé  $\sigma_+$  venant de la gauche, et ignorera le laser venant de la droite dont la polarisation  $\sigma_-$  lui fera sonder une transition de fréquence incompatible avec  $\nu_1$ . La situation est inversée

pour un atome à droite du centre ( $z > 0$ ) qui interagira avec le laser venant de droite sans voir le laser venant de gauche, non résonant.

Le piège magnéto – optique combine donc une force de freinage et une force de rappel grâce aux faisceaux contra – propageant polarisés de façon à tirer parti de l'effet Zeeman sous champ magnétique.

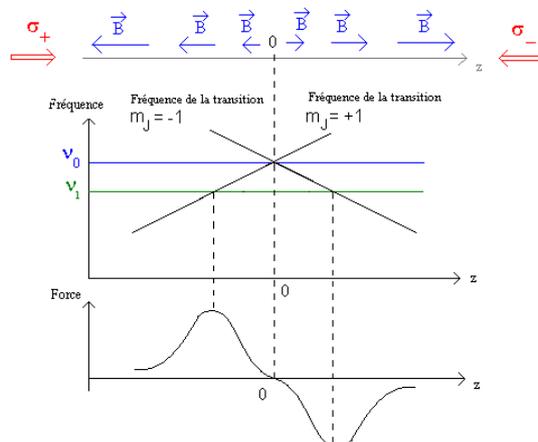


Figure 3-6 : Déplacement des fréquences de transition par effet Zeeman.

### 3.2.3.3 Généralisation à trois dimensions

Le principe tridimensionnel est plus complexe mais il conduit à l'obtention d'un nuage d'atomes froids localisé dans la zone de recouvrement des trois paires de faisceaux.

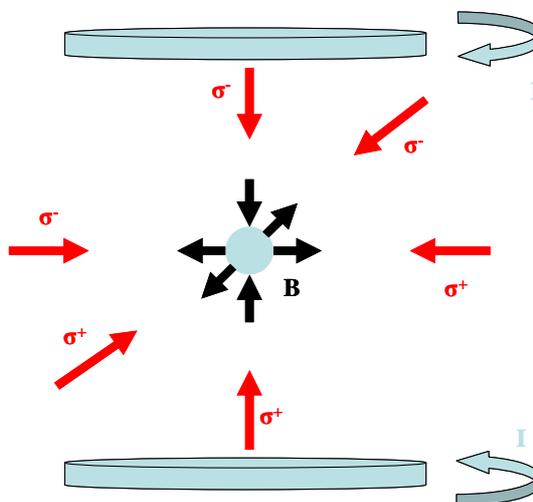


Figure 3-7 : Schéma du piège magnéto – optique introduit par Raab *et al.* [Raab 1987] et utilisé dans ce travail.

La description simpliste précédemment présentée est généralisable aux atomes à plusieurs niveaux énergétiques et à des situations en trois dimensions.

Pour résumer, l'effet Zeeman, induit par les bobines, rapproche l'atome de la résonance avec les faisceaux lasers lorsque celui-ci s'écarte du centre du piège de champ magnétique nul. L'atome se retrouve poussé en arrière vers le centre du piège par le faisceau laser qui présente la polarisation appropriée. Aussi l'addition d'un champ magnétique inhomogène à trois paires de faisceaux laser, contra – propageant, décalés vers le rouge et polarisés de manière

appropriée, crée-t-elle le piège magnéto – optique. La figure 3-7 illustre schématiquement le principe du piège magnéto – optique introduit par Raab *et al.* [Raab 1987].

### 3.2.4 Piégeage magnéto – optique du rubidium

Jusqu'ici, seul le cas idéal du piégeage magnéto – optique d'un atome à deux niveaux a été traité. Dans ce paragraphe, le cas plus spécifique du piégeage magnéto – optique du rubidium va être traité. En effet, l'expérience de collisions utilisant la technique MOTRIMS réalisée dans ce travail nécessite des cibles froides de rubidium. Les isotopes  $^{85}\text{Rb}$  et  $^{87}\text{Rb}$  peuvent être piégés au sein du dispositif expérimental ultérieurement présenté, mais seul l'isotope  $^{87}\text{Rb}$  est utilisé comme cible lors de l'étude des collisions.

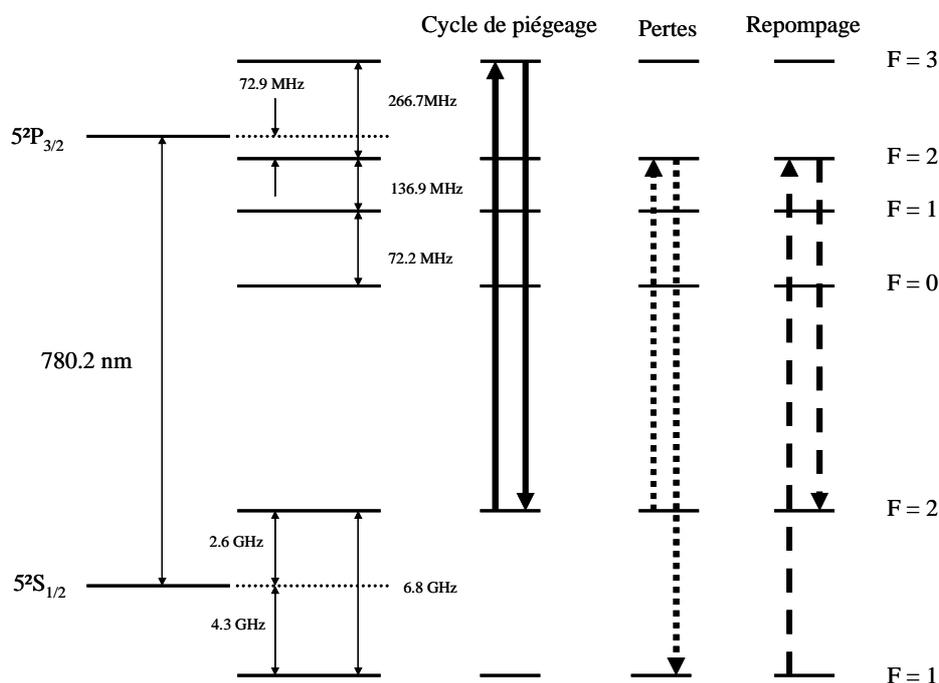


Figure 3-8 : Structure hyperfine du  $^{87}\text{Rb}$ .

La figure 3-8 détaille la structure hyperfine du  $^{87}\text{Rb}$  pour la transition entre le niveau fondamental  $5^2S_{1/2}$  et le niveau excité  $5^2P_{3/2}$ . La transition atomique  $5^2S_{1/2}$  ( $F = 2$ )  $\rightarrow$   $5^2P_{3/2}$  ( $F = 3$ ) autorise un cycle pour les populations d'atomes lors du piégeage magnéto – optique. Cette transition est schématisée à l'aide de flèches pleines. Cependant, à cause de la largeur naturelle des transitions et des petits décalages énergétiques conjointement dus aux effets Doppler et Zeeman impliqués dans un piège magnéto – optique, il arrive accidentellement qu'une transition atomique depuis le niveau fondamental  $5^2S_{1/2}$  ( $F = 2$ ) conduise au niveau excité  $5^2P_{3/2}$  ( $F = 2$ ). Or ce niveau autorise une décroissance vers le niveau  $5^2S_{1/2}$  ( $F = 1$ ). Il en résulte une migration des atomes hors du cycle de piégeage, comme le montrent les flèches en petits pointillés. Le piège magnéto – optique a donc besoin d'une seconde transition atomique entre les niveaux  $5^2S_{1/2}$  ( $F = 1$ ) et  $5^2P_{3/2}$  ( $F = 2$ ) qui permet aux atomes de réintégrer le cycle de piégeage. Cette transition est représentée par de longs pointillés sur la figure 3-8.

### 3.3 MOTRIMS

Le but de cette partie, largement inspirée par le travail rassembleur de DePaola *et al.* [DePaola 2008], est de présenter de manière concise et aussi complète que possible la méthodologie de la technique MOTRIMS, de résumer les expériences engagées dans cette voie, et enfin de spéculer sur les expériences envisageables dans un avenir proche.

#### 3.3.1 Introduction à la technique MOTRIMS

##### 3.3.1.1 La technique MOTRIMS comme extension de la technique COLTRIMS

La spectroscopie d'impulsion d'ions de recul révolutionna la physique des collisions pour cartographier la dynamique des interactions entre photons, ions, atomes et molécules. Son idée novatrice fut d'exploiter les informations contenues dans l'impulsion des fragments de cibles, chargés (positivement ou négativement) lors de l'interaction entre une cible et un projectile. Toute la dynamique de l'interaction peut être reconstruite en mesurant l'impulsion de ces fragments. Un des paragraphes précédents s'attache à démontrer analytiquement les fondements de cette reconstruction.

Dans la mesure où l'impulsion transférée à la cible est typiquement de l'ordre de l'unité atomique, il est expérimentalement nécessaire que la distribution initiale des moments de la cible soit petite devant cette valeur. Cette contrainte nécessite de refroidir la cible atomique ou moléculaire à l'aide de jets supersoniques. Cette technique, qui associe systématiquement des cibles froides à un spectromètre d'impulsion d'ions de recul, fut appelée, en anglais, "cold target recoil ion momentum spectroscopy", abrégée en COLTRIMS. Dörner *et al.* [Dörner 2000] et Ullrich *et al.* [Ullrich 2003] écrivirent d'excellents articles pour donner une vue d'ensemble de cette discipline.

Lors de la précédente décennie, quelques groupes montèrent des dispositifs expérimentaux largement influencés par les concepts généraux de la technique COLTRIMS. Cependant, dans ces expériences, les cibles atomiques n'étaient pas refroidies suivant les méthodes usuelles de la technique COLTRIMS, mais refroidies et aussi piégées à l'aide de lasers dans un piège magnéto – optique, "magneto – optical trap" en anglais, abrégé en MOT.

Les expériences pionnières, menées par Wolf et Helm [Wolf 1997, Wolf 2000], combinaient un piège magnéto – optique de  $^{87}\text{Rb}$  et un spectromètre en temps de vol. Ces expériences de photo – ionisation analysaient le temps de vol des fragments ionisés de rubidium après l'interaction entre les atomes de rubidium et un faisceau laser pulsé picoseconde. Une cinématique photon – atome put être déduite et mesurée. Coutinho *et al.* [Coutinho 2004] poursuivirent récemment des recherches voisines, tandis que Huang *et al.* [Huang 2002, Huang 2003], toujours dans la même optique, étudièrent l'interaction entre un faisceau d'électrons et des atomes de  $^7\text{Li}$  refroidis et piégés.

Aucune de ces expériences n'exploita complètement la méthodologie de la technique COLTRIMS dans la mesure où un simple spectromètre en temps de vol intègre sur les composantes transverses des ions de recul. Cependant, les travaux innovants de Wolf et Helm ouvrirent une nouvelle voie, celle de la technique qui associe un piège magnéto – optique à un spectromètre d'impulsion d'ions de recul, en anglais "magneto – optical trap recoil ion momentum spectroscopy", abrégée en MOTRIMS. Cette technique constitue la clef de voûte de ce travail.

La technique MOTRIMS s'imprègne des concepts de la technique COLTRIMS, la mesure de l'impulsion des ions de recul restant son unique objectif. Elle prolonge aussi l'une de ses

visées expérimentales en s'appropriant la technologie de refroidissement et de piégeage laser des atomes cibles qui visite des domaines de températures extrêmement froides. Trois groupes développèrent indépendamment et simultanément cette nouvelle technique. Ces groupes avant-gardistes sont situés au Danemark [van der Poel 2001], aux Pays-Bas [Turkstra 2001b] et aux Etats-Unis [Flécharde 2001].

### 3.3.1.2 Le champ d'application de la technique MOTRIMS

Naturellement, la question de savoir si la technique MOTRIMS apporte une plus-value par rapport à la technique COLTRIMS se pose. Bien évidemment, la technique MOTRIMS possède quelques avantages par rapport à son aînée.

D'abord, travailler à de plus basses températures signifie l'obtention d'une meilleure résolution sur la mesure de l'impulsion de l'ion de recul, et par voie de conséquence d'une meilleure précision sur la dynamique de l'interaction. Or la technique COLTRIMS est actuellement limitée par la température des cibles alors que la technique MOTRIMS ne l'est pas. Bien que cette dernière n'ait pas amélioré de façon drastique la mesure sur la résolution de l'impulsion, cette limitation n'est plus due à la température, mais plutôt à la résolution spatiale et temporelle des détecteurs.

Par ailleurs, la technique MOTRIMS donne accès à de nouvelles espèces atomiques comme les alcalins et les alcalino-terreux. La famille des gaz rares peut elle aussi être piégée par un piège magnéto – optique, mais pour ce type d'atomes, le cycle de piégeage se fait à partir d'un état métastable et ajoute à la complexité expérimentale, dans la mesure où le peuplement d'un état métastable nécessite une décharge électrique.

Enfin, ces espèces piégées présentent l'avantage d'être dans deux états, l'état fondamental et un état excité. Les expérimentateurs apprécient ce phénomène et peuvent ainsi faire varier l'état initial de la cible. Ils peuvent également jouer avec l'anisotropie de la cible dans l'état excité en utilisant une lumière polarisée.

### 3.3.1.3 Description générale du dispositif

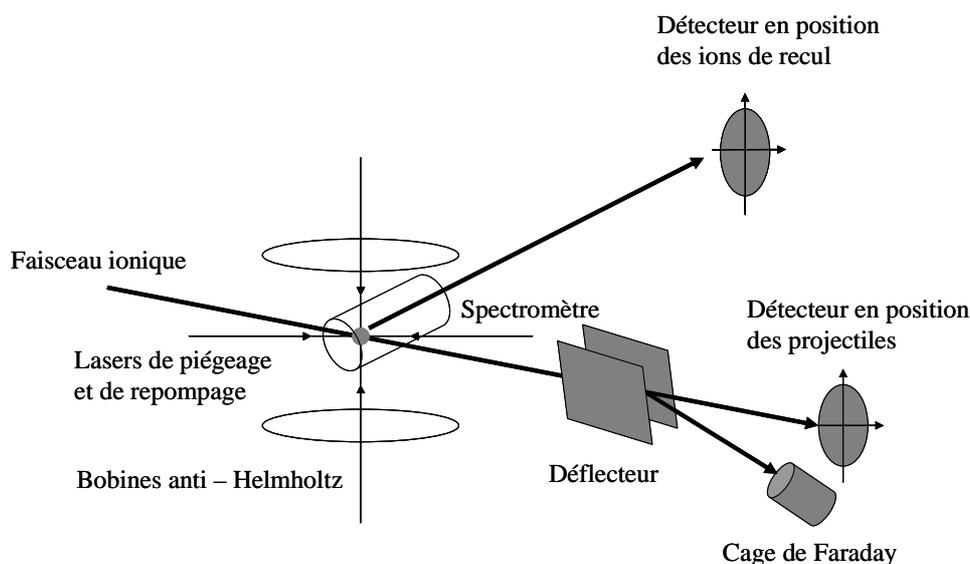


Figure 3-9 : Schéma d'une expérience typique utilisant la technique MOTRIMS.

La figure 3-9 décrit schématiquement le fonctionnement d'une expérience typique utilisant la technique MOTRIMS. Le piège magnéto – optique, symbolisé par des flèches concentriques, qui symbolisent elles-mêmes les lasers de piégeage et de repompage, ainsi que par des bobines en configuration anti-Helmholtz, piège et confine les cibles refroidies à l'intérieur d'un spectromètre d'impulsion. Typiquement, ce dernier est constitué d'un empilement d'électrodes polarisées, et sa géométrie autorise le passage des lasers. Une source ionique, non visible sur le schéma, produit les projectiles sous forme de faisceau guidé. Les projectiles ioniques bombardent ensuite les cibles, froides et localisées. Après passage de la zone d'interaction, les projectiles sont analysés en charge en subissant l'action d'un déflecteur électrostatique. Les projectiles ioniques n'ayant pas interagi avec les cibles sont collectés dans une cage de Faraday, tandis que les projectiles neutralisés après échange de charge avec les cibles ne sont pas défléchis et sont détectés sur un détecteur en position. Il est à remarquer que cette situation ne prévaut que s'il s'agit de projectiles initialement simplement chargés, et s'il s'agit, évidemment, du transfert d'un seul électron lors de l'échange de charge. Mais les autres types de collisions utilisent les mêmes principes expérimentaux. Simultanément à l'analyse des projectiles, le spectromètre d'impulsion d'ions de recul extrait avec une efficacité proche de 100%, à l'aide d'un champ électrostatique, les cibles ionisées lors du transfert de l'électron. Enfin, un autre détecteur en position détecte ces dernières.

Le fonctionnement de tout spectromètre d'impulsion d'ions de recul, élément incontournable lors de la mesure des impulsions des fragments ionisés, a été précédemment décrit, alors que la géométrie et la constitution mécanique du spectromètre utilisé lors de ce travail seront ultérieurement présentées. Tous les spectromètres d'impulsion impliqués dans les expériences utilisant la technique MOTRIMS diffèrent peu, et leur géométrie est généralement dessinée à l'aide du logiciel SIMION.

Une des étapes délicates de la réalisation expérimentale est le positionnement des lasers par rapport au spectromètre d'impulsion. Deux approches sont possibles.

La première consiste à diriger les lasers de piégeage et de repompage en plein cœur du spectromètre d'impulsion, et de charger toute la chambre expérimentale avec un gaz diffusif produit par une source d'atomes chauds à refroidir avec le piège magnéto – optique. De ce fait, le spectromètre d'impulsion se trouve plongé dans un gradient de champ magnétique, nécessaire pour le confinement des atomes et de typiquement de l'ordre de 10 Gauss/cm. L'avantage de cette approche est sa simplicité. Cependant, le principal inconvénient de cette approche est l'obligation de libérer des accès pour que les lasers puissent pénétrer le cœur du spectromètre. Or ces accès se font dans une région critique du spectromètre d'impulsion, très sensible à de petites perturbations du champ électrique d'extraction. Aussi la résolution sur la mesure de l'impulsion peut-elle se dégrader à cause de ces accès qui perturbent le champ d'extraction. Enfin, un autre inconvénient, mais de moindre importance, survient à cause de la présence du gaz diffusif chaud, ce qui peut éventuellement réduire la performance du piégeage magnéto – optique.

La deuxième approche possible consiste à séparer spatialement le piège magnéto – optique et le spectromètre d'impulsion, les deux étant reliés via un faisceau atomique extrêmement froid. Les atomes sont refroidis dans un piège magnéto – optique conventionnel puis "poussés" vers l'intérieur du spectromètre d'impulsion à l'aide d'un laser additionnel. Lu *et al.* [Lu 1996] explorèrent cette méthode au sein de la communauté des atomes froids, et ainsi inspirèrent la communauté des groupes utilisant la technique MOTRIMS. Cependant, cette approche pose le problème de la densité du faisceau atomique qui sert de cible. En effet, ce faisceau naît d'un nuage d'atomes froids dont il extrait continuellement les atomes (de vitesse environ 5 m/s). Comme un nuage d'atomes froids, comprenant environ  $10^7$  atomes dans une sphère de 0.5 mm de diamètre, a besoin d'environ une seconde pour se former, un calcul rudimentaire donne une densité d'environ  $10^7$  atomes  $\text{cm}^{-3}$  pour le faisceau atomique. Ceci

représente une densité inférieure de trois ordres de grandeur par rapport à un nuage d'atomes froids et ne correspond pas aux densités de cibles souhaitées pour les expériences de collisions, de l'ordre de  $10^{10}$  atomes  $\text{cm}^{-3}$ .

Cette dernière approche n'est encore qu'une suggestion pour parer aux inconvénients de la première, exclusivement employée jusqu'à aujourd'hui. La dernière approche offre l'avantage, en séparant les deux principaux éléments de l'expérience, de ne pas plonger le spectromètre dans le champ magnétique du piège, évitant par cette occasion toute distorsion de l'image des impulsions rencontrée lors des expériences traditionnelles utilisant la technique MOTRIMS. Plus bas, il sera vu que le dispositif de ce travail pare à ces problèmes à l'aide d'une astuce d'un autre type. Enfin, cette dernière approche autorise un pompage différentiel de la zone du spectromètre, et permet ainsi un meilleur vide au niveau de la zone de collision.

A l'heure actuelle, quatre dispositifs utilisent la technique MOTRIMS : un à Kansas State University, un à l'université de Groningen, un autre à l'université de Freiburg (qui n'est autre que celui développé auparavant à Copenhague), et un autre à l'université de Caen qui n'est autre que le dispositif de ce travail. Deux autres dispositifs sont plus récents et se situent à Southern Mississippi University et à l'université du Wisconsin.

Parmi ces différents dispositifs, il existe deux types d'extraction des ions de recul avec le spectromètre d'impulsion. Le premier type d'extraction consiste à extraire longitudinalement les ions de recul, tandis que l'autre les extrait transversalement. Jusqu'ici, tous les dispositifs du Nouveau Monde emploient l'extraction longitudinale alors que ceux du Vieux Continent emploient l'extraction transverse. Néanmoins, une troisième option existe, encore inusitée au sein de la communauté de la technique MOTRIMS mais parfois employée par celle de la technique COLTRIMS. Il s'agit du "reaction microscope", dont le fonctionnement est décrit dans la suite, tout comme les deux autres types d'extraction.

### 3.3.1.3.1 *Extraction longitudinale*

Cette méthode consiste à extraire les ions de recul le long d'un axe quasi parallèle à l'axe des projectiles incidents. Choissant cette technique, l'une des expériences de Kansas State University inclina l'axe du spectromètre d'impulsion d'environ  $3.5^\circ$  par rapport à l'axe du faisceau ionique. Cet agencement permet aux ions de recul d'arrêter leur course au niveau d'un détecteur en position, tandis que les projectiles continuent leur chemin puis se séparent au niveau d'un défecteur suivant leur charge. Les projectiles chargés sont collectés dans une cage de Faraday et les projectiles neutralisés sont détectés sur un autre détecteur en position. La figure 3-10 schématise l'agencement de ce dispositif expérimental.

Dans ce cas, la composante de l'impulsion de l'ion de recul qui est parallèle au faisceau de projectiles est une fonction quasi linéaire de la différence temporelle entre les temps de vol des projectiles détectés et des ions de recul.

Le principal avantage de cette méthode est que le  $Q$  de réaction de la collision est simplement obtenu à l'aide des temps de vol cités. Or la résolution sur l'impulsion des ions de recul obtenue par les mesures de temps de vol est souvent meilleure que la résolution sur l'impulsion des ions de recul obtenue par les mesures de positions sur les détecteurs sensible à la position. Si l'on considère que le  $Q$  de réaction est la plus importante information de la dynamique de l'interaction, alors l'extraction longitudinale est plus avantageuse que ses concurrentes.

Néanmoins, l'inconvénient majeur de cette configuration est que le faisceau d'ions projectiles nécessite une bonne collimation, car, généralement, les projectiles provoquent de nombreuses fausses coïncidences en heurtant le détecteur des ions de recul.

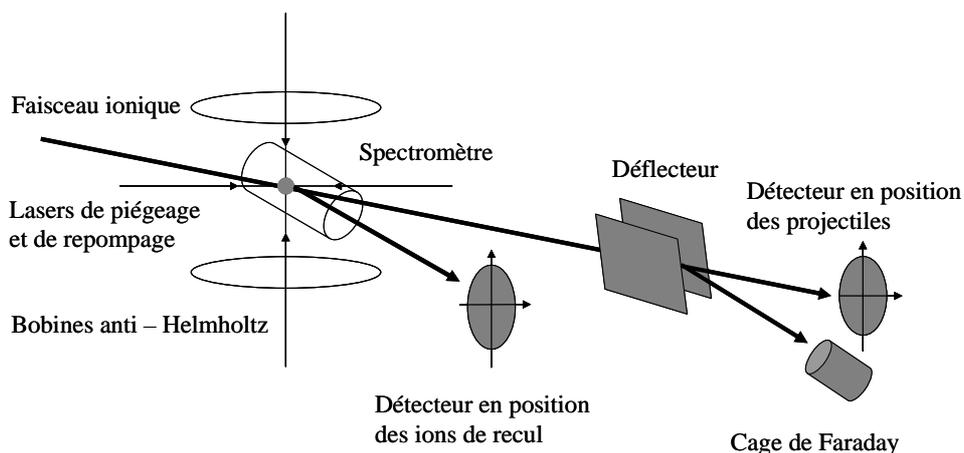


Figure 3-10 : Schéma d'une expérience MOTRIMS utilisant une extraction longitudinale.

### 3.3.1.3.2 Extraction transverse

La figure 3-9 montre le schéma de principe d'une extraction transverse des ions de recul, notamment employée lors de ce travail. Ce type d'extraction est identique à celui précédemment cité, hormis le fait que les axes du spectromètre d'impulsion et des ions projectiles incidents sont perpendiculaires.

Cette approche pare au problème majeur de l'extraction longitudinale car le faisceau d'ions projectiles ne frôle pas le détecteur des ions de recul. Des mesures de l'impulsion avec un bruit de fond très faible sont alors possibles.

Toutefois, le principal inconvénient de cette méthode est que la composante parallèle de l'impulsion des ions de recul est mesurée grâce à la position des ions sur un détecteur. Ceci peut impliquer une dégradation de la résolution sur le  $Q$  de réaction.

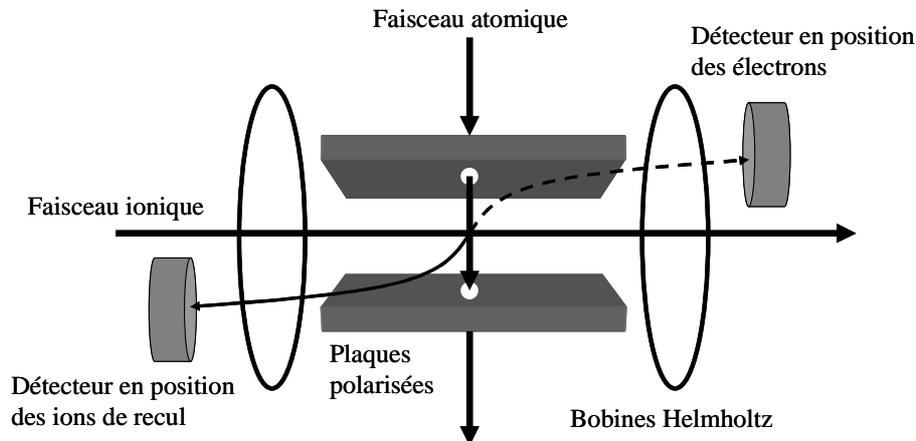
Cependant, les résolutions spatiales des détecteurs sensibles à la position comme les anodes à lignes à retard tendent à s'améliorer. Il sera néanmoins montré dans la suite que la résolution spatiale ne dépend pas uniquement du détecteur, et qu'elle est donc dégradée à cause d'autres éléments de détection.

Enfin, une des deux composantes transverses de l'impulsion des ions de recul est maintenant mesurée avec les temps de vol. L'extraction transverse donne donc potentiellement une meilleure résolution sur la mesure de l'angle de diffusion  $\theta$  et apporte un contrôle de la reconstruction de l'impulsion de l'ion de recul puisqu'une composante est déduite du temps de vol, et l'autre de la position sur un détecteur, et que le spectromètre possède une symétrie cylindrique.

### 3.3.1.3.3 Reaction microscope

La communauté des scientifiques utilisant la technique MOTRIMS peut, en principe, employer la géométrie du "reaction microscope", notamment utilisée lors d'expériences COLTRIMS par Moshhammer *et al.* [Moshhammer 1996]. La figure 3-11 montre de façon schématique l'agencement d'une telle géométrie. Deux plaques résistives placées de part et d'autre de la zone de collision assurent le champ d'extraction de ce microscope. Le faisceau atomique, passant au travers de ces plaques via deux petites ouvertures, croise perpendiculairement le faisceau ionique. Les deux plaques créent un champ électrique, qui éloigne les ions de recul du faisceau ionique incident et les dirige vers un détecteur en

position. Le même champ électrique, cette fois aidé d'un champ magnétique, dirige les électrons, extraits eux aussi, vers un autre détecteur en position.



**Figure 3-11 : Schéma de principe d'une expérience COLTRIMS utilisant la géométrie d'un "microscope à réaction". La trajectoire des électrons, en pointillés, n'est pas spiralée pour plus de lisibilité graphique.**

DePaola *et al.* notent [DePaola 2008], à juste titre, qu'une telle géométrie possède d'excellents accès pour des lasers si on associe ce microscope à un piège magnéto – optique. En effet, en lieu et place du faisceau atomique, une paire de lasers contra – propageant traverse les plaques. De plus, surtout, les deux autres paires de lasers viennent parallèlement aux plaques. Cet agencement offre l'avantage de perturber de manière réduite la géométrie du champ d'extraction avec la présence de deux petits trous dans une région cruciale. Par ailleurs, la disposition du détecteur des ions de recul, dos au faisceau de projectiles, contourne le problème des fausses coïncidences. Enfin, DePaola *et al.* notent que l'inconvénient majeur de ce dispositif est que la résolution sur la mesure de l'impulsion, obtenue avec les plaques, est moins bonne que celle obtenue avec un empilement traditionnel d'électrodes annulaires, car les plaques manquent d'une courbure de champ électrique, indispensable pour remplir les conditions de focalisation spatiale et de focalisation temporelle.

Pour compléter ces propos, l'auteur de ce manuscrit suggère deux points. Le premier consiste à séparer le piège magnéto – optique du "reaction microscope". Comme dans les travaux de Lu *et al.*, les atomes refroidis sont poussés à l'aide d'un laser additionnel vers le cœur du microscope. Ce faisceau atomique extrêmement froid arrive alors parallèlement aux plaques afin de s'affranchir des deux ouvertures dans les plaques.

Le deuxième point consiste à rompre le champ électrique des plaques pour répondre aux exigences de focalisation. Chaque plaque du précédent montage est alors remplacée par deux plaques conductrices séparées et polarisées de telle sorte à créer un champ fort et un champ faible. Cependant, la résolution sur la mesure de l'impulsion de l'ion de recul resterait moins bonne, car les plaques ne focalisent qu'en deux dimensions, contrairement aux électrodes qui focalisent en trois dimensions.

La meilleure solution technique consiste donc à remplacer les plaques du "reaction microscope" par un spectromètre constitué d'électrodes annulaires, et de le séparer du piège magnéto – optique. Le faisceau atomique froid, poussé par un laser, se glisserait entre deux électrodes pour atteindre la zone de collision. Néanmoins, il faut là encore mentionner le problème posé par la densité de ce faisceau atomique froid, approximativement plus faible de trois ordres de grandeurs par rapport à un nuage d'atomes froids, comme il a déjà été expliqué.

### 3.3.2 Sections efficaces relatives totales de transfert électronique

Bien que les atomes refroidis d'un piège magnéto – optique soient présents dans l'état fondamental et dans un état excité, et que ceci avantage l'expérimentateur désirant jouer avec l'état initial de la cible, ce phénomène présente un inconvénient lors de la mesure de sections efficaces de transfert électronique. En effet, dans un spectre de  $Q$  de réaction pour une collision donnée, l'aire de chaque pic, déterminée par le nombre de coups expérimentaux, est proportionnelle au produit de la section efficace de transfert électronique (pour le canal du pic) par le nombre d'atomes cibles dans l'état initial. Or, dans un piège magnéto – optique, le nombre d'atomes dans l'état excité est une fraction, à déterminer, du nombre total d'atomes refroidis. La mesure des sections efficaces totales de transfert électronique relatives aux deux états initiaux de la cible dépend donc de la connaissance de cette fraction excitée.

Flécharde *et al.* [Flécharde 2003] remarquèrent que, au moins sur une courte échelle de temps, le nombre total d'atomes froids dans un piège magnéto – optique ne change pas quand les lasers de piégeage sont éteints. Cette constatation lui permet de déterminer les sections efficaces relatives ainsi que les populations relatives du piège.

La principale idée repose sur le fait qu'en coupant les lasers de piégeage et de repompage, et qu'en comparant les changements de taux de comptage pour l'état fondamental et pour l'état excité avec les lasers allumés ou éteints, on peut déterminer la fraction excitée d'atomes froids ainsi que, indépendamment, les sections efficaces relatives de capture électronique à partir des deux états quantiques initiaux.

Soit  $A_i$  l'aire d'un pic pour un  $Q$  de réaction correspondant au transfert électronique d'un état initial  $i$  de la cible vers un état final donné du projectile. Et soit  $\sigma_i$  et  $n_i$  les sections efficaces et les populations relatives, respectivement, associées aux différents états initiaux  $i$ . Les états initiaux  $s$  et  $p$  correspondent aux états  $5s$  et  $5p$  du rubidium, mais cette notation peut être généralisée aux différentes espèces alcalines piégées avec des lasers, dans la mesure où l'état fondamental est toujours un état  $s$  et le premier état excité un état  $p$ . On obtient alors :

$$A_s = \alpha \sigma_s n_s \quad (3-33)$$

$$A_p = \alpha \sigma_p n_p \quad (3-34)$$

où la constante de proportionnalité  $\alpha$  contient des temps d'acquisition et des facteurs géométriques. Ensuite, la conservation du nombre total d'atomes froids sur une courte échelle de temps, typiquement de l'ordre de la ms, se traduit par :

$$n_s + n_p = C \quad (3-35)$$

avec  $C$  une constante. Ce qui amène :

$$\Delta A_s = \alpha \sigma_s \Delta n_s \quad (3-36)$$

$$\Delta A_p = \alpha \sigma_p \Delta n_p \quad (3-37)$$

$$\Delta n_s + \Delta n_p = 0 \quad (3-38)$$

où  $\Delta n_i$  représente le changement de la population  $n_i$  quand les lasers de piégeage sont allumés ou éteints. Deux choses sont à noter. D'abord, c'est la basse température du piège qui autorise les équations (3-35) et (3-38), et ce à des fréquences relativement basses pour la coupure des lasers de piégeage. Ensuite, il faut remarquer que la population  $n_s$  de l'état fondamental représente toute la population d'atomes froids quand les lasers sont éteints.

En divisant l'équation (3-37) par l'équation (3-36), on obtient :

$$\frac{\Delta A_p}{\Delta A_s} = \frac{\sigma_p}{\sigma_s} \frac{\Delta n_p}{\Delta n_s} = -\frac{\sigma_p}{\sigma_s} \quad (3-39)$$

Ainsi, la section efficace de capture électronique à partir de l'état excité  $p$  peut être déterminée à partir de la capture électronique depuis l'état fondamental  $s$ .

Lors des expériences de Flécharde *et al.*, un modulateur acousto – optique permet la coupure des lasers de piégeage et de repompage à une fréquence de 50 kHz, les lasers étant allumés 75% du temps.

Cette procédure peut se généraliser aux sections efficaces de capture électronique à partir de n'importe quel état initial des cibles :

$$\frac{\sigma_k}{\sigma_1} = -\frac{\Delta A_k}{\sum_{i=1}^{k-1} \Delta A_i \frac{\sigma_1}{\sigma_i}}, k \geq 2 \quad (3-40)$$

Shah *et al.* [Shah 2005] purent ainsi mesurer des sections efficaces de capture électronique relatives à partir de l'état  $4d$  du rubidium lors de collisions avec des ions  $\text{Na}^+$  à 7 keV, sachant que l'état fondamental du rubidium est un état  $5s$ , et que le premier état excité est un état  $5p$ .

Pour finir, il faut ajouter que cette procédure, tout à fait générale, ne dépend que de la capacité du dispositif à résoudre au mieux les  $Q$  de réaction issus de différents états initiaux.

### 3.3.3 Sections efficaces absolues

Le lecteur vient de voir que les sections efficaces relatives de capture électronique sont obtenues à l'aide d'un spectre en  $Q$  de réaction. Afin de pouvoir directement comparer ses résultats aux conclusions théoriques, l'expérimentateur aimerait les mettre sur une échelle absolue.

Ce point stigmatise l'une des faiblesses de tout dispositif utilisant la technique MOTRIMS. La calibration absolue de ces dispositifs est à l'heure actuelle très difficile à obtenir. Une telle calibration nécessite une connaissance précise de nombreux paramètres expérimentaux. Or ceux-ci sont pour certains difficilement contrôlables.

Ces paramètres sont le nombre d'ions projectiles incidents, le profil du faisceau ionique, la densité de la cible, et le recouvrement entre le faisceau ionique et le nuage d'atomes froids. Le nombre d'ions projectiles incidents est aisément déterminable en mesurant le courant du faisceau ionique dans une cage de Faraday. Le profil du faisceau ionique est plus difficile à déterminer. Ce profil peut être contraint par les positions et les tailles de diaphragmes le long du parcours des ions projectiles. Des fentes ajustables mesurant le courant peuvent aussi servir à estimer ce profil, mais l'investissement technique est plus lourd. Ensuite, la densité de la cible est déterminée par la taille et le nombre d'atomes du nuage. La taille du nuage peut être mesurée par une caméra CCD calibrée, mais le nombre d'atomes est plus difficile à

déterminer précisément. Enfin, le problème majeur pour mesurer des sections efficaces absolues est que le recouvrement entre le faisceau ionique et le nuage d'atomes froids est extrêmement difficile à obtenir.

Ces difficultés de calibration impliquent que les utilisateurs de la technique MOTRIMS normalisent généralement leurs données aux mesures de sections efficaces absolues disponibles dans la littérature.

Les sections efficaces relatives totales de capture électronique, précédemment traitées et notées  $\sigma_i$ , peuvent donc avoir une mesure absolue  $\sigma_{i,abs}$  si l'on connaît la section efficace absolue totale de simple capture électronique  $\sigma_{abs}$  d'un système de collision :

$$\sigma_{i,abs} = \frac{\sigma_i}{\sum_k \sigma_k} \sigma_{abs} \quad (3-41)$$

### 3.3.4 Fraction excitée

Une fois mesurées les sections efficaces relatives totales de capture électronique, selon une méthode déjà évoquée, le physicien en déduit aisément le nombre relatif d'atomes cibles dans l'état excité. Pour ce faire, l'auteur rappelle d'abord les grandeurs et leurs notations déjà introduites. Les sections efficaces totales  $\sigma_i$  depuis un état quantique initial  $i$ , la population  $n_i$  de l'état quantique  $i$ , et l'aire expérimentale  $A_i$  du pic de la distribution en impulsions longitudinales constituent les éléments de détermination. La fraction excitée  $f$  correspondant au nombre d'atomes excités dans un état  $p$  par rapport au nombre total d'atomes, puisque le cycle de piégeage d'alcalins se situe entre un état fondamental  $s$  et un état excité  $p$ , est donnée par :

$$f = \frac{n_p}{n_s + n_p} = \frac{A_p / \sigma_p}{A_s / \sigma_s + A_p / \sigma_p} = \frac{A_p}{\frac{\sigma_p}{\sigma_s} A_s + A_p} \quad (3-42)$$

Utilisant cette approche déductive ainsi que la technique MOTRIMS, Shah *et al.* [Shah 2006, Shah 2007] mesurèrent la fraction excitée d'un nuage d'atomes froids de rubidium, en fonction de l'intensité laser de piégeage et du décalage fréquentiel par rapport à la résonance, pour une grande variété d'autres paramètres de piégeage. Le but de leurs mesures était de vérifier la prédiction théorique d'un modèle simple à deux niveaux, pour un système irradié par une lumière cohérente d'intensité  $I$  décalée d'une fréquence angulaire  $\delta$  par rapport à la résonance, où la fraction excitée  $f$  est donnée par :

$$f = \frac{I/I_s}{1 + 2I/I_s + (2\delta/\Gamma)^2} \quad (3-43)$$

où  $I$  est l'intensité totale des six lasers de piégeage et  $\Gamma$  est la largeur naturelle de bande de la transition optique. L'intensité de saturation  $I_s$  est donnée [Demtröder 2002] par :

$$I_s = \frac{2\pi\hbar c\Gamma}{3\lambda^3} \quad (3-44)$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde de la transition optique.

### 3.3.5 Commentaires conclusifs

Après avoir décrit les fondements techniques et physiques de la méthodologie MOTRIMS, carrefour entre le piégeage magnéto – optique et la spectroscopie d'impulsion d'ions de recul, les exemples historiques cités démontrèrent l'utilité et les avancées de cette nouvelle technique. La technique MOTRIMS prouva toute son efficacité et sa finesse conceptuelle pour mesurer les sections efficaces de transfert électronique et la fraction excitée d'un nuage d'atomes froids.

L'auteur, par ce manuscrit, va tenter de compléter les connaissances découvertes à l'aide de la technique MOTRIMS et son travail s'inscrit entièrement dans cette nouvelle dynamique au sein de l'étude des processus de capture électronique.

## 4 Dispositif expérimental

### 4.1 Introduction

Afin de mesurer les petites impulsions de recul transférées aux cibles atomiques, le dispositif expérimental doit remplir deux conditions. D'abord, il doit comporter un spectromètre qui reproduit précisément le vecteur de l'impulsion de recul sur un détecteur. Ensuite, des cibles extrêmement froides sont indispensables, de sorte que la distribution de vitesses des atomes cibles soit plus petite que la résolution sur les vitesses à atteindre pour résoudre différents canaux de capture électronique.

Dans ce chapitre, l'auteur donne un panorama détaillé du dispositif expérimental employé. Une première partie présente le piège magnéto – optique, qui sert à refroidir et à localiser les cibles de la collision. Seul l'aspect technique est discuté. Les présentations du système laser et des caractéristiques du nuage d'atomes froids précèdent celle du dispositif de commutation rapide du champ magnétique du piège. Une deuxième partie décrit la conception et le fonctionnement de la ligne pourvoyant les ions projectiles. Ensuite, une troisième partie s'attache à la technique qui permet la mesure de l'impulsion des ions de recul. L'élément clef de cette partie est évidemment le spectromètre d'ions de recul. L'auteur présente aussi le détecteur d'ions de recul, interface entre la physique et l'interprétation du physicien. Une quatrième partie décrit le système d'acquisition de données, et, enfin, une dernière partie présente la méthode d'analyse de données afin de montrer le lien entre le montage expérimental, ses constituants, et la mesure physique.

La figure 4-1 schématise le dispositif de l'expérience, qui comprend trois parties principales. Le piège magnéto – optique est constitué de trois paires de lasers contra propageant et de bobines magnétiques en configuration anti – Helmholtz. La ligne d'ions projectiles s'articule autour d'une optique de faisceau ionique, d'un analyseur en charge et d'un détecteur. Enfin, le spectromètre d'ions de recul est associé à un autre détecteur.

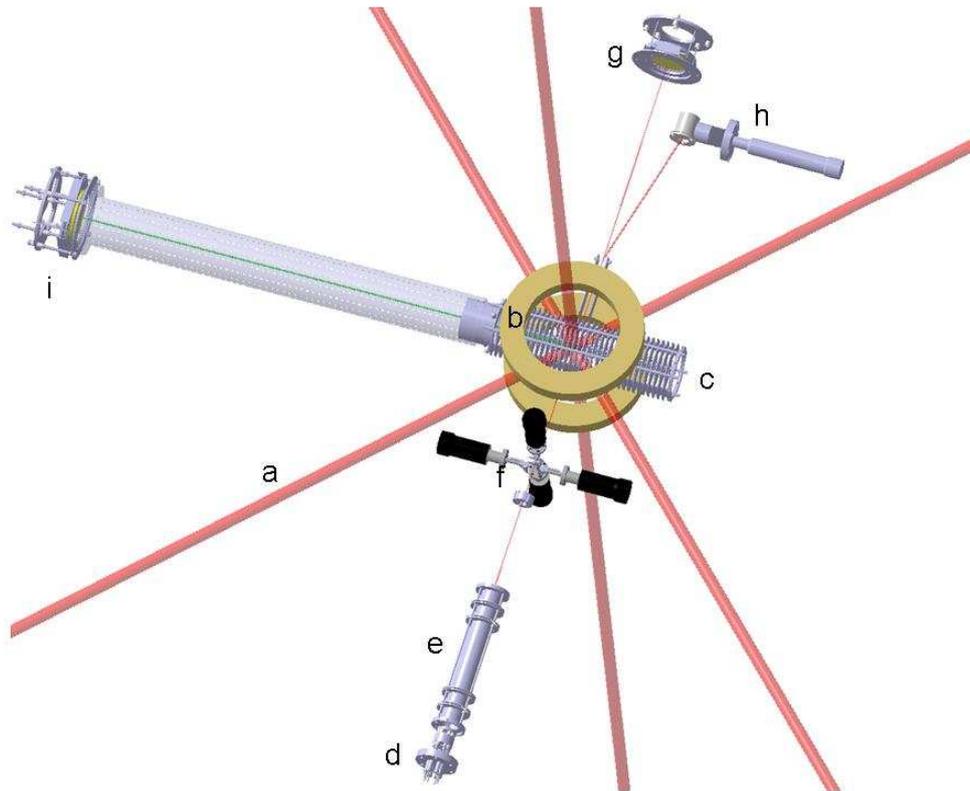


Figure 4-1 : Schéma du dispositif expérimental. L'association de six faisceaux laser (a) et d'un champ magnétique, créé par une paire de bobines en configuration anti – Helmholtz (b), piège et refroidit les cibles atomiques au milieu du spectromètre d'ions de recul (c). Une source thermoionique (d) produit le faisceau d'ions projectiles. Après focalisation (e) et collimation (f), il entre dans la chambre de collision, traverse le nuage d'atomes froids piégés, et est analysé en charge à la sortie du spectromètre : les projectiles ioniques ayant capturé un électron sont neutralisés et dirigés vers un détecteur sensible à la position (g), tandis que le faisceau ionique primaire est collecté dans une cage de Faraday après déflexion (h). Le spectromètre extrait les ions de recul, résultant du transfert de charge, depuis la zone de collision vers le détecteur sensible à la position des reculs avec une efficacité de 100% (i).

## 4.2 Le piège magnéto – optique

Le piégeage magnéto – optique foisonnant d'articles (cf. paragraphe 3.2.2), seuls certains aspects techniques du piège sont présentés dans cette partie. Cet outil de physique atomique, conçu pour des expériences impliquant des cibles de potassium ou d'isotopes de rubidium, ne piège, pour l'heure, que les espèces isotopiques  $^{87}\text{Rb}$  et  $^{85}\text{Rb}$ . Seules des cibles de  $^{87}\text{Rb}$  entrent en jeu lors des collisions étudiées dans ce travail, et leur cycle de piégeage et de repompage a été présenté au paragraphe 3.2.4. Les deux isotopes du rubidium requièrent chacun deux fréquences laser. Une transition optique sert à refroidir et à piéger les atomes ( $5^2\text{S}_{1/2}$  ( $F = 2$ )  $\rightarrow$   $5^2\text{P}_{3/2}$  ( $F = 3$ ) pour  $^{87}\text{Rb}$ , et  $5^2\text{S}_{1/2}$  ( $F = 1$ )  $\rightarrow$   $5^2\text{P}_{3/2}$  ( $F = 2$ ) pour  $^{85}\text{Rb}$ ); une seconde transition sert à récupérer les atomes sortis du cycle de piégeage ( $5^2\text{S}_{1/2}$  ( $F = 1$ )  $\rightarrow$   $5^2\text{P}_{3/2}$  ( $F = 2$ ) pour  $^{87}\text{Rb}$ , et  $5^2\text{S}_{1/2}$  ( $F = 0$ )  $\rightarrow$   $5^2\text{P}_{3/2}$  ( $F = 1$ ) pour  $^{85}\text{Rb}$ ).

### 4.2.1 Le système laser

Deux diodes laser à semi-conducteurs Toptica DL100 [Toptica], identiques, fournissent les fréquences de piégeage et de repompage du piège magnéto – optique. Elles présentent une géométrie en cavité externe qui permet d'ajuster la longueur d'onde émise.

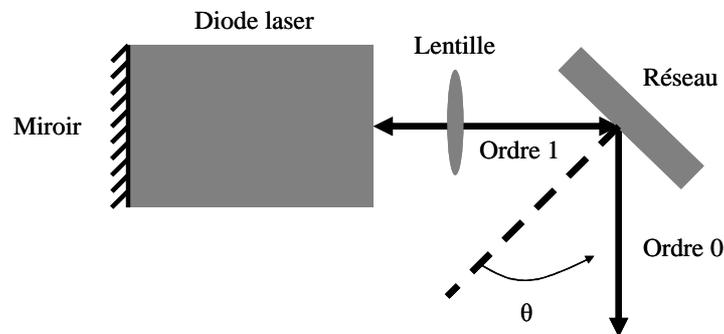


Figure 4-2 : Cavité externe de chaque diode laser.

Un miroir sur la face arrière du semi-conducteur et un réseau de diffraction constituent l'essentiel de cette cavité. La figure 4-2 résume schématiquement sa composition mécanique. Le réseau de diffraction réfléchit et réinjecte dans la diode le premier ordre de diffraction. Le faisceau émis correspond à l'ordre zéro. L'équation caractéristique du réseau de diffraction s'écrit :

$$d(\sin \theta_m - \sin \theta_i) = m\lambda \quad (4-1)$$

où  $d$  est l'espacement entre les lignes du réseau,  $\theta_m$  l'angle normal au  $m^{\text{e}}$  ordre du faisceau diffracté, et  $\theta_i$  l'angle normal au faisceau incident. La condition pour laquelle le premier ordre de diffraction est dirigé vers la diode s'écrit :

$$2d \sin \theta = m\lambda \quad (4-2)$$

où  $\theta$  est l'angle de sortie pour une longueur d'onde  $\lambda$ . Celle-ci est ajustable à l'aide d'une vis micrométrique pour un réglage grossier du réseau, et à l'aide d'un élément piézoélectrique dont le contrôle par une tension fait précisément varier la longueur d'onde d'émission.

Les caractéristiques d'émission dépendent également de la température, contrôlée grâce à un élément Peltier, et de l'intensité du courant traversant la jonction de la diode. L'alimentation de la diode permet de fixer les paramètres précédents : tension de l'élément piézoélectrique, courant de régulation en température et courant d'injection.

Chaque diode laser produit en sortie de cavité externe un faisceau de 100 mW d'intensité.

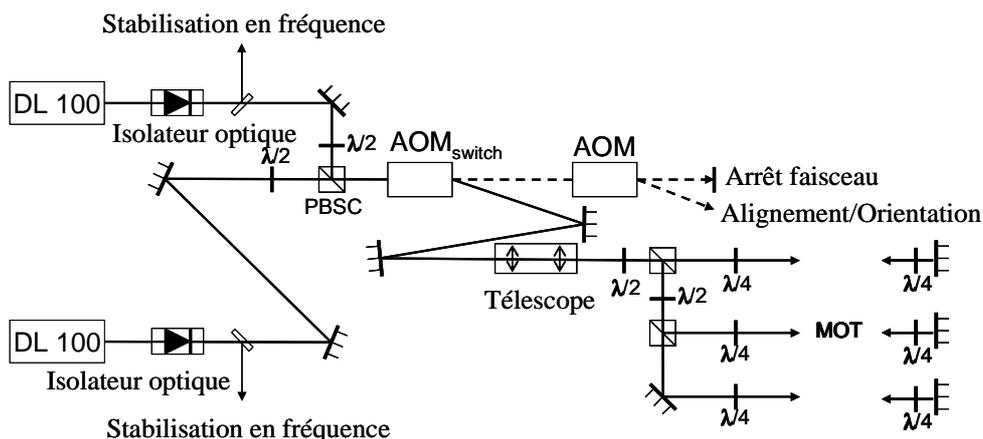


Figure 4-3 : Agencement du système laser.

La figure 4-3 schématise l'agencement du système laser. Pour éviter l'injection de lumière provenant d'éventuelles rétro réflexions, des isolateurs optiques de 40 dB sont placés juste à la sortie des cavités laser. Une petite partie de la puissance du laser est prélevée à l'aide d'une lame prismatique et envoyée vers un dispositif de stabilisation en fréquence, tandis que les principaux faisceaux laser fusionnent au niveau d'un cube séparateur de faisceau polarisant (PBSC). Les faisceaux fusionnés se dirigent ensuite vers un module acousto-optique (AOM) de 110 MHz, utilisé comme hacheur rapide de faisceau ( $AOM_{switch}$ ). Un télescope, constitué de deux lentilles, élargit le faisceau issu du premier ordre négatif de diffraction à la sortie de l' $AOM_{switch}$ . Ce faisceau est par la suite divisé en trois faisceaux de puissances équivalentes, obtenus à l'aide de lames demi onde et de PBSCs. Les trois faisceaux entrent dans la chambre de piégeage avec des directions orthogonales, et sont rétro réfléchis par des miroirs dorés placés à l'opposé de la chambre. Six lames quart d'onde assurent une polarisation circulaire adéquate pour les trois paires de faisceaux contra propageant. Les six faisceaux laser ont chacun un rayon de ceinture  $w = 0.7$  cm et délivrent dans la chambre de piégeage une puissance laser totale de 65 mW aux fréquences de piégeage et de repompage.

Quand la puissance radiofréquence du premier AOM est éteinte, le premier ordre négatif de diffraction d'un second AOM peut être utilisé comme faisceau polarisé et permettre l'orientation ou l'alignement des atomes piégés pour de futures expériences, envisagées à la suite de ce travail.

#### 4.2.2 Stabilisation en fréquence

Bien que la dérive fréquentielle des lasers soit inférieure à 50 MHz/h, elle doit être compensée par un système d'asservissement pour opérer des mesures de plusieurs heures. La gamme de fréquence pour laquelle les atomes peuvent être piégés n'est large que d'environ 30 MHz. Pour fixer la fréquence laser, une référence absolue est nécessaire. Ce signal est obtenu au moyen de la spectroscopie d'absorption saturée [MacAdam 1992], qui permet d'observer des raies d'absorption spectrales, en s'affranchissant de l'effet Doppler. La fréquence des lasers peut alors être stabilisée sur ces dernières.

En spectroscopie d'absorption saturée, un laser "pompe" intense et un laser "sonde" peu intense traversent, à fréquences égales, une cellule de rubidium, dans le cas présent, dans des directions opposées. La présence du faisceau pompe altère l'absorption du faisceau sonde.

Si la fréquence laser vaut  $\nu_0$ , alors pour les atomes se déplaçant avec une composante de vitesse  $v$  selon l'axe du faisceau cette fréquence subit l'effet Doppler. Pour les atomes se

déplaçant de façon antiparallèle à la direction du faisceau, la fréquence apparente devient  $\nu_1 = \nu_0(1 + \frac{v}{c})$ , tandis que les atomes se déplaçant parallèlement à la direction du faisceau voient  $\nu_2 = \nu_0(1 - \frac{v}{c})$ . Pour certaines classes de vitesses d'atomes (notamment  $v=0$ ), les fréquences  $\nu_1$  et  $\nu_2$  sont égales aux transitions optiques hyperfines. Ces atomes peuvent absorber des photons du faisceau pompe mais aussi du faisceau sonde.

Pour un niveau d'énergie donné de la structure hyperfine, le faisceau pompe diminue la population d'atomes de ce niveau, si bien qu'une population plus faible d'atomes est disponible pour absorber les photons du faisceau sonde. Cette situation cause une absorption minimale du faisceau sonde, et provoque une intensité maximale transmise de ce même faisceau. Il apparaît alors sur la raie d'absorption du niveau d'énergie un défaut appelé "lamb dip".

Lorsque la fréquence du laser vaut  $\frac{\nu_a + \nu_b}{2}$ , où  $\nu_a$  et  $\nu_b$  sont deux fréquences de transition optique d'un même niveau énergétique de départ vers deux niveaux excités différents, la sonde et la pompe peuvent interagir avec les mêmes atomes mais en réalisant deux transitions différentes. Les atomes d'une classe de vitesses donnée en déplacement vers la sonde perçoivent la fréquence laser avec un décalage dû à l'effet Doppler égal à la moitié de  $\nu_b - \nu_a$ , et effectuent la transition correspondant à  $\nu_b$ . Ces mêmes atomes voient la pompe avec un décalage Doppler opposé et interagissent avec  $\nu_a$  dans leur propre repère.

L'absorption minimale du faisceau sonde qui en résulte à la fréquence  $\frac{\nu_a + \nu_b}{2}$  s'appelle "crossover".

Dans l'objectif d'asservir la fréquence d'émission des lasers sur la transition de piégeage  $5^2S_{1/2} (F = 2) \rightarrow 5^2P_{3/2} (F = 3)$  et la transition de repompage  $5^2S_{1/2} (F = 1) \rightarrow 5^2P_{3/2} (F = 2)$  pour le  $^{87}\text{Rb}$ , un montage optique de spectroscopie d'absorption saturée a été réalisé pour chacune des deux diodes laser. La figure 4-4 schématise ce montage pour une diode. Une fraction du faisceau laser est prélevée par une lame prismatique (LP1) et alimente le dispositif de spectroscopie. La lame prismatique LP2 permet de prélever deux faisceaux réfléchis légèrement divergents, et ayant une intensité de quelques centièmes de celle du faisceau transmis (faisceau pompe, en rouge). Le premier (en vert sur le schéma) sert de faisceau sonde, le second (en bleu) traverse la cellule de rubidium sans croiser la pompe et sert de référence. La détection de ces deux faisceaux permet, par soustraction du signal de référence à celui de la sonde, d'obtenir directement le profil d'absorption saturée.

Le faisceau transmis par la séparatrice LP2 constitue le faisceau pompe. Il est guidé à l'aide de deux miroirs de sorte qu'il traverse la cellule en sens opposé à celui de la sonde, et avec le plus grand recouvrement possible. Le dispositif de détection comporte deux photodiodes recevant chacune les faisceaux sonde et référence. La séparation horizontale des deux faisceaux très proches se fait à l'aide d'un miroir, placé de sorte à ne réfléchir que le faisceau sonde.

Un dispositif électronique permet alors de soustraire le signal de référence à celui de la sonde et d'appliquer sur chaque signal un facteur d'amplification, de façon à obtenir des amplitudes comparables en cas d'une légère différence d'intensité entre les faisceaux sonde et référence.

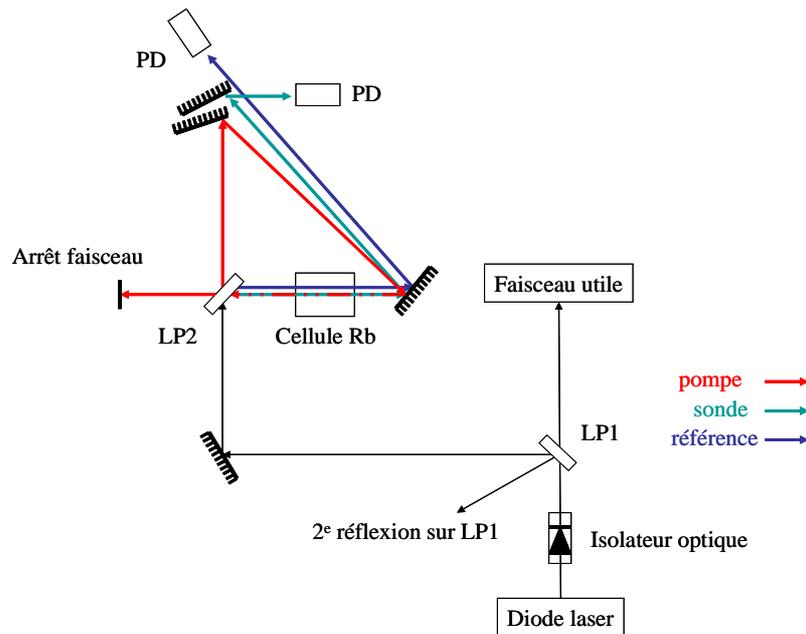


Figure 4-4 : Schéma du montage de spectroscopie d'absorption saturée, réalisée à partir d'une fraction du faisceau de chaque diode. (LP) : lame prismatique ; (PD) : photodiode.

La figure 4-5 montre le profil d'absorption saturée du rubidium obtenu dans un premier temps par le signal du faisceau sonde. Les deux raies extrêmes du graphique appartiennent au  $^{87}\text{Rb}$  et correspondent aux transitions  $5^2\text{S}_{1/2}$   $F = 1$  et  $F = 2$  vers l'état excité  $5^2\text{P}_{3/2}$ . Les deux raies intérieures correspondent aux transitions  $5^2\text{S}_{1/2}$   $F = 2$  et  $F = 3$  vers l'état excité  $5^2\text{P}_{3/2}$  du  $^{85}\text{Rb}$ . Avec le contrôle de l'alimentation de la diode laser, il est possible de faire varier la longueur d'onde d'émission autour d'une valeur moyenne et avec une excursion en fréquence choisie.

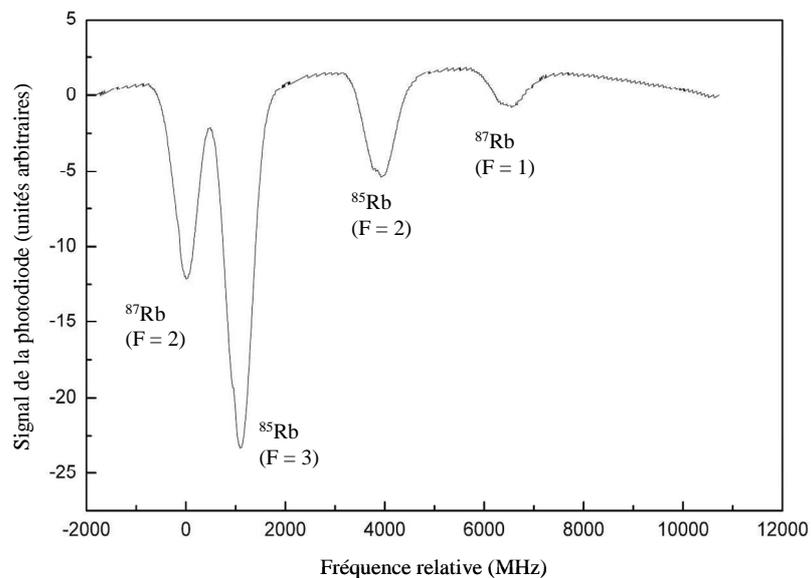


Figure 4-5 : Spectre d'absorption saturée du rubidium autour de 780 nm obtenu par le signal du faisceau sonde. Il permet d'identifier les raies d'absorption correspondant aux transitions des isotopes  $^{87}\text{Rb}$  et  $^{85}\text{Rb}$ .

Par exemple, lorsque cette modulation correspond à un intervalle de longueur d'onde contenant les transitions  $5^2\text{S}_{1/2}$  ( $F = 2$ ) vers l'état excité  $5^2\text{P}_{3/2}$  du  $^{87}\text{Rb}$  et  $5^2\text{S}_{1/2}$  ( $F = 3$ ) vers

l'état excité  $5^2P_{3/2}$  du  $^{85}\text{Rb}$ , il est possible d'observer les raies d'absorption sur le signal issu du faisceau sonde, mais aussi celui du faisceau référence, comme le montre la figure 4-6. Les deux profils des signaux sont identiques, sauf que le signal du faisceau sonde présente les lamb dip correspondants.

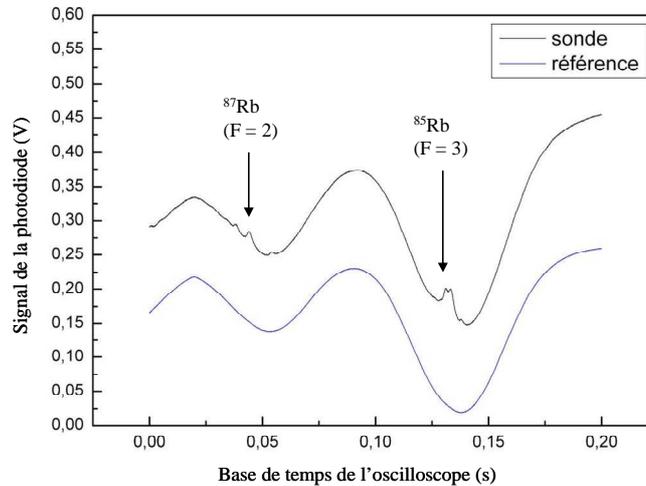


Figure 4-6 : Signaux sonde et référence autour des raies  $5^2S_{1/2}$  ( $F = 2$ )  $\rightarrow$   $5^2P_{3/2}$  du  $^{87}\text{Rb}$  et  $5^2S_{1/2}$  ( $F = 3$ )  $\rightarrow$   $5^2P_{3/2}$  du  $^{85}\text{Rb}$ .

En réduisant encore l'amplitude de modulation et en se plaçant autour d'une longueur d'onde adaptée, il est possible de réduire l'observation à la seule raie  $5^2S_{1/2}$  ( $F = 2$ )  $\rightarrow$   $5^2P_{3/2}$  du  $^{87}\text{Rb}$  qui contient la transition (vers  $F = 3$ ) utile au piégeage des atomes, comme le présente la figure 4-7.

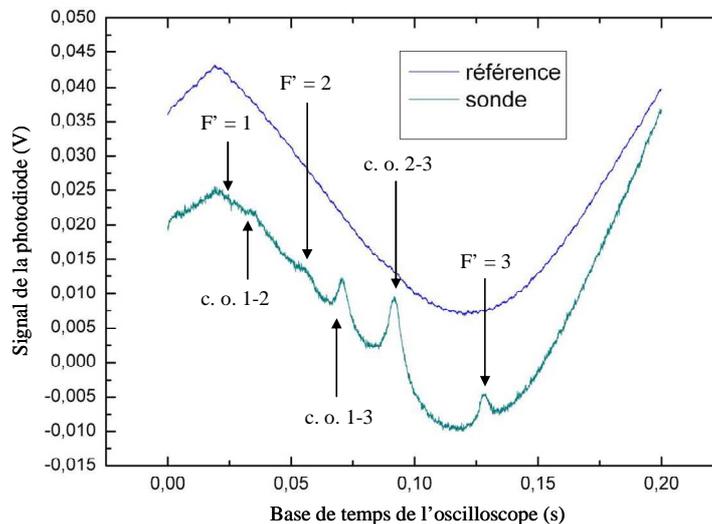


Figure 4-7 : Signaux sonde et référence autour de la raie  $5^2S_{1/2}$  ( $F = 2$ )  $\rightarrow$   $5^2P_{3/2}$  du  $^{87}\text{Rb}$ . (c. o.) : cross over.

Le module électronique permet alors de soustraire le signal de référence à celui de la sonde et d'obtenir le profil d'absorption saturée. Cette démarche pour le laser de piégeage s'applique aussi au laser de repompage. En ce sens, la figure 4-9 présente les spectres d'absorption saturée de la structure hyperfine du  $^{87}\text{Rb}$  pour les transitions  $5^2S_{1/2}$  ( $F = 1$ )  $\rightarrow$   $5^2P_{3/2}$  ( $F'$ ) (laser de repompage) et  $5^2S_{1/2}$  ( $F = 2$ )  $\rightarrow$   $5^2P_{3/2}$  ( $F'$ ) (laser de piégeage).

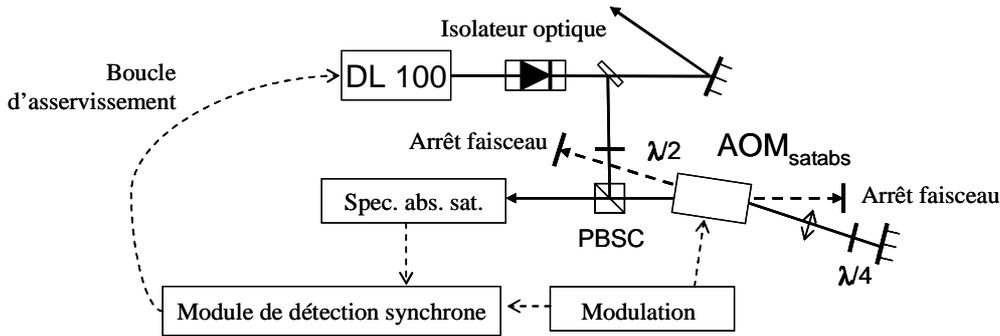
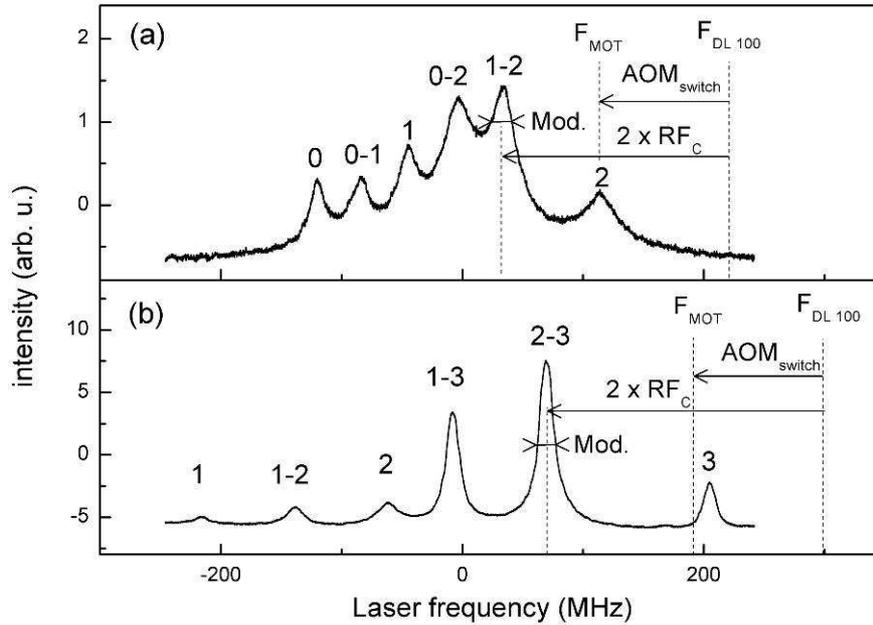


Figure 4-8 : Contrôle et stabilisation de la fréquence laser pour les deux lasers.

Le principe de stabilisation en fréquence des diodes laser de ce travail reproduit un principe récemment décrit [Lewandowski 2003]. A la sortie de la cavité externe de la diode laser et après passage au travers d'un isolateur optique, seule une petite partie du faisceau laser, extraite à l'aide d'une lame prismatique, sert à contrôler et à stabiliser la fréquence du laser. Avant d'entrer dans le dispositif de spectroscopie d'absorption saturée, ce faisceau de faible intensité passe deux fois au travers d'un AOM ( $AOM_{satabs}$ ) ; sa fréquence est deux fois décalée de la radiofréquence de cet AOM en utilisant deux fois le premier ordre négatif de diffraction. La figure 4-8 montre ce montage optique astucieux. La modulation fréquentielle de quelques MHz d'amplitude, qui sert à révéler la dérive fréquentielle du laser, est ajoutée à la radiofréquence centrale de l' $AOM_{satabs}$  ( $RF_c$ ) et n'affecte pas le laser primaire utile pour l'expérience. Le module de détection synchrone contient, en réalité, plusieurs éléments électroniques. Un multiplieur réalise la multiplication du signal de modulation et du signal d'absorption saturée. Un intégrateur, chargé d'intégrer l'erreur du signal multiplié, et un inverseur complètent essentiellement ce module. Ce module de détection synchrone, enfin, envoie le signal d'erreur à l'élément piézoélectrique, dont la tension contrôle la cavité externe du laser, afin de compenser la dérive fréquentielle du laser.

La radiofréquence  $RF_c$  de l' $AOM_{satabs}$  peut être contrôlée afin d'obtenir la fréquence laser désirée pour l'expérience. Pour le laser de piégeage, un AOM de 110 MHz, choisi pour stabiliser la fréquence, donne accès à une gamme fréquentielle de 170 à 270 MHz (décalée par rapport à la fréquence du laser). Cette gamme permet de balayer le spectre de raies hyperfines à partir desquelles la fréquence laser est asservie. Pour le système de stabilisation du laser de repompage, un AOM de 80 MHz donne accès à une gamme de 120 à 200 MHz (décalée par rapport à la fréquence du laser).



**Figure 4-9 :** Spectres d'absorption saturée de la structure hyperfine du  $^{87}\text{Rb}$  pour les transitions  $5^2\text{S}_{1/2} (F = 1) \rightarrow 5^2\text{P}_{3/2} (F')$  (a) et  $5^2\text{S}_{1/2} (F = 2) \rightarrow 5^2\text{P}_{3/2} (F')$  (b).

La figure 4-9 montre les spectres d'absorption saturée de la structure hyperfine du  $^{87}\text{Rb}$  pour les transitions  $5^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 5^2\text{P}_{3/2}$  en fonction des fréquences des différents AOM utilisés pour la stabilisation fréquentielle et l'extinction rapide du faisceau utile. Chaque pic des spectres est annoté d'un chiffre correspondant au niveau hyperfin ou au crossover final. Les décalages fréquentiels dus à l'AOM<sub>switch</sub> d'extinction rapide et à l'AOM<sub>satabs</sub> de stabilisation sont indiqués par des flèches noires. Les lignes en pointillés indiquent les différentes fréquences laser, à la sortie des diodes laser DL100 ( $F_{\text{DL } 100}$ ), dans le piège magnéto – optique ( $F_{\text{MOT}}$ ), et dans le système de stabilisation fréquentielle. Les modulations des radiofréquences des AOM<sub>satabs</sub> de stabilisation sont aussi indiquées par des flèches doubles (Mod.).

Ce contrôle sur la fréquence des lasers de piègeage et de repompage procure une grande stabilité fréquentielle (avec des dérives inférieures à 100 kHz) et donne accès à un large panel de fréquences. Cette configuration autorise facilement le piègeage des deux isotopes du rubidium, ainsi que la variation facile et précise du décalage fréquentiel du laser de piègeage sans affecter la puissance lumineuse envoyée dans la chambre de piègeage. De plus, le double passage à travers l'AOM<sub>switch</sub> présente l'indéniable intérêt de ne pas provoquer de déviation du faisceau envoyé dans le système d'absorption saturée en fonction de  $RF_c$ .

### 4.2.3 Chambre du piège

Tous les matériaux de la chambre du piège sont non ferromagnétiques et peuvent subir les conditions imposées par l'ultra vide. Trois pompes turbo moléculaires, deux de 300 l/s et une de 60 l/s, assurent un vide de  $5 \times 10^{-10}$  mbar.

Une cellule, contenant un gramme de rubidium et connectée à la chambre via une valve métallique, approvisionne le piège avec une vapeur atomique. La cellule peut être chauffée jusqu'à 150°C et fournit une pression de vapeur de rubidium atteignant  $10^{-8}$  mbar. Cette vapeur se compose de 72% de  $^{85}\text{Rb}$  et de 28% de  $^{87}\text{Rb}$ .

#### 4.2.4 Caractéristiques du nuage d'atomes froids

La taille, la densité et la température du nuage d'atomes piégés sont trois paramètres importants pour les expériences de collisions entre des ions et des atomes utilisant la technique MOTRIMS. Une optimisation de la densité améliore le taux de comptage de collisions, et si la géométrie du faisceau d'ions projectiles est bien connue, une mesure précise de cette densité rend possible une mesure de sections efficaces absolues, non réalisée jusqu'alors par la communauté des expérimentateurs utilisant la technique MOTRIMS. La taille du nuage délimite la zone de collision et peut limiter la résolution de l'impulsion des ions de recul. Une mesure de température s'avère aussi indispensable pour s'assurer qu'elle est suffisamment basse et n'affecte pas la résolution sur la mesure de l'impulsion.

##### 4.2.4.1 Calibration de la caméra CCD

Une caméra CCD à déclenchement rapide [Hamamatsu], placée à 58 cm du nuage d'atomes froids, mesure ces trois paramètres de piégeage. Une calibration de la caméra, réalisée en simulant une source ponctuelle isotrope placée à la même distance, permet la mesure du taux de photons émis.

La calibration générale de la caméra s'articule autour de deux types de calibration. Lors du premier type de calibration, il s'agit de mettre en place le dispositif de calibration et de mesurer le taux de photons émis par une source ponctuelle. Enfin, le deuxième type de calibration est une calibration en position de la caméra. Lors de ces deux types de calibration, le logiciel d'imagerie HiPic [Hamamatsu] traduit la distribution des photons détectés par la caméra en une matrice numérique à deux dimensions.

La figure 4-10 montre schématiquement le dispositif de calibration de la caméra. Un faisceau laser de 780 nm de longueur d'onde, une première fois réfléchi sur un miroir, fournit une source lumineuse quasi ponctuelle au niveau d'un deuxième miroir. Cette source lumineuse sert de référence pour la calibration. Elle se situe à 58 cm de la face avant de l'objectif de la caméra. L'expérimentateur s'assure de l'ouverture maximale de l'iris et de la netteté de l'image transmise par la caméra à une telle distance de l'objet. Le rayon lumineux arrive perpendiculairement à la face de l'objectif. Comme la source lumineuse présente une puissance de 3.48 mW, l'expérimentateur place des filtres de densité entre la source ponctuelle et l'objectif afin de ne pas endommager la caméra avec une concentration lumineuse trop importante. Cette série de filtres diminue la puissance laser jusqu'à 15.15 nW, après soustraction du bruit de fond lumineux, au niveau de l'objectif. Le système d'acquisition de la caméra montre que la caméra CCD ne sature pas à ce niveau de puissance lumineuse.

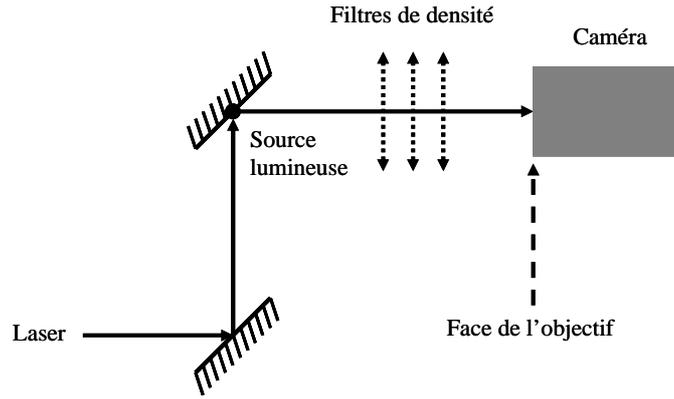


Figure 4-10 : Schéma du dispositif de calibration de la caméra.

La mesure du taux de photons émis par une source ponctuelle  $I_{4\pi}$  comporte deux points. Le premier point consiste à mesurer la réponse du dispositif pour une incidence normale, tandis que le second point consiste à mesurer la réponse de la caméra en fonction de l'angle d'incidence pour déterminer l'angle solide de détection.

Il s'agit d'abord de mesurer le signal lumineux en balayant l'objectif. Le signal varie peu dans une région formant un disque de 4 mm de rayon sur l'objectif. La position d'incidence normale des rayons de la source est alors déduite, ainsi que le signal lumineux  $I$  traduit par le logiciel à cet endroit, qui est pris comme référence. Ensuite, il est possible de déterminer le signal lumineux  $I_{s,photon}$  traduit par la caméra pour un photon d'incidence normale de longueur d'onde 780.6 nm, et donc d'énergie  $E_{photon} = 2.545 \times 10^{-19}$  J :

$$I_{s,photon} = \frac{I \times E_{photon}}{N_e \times t_i \times P} \quad (4-3)$$

où  $N_e$  représente le nombre d'expositions de la caméra pour effectuer la mesure,  $t_i$  le temps d'intégration de chaque exposition et  $P$  la puissance lumineuse incidente. Après calcul, il vient  $I_{s,photon} = 9.62 \times 10^{-5}$  unités de signal par photon incident perpendiculaire à l'objectif de la caméra.

Ensuite, il s'agit de mesurer la réponse de la caméra en fonction de l'angle d'incidence  $\theta$  pour déterminer l'angle solide effectif de détection  $\Omega$ . Comme  $I_{s,photon}$  correspond à un signal lumineux perpendiculaire à la caméra, la nouvelle notation s'écrit :

$$I_{s,photon} = i_s(\theta = 0) = i_s(0) \quad (4-4)$$

où  $i_s(\theta)$  représente le signal reçu par photon en fonction de l'angle d'incidence photonique  $\theta$ . Maintenant, il faut donc mesurer l'efficacité de détection de la caméra  $\varepsilon(\theta)$ , donnée par :

$$\varepsilon(\theta) = \frac{i_s(\theta)}{i_s(0)} \quad (4-5)$$

Pour ce faire, l'expérimentateur place momentanément une mire graduée dans le plan de l'objectif de la caméra afin de donner des coordonnées spatiales à l'objectif de la caméra. Une feuille de papier millimétré constitue la mire. La mesure de  $\varepsilon(\theta)$  est réalisée pour un profil vertical et un profil horizontal sur la caméra, comme le montre la figure 4-11.

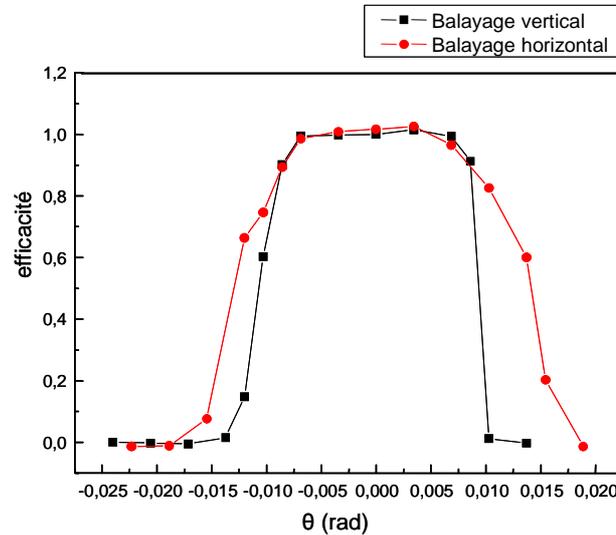


Figure 4-11 : Mesure expérimentale de  $\varepsilon(\theta)$  pour un profil vertical et un profil horizontal. Les données sont normalisées par rapport à la valeur maximale.

Une fois cette mesure réalisée, il est possible d'en déduire l'angle solide effectif  $\Omega$ , qui s'écrit :

$$\Omega = \int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{\theta=0}^{\pi} \langle \varepsilon(\theta) \rangle \sin(\theta) d\theta d\varphi = 2\pi \int_0^{\pi} \langle \varepsilon(\theta) \rangle \sin(\theta) d\theta \quad (4-6)$$

où  $\langle \varepsilon(\theta) \rangle$  représente la valeur moyenne  $\varepsilon(|\theta|)$ , calculée à partir des deux profils expérimentaux. La valeur de  $\Omega$  est de l'ordre de  $3.39 \times 10^{-5}$  sr.

Enfin, le signal moyen obtenu pour un photon émis dans  $4\pi$  par une source ponctuelle isotrope  $I_{4\pi}$  peut être déduit de ce qui précède :

$$I_{4\pi} = I_{s, photon} \times \frac{\Omega}{4\pi} \quad (4-7)$$

et vaut  $3.26 \times 10^{-9}$  unités de signal de la caméra par photon émis. Ce paramètre permet, par conséquent, de déterminer le nombre de photons émis suivant le signal reçu sur la caméra depuis une source lumineuse.

Enfin, le second type de calibration nécessite de connaître les distances mesurées avec la caméra. Pour ce faire, le placement d'une feuille de papier millimétré à 58 cm de la caméra constitue cette mesure. L'expérimentateur trouve qu'à cette distance 14 canaux de la caméra correspondent à 1 mm.

#### 4.2.4.2 Mesure des caractéristiques du nuage d'atomes froids

La sensibilité sur la mesure de la taille du nuage est de  $70 \mu\text{m}$ . La taille du nuage, sa position et le taux total de photons émis  $\gamma_{tot}$  sont mesurés en permanence pendant le piégeage des atomes grâce à l'acquisition informatisée de la caméra. Le nombre total d'atomes piégés  $N$  peut être déduit en divisant  $\gamma_{tot}$  par le taux de diffusion par atome  $\gamma_p = \frac{f}{\tau}$ , où  $\tau$  représente le temps de vie moyen du niveau excité des atomes piégés, et  $f$  représente la fraction excitée de la population du nuage. Cette fraction excitée peut être mesurée à l'aide du dispositif expérimental (cf. paragraphe 3.3.4), ou estimée à l'aide de l'équation (3-43). La figure 4-12 montre la densité atomique du centre du nuage en fonction du décalage fréquentiel du laser de piégeage, obtenue en utilisant la valeur effective  $I_s = 9.2 \text{ mW/cm}^2$  donnée pour le  $^{87}\text{Rb}$  [Shah 2007].

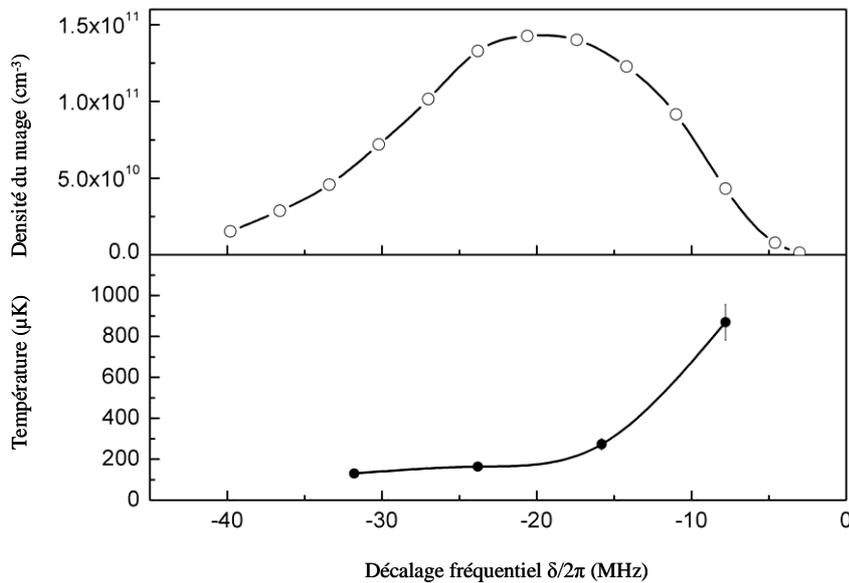


Figure 4-12 : Densité (points ouverts) et température du nuage (points noirs) en fonction du décalage fréquentiel du laser de piégeage. Les lignes tracées accentuent la lisibilité graphique.

La mesure de température est réalisée en utilisant une technique d'expansion balistique: les lasers de piégeage et de repompage sont éteints à l'aide de l'AOM<sub>switch</sub> pendant une période variant de 1 à 5 ms. Dans cette méthode, inspirée de la méthode appelée "release-and-recapture" [Chu 1985], la température des atomes froids, ou plus précisément leur vitesse, est déterminée en mesurant l'expansion du nuage en fonction du temps après lequel les lasers de piégeage ont été éteints. Lors de l'extinction des lasers, le nuage d'atomes froids, non piégé, tombe sous l'effet de la gravité et s'étend librement dans le vide de l'enceinte. Quand les lasers sont rallumés, la caméra CCD est déclenchée pour un temps d'acquisition de  $100 \mu\text{s}$  afin de mesurer la taille du nuage, ce qui est un temps suffisamment court pour ne pas modifier la taille du nuage le temps de la mesure, mais suffisamment long pour obtenir un signal raisonnable de fluorescence.

De cette mesure de fluorescence à différents moments de la libre évolution du nuage froid, l'expérimentateur en déduit l'évolution de la taille du nuage en fonction du temps. Enfin, de la vitesse d'expansion du nuage, il en déduit aussi la température du nuage. En effet, la

distribution statistique  $dn(v_x, v_y, v_z)$  des atomes du nuage en fonction des vitesses atomiques en coordonnées cartésiennes s'écrit :

$$dn(v_x, v_y, v_z) = e^{-\frac{m}{2k_B T}(v_x^2 + v_y^2 + v_z^2)} dv_x dv_y dv_z \quad (4-8)$$

où  $m$  est la masse de l'atome,  $k_B$  est la constante de Boltzmann, et  $T$  est la température. En exprimant cette distribution statistique en fonction des coordonnées spatiales, il vient :

$$dn(x, y, z) = \frac{1}{t^3} e^{-\frac{m}{2k_B T} \frac{(x^2 + y^2 + z^2)}{t^2}} dx dy dz \quad (4-9)$$

Sur une dimension, cette distribution statistique s'exprime :

$$dn(x) = \frac{1}{t} e^{-\frac{m}{2k_B T} \frac{x^2}{t^2}} dx \quad (4-10)$$

Or, la mesure de fluorescence permet de déduire la taille du nuage à l'aide d'un ajustement gaussien de la distribution en intensité de la fluorescence. A différents temps variant de 1 à 5 ms, la caméra mesure donc la distribution gaussienne des atomes fluorescents sous l'effet des lasers de piégeage et de repompage. Sur une dimension, la caméra mesure la distribution d'atomes  $dn(x, t)$  :

$$dn(x, t) = cte \times e^{-\frac{2x^2}{\omega^2(t)}} dx \quad (4-11)$$

où  $\omega(t)$  est le double de la déviation standard  $\sigma$  de la distribution. La détermination de la température du nuage devient :

$$T = \frac{m}{4k_B} \left( \frac{\omega(t)}{t} \right)^2 \quad (4-12)$$

La figure 4-13 présente l'évolution dimensionnelle du nuage froid en fonction de son temps de libre expansion pour quatre valeurs de décalage fréquentiel du laser de piégeage correspondant aux quatre mesures de température de la figure 4-12. La partie droite de la figure 4-13 image la fluorescence du nuage traduite par le système d'acquisition de la caméra, pour quatre durées de libre expansion. Cette illustration montre l'étalement continu du nuage dû à la vitesse initiale des atomes, reflet de la température. Ce dernier paramètre est présenté sur la figure 4-12 pour quatre valeurs de décalage fréquentiel du laser de piégeage.

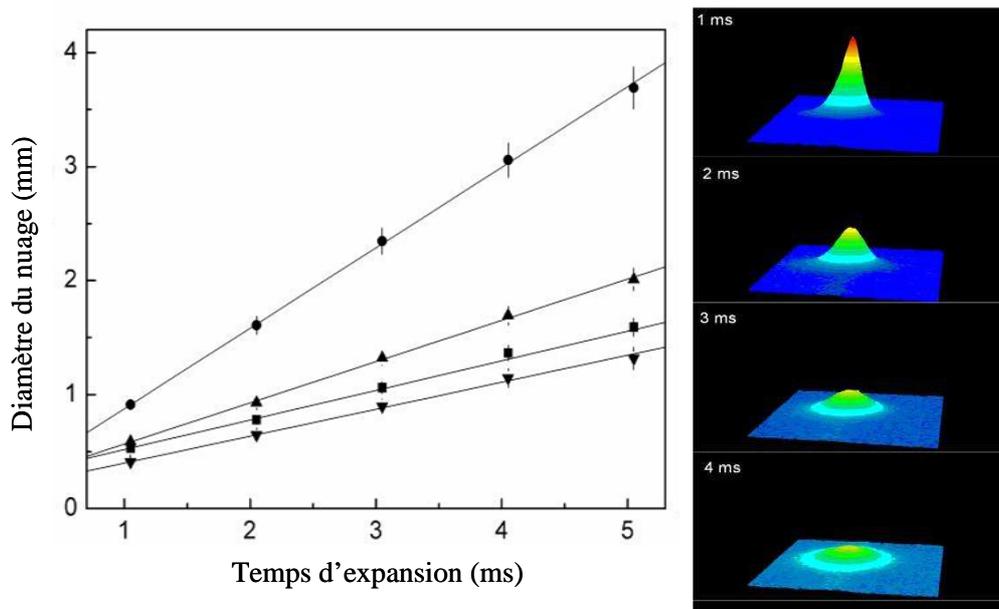


Figure 4-13 : Diamètre du nuage en fonction du temps d'expansion pour les quatre valeurs de décalage fréquentiel du laser de piégeage de la figure 4-12. Quatre images du nuage sont représentées à droite pour quatre durées de libre expansion du nuage.

Pour un décalage fréquentiel du laser de piégeage de l'ordre de trois largeurs naturelles de bande du niveau excité, la densité du nuage d'atomes froids atteint un maximum de  $1.5 \times 10^{11}$  atomes/cm<sup>3</sup> pour une température de l'ordre de 200  $\mu$ K. Typiquement, en régime continu de piégeage, le diamètre du nuage mesure 0.5 mm (déduit d'un ajustement gaussien sur la mesure de fluorescence).

Cette température de 200  $\mu$ K correspond à une déviation standard  $\sigma = 0.01$  u.a. pour les trois composantes de l'impulsion des atomes cibles. Il est notable qu'en utilisant la valeur nominale  $I_s = 3.34$  mW/cm<sup>2</sup>, donnée pour une lumière polarisée circulairement, au lieu de la valeur effective donnée par Shah *et al.* [Shah 2007], la densité maximale du nuage n'atteint que  $9 \times 10^{10}$  atomes/cm<sup>3</sup>.

#### 4.2.4.3 Transformée inverse d'Abel

Ces mesures de température et de densité du nuage d'atomes froids sont en accord avec les mesures publiées dans la littérature, mais cachent cependant quelques lacunes méthodologiques. En effet, les mesures obtenues ne sont le fruit d'interprétation que des données issues d'une image bidimensionnelle de la mesure de fluorescence avec une caméra calibrée. Cette information tronque la réalité physique d'un nuage froid qui est en trois dimensions.

La transformée inverse d'Abel résout ce problème d'imagerie et permet de remonter à la réalité tridimensionnelle des problèmes physiques de ce type.

La transformée d'Abel est une transformée intégrale souvent utilisée dans l'analyse de fonctions à symétrie sphérique ou axiale. En analyse d'images, elle est utilisée pour projeter, depuis un milieu optiquement peu épais, une fonction d'émission à symétrie sphérique ou axiale sur un plan, et sa transformée inverse est utilisée pour calculer cette fonction d'émission donnant la projection.

En trois dimensions, dans un repère cartésien orthonormé, la transformée d'Abel projette une fonction  $f(\rho, z)$  à symétrie sphérique ou cylindrique, avec  $\rho^2 = x^2 + y^2$ , sur le plan  $yz$ . La figure 4-14 illustre le positionnement d'un observateur qui n'a accès qu'à la projection. Son axe d'observation, toujours parallèle à l'axe  $x$ , parcourt perpendiculairement le plan de la projection.

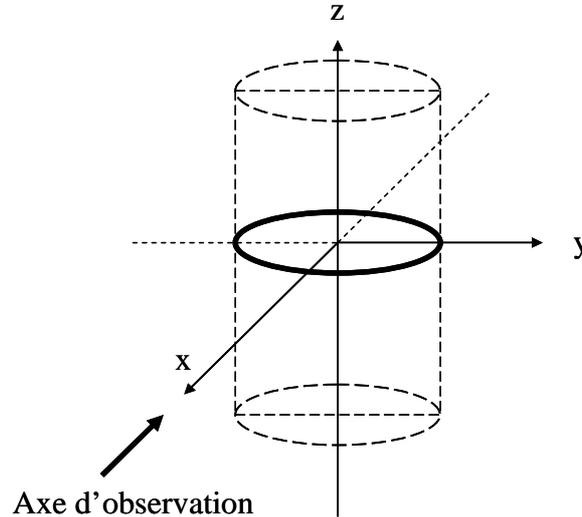


Figure 4-14 : Positionnement de l'observateur dans un problème d'imagerie utilisant la transformation d'Abel. Le plan d'observation est le plan  $yz$ .

La projection  $F(y, z)$  s'écrit :

$$F(y, z) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(\rho, z) dx = 2 \int_y^{+\infty} \frac{f(\rho, z) \rho d\rho}{\sqrt{\rho^2 - y^2}} \quad (4-13)$$

Si seule la projection, ou l'image, est connue, alors la transformée inverse d'Abel permet de retrouver la fonction d'émission  $f(\rho, z)$  :

$$f(\rho, z) = -\frac{1}{\pi} \int_{\rho}^{+\infty} \frac{dF}{dy} \frac{dy}{\sqrt{y^2 - \rho^2}} \quad (4-14)$$

Lors de la mesure de fluorescence, la caméra mesure le nombre de photons émis depuis le nuage d'atomes froids, qui est un milieu peu dense et donc optiquement peu épais. L'expérimentateur accède ainsi à la projection du nombre de photons émis d'une fonction d'émission, qui n'est autre que le nombre d'atomes émetteurs. Le logiciel de la caméra donne une image pixellisée, analytiquement récupérable avec des matrices, et donc la distribution  $F(y, z)$ . La transformée inverse d'Abel remonte ensuite à la fonction  $f(\rho, z)$ , qui correspond à la distribution spatiale des atomes froids.

Les calculs numériques effectués ont donné la distribution spatiale des atomes du nuage et montré que les ajustements gaussiens, pour déterminer la taille du nuage, sont valides. Enfin, ils confirment que la densité nébuleuse avoisine  $1.5 \times 10^{11}$  atomes/cm<sup>3</sup> au cœur du nuage.

Ainsi, la technique analytique de la transformée inverse d'Abel démontre que la procédure expérimentale employée est valide, et que les mesures de densité et de température sont méthodologiquement satisfaisantes.

### 4.3 Commutation rapide du champ magnétique

La production d'une cible froide par piégeage magnéto – optique nécessite un champ magnétique intense et inhomogène. Ce dernier est cependant incompatible, par certains aspects, avec la spectroscopie d'impulsion d'ions de recul. En effet, les ions de recul lents croisent les lignes de champ magnétique, ce qui affecte leur trajectoire et perturbe leur image sur le détecteur.

Pour une extraction longitudinale des reculs, le champ magnétique n'affecte pas la composante longitudinale de l'impulsion car l'extraction se fait le long des lignes de champ; en revanche, il affecte les deux composantes transverses [Flécharde 2001, Nguyen 2003]. Pour une extraction transverse, le champ inhomogène affecte l'impulsion longitudinale ainsi que l'une des deux composantes transverses [van der Poel 2001b, van der Poel 2002]. La reconstruction des trajectoires des reculs, courbées par le champ magnétique, est évidemment possible, mais au prix d'une grande complexité calculatoire et d'une parfaite connaissance du champ magnétique.

Afin de s'affranchir de ce problème, la nécessité d'un champ magnétique périodiquement éteint s'impose. Les données acquises durant cette période de champ magnétique nul permettront d'avoir une image non perturbée des ions de recul sur le détecteur. Cependant, cette commutation cyclique du champ magnétique doit être suffisamment rapide pour limiter l'expansion du nuage et la perte d'atomes piégés.

En régime continu, deux bobines en configuration anti – Helmholtz, de mille spires chacune et séparées de 15 cm, créent le champ magnétique requis. Traversées par un courant de deux Ampères, elles atteignent un gradient de champ de 20 Gauss/cm dans la direction axiale et de 10 Gauss/cm dans la direction radiale. Le régime alternatif voit la mise à zéro du courant, et donc du champ magnétique, puis sa remontée, en moins de 300  $\mu$ s. La séquence temporelle choisie laisse le champ magnétique éteint durant 3 ms et allumé durant 9 ms.

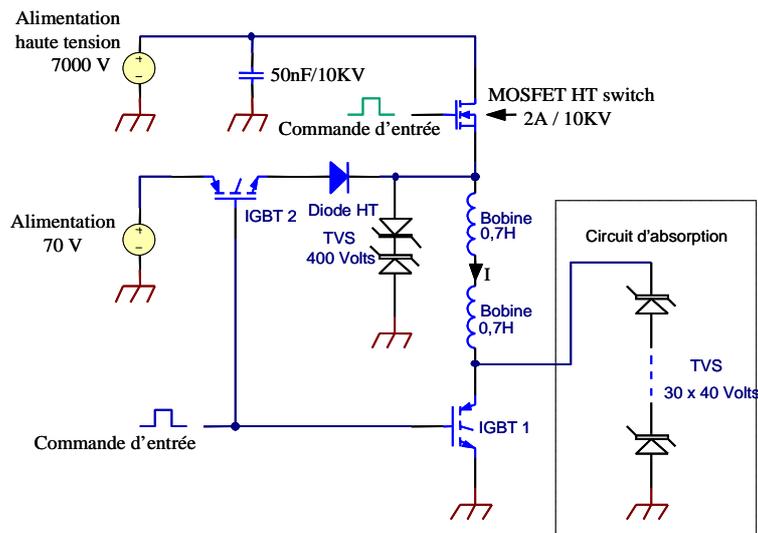


Figure 4-15 : Schéma de l'électronique de mise à zéro du champ magnétique.

### 4.3 Commutation rapide du champ magnétique

La figure 4-15 donne un schéma de l'électronique permettant la commutation rapide du courant à travers les bobines. A cause de leur forte inductance s'élevant à 1.4 H, la constante de temps est grande, de l'ordre de 50 ms, et l'application d'une haute tension pulsée s'avère nécessaire pour réaliser une montée rapide de courant à travers les bobines. Ceci est fait en libérant la charge d'une capacité de 50 nF à 7 kV avec le changement d'état d'un MOSFET ("metal oxide semiconductor field effect transistor" en anglais) à haute tension. Lorsque le courant des bobines atteint 2 A, il est maintenu à ce niveau à l'aide d'une alimentation de 70 V. Pour éteindre le courant, le circuit des bobines est ouvert des deux côtés avec deux IGBT ("insulated gate bipolar transistors" en anglais), et l'énergie emmagasinée dans les bobines est transférée vers un circuit d'absorption fait de 30 diodes TVS ("transient voltage diodes" en anglais).

Ce champ magnétique cyclique présente des effets notables sur les caractéristiques du piège magnéto – optique. Avec un décalage fréquentiel du laser de piégeage de  $3\Gamma$ , la densité moyenne du nuage atomique décroît d'environ 50% tandis que le diamètre moyen du nuage augmente de 20%. Lors d'une période, le nuage s'étend quand le champ magnétique est éteint et se rétracte lors de la présence du champ. Ce "mouvement respiratoire" du diamètre nébuleux possède une amplitude d'environ 100  $\mu\text{m}$ . Il est à noter que la présence de champs magnétiques parasites, non originaires des bobines principales, peuvent aussi causer un déplacement du nuage en allumant et en éteignant le courant des bobines. En effet, en présence de ces champs parasites, le point de champ nul se déplace lors de la commutation du courant. Or, les lasers continuent à exercer leur force de pression radiative sur les atomes pendant cette commutation et déplacent ainsi le centre du nuage atomique, qui correspond au point de champ magnétique nul. L'extinction des lasers de piégeage lors des deux périodes transitoires de 300  $\mu\text{s}$  annihile aisément ce mouvement nébuleux.

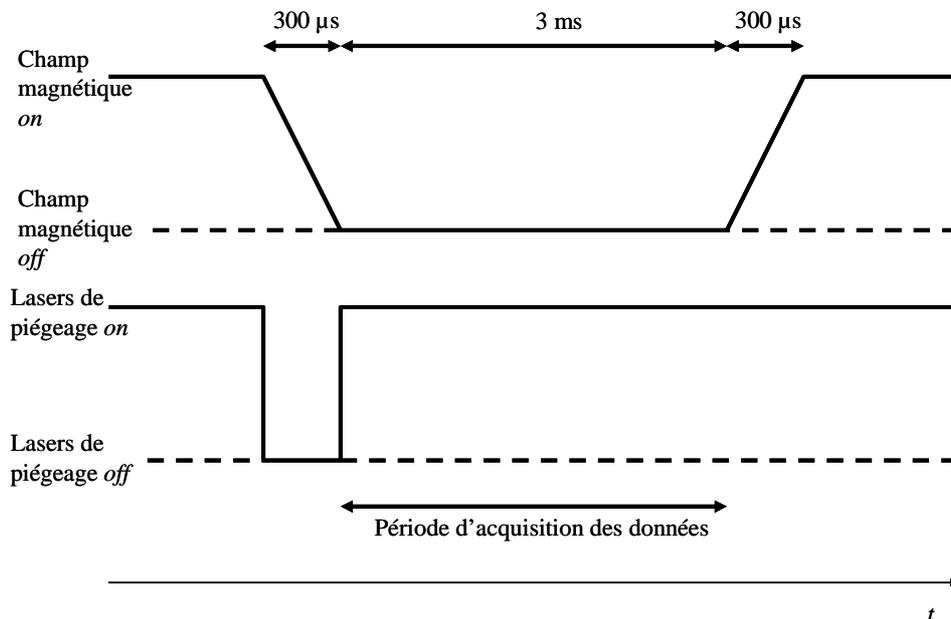


Figure 4-16 : Séquence temporelle du champ magnétique et des lasers de piégeage.

La figure 4-16 résume l'enchaînement des différents états du champ magnétique et des lasers de piégeage. A une période de 9 ms lors de laquelle le champ magnétique et les lasers de piégeage sont allumés succède une première période transitoire de 300  $\mu\text{s}$  pendant laquelle le courant des bobines décroît rapidement alors que les lasers de piégeage sont éteints. S'ensuit alors une période de 3 ms, sans champ magnétique, correspondant à la période d'acquisition des données pour des trajectoires de reculs non altérées. Lors de cette dernière

période, les lasers de piégeage sont rallumés afin de refroidir les atomes du piège sous forme de mélasse optique. A la fin de la période d'acquisition suit une seconde période transitoire de 300  $\mu$ s qui aboutit à une nouvelle période de 9 ms de confinement magnétique du nuage.

## 4.4 La ligne de projectiles

La figure 4-1 montre les différents éléments optiques de la ligne des projectiles ioniques. Cette ligne, entièrement conceptualisée, simulée, réalisée puis testée au laboratoire au cours de ce travail, comprend une source thermoïonique produisant un faisceau d'ions  $\text{Na}^+$  à des énergies cinétiques comprises entre 1 keV et 10 keV. Cette source comprend un élément producteur d'ions [Heat Wave Labs] interchangeable suivant les espèces ioniques de projectiles recherchées. Cet élément est l'émetteur de la source et produit typiquement des ions alcalins et alcalinoterreux simplement chargés. Il est composé d'un filament permettant de le chauffer à environ 1000°C, et d'une surface émissive constituée d'une matrice d'aluminosilicates et comprenant l'alcalin ou l'alcalinoterreux recherché. La source comprend aussi deux éléments géométriques polarisés et accolés à l'émetteur, le support de la source et l'extracteur, dont le but est de mettre en forme le faisceau ionique. Cette source thermoïonique produit aisément à sa sortie un courant ionique, contrôlable, pouvant atteindre 1  $\mu$ A. Après la source, la ligne d'ions projectiles comprend deux lentilles Einzel capables de focaliser le faisceau sortant de la source. Un déflecteur suit la double lentille électrostatique pour pouvoir diriger latéralement et verticalement le faisceau ionique. Puis, à l'entrée de la chambre du piège, deux paires de fentes et un collimateur de 2 mm de diamètre limitent le diamètre du faisceau. Après collimation, le faisceau délivre typiquement un courant de 1 nA aux cibles atomiques. A la sortie de la chambre, un autre déflecteur électrostatique, fait de deux plaques parallèles polarisées à des potentiels opposés, guide le faisceau primaire vers une cage de Faraday. Les projectiles neutralisés lors de l'échange de charge avec les cibles atomiques ne subissent pas de déflexion et peuvent être détectés à l'aide de galettes à micro canaux (MCP) commerciales, combinées avec des anodes à lignes à retard [Roentdek DLD40].

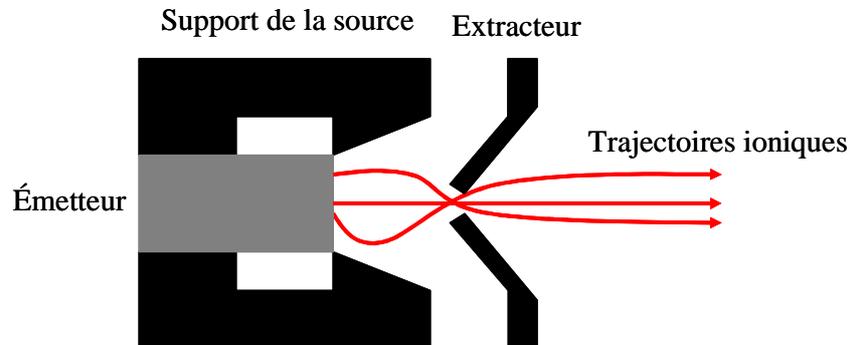
### 4.4.1 Etude de la ligne de projectiles ioniques

Afin de ne pas être tributaire de l'accès aux grandes installations, du type ARIBE sur le site du GANIL, capables de fournir des faisceaux ioniques simplement ou multiples chargés, de différentes espèces et à de basses énergies dans la gamme du keV, l'équipe expérimentale utilisant la technique MOTRIMS développa et monta sa propre source ionique. L'ensemble du dispositif expérimental se situe dans une salle expérimentale du LPC de Caen.

L'étude de la ligne de projectiles ioniques présente quatre étapes. La première étape définit les objectifs à atteindre, les performances attendues de la source. La deuxième étape consiste à conceptualiser la ligne, à reprendre les principes généraux des sourciers. L'étape suivante comprend une période de simulations visant à déterminer la configuration la plus performante. La dernière étape comprend le montage mécanique de la source et son test.

Tout d'abord, la source doit répondre à deux critères. Le premier critère exige un faisceau ionique très parallèle, peu divergent, depuis la source, à travers la zone de collision et jusqu'au détecteur en position ou la cage de Faraday. Le second critère impose la taille du faisceau. Celui-ci doit recouvrir le nuage cible, de 0.5 mm de diamètre, et ne pas heurter les structures de la chambre de piégeage. Le faisceau doit aussi répondre, bien évidemment, à des exigences d'optimisation, à savoir une extraction ionique optimale au niveau de l'émetteur de la source de façon à obtenir un maximum de courant.

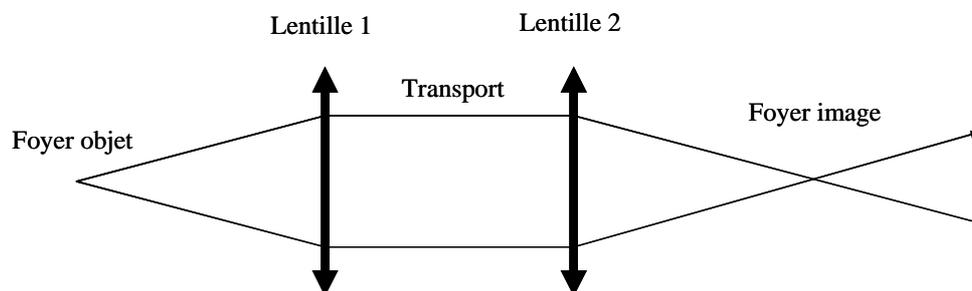
Ensuite, la conceptualisation de la ligne comporte deux points. Le premier point consiste à reprendre les principes de mise en forme d'un faisceau ionique à la sortie de l'élément de production. Le second point consiste à appliquer les principes de l'optique de faisceaux afin de guider les ions et d'obtenir les propriétés désirées au niveau de la zone de collision.



**Figure 4-17 : Schéma des trajectoires ioniques depuis l'émetteur, entouré d'un support et d'un extracteur polarisés. Cette illustration présente une coupe longitudinale de la source, qui est à symétrie cylindrique.**

La figure 4-17 illustre l'une des géométries traditionnelles des sources ioniques pour mettre en forme le faisceau juste après sa production. L'émetteur, d'une surface active de 6.35 mm de diamètre, doit s'insérer dans un support polarisé à symétrie cylindrique. Ce support, en forme de cône, empêche la divergence des ions, produits dans toutes les directions d'un angle solide de  $2\pi$  Sr, et les ramène vers l'axe de symétrie de la source. L'extracteur, en forme de cône troué, diminue lui aussi la divergence des ions, affine le faisceau, et son potentiel, plus faible que celui du support, joue sur l'efficacité d'extraction des ions. Les trajectoires ioniques de la figure 4-17 montrent clairement que des ions fortement divergents sont, dans un premier temps, ramenés vers l'axe de symétrie cylindrique de la source, puis extraits de façon quasi parallèle.

Ensuite, deux lentilles électrostatiques assurent le guidage et la focalisation des ions. Les principes de l'optique de faisceau ionique sont les mêmes que ceux de l'optique géométrique de photons. Les rayons d'un objet placé au foyer objet d'une lentille ressortent parallèlement de la lentille. Ces rayons parallèles, de nouveau focalisés par une lentille, se croisent au foyer image de cette seconde lentille. Pour deux lentilles identiques, la distance entre le foyer objet et la première lentille est la même que celle séparant la deuxième lentille du foyer image.



**Figure 4-18 : Schéma de la focalisation ionique par deux lentilles électrostatiques.**

A la différence de l'optique photonique, la distance focale d'une lentille électrostatique dépend de sa polarisation. Dans le cas d'ions positivement chargés, une forte polarisation positive de la lentille raccourcit la distance focale, et inversement. Le second point de la conceptualisation de la ligne de projectiles consiste donc à mettre en place un couple de

lentilles électrostatiques capables de focaliser le faisceau ionique au niveau de la zone de collision, afin de limiter la taille du faisceau. Par ailleurs, en optique de faisceau ionique, la quantité  $\Delta x \Delta \theta$  se conserve, où  $\Delta x$  et  $\Delta \theta$  représentent respectivement la taille et la divergence du faisceau. Le jeu consiste ainsi à focaliser au mieux le faisceau au niveau de la zone de collision, tout en ayant une divergence faible. La figure 4-18 montre schématiquement la disposition à appliquer pour guider le faisceau depuis la source jusque la zone de collision et au-delà. Le foyer objet s'assimile au faisceau ionique en sortie de source, i. e. juste après l'extracteur. Une première lentille polarisée, assez proche de la source pour éviter une taille de faisceau trop importante, tente de rendre le faisceau le plus parallèle possible en faisant varier son potentiel. Enfin, une deuxième lentille polarisée refocalise le faisceau. En ajustant son potentiel, le foyer image coïncide avec la zone de collision. Typiquement, les lentilles électrostatiques choisies sont des lentilles Einzel, constituées d'une électrode polarisée au milieu de deux autres électrodes à la masse.

La troisième étape d'étude de la ligne de projectiles a pour but de simuler, à l'aide du logiciel SIMION, le comportement des éléments cités à l'étape précédente, tout en tenant compte des objectifs expérimentaux et des dimensions limitées de la salle.

La première partie de la simulation consiste à définir la géométrie de la ligne. Celle-ci comporte une source, dont l'allure ressemble à celle de la figure 4-17, et deux lentilles Einzel successives partageant une même électrode reliée à la masse, comme le montre la figure 4-19. Cette figure donne les distances d'intérêt de la ligne de projectiles, qui doit tenir, pour des raisons de réalisation technique, dans un tube à ultra vide DN40 de 40 mm de diamètre interne. La zone de collision se situe approximativement à 570 mm de la source.

Toutes les simulations utilisent des potentiels proches de ceux indiqués sur la figure 4-19. Les ions  $\text{Na}^+$  simulés volent donc avec une énergie cinétique de 1.5 keV. Le choix, arbitraire, de cette énergie dépend de considérations qualitatives. En effet, un faisceau peu énergétique est de moindre qualité, en termes de taille et de divergence, par rapport aux faisceaux énergétiques. Comme les expériences envisagées utilisent une gamme énergétique allant jusqu'à 10 keV, il est sensé d'étudier le cas moins favorable d'ions peu énergétiques et d'extrapoler leurs propriétés à plus haute énergie.

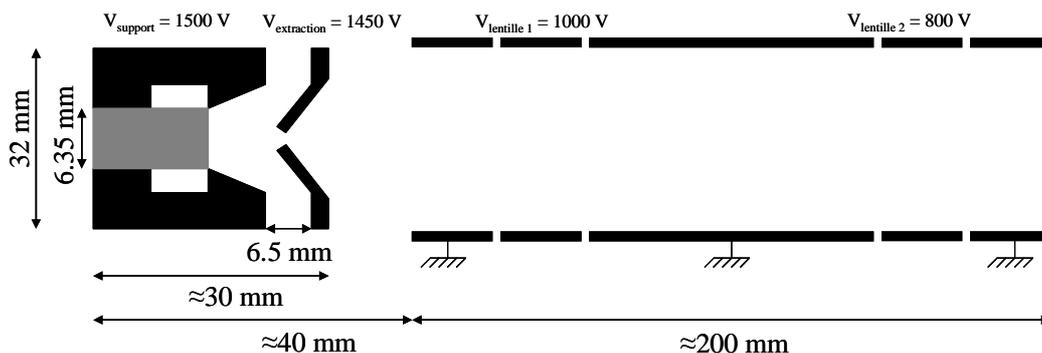


Figure 4-19 : Coupe longitudinale schématique de la ligne de projectiles avant la zone de collision. La symétrie de la géométrie est cylindrique. Les longueurs sont données à titre indicatif et ne respectent pas d'échelle.

Les simulations révèlent qu'une diminution de la distance entre le support de la source et l'extracteur améliore le pourcentage d'extraction ionique, mais dégrade la focalisation du faisceau en sortie d'extracteur. Un bon compromis semble avoir été trouvé avec une distance de 6.5 mm. De même, un accroissement de la différence de potentiel ( $V_{\text{support}} - V_{\text{extraction}}$ ) améliore l'extraction et dégrade la focalisation du faisceau. Les simulations ont montré qu'une tension de 50 V paraissait donc aussi comme un bon compromis. Par ailleurs, la distance entre l'extracteur et la première lentille Einzel, de l'ordre de 10 mm, ne doit pas être trop grande

pour éviter une divergence rapide des ions en sortie d'extracteur. Le diamètre des lentilles Einzel, limité par le tube, doit être le plus grand possible afin de contrôler plus finement la focalisation lointaine du faisceau.

Avec les conditions de la figure 4-19, le diamètre du faisceau mesure environ 4 mm au niveau de la zone de collision, pour une divergence de 1 mrad et une extraction de 75%, la majeure partie des ions perdus se situant avant l'extracteur. Ces conditions remplissent les objectifs prédéfinis et augurent d'un faisceau ionique adéquat pour l'expérience de collisions entre des ions et des atomes.

La dernière étape de l'étude de la ligne de projectiles consiste à monter et aligner la source, les lentilles, le déflecteur, les fentes et le collimateur avant la zone de collision, puis le second déflecteur, la cage de Faraday et le détecteur sensible à la position après la zone de collision, comme le montre la figure 4-20. Cet alignement a été réalisé à l'aide d'un théodolite, ou lunette de géomètre. En pratique, lors des tests puis des expériences, les ions ont une énergie cinétique de 2 puis de 5 keV. Les rapports de potentiels entre les différents éléments de la ligne sont voisins de ceux de la simulation. Seules de légères déflexions après les lentilles, de l'ordre de quelques volts, ajustent le guidage du faisceau. Les potentiels des plaques déflectrices s'élèvent à quelques dizaines de volts pour collecter le faisceau primaire dans la cage de Faraday. Enfin, la source produit typiquement un courant ionique de l'ordre de 1 nA au niveau de la zone de collision.

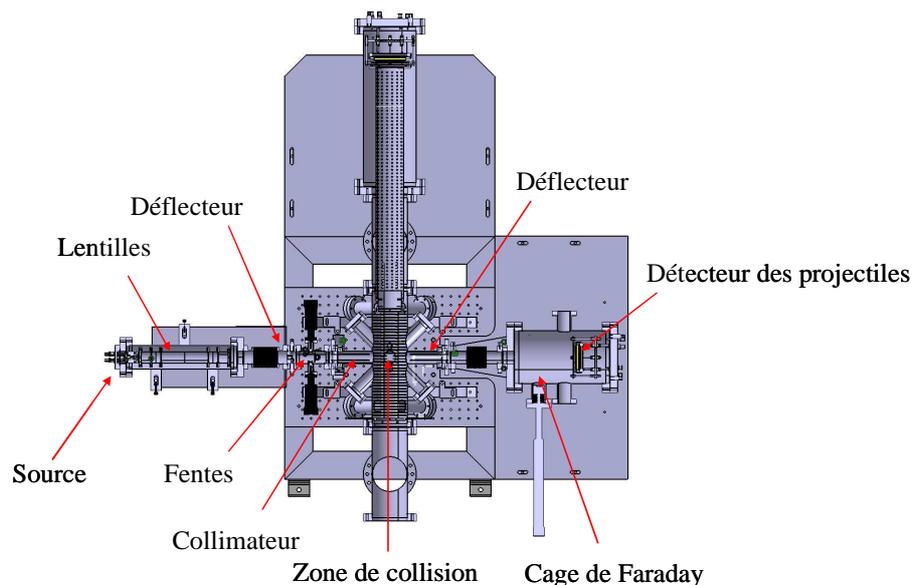


Figure 4-20 : Coupe horizontale de l'ensemble du dispositif expérimental. Les annotations décrivent les éléments de la ligne des projectiles.

#### 4.4.2 Le détecteur des projectiles neutralisés

Les ions projectiles neutralisés lors du transfert électronique depuis les cibles atomiques, et non défléchis vers la cage de Faraday, se dirigent vers un détecteur en position. Ce dernier se compose d'une grille de nickel, de deux MCP et d'anodes à lignes à retard connectées au système d'acquisition.

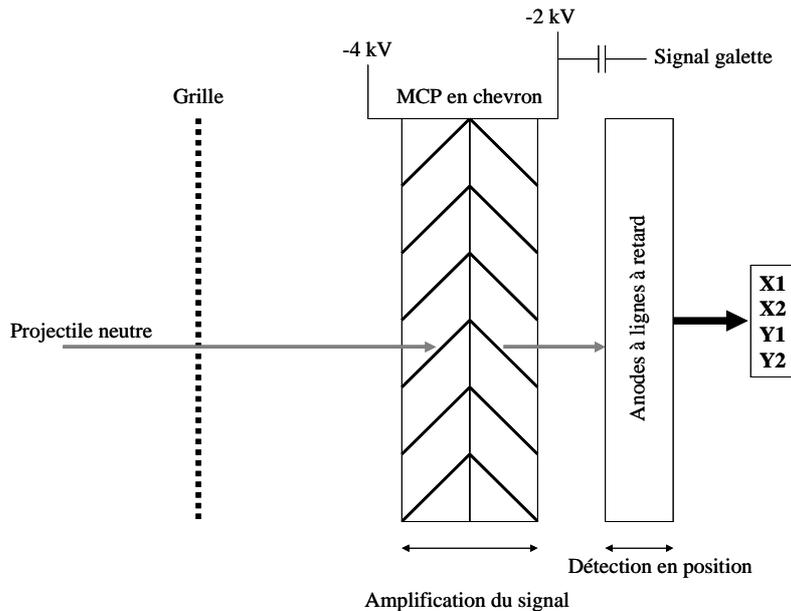


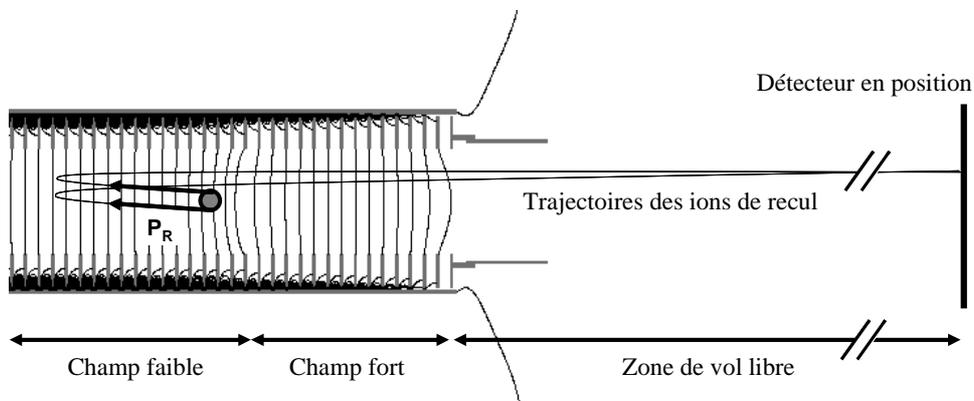
Figure 4-21 : Schéma du détecteur des projectiles neutralisés.

Alors que la grille légèrement polarisée (27 V) sert à détourner un maximum de polluants chargés de très basse énergie (dus aux projectiles diffusés sur les structures de la ligne), les projectiles neutralisés, d'énergie cinétique comprise entre 1 et 10 keV, heurtent la face avant de la première MCP. Celle-ci possède un diamètre actif de 40 mm et amplifie le signal généré par le projectile ayant heurté un des micro canaux de 10  $\mu\text{m}$  de diamètre en générant une gerbe d'électrons secondaires. Typiquement, une MCP possède une efficacité de 50% et un gain de  $10^4$ , tandis que deux MCP montées en chevron amplifient le signal d'environ  $10^7$ . Pour atteindre ce gain pour deux MCP montées en chevron, la face avant de la première MCP est généralement polarisée à -4 kV, alors que la face arrière de la seconde l'est à -2 kV. Cette polarisation de la face avant de la première MCP crée une tension entre la grille et la galette, et post-accélère d'éventuels projectiles chargés pour qu'ils soient suffisamment énergétiques en heurtant la galette. En effet, lors de l'étude de la capture électronique par des ions multiples chargés, les projectiles peuvent encore être chargés après la collision. Bien entendu, dans le cas présent, les projectiles sont neutres, et leur énergie dans le régime du keV suffit à arracher des électrons quand ils heurtent les MCP. L'avalanche d'électrons secondaires sortant de la face arrière de la deuxième MCP est ensuite collectée sur les anodes à lignes à retard. Celles-ci envoient le signal recueilli vers l'électronique d'acquisition, qui l'amplifie et le convertit en signaux logiques rapides à l'aide de discriminateurs à fraction constante. Ces signaux, envoyés vers un "time to digital converter" (TDC) "multi hit", permettent la reconstruction de la position du projectile, et donnent une référence temporelle pour la mesure du temps de vol des ions de recul. La figure 4-21 résume schématiquement les différentes étapes de détection des projectiles neutralisés. Le signal donnant le temps d'arrivée du projectile (Signal galette) est directement collecté sur la face arrière des MCP. Les signaux anodiques sont au nombre de quatre (X1, X2, Y1 et Y2) et déterminent la position du projectile sur le détecteur. Pour ce faire, le temps entre la détection du signal galette et la détection de chaque signal anodique définit quatre différences de temps  $tx1$ ,  $tx2$ ,  $ty1$  et  $ty2$ . Les différences  $tx1 - tx2$  et  $ty1 - ty2$  permettent de déduire les coordonnées X et Y, respectivement, où le signal issu du projectile a été collecté sur les anodes.

Par ailleurs, la résolution temporelle du TDC de 0.8 ns correspond à une résolution de 0.5 mm sur la mesure de la position du projectile, et sa gamme de temps allant jusqu'à 0.8 ms autorise des mesures de longs temps de vol pour les ions de recul.

## 4.5 Le spectromètre d'ions de recul

La spectroscopie d'impulsion d'ions de recul impose la mesure simultanée des trois composantes de l'impulsion de l'ion de recul. Le concept général repose sur l'idée de l'extraction de la particule chargée, avec une tension accélératrice, vers un détecteur en position après une zone de vol libre (figure 4-22). Trois éléments principaux composent ainsi le spectromètre d'ions de recul: un empilement d'électrodes générant le champ d'extraction, un tube matérialisant la zone de vol libre, et un détecteur sensible à la position. Le temps de vol de l'ion et la mesure de sa position sur le détecteur permettent de reconstruire l'impulsion de recul. Plusieurs approches techniques possibles, déjà présentées, permettent cette reconstruction. Les expérimentateurs de ce travail ont choisi l'extraction transverse des ions de recul pour les avantages cités (cf. paragraphe 3.3.1.3.2).



**Figure 4-22 : Illustration de la focalisation sur un plan vertical. Une extraction inhomogène, générée par la succession d'une région de champ faible et d'une région de champ fort, envoie deux reculs, produits à des endroits différents avec la même impulsion initiale, au même endroit sur le plan de détection.**

Pour obtenir une bonne résolution sur la mesure de l'impulsion de l'ion de recul dans les trois directions de l'espace, deux conditions doivent être remplies. D'abord, le détecteur d'ions de recul doit présenter une bonne résolution spatiale ainsi qu'une bonne résolution temporelle. Ensuite, l'image de la zone de collision sur le détecteur doit également être la plus réduite possible. Pour cela, le champ d'extraction du spectromètre doit focaliser la zone de collision, spatialement et temporellement, sur le plan de détection. Grâce à la focalisation temporelle, des ions créés aux deux extrémités de la zone de collision ont des temps de vol dépendant de leur impulsion initiale, et non, au premier ordre, de leur position initiale [Wiley 1955]. Cette technique améliore la résolution sur la composante de l'impulsion parallèle à l'axe d'extraction en estompant les effets de taille finie de la zone de collision. Avec une géométrie appropriée du champ d'extraction, cette propriété peut être appliquée aux trois composantes de l'impulsion. Dans ce cas, le temps de vol et la position sur le détecteur d'un ion de recul ne dépendent pas, au premier ordre, de la position initiale de l'ion. La figure 4-22 illustre cette propriété focalisante pour la direction verticale.

### 4.5.1 Le détecteur d'ions de recul

Les cibles, ionisées lors du transfert électronique puis extraites par un champ électrostatique, se dirigent vers un détecteur en position. Ce dernier se compose d'une grille de post-accélération, de deux MCP montées en chevron, et d'anodes à lignes à retard connectées au système d'acquisition, comme le schématise la figure 4-23.

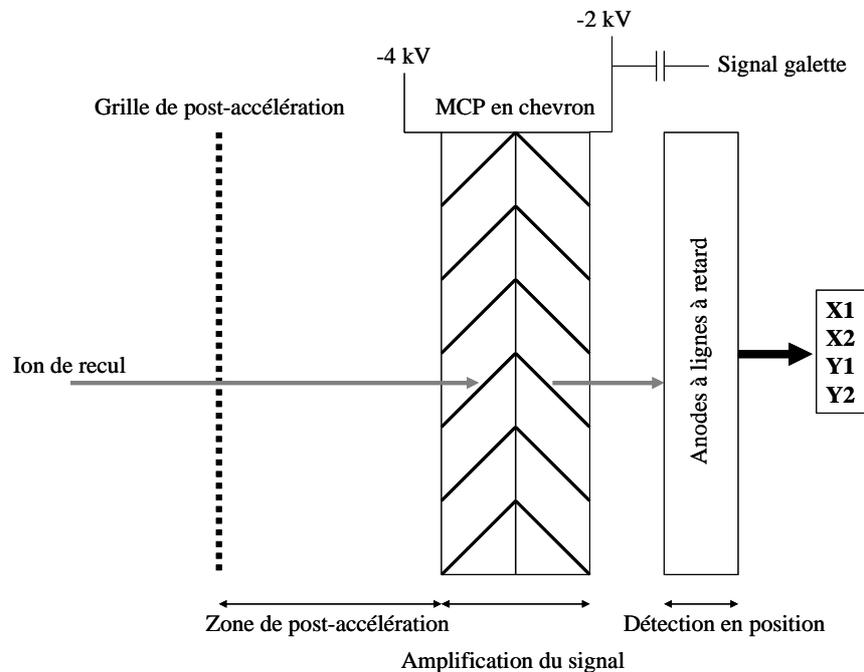


Figure 4-23 : Schéma du détecteur en position des ions de recul.

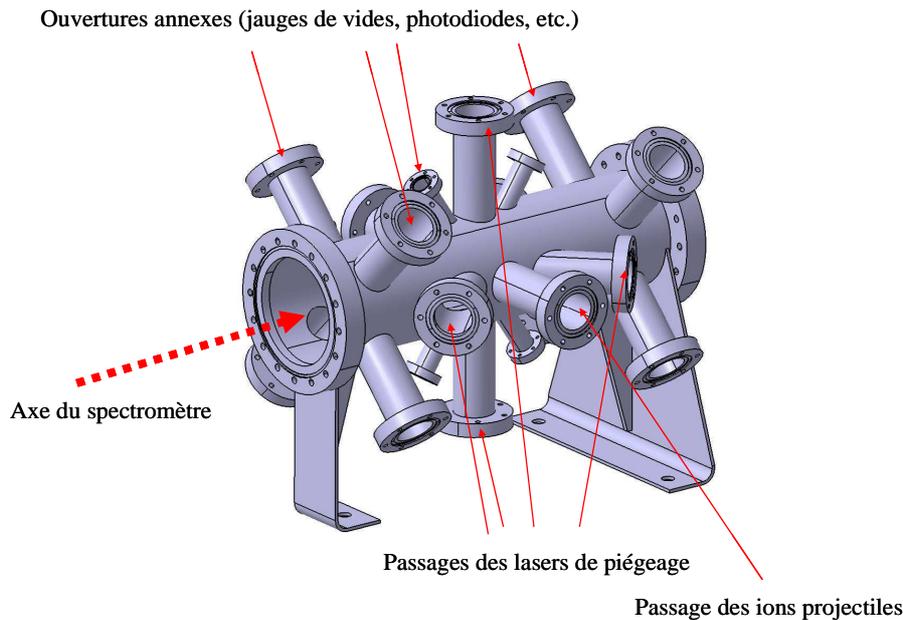
Les ions de recul simplement chargés, de faible énergie cinétique (de l'ordre de quelques dizaines d'eV) fournis par la tension d'extraction, volent à travers la zone de vol libre du spectromètre et atteignent la grille de post-accélération. Celle-ci, définie par une transmission de 85% et un potentiel identique à celui du tube de vol libre (de l'ordre de -30 V), accélère les particules chargées jusqu'à la face avant de la première MCP, polarisée à -4 kV et située à 3 mm. Cette post-accélération assure l'énergie suffisante à une efficacité de détection maximale pour des ions initialement peu énergétiques. Les deux MCP, avec des diamètres actifs de 83 mm chacune, amplifient le signal généré par l'ion incident heurtant les micro canaux avec un gain de  $10^7$ . La gerbe d'électrons secondaires est ensuite collectée sur les anodes à lignes à retard. Les signaux issus des extrémités de ces dernières sont envoyés vers le système d'acquisition. Liénard *et al.* [Liénard 2005] détaillent les caractéristiques de ce détecteur sensible à la position, dont l'efficacité est de 52.3%, la résolution spatiale de 110  $\mu\text{m}$  pour une largeur à mi-hauteur, et une résolution temporelle inférieure à 200 ps.

## 4.5.2 Le spectromètre d'impulsion d'ions de recul

### 4.5.2.1 Constitution mécanique du spectromètre d'impulsion d'ions de recul

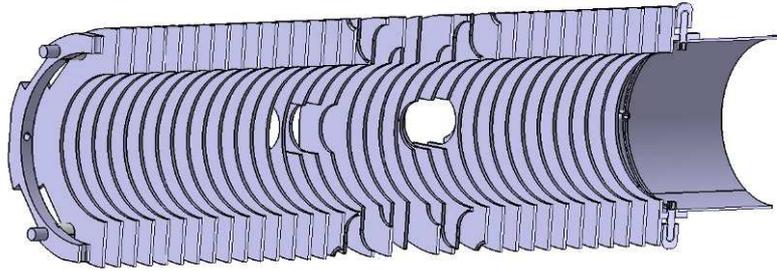
Pierre angulaire de cette expérience de physique atomique, le spectromètre d'impulsion d'ions de recul mérite que l'on s'attarde sur sa constitution mécanique, dont la fabrication requiert une grande précision ainsi que de bons états de surface.

Une chambre en acier inoxydable et amagnétique 304L de diamètre intérieur 100 mm constitue son environnement immédiat. Selon l'axe du spectromètre, une large ouverture autorise l'extraction des ions de recul vers la zone de vol libre puis le détecteur tandis qu'à l'opposé une autre ouverture permet l'observation du nuage d'atomes froids à l'aide d'une caméra CCD au travers d'un hublot. Selon l'axe perpendiculaire au spectromètre, deux ouvertures de 40 mm de diamètre autorisent le passage des ions projectiles. Six autres ouvertures de 40 mm de diamètre perpendiculaires deux à deux permettent le passage des faisceaux laser. Enfin, douze passages supplémentaires sont utilisés pour la jauge primaire et la jauge secondaire, le passage des câbles de polarisation du spectromètre, l'injection de rubidium, et l'ajout d'outils de diagnostic du nuage (photodiodes, caméras, lasers sonde, etc.). La figure 4-24 présente l'aspect extérieur de l'enceinte mécanique du spectromètre.



**Figure 4-24 : Représentation tridimensionnelle de l'enceinte mécanique du spectromètre.**

Le spectromètre est constitué de 36 électrodes en acier inoxydable 316LN. Chaque électrode annulaire possède un diamètre intérieur de 60 mm, un diamètre extérieur de 97 mm et une épaisseur de 1,5 mm. Les centres de deux électrodes voisines sont distants de 8.5 mm. Parmi les 36 électrodes, 14 électrodes centrales présentent des détails mécaniques indispensables au passage des lasers. La dernière électrode (la plus proche du détecteur des ions de recul) s'emboîte dans un cylindre de diamètre intérieur 68 mm et de diamètre extérieur 70 mm qui constitue le début de la zone de vol libre. Un pont de 35 résistances de 100 k $\Omega$  chacune relie les électrodes qui génèrent le champ électrique d'extraction. La figure 4-25 présente une coupe longitudinale du spectromètre d'ions de recul dont la longueur est de 357.5 mm.



**Figure 4-25 : Coupe longitudinale du spectromètre comportant 36 électrodes, ainsi que de nombreux détails mécaniques indispensables au passage des lasers.**

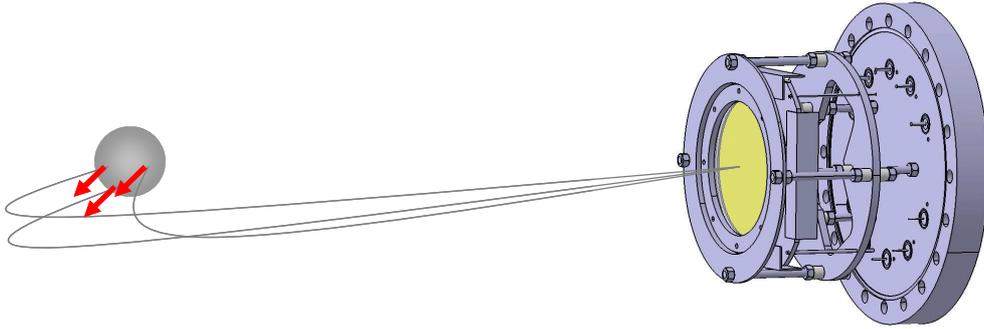
La zone de collision se situe entre la 20<sup>e</sup> et la 21<sup>e</sup> électrode (depuis la gauche de la figure 4-25). La distance entre cette zone et le détecteur des ions de recul est de 853.5 mm. La première électrode est polarisée positivement tandis que la 36<sup>e</sup> électrode et son tube adjacent sont polarisés négativement. Le troisième point de polarisation se situe sur la 22<sup>e</sup> électrode et permet d'ajuster l'effet de lentille électrostatique recherché pour la focalisation spatiale et temporelle. Ces trois tensions sont également choisies de sorte à imposer un potentiel électrostatique nul au niveau de la zone de collision.

#### 4.5.2.2 Champ d'extraction inhomogène

Comme il a été vu au paragraphe 3.1.3.3, afin de s'affranchir de la taille de la zone de collision et ainsi mieux résoudre la mesure sur l'impulsion de l'ion de recul, la technique existante consiste à appliquer un champ d'extraction inhomogène. Une lentille électrostatique est ainsi créée au sein du spectromètre, ce qui permet une focalisation spatiale et temporelle des trajectoires des ions de recul.

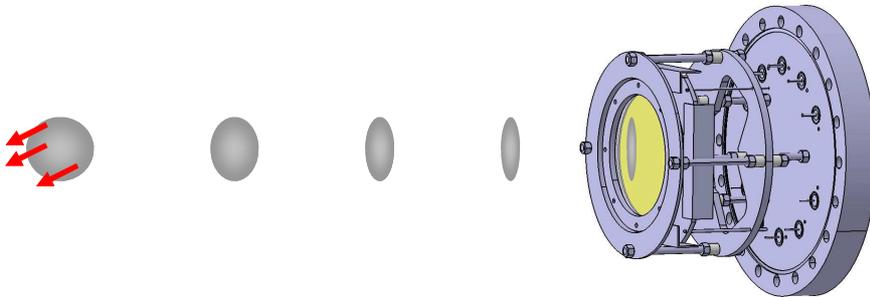
La lentille électrostatique peut être composée d'un champ électrostatique faible suivi d'un champ électrostatique fort, ou d'un double gradient de champ constitué de l'alternance champ faible - champ fort - champ faible. Cette dernière configuration, déjà étudiée [Flécharde 1999], a obtenu de probants résultats mais sa réalisation expérimentale est plus complexe qu'une simple alternance champ faible - champ fort [Turkstra 2001a].

Quel que soit le type de lentille, deux plans focaux caractérisent l'extraction des ions de recul. Le plan de focalisation spatiale précédemment cité définit un plan théorique dans lequel se croisent les trajectoires d'ions de recul issus de positions initiales différentes, mais de même vecteur impulsion. Il en résulte que la mesure de l'impulsion de l'ion de recul n'est pas altérée par la dimension de la zone de collision. Par ailleurs, la position d'un tel plan de focalisation spatiale ne dépend ni de la masse des ions de recul  $m_R$ , ni de leur charge  $re$ , ni de la norme du champ d'extraction  $E$ , mais de la géométrie de la lentille et de l'emplacement de la zone de collision par rapport au gradient électrostatique. La figure 4-26 représente schématiquement la focalisation spatiale d'ions de recul sur un détecteur en position. Des particules ayant le même vecteur impulsion se croisent en un même point. L'enjeu est de placer le détecteur en position au niveau du plan de focalisation spatiale.



**Figure 4-26 : Représentation schématique de la focalisation spatiale d'ions de recul sur un détecteur sensible à la position.**

S'il est suivi d'une zone de vol libre, un spectromètre au champ d'extraction inhomogène possède aussi un plan de focalisation temporelle. Des ions partant de positions initiales différentes dans la zone de collision mais de même vecteur impulsion arrivent sur ce plan avec le même temps de vol. Un ion produit à une distance  $\Delta z$  du centre idéal de la zone de collision, et donc pourvu d'une énergie potentielle supplémentaire dans le champ d'extraction, arrivera sur le détecteur au même instant qu'un ion de recul avec une position de départ en  $z=0$ . La figure 4-27 représente schématiquement la focalisation temporelle d'ions de recul extraits vers un détecteur. La boule grise à l'extrême gauche de la figure symbolise la zone de collision à l'instant initial, boule qui va s'aplanir au cours de l'extraction, pour finalement devenir un disque dans le plan de détection. Des ions de même vecteur impulsion extraits au même instant arrivent donc simultanément sur le détecteur.



**Figure 4-27 : Représentation schématique de la focalisation temporelle d'ions de recul sur un détecteur sensible à la position. Les ions ont tous la même impulsion initiale.**

L'enjeu du physicien expérimentateur est de faire en sorte que ces deux plans focaux se superposent. Dans cette configuration, la condition de focalisation en temps au premier ordre des ions de recul est différente de celle donnée par Wiley et MacLaren pour un champ d'extraction homogène.

#### 4.5.2.3 Simulations du spectromètre

Le spectromètre détaillé au paragraphe 4.5.2.1 possède les propriétés de focalisation précédemment évoquées. Afin de définir la géométrie de ce spectromètre, un travail de simulation de l'extraction des ions a tout d'abord dû être effectué. La lentille électrostatique

choisie pour la partie expérimentale est du type champ faible - champ fort. Le champ d'extraction est créé par une succession d'électrodes annulaires. Une première série d'électrodes génère un champ électrostatique caractérisé par une différence de potentiel  $U_f$  entre chaque couple d'électrodes. Une seconde série d'électrodes qui lui fait suite génère un champ électrostatique caractérisé par une différence de potentiel  $U_F$  entre chaque couple d'électrodes, avec  $U_F > U_f$ . Le contrôle de  $U_F$  et  $U_f$  se fait via l'application de trois potentiels ( $V_{ar}$ ,  $V_{foc}$ ,  $V_{av}$ ) appliqués sur l'électrode de focalisation et aux extrémités du spectromètre. La figure 4-28 représente cet agencement. Les électrodes, symbolisées par des anneaux gris, sont polarisées et permettent la création de deux champs électrostatiques.

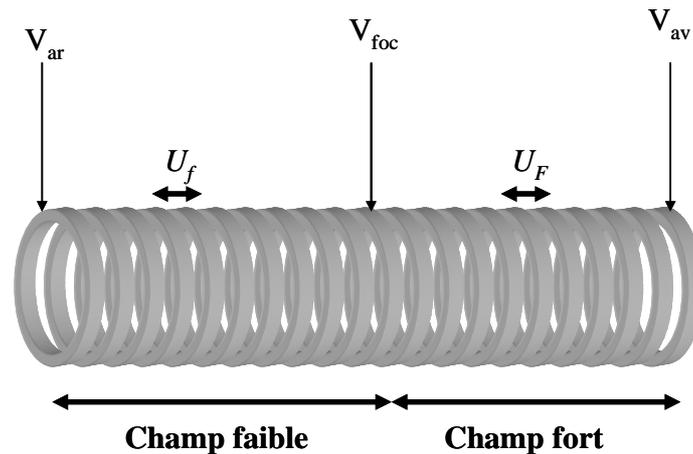


Figure 4-28 : Schéma d'une lentille électrostatique de type champ faible - champ fort.

#### 4.5.2.3.1 Configuration initiale des ions

La simulation consistant à prédire le comportement des ions de recul dans l'environnement du spectromètre d'impulsions d'ions de recul, de la zone de collision jusqu'au détecteur, la définition initiale de ces ions de recul doit être la plus réaliste possible. Un raisonnement *a priori* conclut que le nuage de cibles froides fixe les frontières de la zone de collision. En effet, les faisceaux d'ions projectiles géométriquement élaborés ont souvent un diamètre transverse de quelques millimètres, tandis que le diamètre d'un nuage d'atomes froids est ici de l'ordre du demi millimètre. La distribution spatiale des atomes froids contraint alors la distribution spatiale initiale des ions de recul. Connaissant le profil spatial d'atomes froids confinés, on en déduit le profil spatial initial des ions de recul. Ainsi, la distribution spatiale des ions de recul créés juste après la collision est obtenue par un tirage aléatoire de profil gaussien dans les trois dimensions de l'espace. La largeur de ces gaussiennes, de 0.2 mm, est fixée par le résultat des mesures de taille du nuage (cf. paragraphe 4.2.4.2). La figure 4-29 donne une représentation des positions initiales des ions de recul. Cette distribution est ajustée sur le centre théorique de la zone de collision.

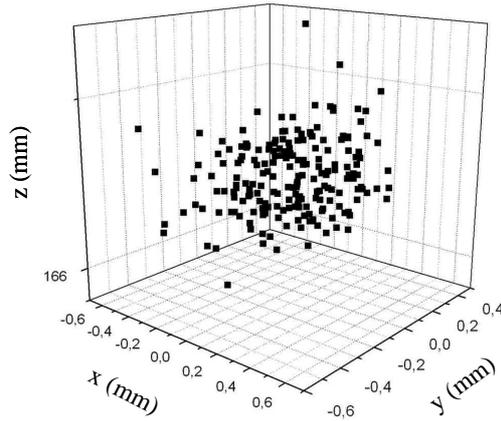


Figure 4-29 : Distribution spatiale initiale des ions de recul.

Pour la capture électronique, le  $Q$  de réaction et l'angle de déflexion du projectile  $\theta$  conditionnent respectivement les composantes longitudinale et transverse de l'impulsion de l'ion de recul, en termes d'orientation et de norme. De plus, la conservation de l'impulsion des éléments d'un système impose des impulsions coplanaires, avant et après la collision. Cependant, de part la symétrie cylindrique du système de collision autour de l'axe du faisceau, la distribution des impulsions des projectiles diffusés forme un cône d'angle  $\theta$  comme le montre la figure 4-30. La distribution angulaire initiale des ions de recul doit donc elle aussi former un cône autour de l'axe longitudinal des projectiles conditionné par les paramètres de la collision.

Pour des raisons de reproductibilité expérimentale, le système étudié est une collision entre un projectile ionique  $\text{Na}^+$  dans le régime du keV et une cible atomique froide de rubidium. Ce système préalablement étudié [Nguyen 2003] constitue une première étape pour éprouver l'ensemble de ce nouveau dispositif expérimental.

Les simulations étudiées mettent en jeu des ions de recul  $^{87}\text{Rb}^+$  produits par transfert électronique lors de collisions  $\text{Na}^+ + \text{Rb}$ , pour une énergie de projectiles de 10 keV et une tension d'extraction de 100 V. Il a été considéré trois  $Q$  de réaction de 0 eV, 1 eV et 2 eV, et des angles de déflexion du projectile de 250  $\mu\text{rad}$ , 500  $\mu\text{rad}$  et 1 mrad, qui correspondent à des grandeurs caractéristiques du système.

Les composantes longitudinale et transverse des impulsions des ions de recul sont déduites de :

$$P_{R//}^f = - \left( \frac{Q}{v_p} + \frac{v_p}{2} \right) \quad (4-15)$$

$$P_{R\perp}^f = - \frac{m_p v_p}{\theta} \quad (4-16)$$

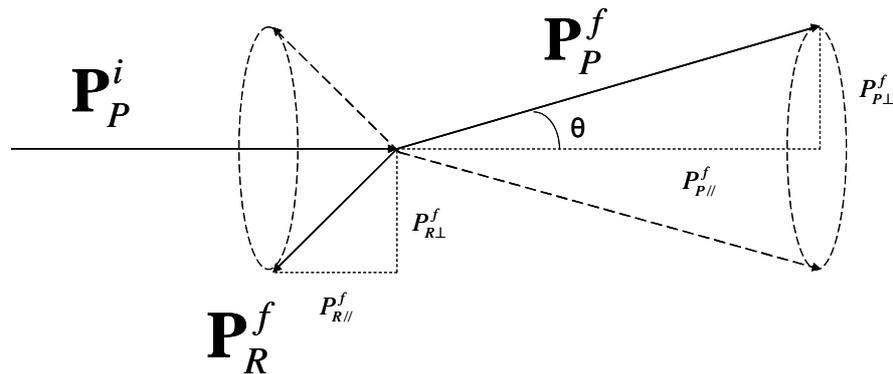


Figure 4-30 : Impulsions coplanaires des particules de la collision dont les distributions vectorielles se présentent sous forme de cônes.

#### 4.5.2.3.2 Méthode de simulation

La lentille électrostatique est caractérisée par plusieurs paramètres libres parmi lesquels on trouve le nombre total d'électrodes du spectromètre, l'emplacement de la transition champ faible – champ fort, le rapport  $\frac{U_F}{U_f}$ , et la distance  $z$  entre les plans de focalisation et la zone de collision. Les dimensions de chaque électrode, fixées par la construction mécanique, constituent les seuls paramètres invariants de la lentille électrostatique employés lors de la méthode de simulation.

Les simulations de la lentille électrostatique ont été réalisées à l'aide du logiciel SIMION [Simion] et se sont déroulées suivant plusieurs étapes progressives.

La première étape du travail de simulation est de défricher les comportements d'un spectromètre d'ions de recul capable de répondre à d'exigeantes conditions de focalisation tout en respectant les contraintes imposées par un cahier des charges peu malléable. Les dimensions de la chambre, tout d'abord, limitent la constitution mécanique des électrodes du spectromètre. La distance approximative entre la zone de collision et le détecteur ne doit pas excéder 1.2 m à cause de la taille de la salle expérimentale. De même, le temps de vol approximatif de l'ensemble des ions de recul pour parcourir cette distance doit être au maximum de l'ordre de la centaine de  $\mu\text{s}$  pour rester compatible avec le système d'acquisition des données.

Dans cette première étape, la simulation des trajectoires d'ions de recul est réalisée à l'aide d'un spectromètre ne présentant pas tous les détails mécaniques de la construction. Il s'agit d'un spectromètre uniquement constitué d'électrodes parfaitement annulaires, ignorant les trous nécessaires au passage de lasers. Ce spectromètre annelé et polarisé est entouré d'un tube à la masse se substituant à la chambre expérimentale, elle-même à la masse. La première idée est de polariser positivement l'une des deux extrémités du spectromètre, capable de repousser les ions de recul vers le détecteur. Conjointement à cela, l'autre extrémité du spectromètre est connectée à la masse, contraignant le potentiel situé à la transition champ faible – champ fort à être positif. Une étude systématique des paramètres libres du spectromètre ( $\frac{U_F}{U_f}$  et la position de  $V_{\text{foc}}$ ) conduit alors aux conditions optimales de fonctionnement du spectromètre, i. e. à la meilleure focalisation dans le plan du détecteur.

Une tension d'extraction de 100 V environ implique un temps de vol des ions de recul de 100  $\mu$ s.

Les résultats concluants de cette description simpliste du spectromètre débouchent ensuite sur la deuxième étape du travail de simulation.

Tous les détails mécaniques du spectromètre sont alors intégrés pour une analyse comportementale plus complète et plus aboutie. La description de la première étape est reprise puis complétée avec les détails mécaniques. Les résultats sur la focalisation des ions de recul au niveau du détecteur se révèlent alors être catastrophiques. Les trous mécaniques incorporés dans les électrodes causent une dégradation inattendue de la focalisation, même en faisant varier les paramètres libres du spectromètre. En effet, alors que la zone de collision mesure 0.5 mm, la taille minimale obtenue de son image sur le détecteur atteint seulement 0.4 mm, dégradant ainsi considérablement la résolution sur la mesure de l'impulsion. Afin de parer à ce problème, une disposition plus astucieuse des potentiels appliqués aux électrodes a permis de répondre à ces exigences. En effet, les détails mécaniques du spectromètre polarisé au niveau de la zone de collision créent des ouvertures que les lignes de champ électrostatique traversent depuis l'enceinte à la masse. Ces lignes de champ perturbent fortement les trajectoires des ions de recul depuis la zone de collision. Pour éviter cette dégradation des propriétés de focalisation, il faut ajuster les potentiels de sorte que la zone de collision soit à la masse. La trajectoire des ions de recul s'en trouve moins perturbée et d'excellentes conditions de focalisation peuvent être trouvées. Ce nouvel agencement nécessite la mise en place d'un tube au potentiel de la dernière électrode, joignant cette dernière à la face avant du détecteur, afin de garder une région de vol libre des ions de recul dans un potentiel électrostatique constant.

La géométrie du spectromètre conservée comporte 36 électrodes, soit 35 intervalles créant des différences de potentiel, parmi lesquels 21 créent le champ faible suivis de 14 intervalles créant le champ fort. La région de potentiel nul se situe entre les 20<sup>e</sup> et 21<sup>e</sup> électrodes, c'est-à-dire juste avant la frontière entre le champ faible et le champ fort, située au niveau de la 22<sup>e</sup> électrode. On rappelle que la distance entre la première électrode et la zone de collision est de 166.5 mm, tandis que la distance entre cette zone et le plan de détection des ions de recul est de 853.5 mm.

#### 4.5.2.3.3 Résultats de simulation

L'application d'un champ d'extraction inhomogène invalide la relation  $z_{vl} \approx 2z_{ext}$  pour la condition de focalisation en temps de vol des ions de recul, et impose une longueur de la zone de vol libre supérieure à deux fois celle de la zone d'extraction. Cette longueur dépend fortement du rapport  $\frac{U_F}{U_f}$  et de la position de la lentille, mais contrairement à la position du plan de focalisation spatiale, le plan de focalisation en temps s'éloigne à mesure que le rapport  $\frac{U_F}{U_f}$  augmente. Pour la configuration de spectromètre précédemment détaillée, les simulations révèlent que le plan de focalisation temporelle se superpose au plan de focalisation spatiale à une distance de 853.5 mm depuis la zone de collision, pour un rapport  $\frac{U_F}{U_f} = 1.62$  (figure 4-31).

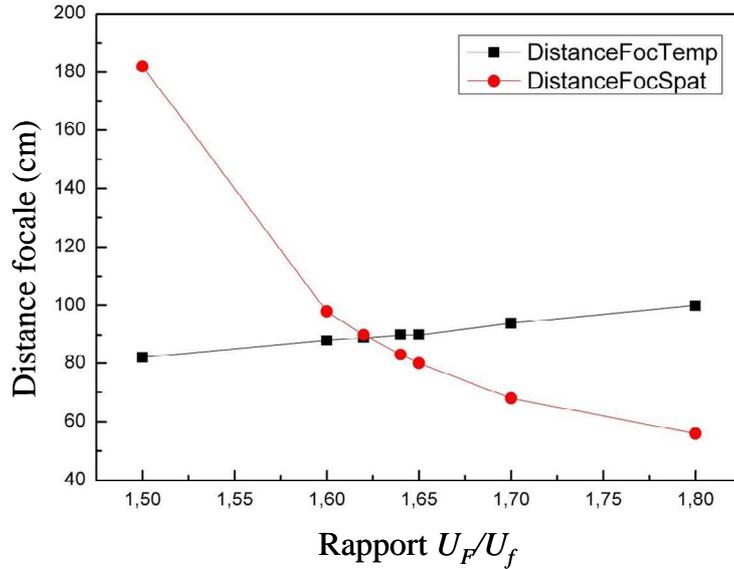


Figure 4-31 : Position des plans de focalisation spatiale (rouge) et de focalisation temporelle (noir) par rapport à la zone de collision en fonction du rapport  $\frac{U_F}{U_f}$ .

La figure 4-32 montre les résultats des simulations dont les conditions initiales ont été présentées au paragraphe 4.5.2.3.1. Le temps de vol et les coordonnées sur le détecteur de chaque ion donnent une représentation caractéristique en couronne.

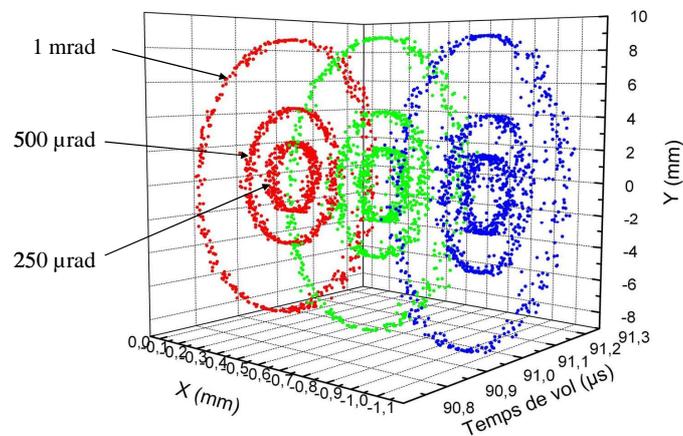


Figure 4-32 : Temps de vol et coordonnées de détection des ions introduits dans la simulation. Les points rouges, verts et bleus représentent les ions  $Rb^+$  produits par les collisions  $Na^+ + Rb$  (à une énergie de projectiles de 10 keV) à des  $Q$  de réaction de 0 eV, 1 eV et 2 eV, respectivement, avec des angles de diffusion de 250  $\mu$ rad, 500  $\mu$ rad et 1 mrad.

Par ailleurs, la figure 4-33 montre la projection des ions de recul sur les coordonnées du détecteur, pour le triplet d'angles de déflexion du projectile. Le spectromètre discrétise clairement les bandes correspondant à chaque  $Q$  de réaction.

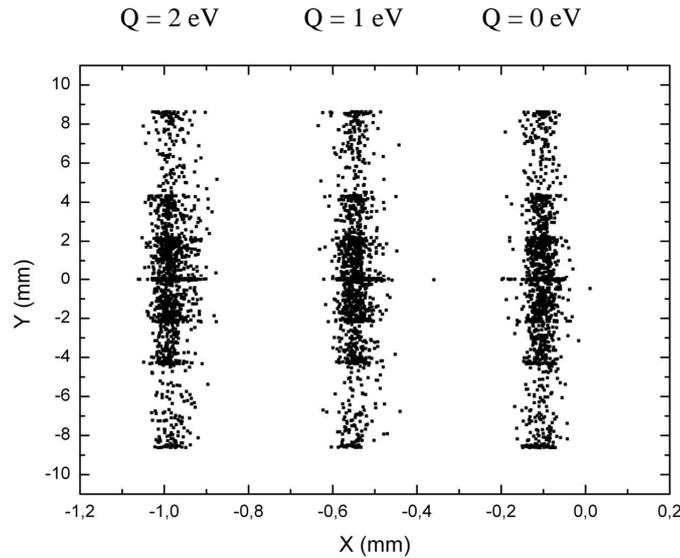


Figure 4-33 : Coordonnées des ions sur le détecteur pour trois  $Q$  de réaction.

Les distributions de la figure 4-33 suivant la coordonnée horizontale montrent pour chaque  $Q$  de réaction un excellent écart type  $\sigma_x$  de l'ordre de  $15 \mu\text{m}$ . Suite à ces simulations, une systématique d'autres simulations, pour des énergies de 2 à 15 keV et la même gamme de  $Q$  de réaction, montre que  $\sigma_x$  diminue avec une énergie de collision croissante et un  $Q$  de réaction, en valeur absolue, décroissant. Pour les gammes citées,  $\sigma_x$  reste compris entre 10 et  $35 \mu\text{m}$ , valeurs inférieures de plusieurs facteurs par rapport à l'écart type de la distribution initiale des ions, qui est de  $200 \mu\text{m}$ .

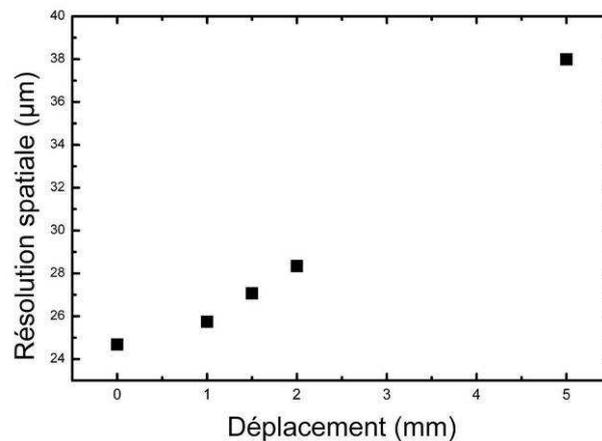


Figure 4-34 : Ecart type des distributions d'ions en fonction du déplacement de la distribution initiale par rapport au centre théorique de la zone de collision. Les résultats sont équivalents quelle que soit la direction de déplacement.

La figure 4-34 montre l'écart type des distributions d'ions sur le détecteur évoluant en fonction du déplacement de la distribution initiale des ions de recul par rapport au centre théorique de la zone de collision. Les ions impliqués sont produits lors de collisions à 2 keV et pour un  $Q$  de réaction de 1 eV. Cette initiative trouve son origine dans le fait que le nuage de cibles atomiques ne se positionne pas forcément au centre attendu de la zone de collision. La figure 4-34 montre clairement que même pour un déplacement de 5 mm, dans n'importe quelle direction, la résolution spatiale reste inférieure à  $40 \mu\text{m}$ .

#### 4.5.2.3.4 Conclusions relatives aux simulations

Ces simulations prouvent que le spectromètre réduit l'effet de la taille de la zone de collision sur la mesure de l'impulsion des ions de recul, pour une grande gamme en  $Q$  et en  $\theta$  et des déplacements de la distribution initiale. Typiquement, l'effet de taille est réduit d'un facteur 5 à 10.

De plus, la résolution obtenue sur la mesure des composantes de l'impulsion atteint 0.03 a.u. Par ailleurs, pour une tension d'extraction typique comprise entre 80 V et 100 V, les temps de vol des ions de recul sont de l'ordre de 100  $\mu$ s, et l'efficacité de collection atteint  $4\pi$  pour des impulsions d'ions de recul allant jusqu'à 17 u.a., ce qui signifie que dans le cas des systèmes étudiés tous les ions de recul sont détectés, même pour les plus grands angles de déflexion du projectile.

Ainsi, la résolution spatiale sur la mesure de l'impulsion des ions de recul ne sera limitée, lors des expériences, que par le détecteur sensible à la position.

## 4.6 Système d'acquisition de données

La figure 4-35 schématise le système d'acquisition de données employé pour reconstruire et interpréter les collisions. Il comprend principalement un châssis VME et un châssis CAMAC, pour la numérisation des données, sur lesquels se greffent les modules d'acquisition. Deux autres châssis NIM alimentent les modules connexes. La suite du paragraphe détaille le fonctionnement du système d'acquisition.

Un signal issu du détecteur d'ions de recul génère le déclenchement d'un événement. Pour ce détecteur, la charge dans les MCP (Gal IR) et les quatre *différences de temps* (X1, X2, Y1, Y2 IR), entre le signal des MCP et les sorties des lignes à retard, deux pour chaque coordonnée spatiale, sont converties et enregistrées. Le TDC (TDC 812F IR) utilisé pour la conversion des différences de temps, et enclenché par le signal Gal IR, possède une résolution de 45 ps. Seule la sensibilité des discriminateurs à fraction constante, qui possèdent une résolution sur la prise de temps, limite la résolution spatiale du détecteur. Par ailleurs, un TDC (TDC V767) de 800 ps de résolution permet la reconstruction de la position des projectiles sur leur détecteur en convertissant les quatre différences de temps (Y1, Y2, Y1, Y2 PJ).

Le signal Gal IR est utilisé à d'autres fins. Ce signal sert à coder, avec un QDC (QDC IR), la charge reçue sur le détecteur des ions de recul. Ce QDC déclenche la lecture de l'ensemble des codeurs utilisés. Le signal Gal IR, envoyé comme stop au TDC V767, sert aussi à la mesure du temps de vol des ions de recul. En effet, le signal détecté dans les MCP du détecteur des projectiles (Gal PJ) définit le start du TDC V767, i.e. le signal de début du temps de vol de l'ion de recul détecté. La différence de temps entre les signaux Gal IR et Gal PJ donne le temps de vol.



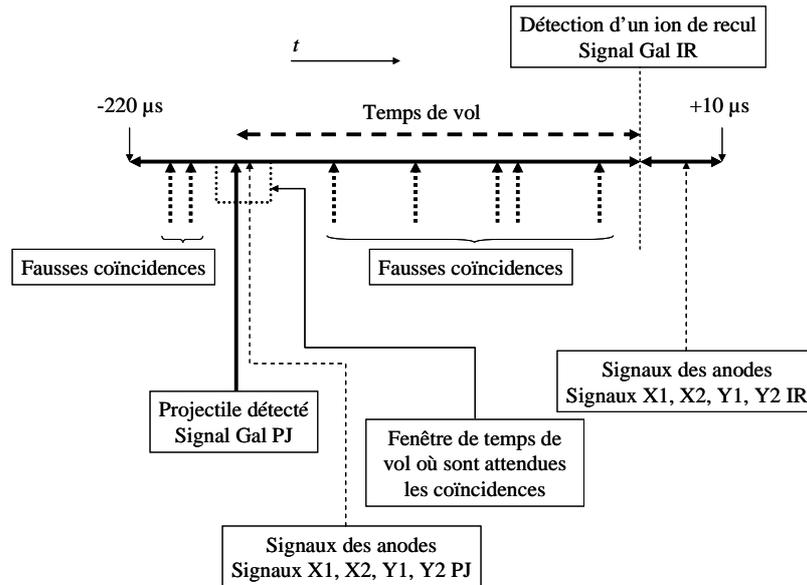


Figure 4-36 : Schéma de la succession des signaux détectés et traités par le système d'acquisition.

Une horloge à 80 Hz sert aussi à déclencher des événements et à vérifier le bon fonctionnement du système d'acquisition. Le module des échelles sert à visualiser le nombre de coups reçus sur les gallettes et les anodes de chaque détecteur.

Par ailleurs, un ADC (ADC 812F) sert à donner l'état du champ magnétique au moment de la collision. Les événements pour lesquels le champ magnétique affecte les trajectoires des ions de recul peuvent être facilement rejetés. Pour ce faire, la figure 4-37 montre l'évolution de l'état logique de l'ADC 812F. Un signal logique, issu de l'électronique de contrôle du champ magnétique, définit l'état du champ magnétique. Un signal synchronisé sur ce signal logique est envoyé à l'ADC 812F. Comme le temps de vol des ions de recul n'est pas négligeable, le signal envoyé à l'ADC 812F doit être retardé d'un temps équivalent au temps de vol des ions de recul, afin de ne comptabiliser que les trajectoires ioniques non affectées par le champ magnétique. Ainsi, l'état logique 1 envoyé à l'ADC ne correspond qu'à des ions de recul détectés et non perturbés par le champ magnétique. Il définit alors la fenêtre d'acquisition.

L'ADC enregistre ensuite l'état logique reçu. Tous les signaux Gal IR des ions de recul détectés arrivent en parallèle jusqu'à l'ADC. A chaque signal Gal IR correspond donc une amplitude de l'ADC. Il devient ainsi aisé, à l'aide du système d'acquisition informatisé, de ne sélectionner que les signaux Gal IR correspondant à des ions de recul libres de tout effet magnétique.

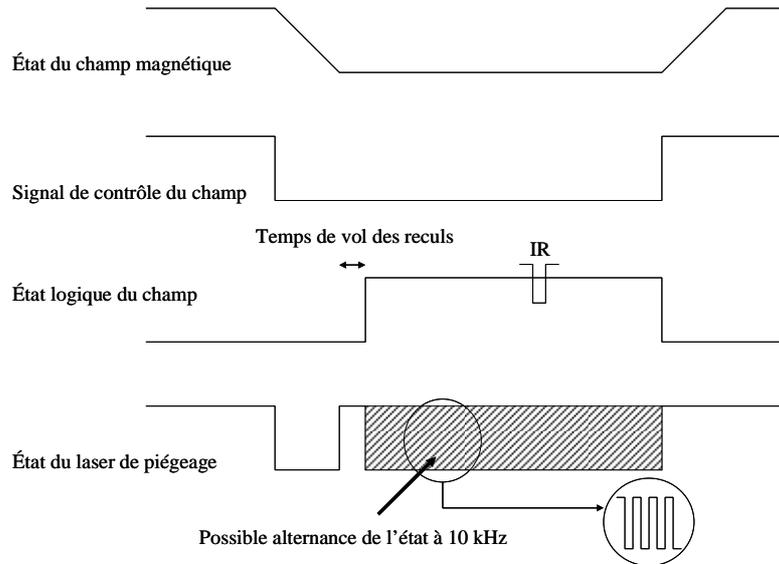


Figure 4-37 : Etats logiques de différents signaux du système d'acquisition.

Enfin, à cause de l'absorption des photons provenant des lasers de piégeage et de repompage, les cibles atomiques constituent un mélange de deux états quantiques, l'état fondamental et un état excité. L'utilisation de l'AOM<sub>switch</sub> permet d'éteindre les lasers et de fournir des cibles atomiques uniquement dans l'état fondamental. Pour ce faire, à l'intérieur de la fenêtre où l'état logique du champ magnétique vaut 1, une séquence alterne 50  $\mu$ s d'allumage des lasers et 50  $\mu$ s d'extinction des lasers comme le montre la figure 4-37. Ainsi, lors de cette alternance sans champ magnétique, l'expérimentateur crée des cibles dans l'état fondamental la moitié du temps, et des cibles mixtes l'autre moitié du temps. Le signal logique de cette alternance de l'état des lasers, synchronisé avec le signal envoyé à l'ADC, est envoyé au TDC V767 pour enregistrer le temps de chaque évènement lors de ce cycle et en déduire l'état des lasers au moment de la collision.

#### 4.6.1 Reconstruction de l'impulsion de l'ion de recul

La détermination des coordonnées sur le détecteur et du temps de vol de l'ion de recul aboutit à la reconstruction du vecteur de l'impulsion de l'ion de recul. L'axe longitudinal le long duquel arrivent les projectiles définit la coordonnée  $X$ . L'axe vertical définit la coordonnée  $Y$ . Enfin, l'axe du spectromètre définit la coordonnée  $Z$ . Les expressions suivantes décrivent cette reconstruction vectorielle :

$$P_{R//}^f = a_{//}(X - X_0) \quad (4-17)$$

$$P_{R\perp,y}^f = a_{//}(Y - Y_0) \quad (4-18)$$

$$P_{R\perp,z}^f = a_{tof}(T - T_0) \quad (4-19)$$

où  $a_{//}$  et  $a_{tof}$  sont des constantes,  $X_0$  et  $Y_0$  sont définis comme le centre du détecteur des ions de recul,  $X$  et  $Y$  sont les coordonnées spatiales de l'ion de recul sur le détecteur, et  $T$  et

$T_0$  sont respectivement le temps de vol et le centre de la distribution en temps de vol de l'ion de recul.

En pratique, l'observation du spectre de  $Q$  de réaction sur le détecteur des ions de recul aide à la détermination du coefficient  $a_{//}$ . La connaissance préalable du spectre de  $Q$  de réaction permet d'identifier les principales raies et d'exprimer le  $Q$  de réaction  $Q(X)$  en fonction de la coordonnée  $X$  du détecteur. Or cette fonction et l'impulsion longitudinale  $P_{R//}^f$  sont liées par :

$$P_{R//}^f(X) = -\frac{Q(X)}{v_p} - \frac{v_p}{2} \quad (4-20)$$

La déduction expérimentale de  $Q(X)$  et la connaissance de la vitesse du projectile  $v_p$  aboutit ainsi à la connaissance de  $P_{R//}^f(X)$  et de  $a_{//}$ .

Par ailleurs, comme le système est de symétrie cylindrique, une autre observation expérimentale permet la détermination du coefficient  $a_{tof}$ . Le spectre bidimensionnel de la coordonnée  $Y$  du détecteur en fonction du temps de vol lie, en effet, les variables  $T$  et  $Y$ , pour chaque raie du spectre de  $Q$  de réaction. La projection de ce spectre sur chaque axe donne les largeurs  $\Delta T$  et  $\Delta Y$ . De part la symétrie du système, il vient :

$$a_{//}\Delta Y = a_{tof}\Delta T \quad (4-21)$$

En pratique, le canal  $\text{Rb}(5p) \rightarrow \text{Na}(3p)$  sert à obtenir les largeurs  $\Delta T$  et  $\Delta Y$ .



# 5 Résultats expérimentaux

## 5.1 Introduction

Le système physique étudié dans ce travail, et relaté dans ce manuscrit, est le système  $\text{Na}^+ + {}^{87}\text{Rb}(5S_{1/2}, 5P_{3/2})$  à des énergies de collisions de 2 keV et 5 keV. Aux énergies étudiées, le mécanisme de transfert de charge est la réaction qui domine. Les canaux quantiques empruntés par l'électron transféré se résument par la notation  $\text{Na}^+ + \text{Rb}(5s, 5p) \rightarrow \text{Na}(n'l') + \text{Rb}^+$ . Le canal d'entrée se décompose en deux états car les lasers piègent des cibles atomiques dans un état fondamental et un état excité. Par ailleurs, l'impulsion transférée à l'ion de recul  $\text{Rb}^+$  détient toute l'information de la collision.

Le choix de l'étude de la collision  $\text{Na}^+ + \text{Rb}(5l)$  se justifie après observation du diagramme des niveaux d'énergie, comme le présente la figure 5-1. Les écarts énergétiques impliqués lors de l'échange de charge, depuis le niveau fondamental du rubidium et son premier état excité vers les différents états du sodium, sont effectivement pour la plupart bien séparés. Cette séparation facilite ainsi la tâche expérimentale et la mesure de chaque raie individuelle, relative à un canal de transfert électronique, sans recourir *a priori* à des techniques de convolution inverse. Elle donne aussi un avantage déterminant lors de la mesure de la fraction excitée par la distinction claire entre les raies issues du niveau fondamental et celles du niveau excité. Les mesures de sections efficaces relatives profitent aussi de ce point. Par ailleurs, ce système de collision présente l'avantage d'avoir fait l'objet d'une étude passée [Lee 2002, Nguyen 2003] utilisant aussi la technique MOTRIMS.

Ce chapitre a pour premier objectif de présenter les résultats expérimentaux obtenus, et d'en déduire les performances du dispositif expérimental développé au cours du travail de thèse. Ces résultats sont ensuite comparés aux calculs théoriques de close-coupling et aux expériences antérieures.

La première partie de ce chapitre présente la partie technique d'obtention des résultats. Cette étape préliminaire détaille la méthode analytique et les ajustements qui produisirent les résultats expérimentaux. Un paragraphe sur les performances instrumentales du dispositif vient clore cette partie.

La seconde partie rapporte les résultats et les discussions scientifiques afférentes. Les résultats obtenus sont des mesures de sections efficaces relatives différentielles en  $Q$  de réaction, et des mesures de sections efficaces doublement différentielles, en  $Q$  de réaction et en angle de diffusion du projectile. Dans cette seconde partie, les résultats expérimentaux obtenus avec ce dispositif sont confrontés aux calculs semi – classiques de close-coupling et aux expériences antérieures. Lors de la discussion scientifique, les sources d'erreurs expérimentales et théoriques sont explorées en cas de désaccord.

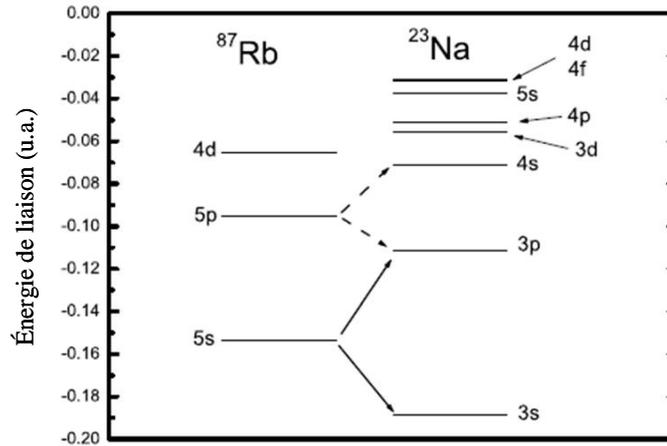


Figure 5-1 : Diagramme partiel des niveaux d'énergie du sodium et du rubidium [Moore 1971]. Les flèches indiquent quelques transitions possibles entre les états initiaux Rb(5*l*) et les états finaux Na(*n'l*).

## 5.2 Méthode d'analyse des résultats

Cette partie constitue une étape essentielle pour la mise en place cohérente, rigoureuse et indéfectible des résultats expérimentaux. L'empirisme tenant sa légitimité du fait expérimental, ce dernier doit être bâti et déduit depuis des bases méthodologiques irréprochables.

Le premier point de cette partie parle des résultats bruts. Le deuxième point parle des premières sélections d'évènements à faire. Enfin, les deux derniers points se penchent sur le problème du champ magnétique et des mesures avec ou sans cibles excitées.

### 5.2.1 Résultats bruts

Avec une intensité typique de faisceau ionique de 200 pA et une densité de cibles atomiques d'environ  $10^{11}$  atomes/cm<sup>3</sup>, les taux de comptage des détecteurs d'ions de recul et de projectiles sont respectivement de l'ordre de 2 kHz et 3 kHz. Lors de l'extinction des lasers, provoquant la perte des cibles atomiques sous forme de nuage dense, ces taux de comptage des détecteurs d'ions de recul et de projectiles baissent respectivement à 75 Hz et 1 kHz.

Les 75 coups/seconde sur le détecteur d'ions de recul proviennent principalement du bruit des MCP, avec des taux de l'ordre de 50 Hz, et de l'ionisation sur le gaz résiduel de la chambre. Les coups parasites sur le détecteur des projectiles sont en grande majorité le fait d'ions projectiles diffusés sur les arêtes des collimateurs.

Pour tenter d'atténuer cette diffusion des ions projectiles sur les arêtes des collimateurs, ces dernières ont été biseautées. Il reste cependant les coups parasites sur le détecteur des projectiles, de l'ordre de 1 kHz. Mais il faut remarquer que ces 1000 coups/seconde représentent une infime partie des ions incidents, dont le courant est de 200 pA. Après calcul, on trouve que le ratio entre le nombre de coups parasites et le nombre d'ions incidents est de  $8 \times 10^{-7}$ .

L'utilisation du détecteur d'ions de recul comme déclencheur du système d'acquisition maintient la part de mauvais évènements déclencheurs à un faible niveau. En régime normal d'acquisition, avec le faisceau ionique croisant le nuage des cibles, le taux de comptage d'évènements coïncidents s'élève à 1 kHz. Parmi ces évènements, seul un quart correspond à

une période d'acquisition sans champ magnétique. Ce qui signifie que les évènements utilisables pour l'analyse ultérieure des données sont acquis à un taux de comptage de l'ordre de 250 Hz.

Pour l'obtention de ces résultats bruts et de ces taux de comptage, le dispositif expérimental opère avec une tension d'extraction à 35 V provoquant un temps de vol moyen des ions de recul de 147  $\mu\text{s}$ . La coïncidence entre les projectiles neutralisés et les ions  $\text{Rb}^+$  se situe dans une fenêtre de temps de vol de largeur inférieure à 5  $\mu\text{s}$  comme le montre la figure 5-2.

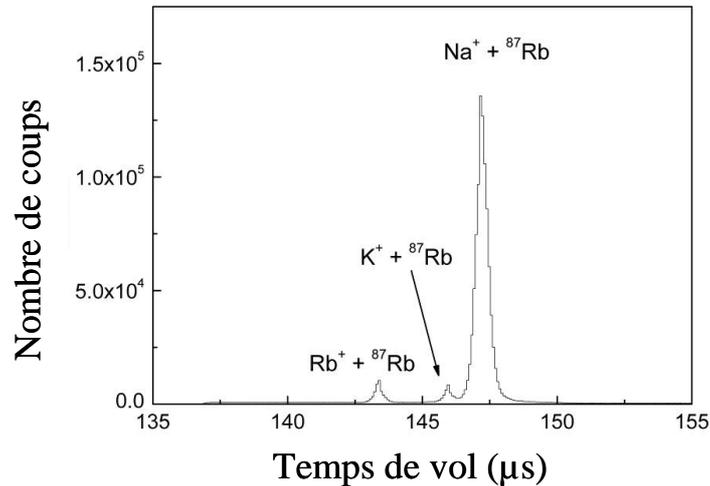


Figure 5-2 : Spectre de temps de vol des ions de recul  $\text{Rb}^+$ .

### 5.2.2 Filtres analytiques

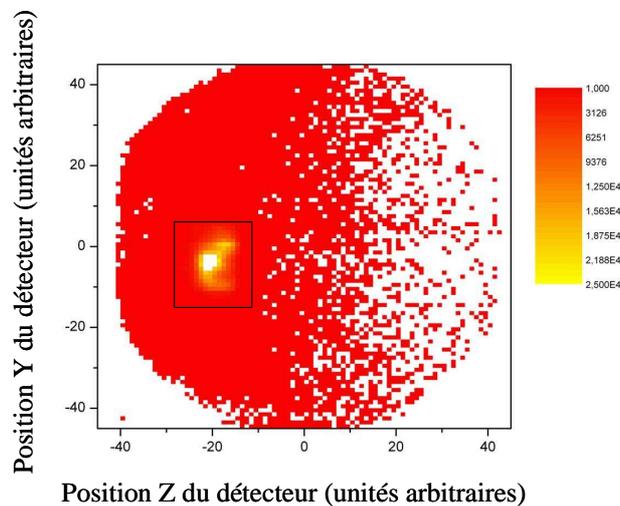


Figure 5-3 : Image du détecteur des projectiles. Le carré noir localise les projectiles neutralisés et montre le filtre en position pour réduire la contribution accidentelle des projectiles diffusés.

Dès l'obtention des résultats bruts, l'utilisation de plusieurs filtres analytiques s'impose pour déterminer les évènements réellement originaires d'une collision entre un ion projectile et une cible atomique. Le premier filtre consiste à isoler les projectiles ioniques, diffusés par les bords des collimateurs, des projectiles neutralisés, en utilisant l'information donnée sur la position des particules sur le détecteur des projectiles. La figure 5-3 montre la reconstruction de la position de toutes les particules heurtant le détecteur DLD40. L'intérieur du carré distingue et localise les projectiles neutralisés. Le reste des évènements correspond aux

projectiles diffusés. La partie droite du détecteur, plus claire et ayant donc compté moins d'évènements, est la partie du détecteur cachée par la cage de Faraday récoltant le faisceau primaire.

Un autre filtre consiste à supprimer une autre source de bruit de fond créée par la présence de polluants dans la source ionique. Les ions projectiles  $\text{Rb}^+$  et  $\text{K}^+$ , produits par la source, interagissent aussi avec les cibles atomiques par un processus d'échange de charge. Le spectre en temps de vol des ions de recul  $\text{Rb}^+$  permet l'identification des reculs créés lors de ces interactions parasites. En ce sens, la figure 5-2 montre clairement la présence de deux pics mineurs. Ce spectre en temps de vol correspond à la différence en temps entre les détections d'un projectile et d'un ion de recul. Les plus basses vitesses des ions projectiles  $\text{Rb}^+$  et  $\text{K}^+$  expliquent la séparation en temps de vol des trois pics associés aux trois systèmes de collisions. Un filtre approprié en temps de vol isole les contributions des systèmes  $\text{K}^+ + {}^{87}\text{Rb}$  et  $\text{Rb}^+ + {}^{87}\text{Rb}$  des données issues du système  $\text{Na}^+ + {}^{87}\text{Rb}$ . En pratique, comme une partie du pic de temps de vol du système  $\text{K}^+ + {}^{87}\text{Rb}$  correspondant aux grands angles de diffusion  $\theta$ , et donc à de grands temps de vol, se confond avec le pic en temps de vol du système  $\text{Na}^+ + {}^{87}\text{Rb}$ , seuls les évènements de ce dernier système avec des temps de vol supérieurs à la moyenne du pic sont conservés. Ce filtre divise par deux le nombre d'évènements disponibles pour l'analyse mais assure l'expérimentateur de l'élimination des polluants.

Pour parer à ce dernier problème réduisant la statistique exploitable, l'installation d'un filtre de Wien est envisagée, à l'avenir, afin de détourner les polluants ioniques. Par ailleurs, une autre solution technique peut aussi être envisagée : allonger de 50 cm la distance entre la zone de collision et le détecteur des projectiles. Cette solution présenterait un double avantage. D'une part, cet allongement provoquerait une meilleure séparation des pics en temps de vol des différentes espèces ioniques, notamment celles des polluants. Le pic en temps de vol des ions  $\text{Na}^+$  ne serait donc plus pollué, et tous les évènements de ce pic seraient disponibles pour l'analyse. D'autre part, cet allongement réduirait le nombre d'ions projectiles diffusés sur le détecteur des projectiles.

Avec ces filtres, les évènements accidentels créés par le bruit de fond représentent moins de 2% des évènements enregistrés.

### 5.2.3 Evènements sans champ magnétique

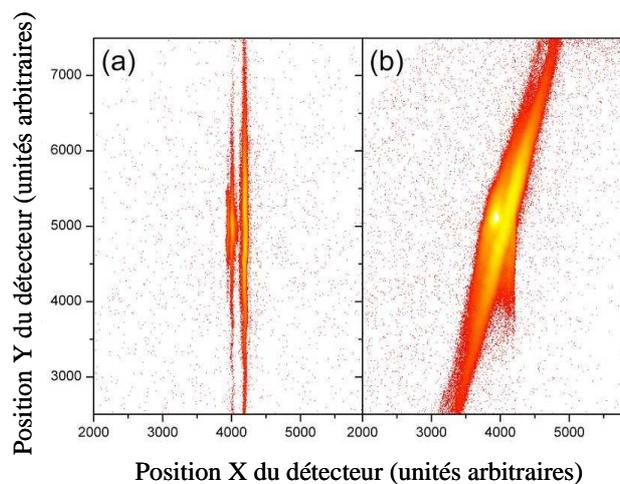


Figure 5-4 : Image du détecteur d'ions de recul sans (a) et avec (b) le champ magnétique du piège magnéto – optique.

La présence du champ magnétique du piège magnéto – optique altère les trajectoires des ions de recul depuis la zone de collision jusqu'au détecteur en position. Grâce à la mise à zéro rapide de ce champ, un quart des événements détectés sur le détecteur des reculs proviennent d'ions de recul non affectés. Le système d'acquisition distingue ce quart du reste des événements grâce au codage par un ADC du signal logique donnant l'état du champ magnétique (cf. paragraphe 4.6).

Les figures 5-4 (a) et 5-4 (b) montrent les images du détecteur d'ions de recul avec et sans champ magnétique. Comme la condition fixée pour isoler la période sans champ magnétique est la plus sévère, de sorte à ne conserver exclusivement que des événements sans champ, quelques événements de l'image du détecteur avec champ proviennent de collisions sans la présence du champ. Quelques-uns sont aussi issus de collisions ayant lieu pendant la décroissance ou la croissance du champ.

Sans champ magnétique, l'axe X du détecteur définit la composante longitudinale de l'impulsion de l'ion de recul tandis que l'axe Y définit l'une des deux composantes transverses. Les bandes verticales correspondent aux valeurs discrètes de la composante longitudinale de l'impulsion de recul, associées à différents canaux de capture électronique. L'identification de ces canaux de capture devient facile en utilisant l'expression du  $Q$  de réaction. L'étalement vertical grandissant des bandes sur le détecteur correspond à une amplitude croissante de l'angle de déflexion du projectile. Le spectromètre, conçu pour une efficacité totale de détection, ramène tous les ions de recul sur le détecteur en position.

Lors de la présence du champ magnétique, la complexité des trajectoires des ions de recul mène à la rotation de l'image et dégrade la résolution sur la mesure de l'impulsion. Ainsi, un dispositif utilisant une extraction transverse a clairement besoin d'un changement d'état périodique du champ magnétique. L'analyse de données qui suit ne contient que des événements issus de collisions sans champ magnétique.

#### 5.2.4 Cibles dans l'état fondamental et dans l'état excité

Le processus physique de refroidissement et de piégeage par des lasers laisse une fraction des atomes de rubidium dans l'état excité  $5p$ . La connaissance de cette fraction relève d'une importance critique : le taux de transfert est proportionnel au produit de la section efficace de capture depuis un état par la population de cet état. Ainsi, l'obtention de la section efficace dépend d'une mesure indépendante de la population, et *lycée de Versailles*.

Si l'expérimentateur veut tirer profit des cibles préparées dans un piège magnéto – optique, et, par exemple, déterminer les sections efficaces relatives en  $Q$  de réaction depuis les différents états, il doit connaître la fraction des cibles occupant les différents états. Généralement, la détermination indépendante des populations des niveaux est difficile et repose sur des mesures dépendant d'un modèle. Aussi les incertitudes sur les sections efficaces tendent-elles à être grandes.

Pour parer à ce problème et connaître de manière indépendante les différentes populations du nuage, il existe une solution expérimentale présentée ci-après. De plus, comme il a déjà été évoqué, le système  $\text{Na}^+ + \text{Rb}(5l)$  possède un spectre en  $Q$  de réaction avec des raies discrètes suffisamment séparées pour distinguer les captures depuis les différents états de la cible.

Durant la période d'acquisition correspondant au champ magnétique nul, l'utilisation de l'AOM<sub>switch</sub> permet d'éteindre et d'allumer à volonté les lasers de piégeage et de repompage à une fréquence de 10 kHz. Le signal de l'AOM<sub>switch</sub>, appelé T-AOM, est envoyé au TDC V767 afin d'obtenir un temps lié à l'état des lasers au moment de la collision. Comme la détection d'un ion de recul déclenche l'acquisition, le signal T-AOM représente le temps entre cette détection et le dernier changement d'état de l'AOM<sub>switch</sub>.

La figure 5-5 représente la distribution des événements en fonction de la position X sur le détecteur des ions de recul et du signal T-AOM. L'axe horizontal positionne les différents  $Q$  de réaction de la collision et le sommet de la figure précise les canaux de capture  $Rb(nl) - Na(n'l)$ . L'axe vertical définit la période du signal T-AOM de  $100 \mu s$  au cours de laquelle les lasers sont éteints pendant  $50 \mu s$ , et allumés pendant  $50 \mu s$ .

Pour les canaux de transfert électronique  $Rb(5p) - Na(3p)$  et  $Rb(5p) - Na(4s)$ , deux séquences apparaissent clairement. Chaque séquence correspond à un état des lasers. Pendant les  $50 \mu s$  d'extinction des lasers, les événements de capture électronique disparaissent pour ces deux canaux.

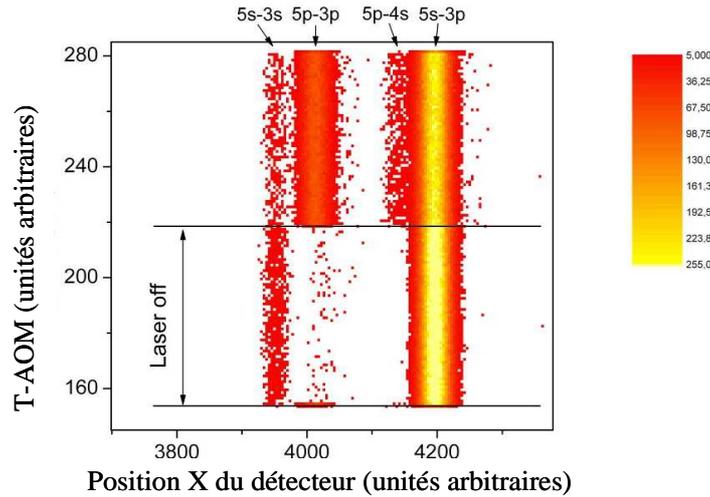


Figure 5-5 : Spectre du signal T-AOM en fonction de la position X des ions de recul sur le détecteur. Les canaux de capture  $Rb(nl) - Na(n'l)$  sont indiqués au sommet de la figure.

Lorsque les lasers sont éteints, l'ensemble des atomes excités retombe dans l'état fondamental en quelques ns. Puis, en l'espace de  $50 \mu s$  sans les forces de piégeage des lasers, le nuage atomique n'a pas le temps de bouger ni de se répandre de manière significative. Les données saisies lors de cette période correspondent donc véritablement à un nuage d'atomes exclusivement dans l'état fondamental.

Enfin, grâce aux deux états bien définis du signal T-AOM, l'ensemble des données analysées se scinde clairement en deux. La partie pendant laquelle les lasers sont éteints ne produit que des résultats à partir de l'état  $Rb(5s)$  lors de la collision. L'autre partie produit des résultats à partir de cibles mixtes dans les états  $5s$  et  $5p$  du rubidium. L'enjeu est de déterminer les contributions de chaque état et la fraction d'atomes dans l'état excité  $5p$ .

Comme Brédy *et al.* [Brédy 2003] le montrèrent, la mesure directe de la fraction excitée  $f$  est donnée par la relation :

$$f = 1 - \frac{A_s^{on}}{A_s^{off}} \quad (5-1)$$

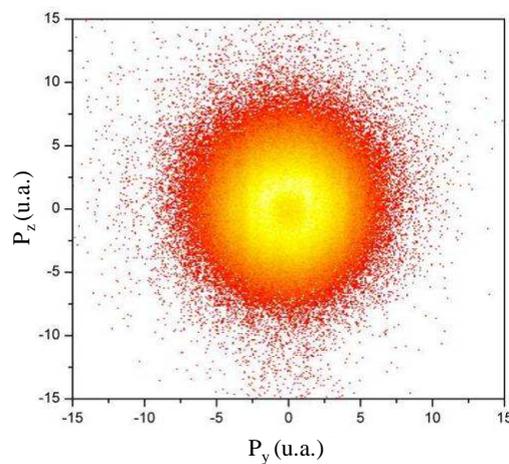
où  $A_s^{on}$  et  $A_s^{off}$  sont les taux de transfert électronique depuis l'état  $Rb(5s)$  vers n'importe quel niveau  $n'l'$  du projectile neutralisé Na avec les lasers allumés et éteints, respectivement. Sur la figure X,  $A_s^{on}$  et  $A_s^{off}$  représentent les aires des bandes verticales dépendant de l'état des lasers. Dans la présente analyse, il est préférable d'utiliser le canal  $Rb(5s) - Na(3s)$  qui est distinctement séparé des autres pics. L'utilisation du canal  $Rb(5s) - Na(3p)$  souffre

effectivement de la légère pollution du canal  $\text{Rb}(5p) - \text{Na}(4s)$  et des canaux peu empruntés  $\text{Rb}(5p) - \text{Na}(5s, 4p, 3d)$ .

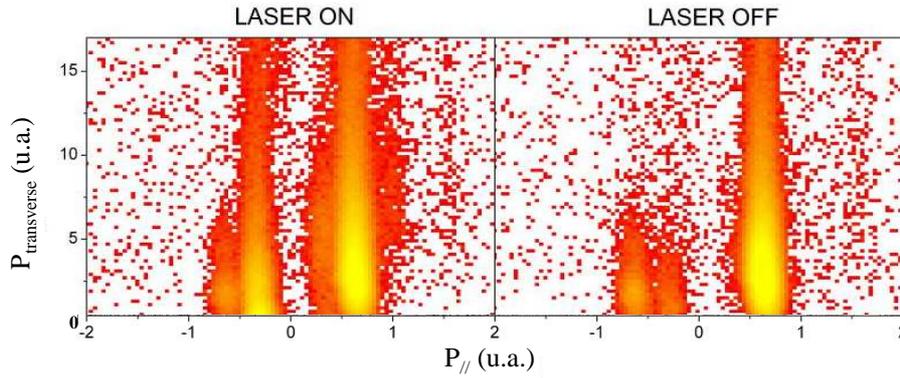
L'expérimentateur peut ensuite utiliser cette mesure indépendante de  $f$  pour extraire les ratios de sections efficaces de capture entre les deux systèmes de collisions  $\text{Rb}(5s) + \text{Na}^+$  et  $\text{Rb}(5p) + \text{Na}^+$ . Il peut aussi extraire les sections efficaces différentielles angulaires pour chaque canal  $\text{Rb}(5l) - \text{Na}(n'l)$ .

### 5.2.5 Détermination de sections efficaces différentielles

Pour chaque événement de capture électronique, les deux composantes transverses  $P_{R\perp,y}^f$  et  $P_{R\perp,z}^f$  et la composante longitudinale  $P_{R\parallel}^f$  du vecteur impulsion des ions de recul peuvent être reconstruites, comme l'explique le paragraphe 4.6.1. L'auteur rappelle ici que la composante  $P_{R\perp,y}^f$  est perpendiculaire à l'axe du faisceau ionique et à l'axe du spectromètre, tandis que l'autre composante transverse  $P_{R\perp,z}^f$  est parallèle à l'axe du spectromètre. La composante longitudinale  $P_{R\parallel}^f$  est parallèle à l'axe du faisceau ionique. Pour une cible non orientée, une symétrie cylindrique des composantes transverses est attendue. La reconstruction correcte de ces deux composantes transverses peut être contrôlée en observant le spectre bidimensionnel de  $P_{R\perp,z}^f$  en fonction de  $P_{R\perp,y}^f$  pour un canal de capture choisi, comme le montre la figure 5-6.



**Figure 5-6 : Spectre bidimensionnel des composantes transverses  $P_{R\perp,y}^f$  et  $P_{R\perp,z}^f$  des ions de recul pour la transition  $\text{Rb}(5s) \rightarrow \text{Na}(3p)$ .**



**Figure 5-7 :** Sections efficaces doublement différentielles en  $P_{R//}^f$  et  $P_{R\perp}^f$  pour les cas laser *on* et laser *off*.

Ensuite, la composante transverse  $P_{R\perp}^f = \sqrt{(P_{R\perp,y}^f)^2 + (P_{R\perp,z}^f)^2}$ , associée à l'angle de diffusion du projectile, est calculée pour chaque événement.

En combinant les informations tirées de l'état des lasers de piégeage (*on* ou *off*) et des mesures des composantes  $P_{R\perp}^f$  et  $P_{R//}^f$ , les sections efficaces différentielles en  $P_{R//}^f$  et  $P_{R\perp}^f$  peuvent être obtenues. La figure 5-7 montre ces sections efficaces doublement différentielles en  $P_{R//}^f$  et  $P_{R\perp}^f$  pour les états *on* et *off* des lasers de piégeage.

### 5.2.5.1 Sections efficaces différentielles en $P_{R//}^f$

Les sections efficaces différentielles en  $P_{R//}^f$  sont obtenues en intégrant les sections efficaces doublement différentielles sur la composante  $P_{R\perp}^f$ . En ce sens, les figures 5-8 et 5-9 montrent les sections efficaces différentielles en  $P_{R//}^f$  pour les états *on* et *off* des lasers de piégeage. La figure 5-8 correspond à une énergie de projectiles de 2 keV tandis que la figure 5-9 correspond à une énergie de 5 keV.

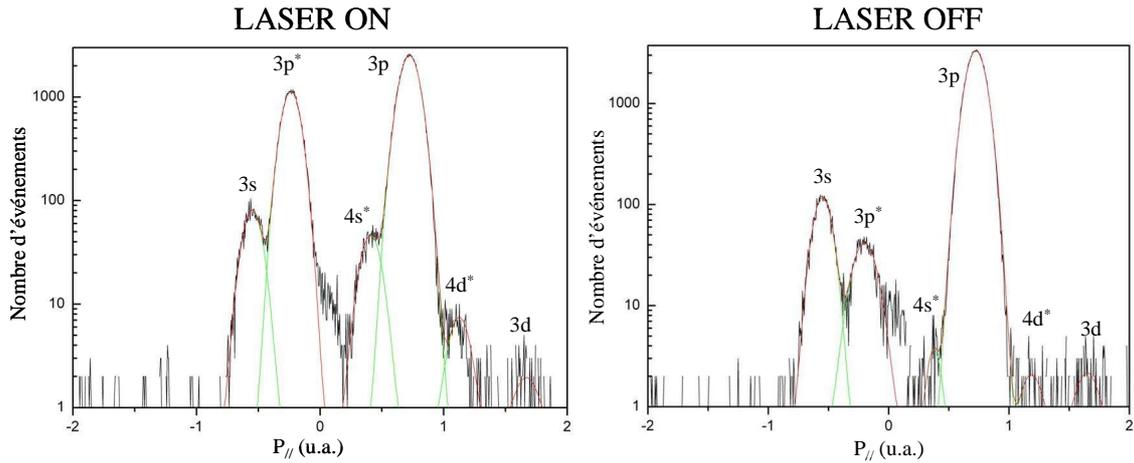


Figure 5-8 : Sections efficaces différentielles en  $P_{R//}^f$  pour les cas des lasers *on* et *off* à une énergie de projectiles de 2 keV. Les différents canaux de capture électronique précisent uniquement l'état final  $n'l'$  sur le projectile Na. L'astérisque indique une capture depuis l'état initial excité Rb(5p).

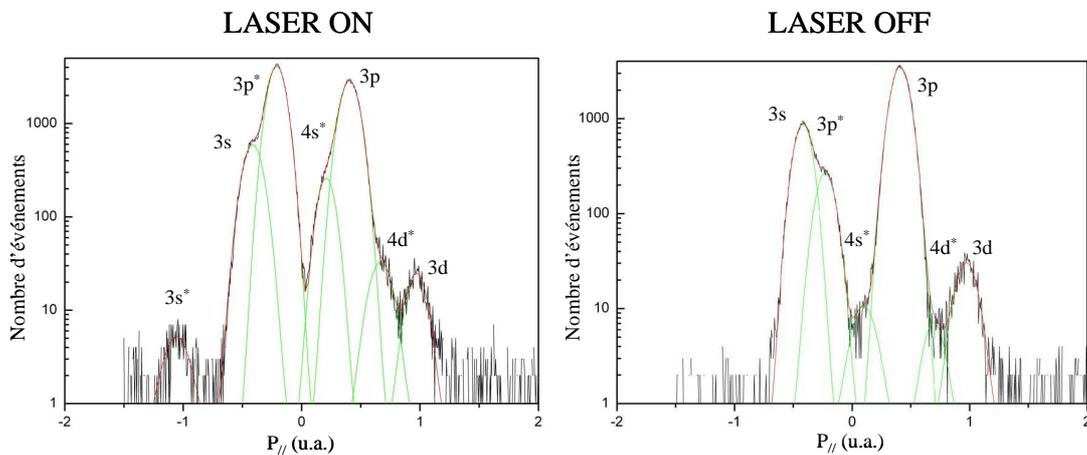


Figure 5-9 : Même commentaire qu'à la figure 5-8. En revanche, l'énergie des projectiles est de 5 keV.

Comme  $P_{R//}^f$  et le  $Q$  de réaction sont directement liés (cf. équation (3-16)), une convolution inverse des spectres de sections efficaces différentielles en  $P_{R//}^f$  donne accès aux sections efficaces différentielles en  $Q$  de réaction, i. e. des sections efficaces différentielles en état initial et en état final de capture électronique. L'aire de chaque pic des figures 5-8 et 5-9 donne une section efficace pour un canal de transfert électronique. Chaque aire est déterminée à l'aide d'un ajustement gaussien. Cet ajustement numérique donne aussi l'incertitude sur l'aire.

### 5.2.5.2 Sections efficaces totales relatives et fractions excitées

En outre, les sections efficaces différentielles en  $P_{R//}^f$  permettent de déterminer la fraction excitée du nuage d'atomes froids. Celle-ci sert notamment à déterminer les sections efficaces totales relatives. La section efficace totale depuis Rb(5s) vers Na( $n'l'$ ) (notée  $\sigma_s$ ) se déduit de la somme  $\sum_s$  des aires indiquées 3s, 3p et 3d (figures 5-8 et 5-9). De même, la section

efficace totale depuis Rb(5p) vers Na(*n'l*) (notée  $\sigma_p$ ) se déduit de la somme  $\sum_p$  des aires indiquées 3s\*, 3p\*, 4s\* et 4d\*, et des aires 5s\*, 4p\* et 3d\* (quasi dégénérées avec l'aire 3s) non mentionnées sur les figures 5-8 et 5-9. La méthode pour obtenir les aires 5s\*, 4p\* et 3d\* est décrite au paragraphe 5.3.3.1.1.

Enfin, les sections efficaces totales relatives s'expriment en fonction de la fraction excitée  $f$  :

$$\frac{\sigma_p}{\sigma_s} = \frac{\sum_p}{\sum_s} \times \frac{1-f}{f} \quad (5-2)$$

### 5.2.5.3 Sections efficaces doublement différentielles en $P_{R//}^f$ et en $P_{R\perp}^f$

Comme  $P_{R\perp}^f$  et l'angle de diffusion  $\theta$  du projectile sont directement liés (cf. équation (3-10)), les spectres de sections efficaces doublement différentielles en  $P_{R//}^f$  et en  $P_{R\perp}^f$  donnent accès aux sections efficaces doublement différentielles en  $Q$  de réaction et en angle de diffusion  $\theta$  du projectile. A cause de la largeur de chaque raie et du recouvrement partiel de certaines raies (figure 5-8), seule une fine bande autour du centre de la raie permet de déterminer les sections efficaces doublement différentielles en  $Q$  de réaction et en angle de diffusion.

## 5.3 Résultats et discussion

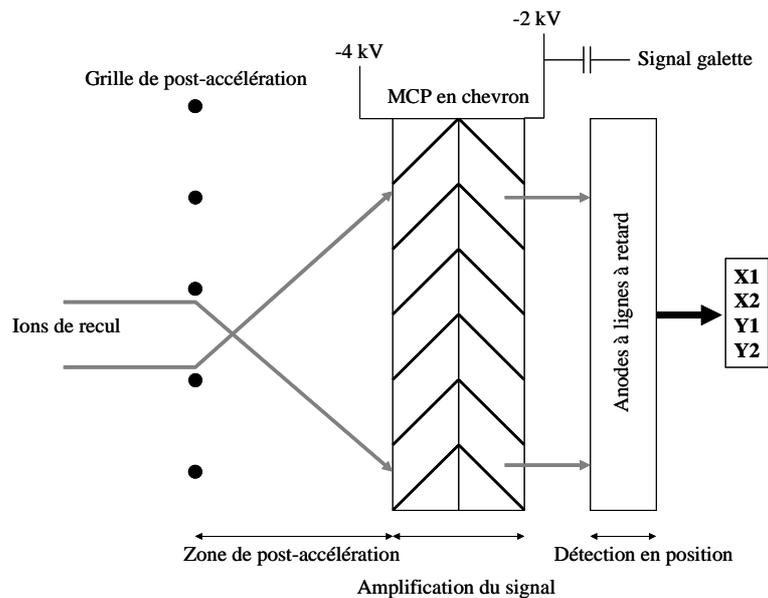
### 5.3.1 Performances instrumentales du dispositif expérimental

Le très faible niveau de bruit de fond obtenu ici (figures 5-8 et 5-9) implique que cette expérience est sensible aux canaux de capture électronique extrêmement faibles. Par exemple, les canaux Rb(5s)-Na(3d) et Rb(5p)-Na(4d) n'ont pas été publiés dans l'étude précédente [Lee 2002]. On retrouve là l'un des avantages de l'extraction transverse par rapport à l'extraction longitudinale des ions de recul.

Cependant, deux problèmes apparaissent après l'analyse des résultats de ce travail. D'abord, la présence de captures depuis Rb(5p) vers Na(3p) dans le cas laser *off* (aires indiquées 3p\* sur les figures 5-8 et 5-9 de droite) est clairement observée. Ces pics correspondent à une fraction excitée de 1% des cibles atomiques et ne sont pas bien compris actuellement. Il pourrait y avoir une mauvaise prise de temps du signal T-AOM (cf. paragraphe 4.6).

Le second problème est la résolution sur la composante longitudinale de l'ion de recul  $P_{R//}^f$ . Expérimentalement, on trouve une résolution  $\Delta P_{R//}^f = 0.07$  u.a. (par la détermination de la déviation standard des ajustements gaussiens du paragraphe 5.2.5.1) au lieu d'une résolution attendue  $\Delta P_{R//}^f = 0.03$  u.a. directement liée à la déviation standard  $\sigma_x$  (cf. paragraphe 4.5.2.3.3). Les simulations du spectromètre ont montré que la résolution attendue sur  $P_{R//}^f$  était limitée par la résolution spatiale de 110  $\mu\text{m}$  du détecteur des ions de recul (cf. paragraphe 4.5.1). Une telle résolution a été mesurée dans le passé pour le même type de détecteur [Liénard 2005] et a été confirmée durant les tests du détecteur de cette expérience. Cependant,

ces tests étaient faits à l'aide d'ions incidents d'énergie plus grande que 1 keV, alors que dans cette expérience MOTRIMS les ions de recul extraits ont une énergie d'environ 35 eV. Une forte dégradation de la résolution spatiale a été mise en évidence par la suite pour ces ions de recul peu énergétiques. L'utilisation de la grille de post – accélération cause cette dégradation. Comme la grille constitue la frontière entre la zone de vol libre des ions de recul et la zone de post – accélération polarisée à 4 kV, pour chaque trou de la grille la transition abrupte de champ électrique produit des lignes de champ agissant comme des lentilles électrostatiques (cf. figure 5-10). Des simulations de cet effet à l'aide du logiciel SIMION ont montré que pour des ions incidents de 35 eV, répartis sur toute la surface d'un trou de grille ( $127 \times 127 \mu\text{m}^2$ ), l'image sur la première MCP avait une largeur de  $300 \mu\text{m}$ , compatible avec la résolution effective du dispositif expérimental.



**Figure 5-10 : Schéma de l'effet de lentille de la grille du détecteur des ions de recul. Les trajectoires des ions de recul sont exagérées pour la compréhension.**

En revanche, il faut noter que la résolution sur l'impulsion de l'ion de recul obtenue avec ce dispositif expérimental est toujours compétitive avec les résultats obtenus dans d'autres expériences MOTRIMS, comme le montre le tableau 5-1.

Organisme	Cibles	$\Delta P_{R//}^f$ (u.a.)	$\Delta P_{R\perp,y}^f$ (u.a.)	$\Delta P_{R\perp,z}^f$ (u.a.)	Géométrie de l'extraction	Commutation du champ magnétique
KSU	Rb	0.03	0.35	0.35	longitudinale	Non
KVI	Na	0.07	0.07	-	transverse	Oui
NBI	Na	0.12	0.05	0.12	transverse	Non
LPC	Rb	0.07	0.07	<0.07	transverse	Oui

**Tableau 5-1 : Comparaison des résolutions sur les composantes de l'impulsion des ions de recul, obtenues avec les dispositifs MOTRIMS développés à Kansas State University [Flécharde 2003], Kernfysisch Vernsneller Instituut [Hasan 2007], Niels Bohr Institute [van der Poel 2002], et LPC Caen (ce travail). Les cibles atomiques, la géométrie du spectromètre d'extraction, et la possibilité de commuter le champ magnétique du piège sont aussi spécifiées.**

La résolution sur  $P_{R\perp,z}^f$  n'a pas pu être directement mesurée dans ce travail. Cependant, les effets de la grille de post – accélération sur cette composante sont négligeables, et la résolution attendue doit être meilleure que celles des deux autres composantes. Par ailleurs, on trouve  $\Delta P_{R\perp,y}^f = 0.07$  u.a., valeur que l'on déduit de  $\Delta P_{R//}^f$  en raison de la symétrie cylindrique du spectromètre d'extraction des ions de recul.

### 5.3.2 Fraction excitée

Le paragraphe 5.2.4 expose la méthode pour obtenir la fraction excitée du nuage d'atomes froids et, en ce sens, met en évidence l'un des avantages de la technique MOTRIMS. En pratique, les aires indiquées  $3s$  (figures 5-8 et 5-9) servent à déterminer cette fraction, qui est de l'ordre de 30%.

La connaissance de la fraction excitée, outre servir à déterminer les sections efficaces totales relatives dans ce travail, revêt un caractère fondamental pour la communauté des physiciens étudiant les atomes froids.

Il est sensé de mettre l'accent sur le fait que les équations (3-43) et (3-44) (cf. paragraphe 3.3.4) n'ont aucune raison *a priori* de décrire le comportement phénoménologique d'un nuage d'atomes froids, le modèle duquel elles dérivent n'étant qu'un système à deux niveaux excité par une onde progressive de faible intensité. Dans le cas d'un piège magnéto – optique, la distribution inconnue des sous – niveaux Zeeman levés par le gradient de champ magnétique, ainsi que la dépendance spatiale de l'intensité et de la phase des lasers de piégeage, lèvent un doute quant au domaine de validité de l'équation (3-43).

Néanmoins, Shah *et al.* reportèrent des mesures de fraction excitée en fonction du paramètre de saturation  $s$  donné par :

$$s = \frac{I/I_s}{1 + (2\delta/\Gamma)^2} \quad (5-3)$$

où  $I_s$  a pour valeur celle de sa définition littérale donnée par (x). Cependant,  $I_s$  peut aussi être exprimée d'une autre manière :

$$I_s = \frac{I(1-2f)}{f(1 + \left(\frac{2\delta}{\Gamma}\right)^2)} \quad (5-4)$$

Le modèle à deux niveaux quantiques s'accorde excellemment avec les mesures expérimentales pour  $s < 1.25$ , domaine consistant avec la plupart des pièges magnéto – optiques. Cependant, le meilleur accord entre ce simple modèle et les données expérimentales a lieu pour  $I_s = 9.2 \pm 1.7$  mW/cm<sup>2</sup>, alors que la formule de l'équation (3-44) donne  $I_s = 3.2$  mW/cm<sup>2</sup>.

Au cours de ce travail, la fraction excitée  $f = 0.30 \pm 0.03$  a été mesurée lors d'expériences spécifiques. Par la suite, ayant mesuré l'intensité du laser de piégeage  $I = 94 \pm 0.5$  mW/cm<sup>2</sup> et le décalage fréquentiel par rapport à la résonance  $\delta = -11.5 \pm 0.05$  MHz, et connaissant la largeur naturelle de bande de la transition optique  $\Gamma/2\pi = 6.066$  MHz, une intensité de

saturation effective  $I_s = 8.1 \pm 1.0 \text{ mW/cm}^2$  a été trouvée. Ce résultat est en bon accord avec la valeur expérimentale précédente de Shah *et al.*, mais pas avec la formule de l'équation (3-44) donnée pour un seul faisceau laser avec une polarisation circulaire. Comme il a été mentionné dans [Steck], la mélasse optique formée par six faisceaux lasers polarisés circulairement est en fait une configuration optique complexe. Il est donc plus réaliste de considérer qu'un atome se déplaçant dans cette mélasse sera en moyenne illuminé par toutes les polarisations. Dans ce cas, l'intensité de saturation doit être calculée pour un champ de pompage isotrope. Sur la transition de cycle  $F = 2 \rightarrow F' = 3$ , ce calcul [Steck] mène à  $I_s = 7.15 \text{ mW/cm}^2$ , ce qui est en bien meilleur accord avec la mesure de ce travail.

Ce résultat, utile pour la communauté des physiciens étudiant les atomes froids, donne une estimation rapide et facile de la fraction excitée de tout nuage d'atomes froids de  $^{87}\text{Rb}$ , les seuls paramètres indispensables à connaître étant l'intensité totale et le décalage fréquentiel des lasers de piégeage.

### 5.3.3 Résultats expérimentaux et théoriques

Dans cette partie, tous les résultats expérimentaux issus de ce travail seront notés LPC. Les résultats théoriques seront notés MOCC ("Molecular Orbital Close-Coupling"). Quant aux résultats de l'expérience précédente, ils seront notés KSU, et ceux des calculs précédents TCAOCC ("Two Center Atomic Orbital Close-Coupling").

#### 5.3.3.1 Sections efficaces différentielles en $Q$ de réaction

##### 5.3.3.1.1 Données physiques expérimentales

Les tableaux 5-2 et 5-3 présentent les résultats expérimentaux de ce travail pour les sections efficaces relatives différentielles en  $Q$  de réaction. Dans le tableau 5-2, les sections efficaces de capture depuis l'état fondamental  $\text{Rb}(5s)$  vers différents états finaux  $\text{Na}(n'l')$  sont normalisées par rapport à la capture totale depuis l'état fondamental. Il est clair que la transition  $\text{Rb}(5s) \rightarrow \text{Na}(3p)$  est la transition dominante aux deux énergies de projectiles étudiées. A énergie de projectiles croissante, la participation des autres canaux de capture tend à s'accroître au détriment du canal principal. Le tableau 5-3 montre les sections efficaces de transfert électronique depuis l'état excité  $\text{Rb}(5p)$  vers les états finaux  $\text{Na}(n'l')$  obtenues par cette expérience. Ici, le canal dominant de capture électronique est le canal  $\text{Rb}(5p) \rightarrow \text{Na}(3p)$ . Enfin, le tableau 5-4 présente les rapports de sections efficaces totales depuis l'état fondamental et l'état excité du rubidium pour deux énergies de projectiles, obtenues par ce travail.

Les tableaux 5-2, 5-3 et 5-4 assurent aussi la comparaison de ce travail expérimental avec la première expérience ayant utilisé la technique MOTRIMS pour étudier le système  $\text{Na}^+ + \text{Rb}(5s, 5p)$  [Nguyen 2003]. Cette expérience, réalisée à Kansas State University (KSU), obtint des résultats pour des énergies de collisions de 2, 5 et 7 keV. Les résultats de cette dernière énergie ne sont pas représentés car seules deux énergies de projectiles ont été étudiées lors de cette thèse.

Le tableau 5-2 montre clairement que les expériences de KSU et de ce travail concordent. Les mêmes contributions des différents canaux de capture sont observées aux deux énergies

de projectiles. On peut cependant noter une incertitude plus faible pour l'expérience de ce travail, notamment pour les canaux très faiblement peuplés.

Dans le tableau 5-3, les données des deux expériences montrent que le canal Rb(5*p*)-Na(3*p*) est le canal de capture le plus emprunté. Les résultats des deux expériences concordent clairement. Il faut cependant noter une incertitude globalement plus faible pour les résultats de ce travail, ainsi que l'observation du canal Rb(5*p*)-Na(3*s*). Il faut aussi remarquer, pour les deux expériences, que l'incertitude des résultats pour les canaux Na(3*d*), Na(4*p*) et Na(5*s*) est relativement grande, surtout à 2 keV. Ces canaux de capture ne sont pas résolus en  $Q$  de réaction et leurs sections efficaces sont mélangées avec le canal Rb(5*s*)-Na(3*p*), qui est très emprunté. Dans l'analyse des résultats de ce travail, une méthode simple permet de mettre en relief la participation de ces canaux, et d'avoir ainsi une précision convenable sur les résultats.

Quand les lasers sont *off*, l'aire du pic principal (notée  $A_{off}$ ) est uniquement proportionnelle à la section efficace  $\sigma_s$  du canal Rb(5*s*)-Na(3*p*). Quand les lasers sont *on*, l'aire du pic principal ( $A_{on}$ ) change et contient les participations du canal Rb(5*s*)-Na(3*p*) (toujours de section efficace  $\sigma_s$ ) et des canaux Rb(5*p*)-Na(*n'l*) non résolus (de section efficace  $\sigma_p$ ). Il vient alors :

$$A_{off} = \alpha \sigma_s \quad (5-5)$$

$$A_{on} = \alpha((1-f)\sigma_s + f\sigma_p) \quad (5-6)$$

où  $\alpha$  est la constante de proportionnalité, et  $f$  est la fraction excitée. Après calculs, il vient :

$$\frac{\sigma_p}{\sigma_s} = 1 + \frac{A_{on} - A_{off}}{fA_{off}} \quad (5-7)$$

On en déduit donc le rapport des sections efficaces des canaux Rb(5*p*)-Na(*n'l*) et du canal Rb(5*s*)-Na(3*p*).

Enfin, le tableau 5-4 montre clairement que les deux expériences concordent pour les résultats de rapports de sections efficaces totales pour les collisions  $\text{Na}^+ + \text{Rb}(5l)$ , où  $l = s$  et  $p$ , à deux énergies de projectiles.

Ainsi, on peut affirmer que l'expérience de KSU et l'expérience de ce travail concordent pour les mesures de sections efficaces différentielles en  $Q$  de réaction. Aucun désaccord majeur n'apparaît.

Etats finaux	2 keV		5 keV	
	LPC	KSU	LPC	KSU
3 <i>s</i>	0.029 ± 0.001	0.02 ± 0.01	0.191 ± 0.011	0.19 ± 0.07
3 <i>p</i>	0.970 ± 0.004	0.98 ± 0.05	0.802 ± 0.074	0.79 ± 0.29
3 <i>d</i>	0.0012 ± 0.0007	0.00 ± 0.02	0.0078 ± 0.0023	0.02 ± 0.01

**Tableau 5-2 : Sections efficaces relatives expérimentales en fonction des états finaux Na(3*l*) pour la collision  $\text{Na}^+ + \text{Rb}(5s)$  à deux énergies de projectiles. Les sections efficaces relatives de chaque canal sont normalisées par rapport à la capture totale depuis l'état Rb(5*s*).**

Etats finaux	2 keV		5 keV	
	LPC	KSU	LPC	KSU
$3s$	-	-	$0.0017 \pm 0.0005$	-
$3p$	$0.631 \pm 0.117$	$0.60 \pm 0.14$	$0.868 \pm 0.015$	$0.82 \pm 0.05$
$4s$	$0.027 \pm 0.007$	$0.08 \pm 0.03$	$0.053 \pm 0.004$	$0.08 \pm 0.01$
$4d$	$0.0042 \pm 0.0026$	$0.02 \pm 0.01$	$0.0084 \pm 0.0023$	$0.03 \pm 0.01$
$3d, 4p, 5s$	$0.338 \pm 0.245$	$0.30 \pm 0.16$	$0.069 \pm 0.015$	$0.07 \pm 0.03$

**Tableau 5-3 : Sections efficaces relatives expérimentales en fonction des états finaux  $\text{Na}(n'l')$  pour la collision  $\text{Na}^+ + \text{Rb}(5p)$  à deux énergies de projectiles. Les sections efficaces relatives de chaque canal sont normalisées par rapport à la capture totale depuis l'état  $\text{Rb}(5p)$ .**

Sections efficaces relatives	2 keV		5 keV	
	LPC	KSU	LPC	KSU
$\frac{\sigma_p}{\sigma_s}$	$1.47 \pm 0.58$	$1.60 \pm 0.80$	$4.15 \pm 0.75$	$3.70 \pm 0.31$

**Tableau 5-4 : Rapports de sections efficaces totales pour les collisions  $\text{Na}^+ + \text{Rb}(5l)$ , où  $l = s$  et  $p$ , à deux énergies de projectiles.**

### 5.3.3.1.2 Confrontation avec la théorie

Afin d'étoffer la compréhension du système de collisions étudié, et après avoir montré que les deux expériences MOTRIMS concordaient, il faut comparer les résultats expérimentaux aux résultats théoriques sur le sujet. Les premiers résultats théoriques [Lee 2002] ayant étudié le système  $\text{Na}^+ + \text{Rb}(5s, 5p)$  sont obtenus à l'aide de calculs TCAOCC. Il s'agit de calculs semi – classiques. Les autres résultats théoriques présentés dans ce paragraphe sont issus des calculs MOCC de ce travail.

$\sigma(\text{Rb}(5s)\text{-Na}(3l'))$ ( $10^{-16} \text{ cm}^2$ )	2 keV		5 keV	
	MOCC	TCAOCC	MOCC	TCAOCC
$\text{Na}(3s)$	0.933	1.06	7.086	6.02
$\text{Na}(3p)$	22.724	19.16	24.331	20.59

**Tableau 5-5 : Sections efficaces différentielles théoriques en  $Q$  de réaction ( $10^{-16} \text{ cm}^2$ ) de transfert électronique depuis  $\text{Rb}(5s)$  vers  $\text{Na}(3l')$  en fonction de l'énergie des projectiles.**

$\frac{\text{Na}(3s)}{\text{Na}(3p)}$	2 keV				5 keV			
	Expérience		Théorie		Expérience		Théorie	
	LPC	KSU	MOCC	TCAOCC	LPC	KSU	MOCC	TCAOCC
	0.033 $\pm 0.001$	0.020 $\pm 0.005$	0.041	0.055	0.238 $\pm 0.036$	0.250 $\pm 0.032$	0.291	0.292

**Tableau 5-6 : Comparaison entre les résultats théoriques et expérimentaux pour le ratio de sections efficaces de capture  $\text{Na}(3s)/\text{Na}(3p)$  à partir de  $\text{Rb}(5s)$  en fonction de l'énergie des projectiles.**

Le tableau 5-5 présente les résultats théoriques de sections efficaces différentielles en  $Q$  de réaction depuis Rb(5s) vers Na(3l') obtenus indépendamment par ce travail et les calculs TCAOCC. L'accord entre ces différents calculs est convenable.

Le tableau 5-6 présente la comparaison entre la théorie et l'expérience pour le ratio de sections efficaces de capture  $\frac{Na(3s)}{Na(3p)}$  depuis Rb(5s). L'accord entre les différentes expériences et théories est convenable, même si on note, à une énergie de projectiles de 2 keV, un désaccord un peu plus prononcé entre les calculs TCAOCC et les deux expériences.

Par ailleurs, le tableau 5-7 présente la comparaison entre le calcul MOCC et les deux expériences pour le ratio de sections efficaces de capture  $\frac{Na(3d)}{Na(3p)}$  depuis Rb(5s). On

remarque que le calcul MOCC ne semble pas reproduire les résultats expérimentaux. Il faut cependant souligner que le canal Rb(5s)-Na(3d) est peu emprunté et émerge faiblement hors du signal du bruit de fond. Malgré cela, les résultats des deux expériences semblent concorder.

$\frac{Na(3d)}{Na(3p)}$	2 keV			5 keV		
	Expérience		Théorie	Expérience		Théorie
	LPC	KSU	MOCC	LPC	KSU	MOCC
	0.0012	0.0000	0.0093	0.0097	0.0253	0.0444
	$\pm 0.0007$	$\pm 0.0204$		$\pm 0.0038$	$\pm 0.0219$	

**Tableau 5-7 :** Comparaison entre les résultats théoriques et expérimentaux pour le ratio de sections efficaces de capture  $Na(3d)/Na(3p)$  à partir de Rb(5s) en fonction de l'énergie des projectiles.

Ensuite, le tableau 5-8 présente les résultats théoriques de sections efficaces différentielles en  $Q$  de réaction depuis Rb(5p) vers Na(n'l'). Cette fois, le désaccord entre les deux différents calculs est très prononcé.

Le tableau 5-9 présente la comparaison entre la théorie et l'expérience pour le ratio de sections efficaces de capture  $\frac{Na(4s)}{Na(3p)}$  depuis Rb(5p). Pour les deux expériences, on note une

différence entre les ratios  $\frac{Na(4s)}{Na(3p)}$  à 2 keV. Ceci vient du fait que les deux expériences ne

révèlent pas les mêmes participations pour le canal Rb(5p)-Na(4s). On peut juste remarquer que ce canal est clairement hors du bruit de fond pour l'expérience de ce travail, contrairement à ce que l'on peut constater pour l'expérience de KSU [Lee 2002]. Enfin, il faut noter le bon accord entre les calculs de ce travail et les résultats expérimentaux de ce travail et ceux de KSU.

Pour compléter la comparaison entre la théorie et l'expérience, le tableau 5-10 compare les résultats des calculs MOCC et des deux expériences pour le ratio de sections efficaces de

capture  $\frac{Na(4d)}{Na(3p)}$  depuis Rb(5p). Pour les deux énergies de projectiles, on remarque une

grande divergence des résultats, tant pour les deux expériences que pour le calcul MOCC. Du point de vue expérimental, le canal Rb(5p)-Na(4d) est peu ou non résolu, et il n'émerge que faiblement hors du bruit de fond. Aucune conclusion ne semble possible pour ce canal peu emprunté. Par ailleurs, le tableau 5-10 compare les résultats des calculs MOCC et de

l'expérience du LPC pour le ratio  $\frac{Na(3s)}{Na(3p)}$  depuis Rb(5p), uniquement à 5 keV. Là, on

remarque que les résultats concordent. On peut noter que le canal Rb(5p)-Na(3s) est bien résolu dans les spectres expérimentaux.

Enfin, le tableau 5-11 compare les résultats des calculs MOCC et des deux expériences pour

le ratio de sections efficaces de capture  $\frac{\sum_{3d,4p,5s} \sigma(\text{Rb}(5p)\text{-Na}(n'l'))}{\sigma(\text{Na}(3p))}$  depuis Rb(5p). Pour les deux énergies

de projectiles, les deux expériences concordent. On notera toutefois la grande incertitude sur les deux résultats à 2 keV. Par ailleurs, les calculs MOCC ne semblent pas correctement reproduire les résultats des deux expériences.

$\sigma(\text{Rb}(5p)\text{-Na}(n'l'))$ ( $10^{-16} \text{ cm}^2$ )	2 keV		5 keV	
	MOCC	TCAOCC	MOCC	TCAOCC
Na(4s)	1.664	10.39	5.154	5.03
Na(3p)	22.209	94.20	71.474	132.82

**Tableau 5-8 :** Sections efficaces différentielles théoriques en  $Q$  de réaction ( $10^{-16} \text{ cm}^2$ ) de transfert électronique depuis Rb(5p) vers Na( $n'l'$ ) en fonction de l'énergie des projectiles.

$\frac{\text{Na}(4s)}{\text{Na}(3p)}$	2 keV				5 keV			
	Expérience		Théorie		Expérience		Théorie	
	LPC	KSU	MOCC	TCAOCC	LPC	KSU	MOCC	TCAOCC
	0.043 $\pm 0.004$	0.128 $\pm 0.053$	0.075	0.110	0.061 $\pm 0.015$	0.072 $\pm 0.009$	0.072	0.038

**Tableau 5-9 :** Comparaison entre les résultats théoriques et expérimentaux pour le ratio de sections efficaces de capture Na(4s)/Na(3p) à partir de Rb(5p) en fonction de l'énergie des projectiles.

	2 keV			5 keV		
	Expérience		Théorie	Expérience		Théorie
	LPC	KSU	MOCC	LPC	KSU	MOCC
$\frac{\text{Na}(4d)}{\text{Na}(3p)}$	0.0066 $\pm 0.0030$	0.0333 $\pm 0.0138$	0.0176	0.0097 $\pm 0.0022$	0.0366 $\pm 0.0104$	0.0192
$\frac{\text{Na}(3s)}{\text{Na}(3p)}$	-	-	-	0.0020 $\pm 0.0006$	-	0.0026

**Tableau 5-10 :** Comparaison entre les résultats théoriques et expérimentaux pour les ratios de sections efficaces de capture Na(4d)/Na(3p) et Na(3s)/Na(3p) à partir de Rb(5p) en fonction de l'énergie des projectiles.

$\frac{\sum_{3d,4p,5s} \sigma(\text{Na}(n'l'))}{\sigma(\text{Na}(3p))}$	2 keV			5 keV		
	Expérience		Théorie	Expérience		Théorie
	LPC	KSU	MOCC	LPC	KSU	MOCC
	0.536 $\pm 0.488$	0.500 $\pm 0.383$	0.442	0.079 $\pm 0.019$	0.085 $\pm 0.042$	0.199

**Tableau 5-11 :** Comparaison entre les résultats théoriques et expérimentaux pour le ratio de sections efficaces de capture Na(3d, 4p, 5s)/Na(3p) à partir de Rb(5p) en fonction de l'énergie des projectiles.

### 5.3.3.2 Sections efficaces différentielles en $Q$ de réaction et en angle de diffusion

La figure 5-11 présente les sections efficaces doublement différentielles (DDCS) en  $Q$  de réaction et en angle de diffusion des résultats de cette expérience et des calculs de ce travail, convolués à 30  $\mu\text{rad}$ . Cette convolution correspond à la résolution déduite de l'expérience. Quatre canaux de transfert électronique sont représentés. Pour tous les canaux de capture, la théorie représente convenablement les structures majeures des sections efficaces doublement différentielles.

Cependant, il faut noter un désaccord global, mais modéré, entre l'expérience et les calculs de ce travail : de façon générale pour tous les canaux, les optima théoriques et expérimentaux ne coïncident pas. De plus, les amplitudes présentent des différences notoires. Enfin, les sections efficaces expérimentales ne révèlent pas toutes les structures oscillantes annoncées par la théorie.

Pour aller plus loin dans la confrontation entre la théorie et l'expérience, il faut ensuite comparer les résultats des différentes expériences et différentes théories. En ce sens, la figure 5-12 présente les sections efficaces de capture doublement différentielles en  $Q$  de réaction et en angle de diffusion des deux expériences et des deux calculs, et les compare directement. Quatre canaux de capture sont représentés. Les calculs de ce travail sont convolués à 100  $\mu\text{rad}$  pour améliorer la lecture des comparaisons. Les calculs TCAOCC sont convolués à 138  $\mu\text{rad}$  afin d'être comparés aux résultats expérimentaux de KSU.

On remarque que l'accord entre les deux expériences est convenable pour les canaux Rb( $5s$ )-Na( $3p$ ) et Rb( $5p$ )-Na( $3p$ ). Il l'est moins pour le canal Rb( $5s$ )-Na( $3s$ ), et l'expérience de KSU ne donne pas de résultats pour le canal Rb( $5p$ )-Na( $4s$ ). Les deux expériences révèlent les mêmes structures. De façon générale, on note un décalage vers les grands angles de diffusion pour les maxima obtenus par l'expérience de ce travail par rapport à celle de KSU. La comparaison entre les deux différents calculs révèle un profond désaccord. Enfin, l'accord entre les calculs MOCC de ce travail et l'expérience de KSU semble convenable, alors que l'accord entre ces calculs et l'expérience de ce travail semble moins bon.

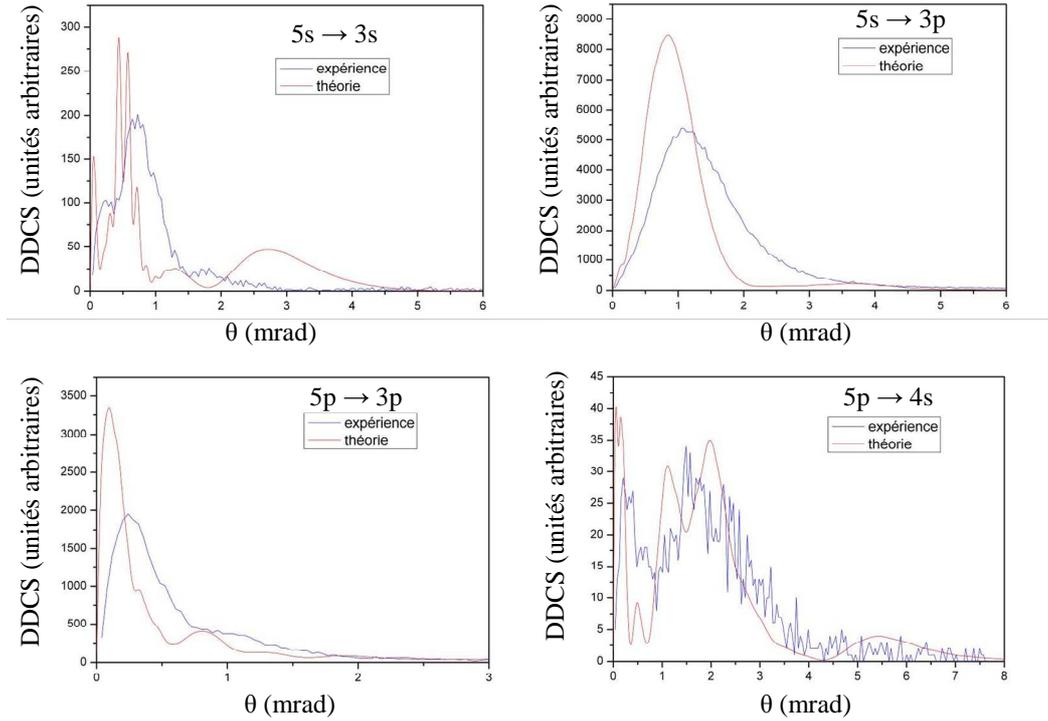


Figure 5-11 : Comparaison des sections efficaces de capture doublement différentielles en  $Q$  de réaction et en angle de diffusion des résultats de cette expérience et des calculs de ce travail (convolués à 30  $\mu\text{rad}$ ). Les calculs théoriques sont normalisés par rapport aux résultats expérimentaux.

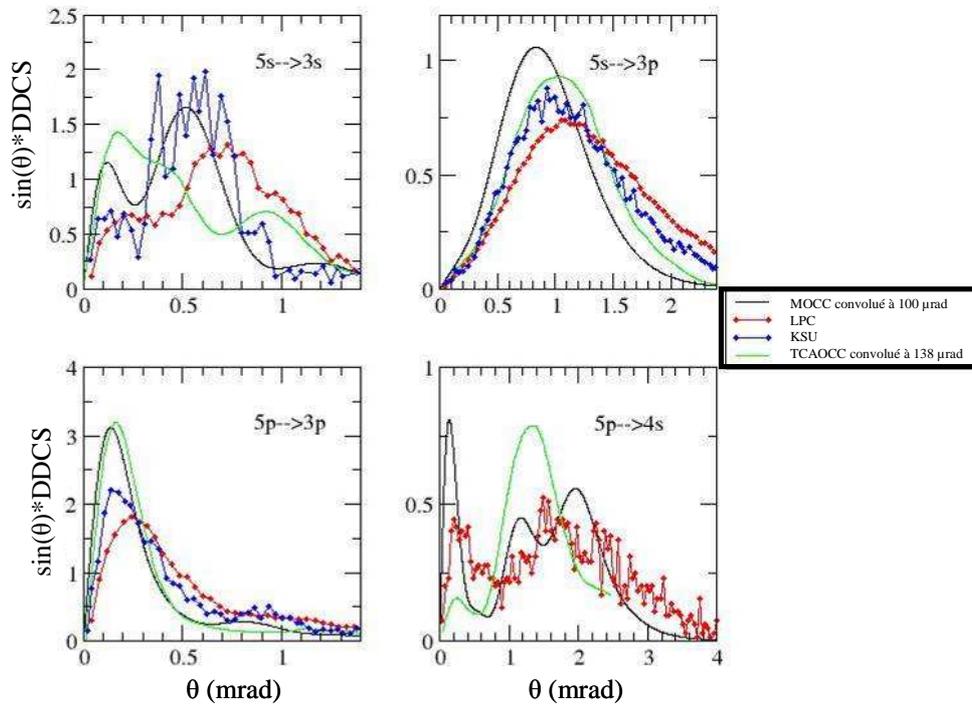


Figure 5-12 : Comparaison des sections efficaces de capture doublement différentielles en  $Q$  de réaction et en angle de diffusion des résultats expérimentaux et théoriques. Les calculs de ce travail et les calculs TCAOCC sont convolués à 100  $\mu\text{rad}$  et 138  $\mu\text{rad}$ , respectivement.

### 5.3.4 Discussion scientifique

Ce paragraphe rapporte la discussion scientifique suivant la confrontation des résultats expérimentaux et théoriques. Cette démarche s'inscrit dans la méthodologie scientifique imposée par la physique. Il faut souligner que cette partie répond tant aux exigences de comparaison entre la théorie et l'expérience, qu'aux exigences de reproductibilité des expériences en mentionnant une autre expérience que celle de ce travail.

Cette discussion scientifique vise à confronter de manière constructive tous les résultats précédemment présentés. Elle cherche aussi à comprendre pourquoi certains résultats diffèrent.

Après le résumé des résultats et des comparaisons suivent les présentations des sources d'erreurs possibles venant de la théorie et de l'expérience.

#### 5.3.4.1 Résumé des résultats et des comparaisons

Comme il a été vu, les différents résultats expérimentaux et théoriques concordent convenablement pour les sections efficaces différentielles de capture en  $Q$  de réaction depuis Rb(5s) vers Na(3l'). Quelques désaccords mineurs ne sauraient altérer cette impression de convergence des résultats expérimentaux et théoriques.

Pour les sections efficaces différentielles de capture en  $Q$  de réaction depuis Rb(5p) vers Na( $n'l'$ ), l'accord entre les calculs de ce travail et les deux expériences semble convenable, alors que les calculs TCAOCC semblent reproduire les données expérimentales moins convenablement.

Enfin, en ce qui concerne les sections efficaces doublement différentielles de capture en  $Q$  de réaction et en angle de diffusion, il apparaît un désaccord modéré entre les calculs et les résultats expérimentaux de ce travail. Cependant, ces calculs reproduisent convenablement les données expérimentales de KSU. Les calculs TCAOCC semblent plus éloignés des résultats des deux expériences et sont en léger désaccord avec les calculs MOCC de ce travail.

#### 5.3.4.2 Sources d'erreurs possibles venant de la théorie

En ce qui concerne les calculs de ce travail, deux sources d'erreurs peuvent venir de la théorie. La première source de mauvaise description théorique pourrait être l'utilisation de la méthode semi – classique du paramètre d'impact à une faible énergie. La seconde source d'erreur plausible serait l'utilisation de potentiels modèle inadaptés.

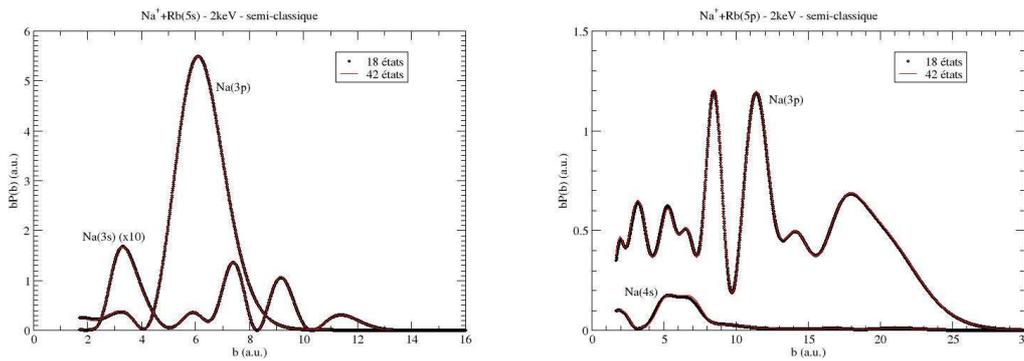
##### 5.3.4.2.1 Première source d'erreur possible liée à la méthode semi – classique

L'utilisation de la méthode semi – classique (cf. paragraphe 2.3) pour étudier le système de collisions  $\text{Na}^+ + \text{Rb}$  à faible énergie de projectiles pourrait entraîner une mauvaise description physique. Pour savoir si l'approximation semi – classique est source d'erreur, il faut comparer les calculs quantiques, qui sont exacts et sans approximation, aux calculs de la méthode semi – classique.

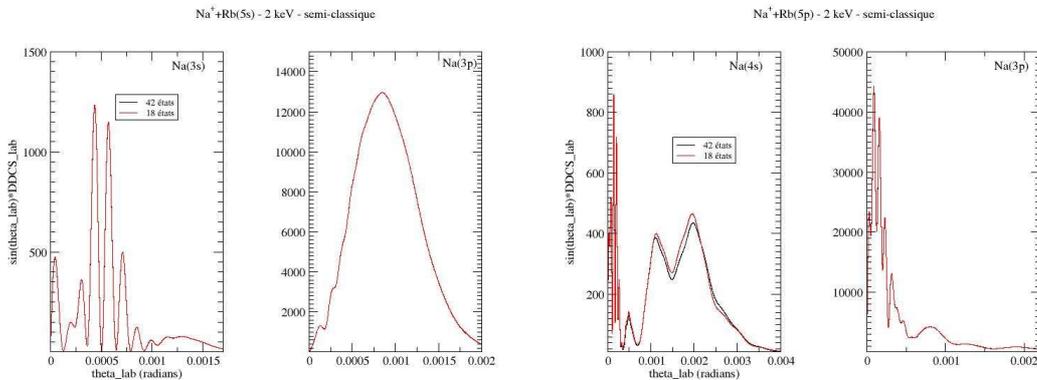
Pour ce faire, avant de procéder au calcul quantique, il faut essayer de restreindre la base d'états car les masses élevées du projectile ( $\text{Na}^+$ ) et de la cible (Rb) font que le développement en ondes partielles sera considérable. En effet, en utilisant la relation  $J = \mu v b$  entre le

paramètre d'impact  $b$  et le moment cinétique total  $J$ , où  $\mu = 33400.33$  u.a. est la masse réduite du système et  $v = 0.058976782$  u.a. (2 keV) est la vitesse d'impact, on trouve pour  $b = 30$  u.a., par exemple, que  $J \approx 60000$ .

Après inspection des diagrammes de corrélation (cf. paragraphe 2.4.2.2), on restreint la base de 42 à 18 états (OEDM couplées à des gaussiennes) pour le calcul semi – classique. Les figures 5-13 et 5-14, qui présentent la comparaison des  $bP(b)$  et des sections efficaces doublement différentielles à 18 et à 42 états (les courbes sont confondues), montrent clairement que la base restreinte à 18 états est suffisamment complète pour représenter convenablement la dynamique à 2 keV.



**Figure 5-13 :** Comparaison des  $bP(b)$  à 18 et à 42 états dans le calcul semi – classique pour les collisions  $\text{Na}^+ + \text{Rb}(5s, 5p)$  à 2 keV. Les courbes sont confondues.

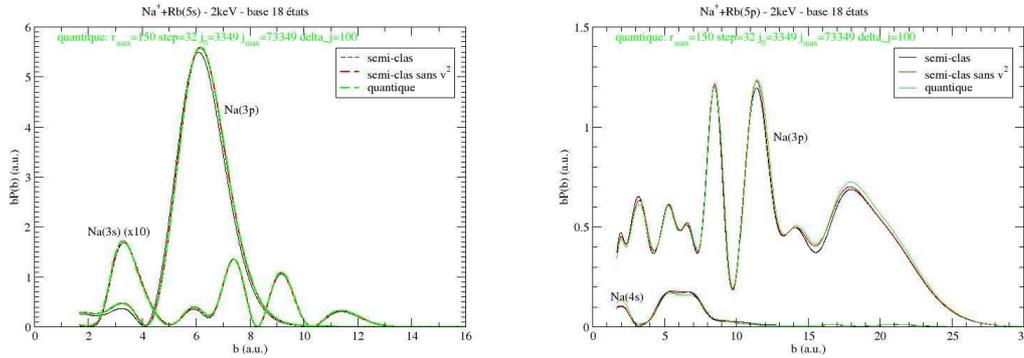


**Figure 5-14 :** Comparaison des sections efficaces doublement différentielles à 18 et à 42 états dans le calcul semi – classique pour les collisions  $\text{Na}^+ + \text{Rb}(5s, 5p)$  à 2 keV. Les courbes sont confondues.

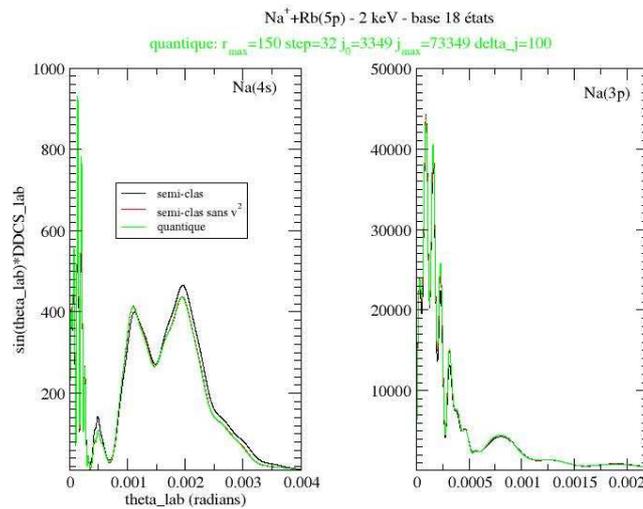
Par ailleurs, comme le calcul quantique néglige la correction en  $v^2$  alors que le calcul semi – classique l'inclut explicitement (cf. paragraphe 2.3.2, équation (2-85)), il faut donc également tester l'effet de cette correction.

Les figures 5-15 et 5-16 présentent la comparaison des  $bP(b)$  et des sections efficaces doublement différentielles pour le calcul semi – classique avec une base à 18 états, le calcul semi – classique avec une base à 18 états mais sans la correction en  $v^2$ , et pour le calcul quantique. Les courbes des deux calculs semi – classiques sont confondues et indiquent par là que l'effet de la correction en  $v^2$  est négligeable. Ensuite, les courbes du calcul semi – classique sans correction en  $v^2$  et du calcul quantique (sans correction en  $v^2$ ) sont aussi

confondues. Elles indiquent donc que le calcul semi – classique représente correctement le système étudié.



**Figure 5-15 :** Comparaison des  $bP(b)$  entre le calcul semi – classique dans une base de 18 états (avec et sans termes correctifs en  $v^2$ ) et le calcul quantique pour les collisions  $\text{Na}^+ + \text{Rb}(5s, 5p)$  à 2 keV. Les courbes sont confondues.



**Figure 5-16 :** Comparaison des sections efficaces doublement différentielles entre le calcul semi – classique dans une base de 18 états (avec et sans termes correctifs en  $v^2$ ) et le calcul quantique pour les collisions  $\text{Na}^+ + \text{Rb}(5s, 5p)$  à 2 keV.

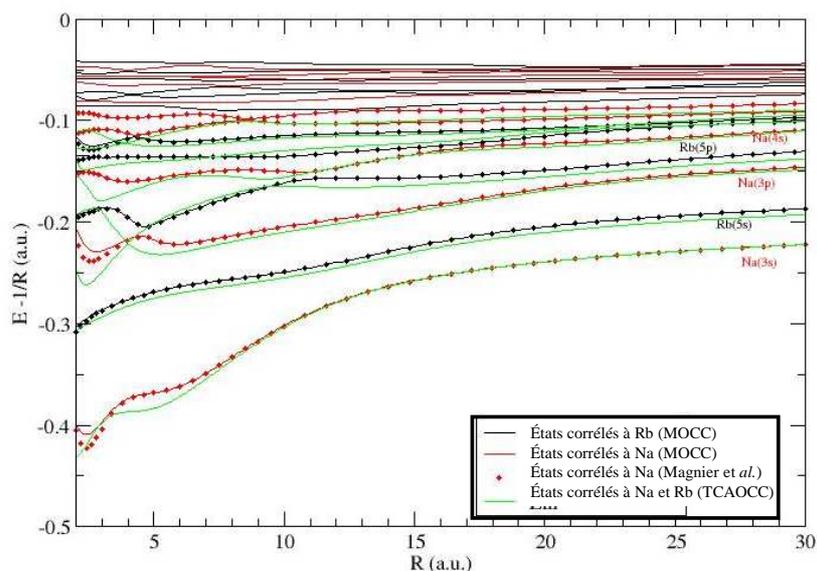
Ainsi, le désaccord entre la théorie et l'expérience ne peut donc pas être attribué à un effet de trajectoire nucléaire. Ceci se comprend intuitivement sachant que, malgré la faible vitesse d'impact, les masses du projectile et de la cible sont élevées. On peut remarquer qu'à cette même vitesse, dans des systèmes plus légers comme des collisions entre des ions et des cibles d'hydrogène, des effets de trajectoire apparaissent [Errea 1998, Le 2004].

#### 5.3.4.2.2 Seconde source d'erreur possible liée aux potentiels modèle

L'utilisation de potentiels modèle inadaptés pourrait aboutir à une mauvaise description physique. Cependant, la comparaison des énergies propres atomiques, obtenues avec les potentiels modèle utilisés, aux données de référence du NIST révèle un excellent accord (cf.

paragraphe 2.4.1.3). De plus, pour mieux jauger la précision des potentiels modèle utilisés, le calcul des forces d'oscillateur fait dans ce travail concorde avec les références de la base de données TOPBASE pour Na (cf. paragraphe 2.4.1.3). En revanche, aucune valeur de référence n'existe pour tester le potentiel modèle de Rb.

Un autre potentiel modèle pour Na existe dans la littérature [Magnier 1993b] et donne des énergies propres et des forces d'oscillateur satisfaisantes. La figure 5-17 compare les diagrammes de corrélation pour Na et Rb d'après les calculs de ce travail et ceux pour Na d'après Magnier *et al.*. L'accord est très bon. Les zones asymptotiques concordent. Cependant, on note des différences mineures dans la zone des courtes distances internucléaires. La figure 5-17 inclut aussi les diagrammes de corrélation pour Na et Rb d'après les calculs TCAOCC de Lee *et al.* [Lee 2002]. Ces derniers diffèrent assez largement de ceux de ce travail et de Magnier *et al.*. Il faut cependant noter que les potentiels modèle et bases utilisés par ces calculs diffèrent. Il faut aussi remarquer que les valeurs asymptotiques des énergies Rb(*nl*) et Na(*n'l'*) des calculs de ce travail et de Magnier *et al.* coïncident mieux avec les données du NIST que celles obtenues par Lee *et al.* [Lee 2002]. On peut donc penser, à juste titre, que les paramètres des potentiels modèle de ce travail et de Magnier *et al.* sont plus optimisés. De plus, le décalage asymptotique des calculs TCAOCC fait que les pseudo – croisements apparaissent à *R* plus petit. Ceci implique logiquement un décalage des sections efficaces différentielles vers les grands angles de diffusion.



**Figure 5-17 : Comparaison des diagrammes de corrélation pour Na et Rb d'après les calculs de ce travail, pour Na d'après Magnier *et al.* [Magnier 1993b], et pour Na et Rb d'après les calculs TCAOCC de Lee *et al.* [Lee 2002].**

La dernière vérification de la validité des potentiels modèle employés concerne la comparaison des diagrammes de corrélation avec les données expérimentales des molécules de  $\text{Na}_2^+$  [Bordas 1989, Bordas 1990] et de  $\text{Rb}_2^+$  [Jraij 2003]. Les figures 5-18 et 5-19 montrent cette confrontation entre l'expérience et la théorie. L'accord est excellent. Les potentiels modèle de Na et de Rb employés dans ce travail représentent donc correctement les molécules de  $\text{Na}_2^+$  et de  $\text{Rb}_2^+$ , respectivement.

Par ailleurs, il faut noter que, malgré l'absence de test des forces d'oscillateur du potentiel modèle de Rb de ce travail, ce dernier possède des énergies atomiques asymptotiques correctes et représente convenablement la molécule  $\text{Rb}_2^+$ .

Ainsi, le désaccord entre les calculs de ce travail et l'expérience de ce travail ne peut être imputé à l'utilisation de potentiels modèle inadapés.

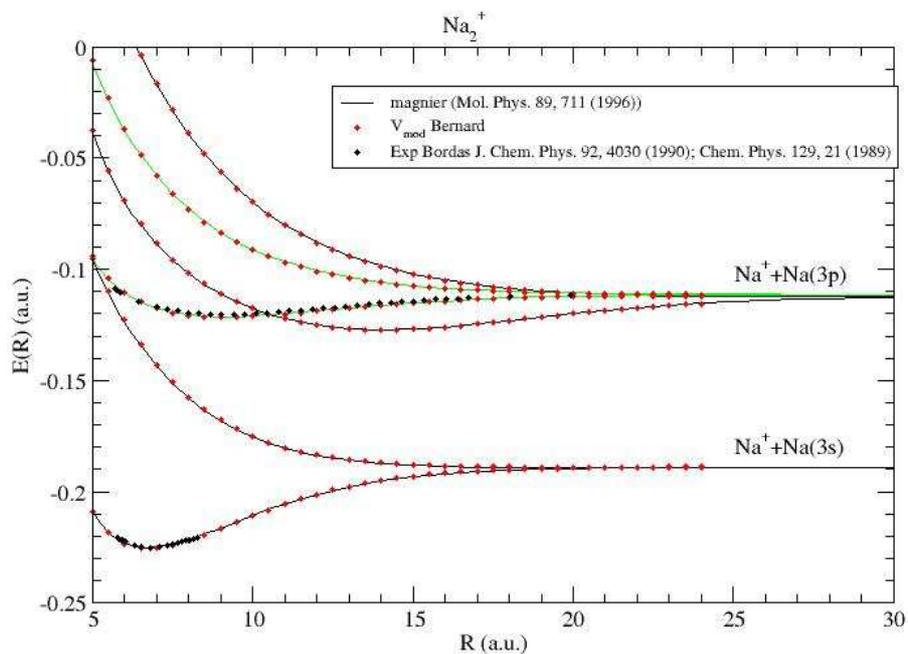


Figure 5-18 : Comparaison des diagrammes de corrélation de la molécule  $\text{Na}_2^+$  d'après les calculs de ce travail et Magnier *et al.* et les expériences de Bordas *et al.*.

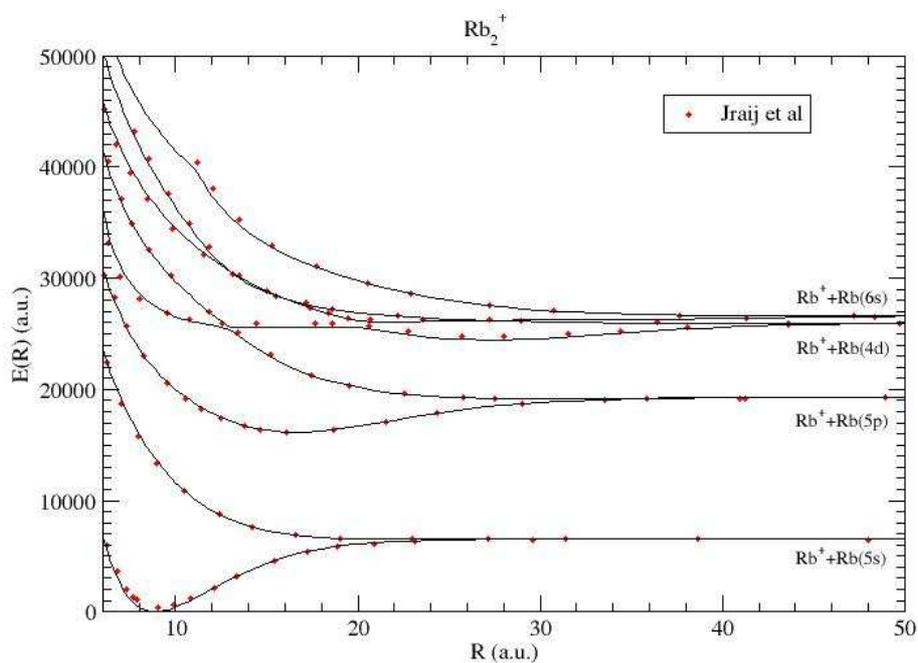


Figure 5-19 : Comparaison des diagrammes de corrélation de la molécule  $\text{Rb}_2^+$  d'après les calculs de ce travail et les expériences de Jraj *et al.*.

### 5.3.4.2.3 Conclusions

Les deux sources plausibles d'erreur théorique ont été explorées pour les calculs de ce travail. Le désaccord entre la théorie et l'expérience de ce travail ne semble provenir ni de l'utilisation des calculs semi – classiques ni de l'utilisation de potentiels modèle inadaptés.

En outre, il faut souligner que les calculs TCAOCC sont moins optimisés que ceux de ce travail. La divergence entre ces deux calculs est partiellement comprise, et on peut affirmer que les calculs MOCC de ce travail ont plus de chance de tendre vers une représentation physique correcte.

### 5.3.4.3 Sources d'erreurs possibles venant de l'expérience

Trois sources d'erreur peuvent venir de l'expérience de ce travail et expliquer le désaccord entre les résultats de cette dernière et ceux des calculs MOCC et de l'expérience de KSU. Deux de ces trois sources ne peuvent être liées qu'à la reconstruction de l'impulsion des ions de recul pour l'obtention de  $P_{R//}^f$  et  $P_{R\perp,y}^f$ .

#### 5.3.4.3.1 Non symétrie cylindrique du spectromètre

La première source d'erreur pourrait venir de la symétrie du spectromètre. En effet, si ce dernier n'a pas de symétrie cylindrique, la reconstruction de l'impulsion de l'ion de recul utilisée (cf. paragraphe 4.6.1) n'autorise pas l'utilisation du seul coefficient  $a_{//}$  et est erronée. Il faudrait alors déterminer deux coefficients distincts  $a_X$  et  $a_Y$  tels que :

$$P_{R//}^f = a_X (X - X_0) \quad (5-8)$$

$$P_{R\perp,y}^f = a_Y (Y - Y_0) \quad (5-9)$$

La composante  $P_{R\perp,y}^f$  ne serait plus déduite aussi facilement de la connaissance de  $a_{//}$ .

Expérimentalement, aucun test n'a pu être effectué pour déceler cette asymétrie du spectromètre *a posteriori*. La seule certitude concerne la constitution mécanique du spectromètre. Ce dernier possède effectivement une symétrie mécanique quasi cylindrique.

Cependant, le seul test effectué repose sur des simulations du spectromètre. D'après les positions des ions de recul et les paramètres de simulation ( $Q$  de réaction et angle de diffusion), les simulations ont révélé que  $a_X$  et  $a_Y$  étaient quasi égaux et présentaient un écart de 1%.

#### 5.3.4.3.2 Présence de champs (électriques et/ou magnétiques) parasites

La deuxième source possible d'erreur expérimentale peut provenir de champs électriques et/ou magnétiques parasites. Ces champs auraient pour effets d'altérer les trajectoires des ions de recul. Dans ce cas, la reconstruction de l'impulsion des ions recul serait alors faussée par rapport à une reconstruction où les trajectoires d'ions de recul sont sans champs.

Il faut quand même noter que l'enceinte du dispositif expérimental et le spectromètre d'extraction des ions de recul sont en acier amagnétique 304L et 316LN, respectivement. L'origine de ces champs serait inconnue.

#### 5.3.4.3.3 *Orientation accidentelle de la cible*

Une dernière source possible d'erreur expérimentale pourrait provenir d'une orientation accidentelle des cibles atomiques. L'interaction entre les lasers de piégeage et les atomes dans leur état fondamental ou leur état excité pourrait provoquer une orientation des cibles atomiques suivant l'axe de polarisation des lasers.

#### 5.3.4.3.4 *Conclusions*

Il vient d'être vu que le désaccord entre l'expérience et les calculs de ce travail ne pouvaient être dû à un problème de symétrie du spectromètre. Celui-ci possède bien une symétrie cylindrique, et la reconstruction de l'impulsion des ions de recul ne peut être remise en cause.

Les deux dernières sources d'erreur possible, plus problématiques si elles s'avéraient, pourraient être liées à des champs parasites, d'origine inconnue, et/ou à une orientation accidentelle des cibles. Aucun test expérimental n'a pu vérifier ces hypothèses pour l'heure.

Par ailleurs, il faut rappeler ici le problème de la grille de post – accélération du détecteur des ions de recul (cf. paragraphe 5.3.1). L'effet de lentille de la grille limite uniquement la résolution sur l'impulsion des ions de recul mais n'altère pas la reconstruction de l'impulsion. S'affranchir de cet effet permettra peut-être de révéler des structures en angle de diffusion et aider à élucider le désaccord entre l'expérience et la théorie. Une modification du dispositif, avec l'ajout d'une grille intermédiaire, pourra améliorer les choses. Des simulations sont en cours.

### 5.3.5 **Conclusion sur les résultats de sections efficaces différentielles**

La première constatation est que les calculs TCAOCC ont moins de chances de décrire correctement la réalité physique des collisions  $\text{Na}^+ + \text{Rb}$ . Les calculs MOCC semblent être plus optimisés.

Par ailleurs, les calculs semi – classiques de ce travail concordent avec les deux expériences MOTRIMS pour les sections efficaces différentielles en  $Q$  de réaction.

L'accord entre ces calculs et les résultats de cette expérience n'est pas optimal pour les sections efficaces doublement différentielles en  $Q$  de réaction et en angle de diffusion. Cependant, l'accord est bon entre les calculs MOCC et l'expérience de KSU pour ces sections efficaces doublement différentielles.

De prime abord, aucune des approximations théoriques utilisées ne pourrait expliquer le désaccord entre les calculs MOCC et cette expérience. Ainsi, on pourrait précipitamment conclure que les calculs de ce travail et l'expérience de KSU, qui concordent, rendent mieux compte de la réalité physique.

Avant cette conclusion, il faut souligner le fait que, dans l'expérience de KSU, la reconstruction de l'impulsion de l'ion de recul est plus complexe et indirecte. Le dispositif de ce travail présente l'avantage d'avoir une reconstruction beaucoup plus directe et sans approximation de l'impulsion. De plus, le dispositif de KSU ne possède pas de commutation rapide du champ magnétique du piège, alors que l'expérience de ce travail en possède une.

Ainsi, le jugement reste en suspend. De nouvelles expériences avec une modification de la grille devraient lever le doute et apporter des éléments définitifs à cette conclusion. Pour l'heure, aucune erreur majeure n'a pu être relevée.

Pour conclure, il faut noter avec attention que, malgré l'utilisation de deux calculs poussés et de deux dispositifs expérimentaux MOTRIMS sophistiqués, les résultats présentent une dispersion non négligeable.



## 6 Conclusion et perspectives

Pour conclure cette dissertation, l'auteur donne une vue d'ensemble de ce travail expérimental et des résultats obtenus. L'auteur y rappelle aussi les enjeux de ce travail. Enfin, il termine en explicitant les perspectives expérimentales à court et à moyen terme du dispositif utilisé, et en discutant des larges perspectives offertes par la technique MOTRIMS.

### 6.1 Conclusions sur cette expérience

Un dispositif expérimental mettant en œuvre la technique MOTRIMS a été conçu et testé. Des atomes de rubidium ont été refroidis et piégés pour servir de cibles lors d'études de collisions avec des projectiles ioniques de sodium. La physique étudiée concerne le phénomène d'échange de charge, aussi appelé capture électronique, qui implique un atome et un ion. Ce phénomène domine les autres phénomènes que sont l'ionisation et l'excitation lorsque la vitesse des projectiles est inférieure à celle de l'électron actif. Cet électron, qui est généralement l'électron le plus périphérique de l'atome cible, transite depuis la cible vers le projectile. La cible ionisée s'appelle ion de recul.

La technique utilisée pour appréhender cette physique dans les meilleures conditions est la technique MOTRIMS, qui associe un piège magnéto – optique et un spectromètre d'impulsion d'ions de recul. Le spectromètre sert à mesurer l'impulsion des ions de recul qui contient toute l'information de la collision : le  $Q$  de réaction (qui est la différence d'énergie potentielle de l'électron actif sur chacun de ses hôtes) et l'angle de diffusion du projectile. Le piège fournit des cibles extrêmement froides afin d'optimiser la mesure de l'impulsion et d'affranchir cette dernière de l'agitation thermique. Au travers d'expériences cinématiquement complètes, la technique MOTRIMS donne accès à d'extraordinaires résolutions sur les mesures d'impulsion.

Plus spécifiquement, le système physique étudié lors de ce travail de thèse était le système  $\text{Na}^+ + {}^{87}\text{Rb}(5S_{1/2}, 5P_{3/2})$  à des énergies de collisions de 2 keV et 5 keV. Ce système présente l'avantage de pouvoir se référer à une étude passée [Lee 2002, Nguyen 2003] utilisant aussi la technique MOTRIMS. L'enjeu de ce travail était de tester ce dispositif, de compléter les conclusions apportées par le travail précédent et d'ajouter une plus-value technique et scientifique.

Dans ce manuscrit, l'auteur a d'abord présenté le cadre théorique qui s'attache à décrire les collisions entre des ions et des atomes dans le régime des basses énergies. Ont ensuite suivi les présentations de la spectroscopie d'impulsion d'ions de recul et du piégeage magnéto – optique, qui convergent pour donner naissance à la technique MOTRIMS. Une autre partie donne tous les détails techniques du dispositif expérimental conçu. Enfin, la dernière partie présente les résultats empiriques obtenus et la confrontation avec la théorie [Errea 1998] et une expérience antérieure [Lee 2002, Nguyen 2003].

Des mesures de sections efficaces différentielles en états initiaux et finaux de capture et en angle de diffusion ont été réalisées. Les résultats obtenus pour les sections efficaces différentielles en états initiaux et finaux sont en accord avec la théorie et l'autre expérience. Néanmoins, quelques désaccords légers avec la théorie et cette autre expérience apparaissent pour les mesures de sections efficaces doublement différentielles. Ces désaccords ne sont pas encore totalement compris. Cela tend à montrer que l'étude de la simple capture électronique, de façon générale et profonde, n'a pas encore révélé toutes les subtilités de ce processus

physique. Il faut rappeler que deux cas composent les études de la simple capture électronique.

i) Le premier cas consiste en des études sur la simple capture induite par des ions multiplement chargés. Dans ce cas, le rayon de capture se situe dans la zone asymptotique. De plus, la voie coulombienne de sortie est suffisamment répulsive pour interdire l'interpénétration des cœurs des cortèges électroniques. Les études menées (cf. paragraphes 1.3 et 1.4) semblent comprises. Le processus physique semble correctement décrit par la théorie, dont les calculs sont facilités par les croisements de type Landau-Zener entre la voie d'entrée non coulombienne et la voie de sortie coulombienne.

ii) Le second cas consiste en des études sur la simple capture induite par des ions simplement chargés. Le travail de cette thèse s'y inscrit entièrement. Dans ce cas, la capture a lieu tout au long de la trajectoire. Il n'y a aucune voie coulombienne et les cœurs peuvent s'interpénétrer. Ceci signifie que les électrons de cœur peuvent participer à l'interaction. Les études de ce processus ne semblent pas totalement comprises. Cette simple capture est moins bien décrite par la théorie (cf. paragraphes 1.4.3.1.1 et 1.4.3.1.2), dont les calculs doivent prendre en compte des croisements de type Demkov pour les voies d'entrée et de sortie, qui sont toutes deux des voies non coulombiennes.

Ainsi, d'autres expériences de simple capture avec des ions simplement chargés sont nécessaires pour comprendre plus finement ce processus physique.

Par ailleurs, la particularité du dispositif expérimental de ce travail, à savoir un faible bruit de fond, permet une grande sensibilité aux canaux de capture faiblement empruntés.

Ainsi, l'auteur de cette thèse peut conclure en affirmant que les objectifs de ce travail sont atteints. Les résultats et les conclusions de la précédente expérience sont complétés. La complémentarité avec la théorie se précise. Enfin, le faible bruit de fond donne une plus-value technique qui débouche sur une plus-value scientifique en révélant distinctement des canaux de capture peu empruntés. Cette thèse a surtout vu la construction d'un nouveau dispositif MOTRIMS avec succès.

## 6.2 Perspectives

Cette thèse offre des perspectives expérimentales à court et à moyen terme, mais aussi à long terme. Le dispositif développé lors de ce travail offre de nombreuses possibilités dans différents domaines.

### 6.2.1 Mise en place d'une double grille

La première perspective expérimentale concerne une modification du dispositif. Il s'agit en effet de placer une seconde grille au niveau du détecteur des ions de recul. Cette seconde grille permettrait d'atténuer les transitions de champ électrique liées à la post – accélération. Elle permettrait aussi d'améliorer la résolution sur la mesure de l'impulsion des ions de recul.

Des simulations préliminaires vont en ce sens et montrent que l'ajout d'une seconde grille atténue l'effet de lentille dû à la présence d'une seule grille. De nouvelles expériences avec une résolution accrue apporteraient des éléments permettant d'expliquer les désaccords entre la théorie et l'expérience observés dans ce travail.

### 6.2.2 Mesures de fraction excitée

Le paragraphe 5.2.4 présente l'élégante technique qui permet de déterminer la fraction excitée d'un nuage d'atomes froids. Les expressions analytiques [Demtröder 2002] de cette fraction excitée n'ont pas encore été testées. Une première approche MOTRIMS piégeant du  $^{87}\text{Rb}$  [Shah 2007] a obtenu de probants résultats pour une confrontation de ces modèles avec l'expérience.

Une expérience réalisable à court terme consisterait donc à faire des mesures de fraction excitée. La première série d'expériences pourrait essayer de conforter les conclusions de Shah *et al.* sur le  $^{87}\text{Rb}$ . Une seconde série viserait à faire des mesures identiques avec le  $^{85}\text{Rb}$ .

### 6.2.3 Cibles anisotropes : alignement et orientation

La technique MOTRIMS pourrait participer à des expériences de collisions avec des cibles orientées et polarisées. Andersen et Bartschat [Andersen 2001] dressèrent le panorama foisonnant des études de processus de capture électronique pour lesquelles les expérimentateurs trouvèrent d'importantes asymétries de diffusion angulaire à de faibles énergies de collision, en particulier celles avec des bombardements protoniques ou d'alcalins ioniques sur des cibles anisotropes optiquement préparées comme  $\text{Na}(3p)$ . Cependant, aucune expérience de ce type n'utilisa la technique MOTRIMS et son pouvoir de résolution, crucial pour révéler la finesse de structures caractéristiques.

L'une des perspectives de ce travail est d'utiliser la technique MOTRIMS lors de collisions avec des cibles orientées  $\text{Rb}(5p)$ , et ainsi de compléter, grâce à une excellente résolution, les données existantes. Le dispositif expérimental (cf. paragraphe 4.2.1) comporte tous les éléments pour entreprendre de telles expériences.

### 6.2.4 Sections efficaces absolues

Comme il a été vu au paragraphe 3.3.3, la détermination de sections efficaces absolues à l'aide de la technique MOTRIMS n'a jusqu'à ce jour pas encore été entreprise. L'auteur rappelle que les paramètres expérimentaux difficilement contrôlables, et indispensables pour déterminer des sections efficaces absolues, sont le courant d'ions projectiles incidents, le profil du faisceau ionique, la densité de la cible, et le recouvrement entre le faisceau ionique et le nuage d'atomes froids.

L'une des perspectives expérimentales de ce travail est la détermination de sections efficaces absolues à l'aide de notre dispositif.

En effet, le courant du faisceau d'ions projectiles incidents peut être directement mesuré grâce à la cage de Faraday, située en aval du déflecteur d'analyse. Le profil du faisceau ionique de ce dispositif est contraint par un collimateur en amont de la zone de collision, et tous les ions projectiles passant par le spectromètre peuvent être collectés sur cette cage.

De plus, le paragraphe 4.2.4.2 démontre que la densité de la cible peut être mesurée à l'aide de ce dispositif expérimental.

Enfin, la dernière difficulté technique concerne le recouvrement entre le faisceau projectile et le nuage cible. Le dispositif de ce travail peut néanmoins parer à ce problème. En effet, la mesure du recouvrement peut être réalisée à l'aide d'un balayage spatial (dans un plan perpendiculaire au faisceau ionique) du nuage d'atomes froids. Or ce balayage est réalisable à l'aide d'un petit champ magnétique créé par des bobines de corrections.

Ainsi, le dispositif de ce travail possède tous les éléments pour mesurer les sections efficaces absolues.

### 6.2.5 Applications futures de la technique MOTRIMS

Originellement, la technique MOTRIMS fut développée pour des mesures de sections efficaces de capture électronique, différentielles en angles de diffusion et en états quantiques du projectile et de la cible. De plus, les expérimentateurs firent ces mesures avec des projectiles simplement et multiples chargés. De manière imprévue, ils s'attaquèrent aussi avec succès à l'étude de la dynamique des populations de la cible. C'est pourquoi, dans cette partie, l'auteur présente les perspectives, multiples et variées, en termes d'expériences et d'applications futures utilisant la technique MOTRIMS.

#### 6.2.5.1 Collisions électroniques

Gericke *et al.* [Gericke 2006], s'appuyant sur le fait que la technique MOTRIMS, en principe, peut être utilisée pour des collisions électroniques, montent une expérience prometteuse. Ils envisagent de reconstruire les corrélations spatiales d'atomes dans des gaz quantiques extrêmement froids. Pour y parvenir, ils comptent ioniser ces atomes à l'aide d'un faisceau focalisé d'électrons balayant le nuage d'atomes piégés. Une position donnée du faisceau d'électrons donnera des informations sur la densité locale du nuage et sur les corrélations spatiales des atomes. Gericke *et al.* attendent une résolution spatiale de l'ordre de 100 nm, meilleure que celle des méthodes optiques. Un spectromètre d'impulsions d'ions de recul reconstruira les positions auxquelles les atomes auront été ionisés par le faisceau d'électrons. Ainsi, Gericke *et al.* comptent obtenir une image tridimensionnelle du nuage d'atomes froids, ce qui serait une avancée intéressante dans le cadre des processus d'information quantique.

#### 6.2.5.2 Photo – ionisation et ionisation photo – associative

Bien que la technique MOTRIMS soit un outil sophistiqué pour étudier les interactions entre particules chargées, un de ses champs d'investigation future pourrait être l'interaction entre des cibles atomiques et des photons. Le rayonnement synchrotron, avec sa large gamme de fréquences accessibles, pourrait être utilisé pour ioniser des cibles froides d'un piège magnéto – optique. De même, les expérimentateurs pourraient envisager d'associer la technique MOTRIMS à la technologie des lasers à impulsions ultra – courtes.

Coutinho *et al.* [Coutinho 2004], utilisant un dispositif presque similaire à celui de la technique MOTRIMS et associé à des photons de 12 à 40 eV, issus d'un rayonnement synchrotron, étudièrent la distribution angulaire des fragments photo – ionisés de cibles de césium, refroidies et piégées avec des lasers. Peut-être ouvriront-ils une nouvelle voie pour la technique MOTRIMS, qui devrait profiter, dans les années à venir, des nombreuses possibilités offertes par les anneaux de stockage modernes et leurs hautes intensités dans le domaine des radiations ultraviolettes.

Par ailleurs, la technique MOTRIMS devrait s'investir dans le domaine des lasers modernes à impulsions de l'ordre de la femtoseconde ou de l'attoseconde, qui laissent entrevoir des opportunités en physique atomique, moléculaire et optique.

Comme première expérience de ce type, par exemple, l'expérimentateur pourrait profiter de la largeur spectrale d'un laser saphir – titane à pulse ultra – court, inférieur à 30 fs et de longueur d'onde centrale 790 nm, et irradier des cibles froides de rubidium. En effet, le spectre fréquentiel est suffisamment large pour autoriser une photo – ionisation triplement résonante le long du chemin de transitions optiques  $5s - 5p - 5d - \epsilon l$ . Peut-être la modulation en fréquence et en phase du pulse influencerait-elle le taux d'ionisation du rubidium. Une mesure intéressante de ce genre serait facilement réalisable avec le spectromètre en temps de vol et le faible champ électrique d'un dispositif MOTRIMS.

D'une autre manière, un laser à impulsions ultra – courtes pourrait sonder la dynamique de populations d'un nuage d'atomes froids. Gearba *et al.* [Gearba 2007] utilisèrent un faisceau de  $\text{Na}^+$ , mais rien n'empêche d'utiliser un laser à la place des ions projectiles pour ioniser les cibles atomiques. Ainsi, deux lasers continueraient à transférer les populations des niveaux de manière cohérente, tandis qu'un troisième laser à impulsions sonderait le nuage, ce type d'expérience pouvant bénéficier de la haute résolution sur l'impulsion des ions de recul de la technique MOTRIMS.

Salzmann *et al.* [Salzmann 2006] commencèrent des expériences de photo – association induite par des pulses lasers, de l'ordre de la femtoseconde et mis en forme, dans un piège magnéto – optique. Ils utilisèrent un laser supplémentaire pour ioniser les molécules précédemment photo – associées, ainsi qu'un spectromètre d'impulsion pour extraire les ions formés. Le taux de comptage des ions moléculaires, reconnus par leur temps de vol caractéristique, s'inscrivait dans une boucle d'asservissement pour asservir la mise en forme des pulses lasers ultra – courts, et afin d'optimiser le processus de photo – association en utilisant un algorithme génétique [Assion 1998]. Salzmann *et al.* démontrèrent, à l'aide de leur dispositif MOTRIMS, qu'ils étaient capable d'améliorer la production de molécules extrêmement froides dans un piège magnéto – optique en mettant en forme les pulses lasers ultra – courts.

Un des inconvénients conceptuels de la technique MOTRIMS réside dans le fait qu'un piège magnéto – optique ne peut refroidir ni piéger des molécules. En effet, les systèmes moléculaires ne disposent pas de transitions optiques cycliques bien définies pour le piégeage. Néanmoins, si l'efficacité de production des processus de photo – association augmente, que ce soit avec des lasers quasi continus à largeurs de bandes étroites [Jones 2006] ou avec des lasers à impulsions ultra – courtes, comme il vient d'être vu, la technique MOTRIMS pourra s'appliquer à des cibles moléculaires extrêmement froides. Si les progrès futurs de la technologie de photo – association le permettent, les molécules pourraient être froides en termes de translations voire même de vibrations. La technique MOTRIMS pourrait jouer un rôle dans le développement de cette technologie. Grâce à son exceptionnelle résolution, l'expérimentateur pourrait même observer les distributions de populations de niveaux de vibration en dissociant des molécules lors de collisions. Il aurait aussi la possibilité de mesurer l'alignement de molécules froides grâce à l'axe de polarisation défini par le laser photo – associatif, les ions moléculaires de recul pouvant être analysés en temps et en position. Enfin, pour des systèmes hétéro – nucléaires, le physicien pourrait même étudier l'orientation moléculaire avec ces outils.

### 6.2.5.3 Piégeage d'atomes radioactifs

Un des champs d'application prometteurs de la technique MOTRIMS est la physique nucléaire des interactions fondamentales. Cette technique, originellement issue de la physique atomique, vise à mesurer précisément les processus radioactifs de décroissance bêta pour observer les corrélations angulaires entre les électrons/positrons et les antineutrinos/neutrinos

émis. Etant donné que l'observation directe des neutrinos, et de leurs antiparticules, est presque impossible, seule la conservation de l'énergie et de l'impulsion aiguille le physicien, qui en déduit les corrélations recherchées à l'aide d'une mesure de coïncidence entre la particule de recul et l'électron émis.

Scielzo *et al.* [Scielzo 2004] et Gorelov *et al.* [Gorelov 2005] rapportèrent les travaux pionniers. Scielzo *et al.* étudièrent la décroissance bêta de  $^{21}\text{Na}$  refroidis dans un piège magnéto – optique en mesurant l'énergie des noyaux de recul  $^{21}\text{Ne}^+$  résultants. Ils utilisèrent une méthode de temps de vol et exploitèrent le fait que la distribution en énergie des ions de reculs influence la corrélation angulaire : l'émission de deux leptons dans des directions identiques ou opposées mène à une énergie de recul plus grande ou plus petite, respectivement. Lors de leurs recherches, Scielzo *et al.* ne trouvèrent aucune déviation significative, pour les mesures de corrélation angulaire, par rapport aux prédictions du modèle standard. La mesure plus récente de Vetter *et al.* [Vetter 2008], obtenue avec un dispositif similaire piégeant du  $^{21}\text{Na}$ , confirme ce résultat. Gorelov *et al.* étudièrent la décroissance bêta de  $^{38}\text{K}$  métastables refroidis en faisant des mesures de coïncidence entre les électrons émis et les noyaux de recul Ar. Là non plus, aucune déviation par rapport aux prédictions théoriques du modèle standard ne fut trouvée.

Pour des mesures plus complètes de corrélations angulaires, l'expérimentateur doit polariser le spin nucléaire des cibles. De telles expériences sont en train d'être préparées à Groningen [Jungmann 2002, Berg 2006]. Les atomes froids d'un piège magnéto – optique étant non polarisés, par construction géométrique de trois paires de lasers mutuellement perpendiculaires et polarisées circulairement, une des méthodes pour produire des cibles polarisées consiste à éteindre deux paires de lasers pendant une courte période de temps, de sorte que la paire allumée produise une polarisation électronique circulaire, qui elle-même produit éventuellement la polarisation désirée du spin nucléaire via le couplage hyperfin. Dans cette optique, la distribution angulaire des leptons et des ions de recul est également mesurée en fonction du spin nucléaire. De telles mesures peuvent notamment donner accès à de possibles violations de symétrie par renversement du temps.

## 7 Références bibliographiques

- [Aberth 1966] W. Aberth, D. C. Lorents, *Phys. Rev.* 144, 109 (1966)
- [Abrines 1966] R. Abrines, I. C. Percival, *Proc. Phys. Soc.* 88, 861 (1966)
- [Ali 1992] R. Ali, V. Frohne, C. L. Cocke, M. Stöckli, S. Cheng, M. L. A. Raphaelian, *Phys. Rev. Lett.* 69, 2491 (1992)
- [Andersen 2001] N. Andersen, K. Bartschat, "Polarisation, Alignment and Orientation in Atomic Collisions", Springer (2001)
- [Anderson 1995] M. H. Anderson, J. R. Enser, M. R. Matthews, C. Wieman, E. A. Cornell, *Science* 269 (1995)
- [Andreev 1981] S. V. Andreev, V. I. Balykin, V. S. Letokhov, V. G. Minogin, *JETP Lett.* 34, 442 (1981)
- [Ashkin 1970a] A. Ashkin, *Phys. Rev. Lett.* 24, 156 (1970)
- [Ashkin 1970b] A. Ashkin, *Phys. Rev. Lett.* 25, 1321 (1970)
- [Assion 1998] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, G. Gerber, *Science* 282, 919 (1998)
- [Aumayr 1987a] F. Aumayr, H. Winter, *J. Phys. B* 20, L803 (1987)
- [Aumayr 1987b] F. Aumayr, G. Lakits, H. Winter, *J. Phys. B* 20, 2025 (1987)
- [Aumayr 1992] F. Aumayr, M. Gielera, J. Schweinzer, H. P. Winter, J. P. Hansen, *Phys. Rev. Lett.* 68, 3277 (1992)
- [Aumayr 2004] F. Aumayr, H. Winter, *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* 362, 77 (2004)
- [Aumayr 2008] F. Aumayr, A. S. El-Said, W. Meissl, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B* 266, 2729 (2008)
- [Aymar 2003] M. Aymar, S. Azizi, O. Dulieu, *J. Phys. B* 36, 4799 (2003)
- [Balykin 1984] V. I. Balykin, V. S. Letokhov, A. I. Sidorov, *JETP Lett.* 40, 1149 (1984)
- [Barany 1985] A. Barany, G. Astner, H. Cederquist, H. Danared, S. Huldt, P. Hvelplund, A. Johnson, H. Knudsen, L. Liljeby, K. G. Rensfelt, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B* 9, 397 (1985)
- [Barat 1987] M. Barat, M. N. Gaboriaud, L. Guillemot, P. Roncin, H. Laurent, S. Andriamonje, *J. Phys. B* 20, 5771 (1987)
- [Barat 1990] M. Barat, P. Roncin, L. Guillemot, M. N. Gaboriaud, H. Laurent, *J. Phys. B* 23, 2811 (1990)
- [Barat 1992] M. Barat, P. Roncin, *J. Phys. B* 25, 2205 (1992)
- [Baudon 1968] J. Baudon, M. Barat, M. Abignoli, *J. Phys. B* 1, 1083 (1968)
- [Bazin 2002] V. Bazin, P. Boduch, M. Chantepie, E. Jacquet, H. Kucal, D. Lecler, J. Pascale, *Phys. Rev. A* 65, 032712 (2002)
- [Bennett 1999] S. C. Bennett, C. E. Wieman, *Phys. Rev. Lett.* 82, 2484 (1999)
- [Beiersdorfer 2001] P. Beiersdorfer, C. M. Lisse, R. E. Olson, G. V. Brown, H. Chen, *ApJ* 549, L147 (2001)
- [Benoit-Cattin 1988] P. Benoit-Cattin, A. Bordenave-Montesquieu, M. Boudjema, A. Gleizes, S. Dousson, D. Hitz, *J. Phys. B* 21, 3387 (1988)
- [Berg 2006] G. P. A. Berg, O. C. Dermois, U. Dammalapati, P. Dendooven, M. N. Harakeh, K. Jungmann, C. J. G. Onderwater, A. Rogachevskiy, M. Sohani, E. Traykov, L. Willmann, H. W. Wilschut, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A* 560, 169 (2006)

- [Bergmann 1998] K. Bergmann, H. Theuer, B. W. Shore, *Rev. Mod. Phys.* 70, 1003 (1998)
- [Bliman 1992] S. Bliman, J. Nordgren, E. J. Knystautas, M. G. Surraud, *J. Phys. B* 25, L435 (1992)
- [Bodewits 2004] D. Bodewits, Z. Juhasz, R. Hoekstra, A. G. G. M. Tielens, *ApJ* 606, L81 (2004)
- [Boduch 1989] P. Boduch, M. Chantepie, D. Hennecart, X. Husson, H. Kucal, D. Lecler, I. Lesteven-Vaïsse, *J. Phys. B* 22, L377 (1989)
- [Boduch 1992a] P. Boduch, M. Chantepie, D. Hennecart, X. Husson, D. Lecler, M. Druetta, M. Wilson, *Phys. Scr.* 46, 337 (1992)
- [Boduch 1992b] P. Boduch, M. Chantepie, D. Hennecart, X. Husson, H. Kucal, D. Lecler, N. Stolterfoht, M. Druetta, B. Fawcett, M. Wilson, *Phys. Scr.* 45, 203 (1992)
- [Bohr 1954] N. Bohr, J. Lindhard, *K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd.* 28, 7 (1954)
- [Bordas 1989] C. Bordas, P. Labastie, J. Chevaleyre, M. Broyer, *Chem. Phys.* 129, 21 (1989)
- [Bordas 1990] C. Bordas, P. Labastie, J. Chevaleyre, M. Broyer, *J. Chem. Phys.* 92, 4030 (1990)
- [Bordenave-Montesquieu 1984] A. Bordenave-Montesquieu, P. Benoit-Cattin, M. Boudjema, A. Gleizes, H. Bachau, *J. Phys. B* 17, L127 (1984)
- [Bordenave-Montesquieu 1987] A. Bordenave-Montesquieu, P. Benoit-Cattin, A. Gleizes, A. I. Marrakchi, S. Dousson, D. Hitz, *J. Phys. B* 20, L695 (1987)
- [Bordenave-Montesquieu 1994] A. Bordenave-Montesquieu, P. Moretto-Capelle, A. Gonzalez, M. Benhenni, H. Bachau, I. Sanchez, *J. Phys. B* 27, 4243 (1994)
- [Bottcher 1974] C. Bottcher, A. Dalgarno, *Proc. R. Soc.* 340, 187 (1974)
- [Boudjema 1991] M. Boudjema, M. Cornille, J. Dubau, P. Moretto-Capelle, A. Bordenave-Montesquieu, P. Benoit-Cattin, A. Gleizes, *J. Phys. B* 24, 1713 (1991)
- [Bransden 1992] B. H. Bransden, M. R. C. McDowell, "Charge Exchange and the Theory of Ion – Atom Collisions", Clarendon Press, Oxford (1992)
- [Brédy 2003] R. Brédy, H. Nguyen, H. A. Camp, X. Fléchar, B. D. DePaola, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B* 205, 191 (2003)
- [Briand 1990] J.-P. Briand, L. de Billy, P. Charles, S. Essabaa, P. Briand, R. Geller, J.-P. Desclaux, S. Bliman, C. Ristori, *Phys. Rev. Lett.* 65, 159 (1990)
- [Briggs 2000] J. S. Briggs, V. Schmidt, *J. Phys. B* 33, R1 (2000)
- [Brinkman 1930] H. C. Brinkman, H. A. Kramers, *Proc. Acad. Sci. Amsterdam* 33, 973 (1930)
- [Cassimi 1996] A. Cassimi, S. Duponchel, X. Fléchar, P. Jardin, P. Sortais, D. Hennecart, R. E. Olson, *Phys. Rev. Lett.* 76, 3679 (1996)
- [Cederquist 1995] H. Cederquist, C. Biedermann, N. Selberg, *Phys. Rev. A* 51, 2169 (1995)
- [Chen 1996] L. Chen, J. Bernard, S. Martin, A. Denis, J. Désesquelles, *Phys. Rev. A* 54, 3049 (1996)
- [Chesnel 1996a] J. Y. Chesnel, H. Merabet, F. Frémont, G. Cremer, X. Husson, D. Lecler, G. Rieger, A. Spieler, M. Grether, N. Stolterfoht, *Phys. Rev. A* 53, 4198 (1996)

- [Chesnel 1996b] J. Y. Chesnel, H. Merabet, X. Husson, F. Frémont, D. Lecler, H. Jouin, C. Harel, N. Stolterfoht, *Phys. Rev. A* 53, 2337 (1996)
- [Chesnel 1998] J. Y. Chesnel, B. Sulik, H. Merabet, C. Bedouet, F. Frémont, X. Husson, M. Grether, A. Spieler, N. Stolterfoht, *Phys. Rev. A* 57, 3546 (1998)
- [Chu 1985] S. Chu, L. Hollberg, J. E. Bjorkholm, A. Cable, A. Ashkin, *Phys. Rev. Lett.* 55, 48 (1985)
- [Cocke 1979] C. L. Cocke, *Phys. Rev. A* 20, 749 (1979)
- [Cocke 1981] C. L. Cocke, R. Dubois, T. J. Gray, E. Justiniano, C. Can, *Phys. Rev. Lett.* 46, 1671 (1981)
- [Cocke 1991] C. L. Cocke, R. E. Olson, *Phys. Rep.* 205, 155 (1991)
- [Cornelius 2000] K. R. Cornelius, K. Wojtkowski, R. E. Olson, *J. Phys. B* 33, 2017 (2000)
- [Coutinho 2004] L. H. Coutinho, R. L. Cavasso-Filho, T. C. R. Rocha, M. G. P. Homem, D. S. L. Figueira, P. T. Fonseca, F. C. Cruz, A. N. de Brito, *Phys. Rev. Lett.* 93, 183001 (2004)
- [Crane 2000] S. G. Crane, X. Zhao, W. Taylor, D. J. Vieira, *Phys. Rev. A* 62, 011402 (2000)
- [Crane 2001] S. G. Crane, S. J. Brice, A. Goldschmidt, R. Guckert, A. Hime, J. J. Kitten, D. J. Vieira, X. Zhao, *Phys. Rev. Lett.* 86, 2967 (2001)
- [Cravens 1997] T. E. Cravens, *Geophys. Res. Lett.* 24, 105 (1997)
- [Delion 1994] D. S. Delion, A. Insolia, R. J. Liotta, *Phys. Rev. C* 49, 3024 (1994)
- [Demkov 1964] Y. N. Demkov, *Sov. Phys. – JETP* 18, 138 (1964)
- [Demtröder 2002] W. Demtröder, "Laser Spectroscopy: Basic Concepts and Instrumentation", Springer (2002)
- [DePaola 2008] B. D. DePaola, R. Morgenstern, N. Andersen, *Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics* 55, 139 – 189 (2008)
- [de Vries 2003] J. de Vries, R. Hoekstra, R. Morgenstern, T. Schlathölter, *Phys. Rev. Lett.* 91, 053401 (2003)
- [Dijkkamp 1984] D. Dijkkamp, A. Brazuk, A. G. Drentje, F. J. de Heer, H. Winter, *J. Phys. B* 17, 4371 (1984)
- [Dijkkamp 1985a] D. Dijkkamp, Y. S. Gordeev, A. Brazuk, A. G. Drentje, F. J. de Heer, *J. Phys. B* 18, 737 (1985)
- [Dijkkamp 1985b] D. Dijkkamp, D. Ciric, E. Vlieg, A. de Boer, F. J. de Heer, *J. Phys. B* 18, 4763 (1985)
- [Dorn 1999] A. Dorn, R. Moshhammer, C. D. Schröter, T. J. M. Zouros, W. Schmitt, H. Kollmus, R. Mann, J. Ullrich, *Phys. Rev. Lett.* 82, 2496 (1999)
- [Dorn 2001] A. Dorn, A. Kheifets, C. D. Schröter, B. Najjari, C. Höhr, R. Moshhammer, J. Ullrich, *Phys. Rev. Lett.* 86, 3755 (2001)
- [Dörner 2000] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer, H. Schmidt – Böcking, *Phys. Rep.* 330, 95 – 192 (2000)
- [Dowek 1990] D. Dowek, J. C. Houver, J. Pommier, C. Richter, T. Royer, N. Andersen, B. Palsdottir, *Phys. Rev. Lett.* 64, 1713 (1990)
- [Dowek 2002] D. Dowek, I. Reiser, S. Grego, N. Andersen, A. Dubois, J. C. Houver, S. E. Nielsen, C. Richter, J. Salgado, A. Svensson, J. W. Thomsen, *J. Phys. B* 35, 705 (2002)
- [Druetta 1986] M. Druetta, T. Bouchama, S. Martin, *J. Phys. B* 19, L723 (1986)
- [Druetta 1987] M. Druetta, S. Martin, T. Bouchama, C. Harel, H. Jouin, *Phys. Rev. A* 36, 3071 (1987)

- [Druetta 1995] M. Druetta, D. Hitz, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B 98, 211 (1995)
- [Dubois 1985] R. D. Dubois, L. H. Toburen, Phys. Rev. A 31, 3603 (1985)
- [Dubois 1986] R. D. Dubois, Phys. Rev. A 34, 2738 (1986)
- [Duponchel 1997] S. Duponchel, thèse de doctorat, Université de Caen (1997)
- [Ebel 1987] F. Ebel, E. Salzborn, J. Phys. B 20, 4531 (1985)
- [Einstein 1917] A. Einstein, Physik. Z. 18, 121 (1917)
- [El-Said 2008] A. S. El-Said, R. Heller, W. Meissl, R. Ritter, S. Facsko, C. Lemell, B. Solleder, I. C. Gebeshuber, G. Betz, M. Toulemonde, W. Möller, J. Burgdörfer, F. Aumayr, Phys. Rev. Lett. 100, 237601 (2008)
- [Errea 1994] L. F. Errea, C. Harel, H. Jouin, L. Méndez, B. Pons, A. Riera, J. Phys. B 27, 2603 (1994)
- [Errea 1998] L. F. Errea, C. Harel, H. Jouin, L. Méndez, B. Pons, A. Riera, J. Phys. B 31, 3527 (1998)
- [Everhart 1965] E. Everhart, Q. C. Kessel, Phys. Rev. Lett. 14, 247 (1965)
- [Federenko 1956] N. V. Federenko, V. V. Afromisov, Sov. Phys.-Tech. Phys. 1, 1872 (1956)
- [Flécharde 1997] X. Flécharde, S. Duponchel, L. Adoui, A. Cassimi, P. Roncin, D. Hennecart, J. Phys. B 30, 3697 (1997)
- [Flécharde 1999] X. Flécharde, thèse de doctorat, Université de Caen (1999)
- [Flécharde 2001] X. Flécharde, H. Nguyen, E. Wells, I. Ben-Itzhak, B. D. DePaola, Phys. Rev. Lett. 87, 123203 (2001)
- [Flécharde 2003] X. Flécharde, H. Nguyen, R. Brédy, S. R. Lundeen, M. Stauffer, H. A. Camp, C. W. Fehrenbach, B. D. DePaola, Phys. Rev. Lett. 91, 243005 (2003)
- [Frémont 1992] F. Frémont, K. Sommer, D. Lecler, S. Hicham, P. Boduch, X. Husson, N. Stolterfoht, Phys. Rev. A 46, 222 (1992)
- [Frémont 1993] F. Frémont, K. Sommer, S. Hicham, P. Boduch, D. Lecler, N. Stolterfoht, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B 79, 3 (1993)
- [Frémont 1994] F. Frémont, H. Merabet, J. Y. Chesnel, X. Husson, A. Lepoutre, D. Lecler, G. Rieger, N. Stolterfoht, Phys. Rev. A 50, 3117 (1994)
- [Frémont 1996] F. Frémont, C. Bedouet, J. Y. Chesnel, H. Merabet, X. Husson, Phys. Rev. A 54, 4609 (1996)
- [Frisch 1933] R. Frisch, Z. Phys. 86, 42 (1933)
- [Fritsch 1984] W. Fritsch, Phys. Rev. A 30, 3324 (1984)
- [Fritsch 1991] W. Fritsch, C. D. Lin, Phys. Rep. 202, 1 (1991)
- [Fuls 1957] E. N. Fuls, P. R. Jones, F. P. Ziembra, E. Everhart, Phys. Rev. 107, 704 (1957)
- [Fuselier 1991] S. A. Fuselier, E. G. Shelley, B. E. Goldstein, R. Goldstein, M. Neugebauer, Astrophys. J. 379, 734 (1991)
- [Gaboriaud 1993] M. N. Gaboriaud, P. Roncin, M. Barat, J. Phys. B 26, L303 (1993)
- [Gearba 2007] M. A. Gearba, H. A. Camp, M. L. Trachy, G. Veshapidze, M. H. Shah, H. U. Jang, B. D. DePaola, Phys. Rev. A 76, 013406 (2007)
- [Gericke 2006] T. Gericke, C. Utfeld, N. Hommerstad, H. Ott, Laser Phys. Lett. 3, 415 (2006)
- [Gorelov 2005] A. Gorelov, D. Melconian, W. P. Alford, D. Ashery, G. Ball, J. A. Behr, P. G. Bricault, J. M. D'Auria, J. Deutsch, J. Dilling, M. Dombisky, P. Dubé, J. Fingler, U. Giesen, F. Glück, S. Gu, O. Häusser, K. P. Jackson, B. K. Jennings, M. R. Pearson, T. J. Stocki, T. B. Swanson, M. Trinczek, Phys. Rev. Lett. 94, 142501 (2005)

- [Guillemot 1990] L. Guillemot, P. Roncin, M. N. Gaboriaud, H. Laurent, M. Barat, J. Phys. B 23, 4293 (1990)
- [Hamamatsu] [www.hamamatsu.com](http://www.hamamatsu.com)
- [Hänsch 1975] T. W. Hänsch, A. L. Schawlow, Opt. Comm. 13, 68 (1975)
- [Harel 1980] C. Harel, A. Salin, J. Phys. B 13, 785 (1980)
- [Hasan 2007] V. G. Hasan, S. Knoop, R. Morgenstern, R. Hoekstra, Journal of Physics: Conference Series 58, 199 (2007)
- [Heat Wave Labs] <http://www.heatwavelabs.com>
- [Hennecart 2005] D. Hennecart, J. Pascale, Phys. Rev. A 71, 012710 (2005)
- [Henriet 1983] A. Henriët, F. Masnou – Seeuws, Chem. Phys. Lett. 101, 535 (1983)
- [Henriet 1984] A. Henriët, M. Aubert – Frécon, C. Le Sech, F. Masnou – Seeuws, J. Phys. B 17, 3417 (1984)
- [Henriet 1985] A. Henriët, J. Phys. B 18, 3085 (1985)
- [Henriet – Scavennec 1983] A. Henriët – Scavennec, thèse de l'Université Paris – Sud (1983)
- [Hoekstra 1991] R. Hoekstra, F. J. de Heer, R. Morgenstern, J. Phys. B 24, 4025 (1991)
- [Hoekstra 1993a] R. Hoekstra, J. P. M. Beijers, F. J. de Heer, R. Morgenstern, Z. Phys. D 25, 209 (1993)
- [Hoekstra 1993b] R. Hoekstra, R. E. Olson, H. O. Folkerts, E. Wolfrum, J. Pascale, F. J. de Heer, R. Morgenstern, H. Winter, J. Phys. B 26, 2029 (1993)
- [Hoekstra 2007] R. Hoekstra, D. Bodewits, S. Knoop, R. Morgenstern, L. Mendez, L. F. Errea, C. Illescas, A. Macias, B. Pons, A. Riera, F. Aumayr, H. P. Winter, Atomic and Plasma-Material Interaction Data for Fusion 13, 8 (2007)
- [Holt 1991] R. A. Holt, M. H. Prior, K. L. Randall, R. Hutton, J. MacDonald, D. Schneider, Phys. Rev. A 43, R607 (1991)
- [Horsdal – Pedersen 1983] E. Horsdal – Pedersen, C. L. Cocke, M. Stöckli, Phys. Rev. Lett. 50, 1910 (1983)
- [Houver 1992] J. C. Houver, D. Dówek, C. Richter, N. Andersen, Phys. Rev. Lett. 68, 162 (1992)
- [Htwe 1994] W. T. Htwe, T. Vajnai, M. Barnhart, A. D. Gaus, M. Schulz, Phys. Rev. Lett. 73, 1348 (1994)
- [Huang 2002] M.-T. Huang, L. Zhang, S. Hasegawaq, S. H. Southworth, L. Young, Phys. Rev. A 66, 012715 (2002)
- [Huang 2003] M.-T. Huang, W. W. Wong, M. Inokuti, S. H. Southworth, L. Young, Phys. Rev. Lett. 90, 163201 (2003)
- [Huber 1980] B. A. Huber, J. Phys. B 13, 809 (1980)
- [Huber 1984] B. A. Huber, H. J. Kahlert, J. Phys. B 17, 69 (1984)
- [Isler 1978] R. C. Isler, E. C. Crume, Phys. Rev. Lett. 41, 1296 (1978)
- [Isler 1994] R. C. Isler, Plasma Phys. Control. Fusion 36, 171 (1994)
- [Itoh 1982] Y. Itoh, N. Kobayashi, Y. Kaneko, J. Phys. Soc. Japan 51, 2977 (1982)
- [Jacobs 1993] J. P. Jacobs, W. M. Klipstein, S. K. Lamoreaux, B. R. Heckel, E. N. Fortson, Phys. Rev. Lett. 71, 3782 (1993)
- [Jacquet 1993] E. Jacquet, P. Boduch, M. Chantepie, M. Druetta, D. Hennecart, X. Husson, D. Lecler, R. E. Olson, J. Pascale, N. Stolterfoht, M. Wilson, Phys. Scr. 47, 618 (1993)
- [Jacquet 1995] E. Jacquet, J. Pascale, P. Boduch, M. Chantepie, D. Lecler, J. Phys. B 28, 2221 (1995)
- [Jacquet 2000] E. Jacquet, H. Kucal, V. Bazin, P. Boduch, M. Chantepie, G. Cremer, C. Laulhe, D. Lecler, J. Pascale, Phys. Rev. A 62, 022712 (2000)

- [Jagutzki 1995] O. Jagutzki, PhD Thesis Johann-Wolfgang-Goethe Universität Frankfurt (1995)
- [Jain 1995] A. Jain, T. G. Winter, Phys. Rev. A 51, 2963 (1995)
- [Janev 1983] R. K. Janev, D. S. Belic, B. H. Brandsen, Phys. Rev. A 28, 1293 (1983)
- [Janev 1985] R. K. Janev, H. P. Winter, Phys. Rep. 117, 265 (1985)
- [Jardin 1993] P. Jardin, J.-P. Grandin, A. Cassimi, J.-P. Lemoigne, A. Gosselin, X. Husson, D. Hennecart, A. Lepoutre, 5th Conf. On Atomic Physics of Highly Charged Ions (AIP Conf. Proc. 274) p291 (1993)
- [Jardin 1995] P. Jardin, thèse de doctorat, Université de Caen (1995)
- [Jardin 1996] P. Jardin, A. Cassimi, J.-P. Grandin, H. Rothar, J.-P. Lemoigne, D. Hennecart, X. Husson, A. Lepoutre, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B 107, 41 (1996)
- [Jeung 1997] G. H. Jeung, J. Mol. Spectrosc. 182, 113 (1997)
- [Johann 1996] C. Johann, U. Kleinekathöfer, K. T. Tang, J. P. Toennies, Phys. Chem. Lett. 257, 651 (1996)
- [Johnson 1973] B. Johnson, J. Comput. Phys. 13, 445 (1973)
- [Jones 2006] K. M. Jones, E. Tiesinga, P. D. Lett, P. S. Julienne, Rev. Mod. Phys. 78, 483 (2006)
- [Jungmann 2002] K. Jungmann, Acta Phys. Polonica B 33, 2049 (2002)
- [Jraij 2003] A. Jraij, A. R. Allouche, M. Korek, M. Aubert – Frécon, Chem. Phys. 290, 129 (2003)
- [Kallman 1994] T. R. Kallman, in "Atomic Processes in Plasmas", AIP Conf. Proc. 322, 36 (1994)
- [Kamber 1983] E. Y. Kamber, J. B. Hasted, J. Phys. B 16, 3025 (1983)
- [Kessel 1966] Q. C. Kessel, E. Everhart, Phys. Rev. 146, 16 (1966)
- [Khemliche 1995] H. Khemliche, M. H. Prior, D. Schneider, Phys. Rev. Lett. 74, 5013 (1995)
- [Kimura 1984] M. Kimura, T. Iwai, Y. Kaneko, N. Kobayashi, A. Matsumoto, S. Ohtani, K. Okuno, S. Takagi, H. Tawara, S. Tsurubuchi, J. Phys. Soc. Japan 53, 2224 (1984)
- [Kimura 1989] M. Kimura, N. F. Lane, Adv. At. Mol. Opt. Phys. 26, 79 (1989)
- [Klapisch 1969] M. Klapisch, thèse de l'Université Paris – Sud (1969)
- [Klinger 1975] H. Klinger, A. Müller, E. Salzborn, J. Phys. B 8, 230 (1975)
- [Knoop 2004] S. Knoop, R. Morgenstern, R. Hoekstra, Phys. Rev. A 70, 050702 (2004)
- [Knoop 2005a] S. Knoop, M. Keim, H. J. Lüdde, T. Kirchner, R. Morgenstern, R. Hoekstra, J. Phys. B 38, 3163 (2005)
- [Knoop 2005b] S. Knoop, R. E. Olson, H. Ott, V. G. Hasan, R. Morgenstern, R. Hoekstra, J. Phys. B 38, 1987 (2005)
- [Knoop 2006a] S. Knoop, V. G. Hasan, H. Ott, R. Morgenstern, R. Hoekstra, J. Phys. B 39, 2021 (2006)
- [Knoop 2006b] S. Knoop, V. G. Hasan, R. Morgenstern, R. Hoekstra, Europhys. Lett. 74, 992 (2006)
- [Knudsen 1981] H. Knudsen, H. K. Haugen, P. Hvelplund, Phys. Rev. A 23, 597 (1981)
- [Kobayashi 1983] N. Kobayashi, T. Nakamura, Y. Kaneko, J. Phys. Soc. Japan 52, 2684 (1983)
- [Landau 1932] L. D. Landau, Phys. Z. Sow. 1, 46 (1932)
- [Laulhé 1995] C. Laulhé, E. Jacquet, G. Cremer, J. Pascale, P. Boduch, G. Rieger, D. Lecler, M. Chantepie, J. L. Cojan, Phys. Rev. A 52, 3803 (1995)

- [Lauhlé 1997a] C. Lauhlé, E. Jacquet, P. Boduch, M. Chantepie, N. Gherardi, X. Husson, D. Lecler, J. Pascale, *J. Phys. B* 30, 2899 (1997)
- [Lauhlé 1997b] C. Lauhlé, E. Jacquet, P. Boduch, M. Chantepie, G. Cremer, N. Gherardi, X. Husson, D. Lecler, J. Pascale, *J. Phys. B* 30, 1517 (1997)
- [Lauhlé 1997c] C. Lauhlé, E. Jacquet, G. Cremer, J. Pascale, P. Boduch, G. Rieger, M. Chantepie, D. Lecler, *Phys. Rev. A* 55, 1088 (1997)
- [Laurent 1987] H. Laurent, M. Barat, M. N. Gaboriaud, L. Guillemot, P. Roncin, *J. Phys. B* 20, 6581 (1987)
- [Le 2004] A.-T. Le, C. D. Lin, L. F. Errea, L. Méndez, A. Riera, B. Pons, *Phys. Rev. A* 69, 062703 (2004)
- [Lebedev 1910] P. N. Lebedev, *Ann. d. Phys.* 32, 411 (1910)
- [Lee 2002] T. G. Lee, H. Nguyen, X. Fléchar, B. D. DePaola, C. D. Lin, *Phys. Rev. A* 66, 042701 (2002)
- [Lembo 1985] L. J. Lembo, K. Danzmann, C. Stoller, W. E. Meyerhof, T. Hänsch, *Phys. Rev. Lett.* 55, 1874 (1985)
- [Letokhov 1968a] V. S. Letokhov, *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 7, 348 (1968)
- [Letokhov 1968b] V. S. Letokhov, *JETP Lett.* 7, 272 (1968)
- [Lewandowski 2003] H. J. Lewandowski, D. M. Harber, D. L. Whitaker, E. A. Cornell, *Journal of Low Temperature Physics* 132, 309 (2003)
- [Liénard 2005] E. Liénard, M. Herbane, G. Ban, G. Darius, P. Delahaye, D. Durand, X. Fléchar, M. Labalme, F. Mauger, A. Méry, O. Naviliat – Cuncic, D. Rodriguez, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A* 551, 375 (2005)
- [Liljeby 1983] L. Liljeby, *Phys. Scr. T3* (1983)
- [Liljeby 1986] L. Liljeby, G. Astner, A. Barany, H. Cederquist, H. Danared, S. Huldt, P. Hvelplund, A. Johnson, H. Knudsen, K. G. Rensfeld, *Phys. Scr.* 33, 310 (1986)
- [Lisse 1996] C. M. Lisse, K. Dennerl, J. Englhauser, M. Harden, F. E. Marshall, M. J. Mumma, R. Petre, J. P. Pye, M. J. Ricketts, J. Schmitt, J. Trumper, R. G. West, *Science* 274, 205 (1996)
- [Lu 1996] Z. T. Lu, K. L. Corwin, M. J. Renn, M. H. Anderson, E. A. Cornell, C. E. Wiemann, *Phys. Rev. Lett.* 77, 3331 (1996)
- [Lundy 1996] C. J. Lundy, R. E. Olson, *J. Phys. B* 29, 1723 (1996)
- [MacAdam 1992] K. B. MacAdam, A. Steinbach, C. Wieman, *Am. J. Phys.* 60, 1098 (1992)
- [MacCarroll 1968] R. MacCarroll, A. Salin, *J. Phys. B* 1, 163 (1968)
- [MacConkey 1972] J. W. MacConkey, A. Crowe, M. A. Hender, *Phys. Rev. Lett.* 29, 1 (1972)
- [MacCullough 1995] R. W. MacCullough, M. Lennon, F. G. Willie, H. B. Gilbody, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B* 98, 199 (1995)
- [Mack 1987] M. Mack, PhD thesis, University of Utrecht (1987)
- [Magnier 1993a] S. Magnier, thèse de l'Université Paris – Sud (1993)
- [Magnier 1993b] S. Magnier, P. Millié, O. Dulieu, F. Masnou – Seeuws, *J. Phys. Chem.* 98, 7113 (1993)
- [Magnier 1996] S. Magnier, F. Masnou – Seeuws, *Mol. Phys.* 89, 711 (1996)
- [Magnier 1999] S. Magnier, S. Rousseau, A. R. Allouche, G. Hadinger, M. Aubert – Frécon, *Chem. Phys.* 246, 57 (1999)
- [Mann 1987a] R. Mann, H. Schulte, *Z. Phys. D* 4, 343 (1987)
- [Mann 1987b] R. Mann, S. Wagner, *J. Phys. B* 20, L311 (1987)
- [Mann 1987c] R. Mann, *Phys. Rev. A* 35, 4988 (1987)

- [Martin 1989] S. Martin, A. Salmoun, Y. Ouerdane, M. Druetta, J. Désesquelles, A. Denis, Phys. Rev. Lett. 62, 2112 (1989)
- [Martin 1990a] S. Martin, A. Denis, Y. Ouerdane, A. Salmoun, A. El Motassadeq, J. Désesquelles, M. Druetta, D. Church, T. Lamy, Phys. Rev. Lett. 64, 2633 (1990)
- [Martin 1990b] S. Martin, A. Denis, J. Désesquelles, Y. Ouerdane, Phys. Rev. A 42, 6564 (1990)
- [Martin 1993] S. Martin, A. Denis, A. Delon, J. Désesquelles, Y. Ouerdane, Phys. Rev. A 48, 1171 (1993)
- [Martin 1994] S. Martin, J. Bernard, A. Denis, J. Désesquelles, L. Chen, Phys. Rev. A 50, 2322 (1994)
- [Martin 1995] S. Martin, J. Bernard, L. Chen, A. Denis, J. Désesquelles, Phys. Rev. A 52, 1218 (1995)
- [Massey 1933] H. S. W. Massey, R. A. Smith, Proc. R. Soc. 142, 142 (1933)
- [Matthews 1995] D. L. Matthews, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B 98, 91 (1995)
- [Mergel 1995a] V. Mergel, R. Dörner, J. Ullrich, O. Jagutzki, S. Lencinas, S. Nüttgens, L. Spielberger, M. Unverzagt, C. L. Cocke, R. E. Olson, M. Schulz, U. Buck, E. Zanger, W. Theisinger, M. Isser, S. Geis, H. Schmidt-Böcking, Phys. Rev. Lett. 74, 2200 (1995)
- [Mergel 1995b] V. Mergel, R. Dörner, J. Ullrich, O. Jagutzki, S. Lencinas, S. Nüttgens, L. Spielberger, M. Unverzagt, C. L. Cocke, R. E. Olson, M. Schulz, U. Buck, H. Schmidt-Böcking, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B 98, 593 (1995)
- [Mergel 1997] V. Mergel, R. Dörner, M. Achler, K. Khayyat, S. Lencinas, J. Euler, O. Jagutzki, S. Nüttgens, M. Unverzagt, L. Spielberger, W. Wu, R. Ali, J. Ullrich, H. Cederquist, A. Salin, C. J. Wood, R. E. Olson, D. Belkic, C. L. Cocke, H. Schmidt-Böcking, Phys. Rev. Lett. 79, 387 (1997)
- [Monroe 1990] C. Monroe, W. Swann, H. Robinson, C. Wiemann, Phys. Rev. Lett. 65, 1571 (1990)
- [Moore 1971] C. E. Moore, "Atomic Energy Levels", Volume I et II (1971)
- [Moretto-Capelle 1990] P. Moretto-Capelle, thèse de doctorat, Université Paul Sabatier, Toulouse (1990)
- [Morgenstern 1990] R. Morgenstern, P. van der Straten, A. Niehaus, Phys. Rev. Lett. 64, 2589 (1990)
- [Moshhammer 1996] R. Moshhammer, M. Unverzagt, W. Schmitt, J. Ullrich, H. Schmidt – Böcking, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B 108, 425 (1996)
- [Mott 1965] N. F. Mott, H. S. W. Massey, "The Theory of Atomic Collisions", Third edition, Oxford University Press (1965)
- [Müller 1983] A. Müller, W. Groh, E. Salzborn, Phys. Rev. Lett. 51, 107 (1983)
- [Mueller 2007] P. Mueller, I. A. Sulai, A. C. C. Villari, J. A. Alcántara-Núñez, R. Alves-Condé, K. Bailey, G. W. F. Drake, M. Dubois, C. Eléon, G. Gaubert, R. J. Holt, R. V. F. Janssens, N. Lecesne, Z.-T. Lu, T. P. O'Connor, M.-G. Saint-Laurent, J.-C. Thomas, L.-B. Wang, Phys. Rev. Lett. 99, 252501 (2007)
- [Neuhauser 1978] W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. Toschek, H. Dehmelt, Phys. Rev. Lett. 41, 233 (1978)
- [Nguyen 2003] H. Nguyen, PhD thesis, Kansas State University (2003)
- [Nguyen 2004a] H. Nguyen, R. Brédy, H. A. Camp, T. Awata, B. D. DePaola, Phys. Rev. A 70, 031401 (2004)

- [Niehaus 1986] A. Niehaus, *J. Phys. B* 19, 2925 (1986)
- [Nikitin 1974] E. E. Nikitin, "Theory of Elementary Atomic and Molecular Processes in Gases", Clarendon Press Oxford (1974)
- [NIST] [www.nist.gov/](http://www.nist.gov/)
- [O'Hare 1975] B. G. O'Hare, R. W. McCullough, H. B. Gilbody, *J. Phys. B* 8, 2968 (1975)
- [Olson 1976] R.E. Olson, A. Salop, *Phys. Rev. A* 14, 579 (1976)
- [Olson 1977] R.E. Olson, A. Salop, *Phys. Rev. A* 16, 531 (1977)
- [Olson 1981] R.E. Olson, *Phys. Rev. A* 24, 1726 (1981)
- [Olson 1986] R. E. Olson, *Phys. Rev. A* 33, 4397 (1986)
- [Olson 1987] R. E. Olson, J. Ullrich, H. Schmidt – Böcking, *J. Phys. B* 20, L809 (1987)
- [Olson 1989] R. E. Olson, J. Ullrich, H. Schmidt – Böcking, *Phys. Rev. A* 39, 5572 (1989)
- [Olson 1992] R. E. Olson, J. Pascale, R. Hoekstra, *J. Phys. B* 25, 4241 (1992)
- [O'Mullane 1999] M. G. O'Mullane, M. Mattioli, R. Giannella, I. H. Coffey, N. J. Peacock, *Plasma Phys. Control. Fusion* 41, 105 (1999)
- [Oppenheimer 1928] J. R. Oppenheimer, *Phys. Rev.* 31, 349 (1928)
- [Othani 1982] S. Othani, Y. Kaneko, M. Kimura, N. Kobayashi, T. Iwai, A. Matsumoto, K. Okuno, S. Takagi, H. Tawara, S. Tsurubuchi, *J. Phys. B* 15, L533 (1982)
- [Ovchinnikov 2004] S. Y. Ovchinnikov, G. N. Ogurtsov, J. H. Macek, Y. S. Gordeev, *Phys. Rep.* 389, 119 (2004)
- [Pascale 1990] J. Pascale, R. E. Olson, C. O. Reinhold, *Phys. Rev. A* 42, 5305 (1990)
- [Patil 2000] S. H. Patil, K. T. Tang, *J. Phys. Chem.* 113, 676 (2000)
- [Pavolini 1989] D. Pavolini, T. Gustavsson, F. Spiegelmann, J.-P. Daudey, *J. Phys. B* 22, 1721 (1989)
- [Pequinot 1988] D. Pequinot, *J. Physique* 49, Coll 153 (1988)
- [Pernot 1967] A. Pernot, M. Abignoli, M. Barat, J. Baudon, A. Septier, *Rev. Phys. Appl.* 2, 203 (1967)
- [Pieksma 1994] M. Pieksma, S. Y. Ovchinnikov, J. van Eck, W. B. Westerveld, A. Niehaus, *Phys. Rev. Lett.* 73, 46 (1994)
- [Pieksma 1997] M. Pieksma, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B* 124, 177 (1997)
- [Posthumus 1992a] J. H. Posthumus, R. Morgenstern, *Phys. Rev. Lett.* 68, 1315 (1992)
- [Posthumus 1992b] J. H. Posthumus, R. Morgenstern, *J. Phys. B* 25, 4533 (1992)
- [Puckett 1976] L. J. Puckett, D. W. Martin, *Phys. Rev. A* 5, 1432 (1976)
- [Raab 1987] E. L. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu, D. E. Pritchard, *Phys. Rev. Lett.* 59, 2631 (1987)
- [Reinhold 1986] C. O. Reinhold, C. A. Falcon, *Phys. Rev. A* 33, 3859 (1986)
- [Rescigno 1999] T. N. Rescigno, M. Baertschy, W. A. Isaacs, C. W. MacCurdy, *Science* 286, 2474 (1999)
- [Rice 1986] J. E. Rice, E. S. Marmor, J. L. Terry, E. Kallne, J. Kallne, *Phys. Rev. Lett.* 56, 50 (1986)
- [Rieger 1995] G. Rieger, P. Boduch, M. Chantepie, E. Jacquet, D. Lecler, J. Pascale, *J. Phys. B* 28, 2689 (1995)
- [Riera 1996] A. Riera, *Mol. Phys.* 88, 199 (1996)
- [Roentdek DLD40] Position and Time Sensitive Multi-Hit Delay-Line Detector System DLD40 and DLD80, Roentdek Handels GmbH, Kelkheim-Ruppertshain. <http://www.roentdek.de>

- [Roncin 1986a] P. Roncin, M. N. Gaboriaud, H. Laurent, M. Barat, *J. Phys. B* 19, L691 (1986)
- [Roncin 1986b] P. Roncin, M. Barat, H. Laurent, *Europhys. Lett.* 2, 371 (1986)
- [Roncin 1987] P. Roncin, M. N. Gaboriaud, M. Barat, H. Laurent, *Europhys. Lett.* 3, 53 (1987)
- [Roncin 1989] P. Roncin, M. Barat, M. N. Gaboriaud, L. Guillemot, H. Laurent, *J. Phys. B* 22, 509 (1989)
- [Roncin 1990] P. Roncin, M. N. Gaboriaud, L. Guillemot, H. Laurent, S. Othani, M. Barat, *J. Phys. B* 23, 1215 (1990)
- [Roncin 1991] P. Roncin, M. N. Gaboriaud, M. Barat, *Europhys. Lett.* 16, 551 (1991)
- [Roncin 1993] P. Roncin, M. N. Gaboriaud, M. Barat, A. Bordenave – Montesquieu, P. Moretto Capelle, M. Benhenni, H. Bachau, C. Harel, *J. Phys. B* 26, 4181 (1993)
- [Roncin 1994] P. Roncin, C. Adjouri, N. Andersen, M. Barat, A. Dubois, M. N. Gaboriaud, J. P. Hansen, S. E. Nielsen, S. Z. Szilagyi, *J. Phys. B* 27, 3079 (1994)
- [Roncin 1995] P. Roncin, M. Barat, M. N. Gaboriaud, S. Z. Szilagyi, A. K. Kazansky, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B* 98, 275 (1995)
- [Roncin 1997] P. Roncin, M. Barat, *Phys. Scr.* T73, 188 (1997)
- [Rousseau 2007] P. Rousseau, H. Khemliche, A. G. Borisov, P. Roncin, *Phys. Rev. Lett.* 98, 016104 (2007)
- [Ryufuku 1980] H. Ryufuku, K. Sasaki, T. Watanabe, *Phys. Rev. A* 21, 745 (1980)
- [Sakaue 1990] H. A. Sakaue, Y. Kanai, K. Ohta, M. Kushima, T. Inaba, S. Othani, K. Wakiya, H. Suzuki, T. Takayanagi, T. Kambara, A. Danjo, M. Yoshino, Y. Awaya, *J. Phys. B* 23, L401 (1990)
- [Sakaue 1991] H. A. Sakaue, Y. Awaya, A. Danjo, T. Kambara, Y. Kanai, T. Nabeshima, N. Nakamura, S. Othani, H. Suzuki, T. Takayanagi, K. Wakiya, I. Yamada, M. Yoshino, *J. Phys. B* 24, 3787 (1991)
- [Sakhelashvili 2005] G. Sakhelashvili, A. Dorn, C. Höhr, J. Ullrich, *Phys. Rev. Lett.* 95, 033201 (2005)
- [Salop 1977] A. Salop, R. E. Olson, *Phys. Rev. A* 16, 1811 (1977)
- [Salop 1979] A. Salop, *J. Phys. B* 12, 919 (1979)
- [Salzmann 2006] W. Salzmann, U. Poschinger, R. Wester, M. Weidemüller, A. Merli, S. M. Weber, F. Sauer, M. Plewicky, F. Weise, A. M. Esparza, L. Wöste, A. Lindinger, *Phys. Rev. A* 73, 023414 (2006)
- [Sandars 1967] P. G. H. Sandars, *Phys. Lett.* 14, 194 (1967)
- [Schippers 1994] S. Schippers, A. R. Schlatmann, W. P. Wiersema, R. Hoekstra, R. Morgenstern, R. E. Olson, J. Pascale, *Phys. Rev. Lett.* 72, 1628 (1994)
- [Schippers 1995] S. Schippers, P. Boduch, J. Van Buchem, F. W. Bliet, R. Hoekstra, R. Morgenstern, R. E. Olson, *J. Phys. B* 28, 3271 (1995)
- [Schippers 1996] S. Schippers, R. Hoekstra, R. Morgenstern, R. E. Olson, *J. Phys. B* 29, 2819 (1996)
- [Schlathölter 2004] T. Schlathölter, R. Hoekstra, R. Morgenstern, *Int. J. Mass. Spec.* 233, 173 (2004)
- [Schlatmann 1993] A. R. Schlatmann, R. Hoekstra, R. Morgenstern, R. E. Olson, J. Pascale, *Phys. Rev. Lett.* 71, 513 (1993)
- [Schüller 2007] A. Schüller, S. Wethekam, H. Winter, *Phys. Rev. Lett.* 98, 016103 (2007)
- [Schulz 2003] M. Schulz, R. Moshhammer, D. Fischer, H. Kollmus, D. H. Madison, S. Jones, J. Ullrich, *Nature* 422, 48 (2003)

- [Schweinzer 1994] J. Schweinzer, D. Wutte, H. P. Winter, *J. Phys. B* 27, 137 (1994)
- [Scielzo 2004] N. D. Scielzo, S. J. Freedman, B. K. Fujikawa, P. A. Vetter, *Phys. Rev. Lett.* 93, 102501 (2004)
- [Shah 2005] M. H. Shah, H. A. Camp, M. L. Trachy, X. Fléchar, M. A. Gearba, H. Nguyen, R. Brédy, B. D. DePaola, *Phys. Rev. A* 72, 024701 (2005)
- [Shah 2006] M. H. Shah, PhD thesis, Kansas State University (2006)
- [Shah 2007] M. H. Shah, M. L. Trachy, G. Veshapidze, M. A. Gearba, B. D. DePaola, *Phys. Rev. A* 75, 053418 (2007)
- [Shingal 1986] R. Shingal, B. H. Bransden, A. M. Ermolaev, D. R. Flower, C. W. Newby, C. J. Noble, *J. Phys. B* 19, 309 (1986)
- [Shingal 1987] R. Shingal, B. H. Bransden, *J. Phys. B* 20, 4815 (1987)
- [Siegel 1972] M. W. Siegel, Y. H. Chen, J. W. Boring, *Phys. Rev. Lett.* 28, 465 (1972)
- [Simion] Le logiciel SIMION 7.0 a été développé par David Dahl au Idaho National Laboratory, P.O. Box 1625 Idaho Falls, ID 83415
- [Smith 1965] F. T. Smith, D. C. Lorents, W. Aberth, R. P. Machi, *Phys. Rev. Lett.* 15, 742 (1965)
- [Steck] D. A. Steck, "Rubidium 87 D Line Data", <http://steck.us/alkalidata>
- [Stolterfoht 1986] N. Stolterfoht, C. C. Havener, R. A. Phaneuf, J. K. Swenson, S. Shafroth, F. W. Meyer, *Phys. Rev. Lett.* 57, 74 (1986)
- [Stolterfoht 1987a] N. Stolterfoht, R. A. Phaneuf, J. K. Swenson, S. Shafroth, F. W. Meyer, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B* 27, 584 (1987)
- [Stolterfoht 1987b] N. Stolterfoht, C. C. Havener, R. A. Phaneuf, J. K. Swenson, S. Shafroth, F. W. Meyer, *Phys. Rev. Lett.* 58, 958 (1987)
- [Stolterfoht 1990] N. Stolterfoht, K. Sommer, J. K. Swenson, C. C. Havener, F. W. Meyer, *Phys. Rev. A* 42, 5396 (1990)
- [Stolterfoht 1993] N. Stolterfoht, *Phys. Scr.* T46, 22 (1993)
- [Süptitz 1997] W. Süptitz, B. C. Duncan, P. L. Gould, *J. Opt. Soc. Am. B* 14, 1001 (1997)
- [Suraud 1991] M. G. Suraud, R. Hoekstra, F. J. de Heer, J. J. Bonnet, R. Morgenstern, *J. Phys. B* 24, 2543 (1991)
- [Tanihata 1992] I. Tanihata, D. Hirata, T. Kobayashi, S. Shimoura, K. Sugimoto, H. Toki, *Phys. Lett. B* 289, 261 (1992)
- [Taouil 1998] I. Taouil, A. Lahmam – Bennani, A. Duguet, L. Avaldi, *Phys. Rev. Lett.* 81, 4600 (1998)
- [Tawara 1989] H. Tawara, T. Tonuma, H. Kumagai, T. Matsuo, *Phys. Rev. A* 41, 116 (1989)
- [Thomas 1927] L. H. Thomas, *Proc. Roy. Soc.* 114, 561 (1927)
- [Thorson 1978] W. R. Thorson, J. B. Delos, *Phys. Rev. A* 18, 117 (1978)
- [Tonuma 1989] T. Tonuma, H. Kumagai, T. Matsuo, H. Tawara, *Phys. Rev. A* 40, 6238 (1989)
- [TOPBASE] <http://cdsweb.u-strasbg.fr/topbase/topbase.html>
- [Toptica] Notice constructeur diode DL100 Toptica, <http://www.toptica.com>
- [Turkstra 2001a] J. W. Turkstra, PhD thesis, Rijksuniversiteit Groningen (2001)
- [Turkstra 2001b] J. W. Turkstra, R. Hoekstra, S. Knoop, D. Meyer, R. Morgenstern, R. E. Olson, *Phys. Rev. Lett.* 87, 123202 (2001)
- [Ullrich 1987a] J. Ullrich, PhD Thesis Johann-Wolfgang-Goethe Universität Frankfurt
- [Ullrich 1987b] J. Ullrich, H. Schmidt-Böcking, *Phys. Lett. A* 125, 193 (1987)

- [Ullrich 1988a] J. Ullrich, H. Schmidt-Böcking, C. Kelbch, Nucl. Instrum. and Method A 268, 216 (1988)
- [Ullrich 1988b] J. Ullrich, M. Horbatsch, V. Dagendorf, S. Kelbch, H. Schmidt-Böcking, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. 21, 611 (1988)
- [Ullrich 1994] J. Ullrich, R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, H. Schmidt-Böcking, Comments At. Mol. Phys. 30, 285 (1994)
- [Ullrich 1997] J. Ullrich, R. Moshhammer, R. Dörner, O. Jagutzki, V. Mergel, H. Schmidt-Böcking, L. Spielberger, J. Phys. B 30, 2917 (1997)
- [Ullrich 2003] J. Ullrich, R. Moshhammer, A. Dorn, R. Dörner, L. P. H. Schmidt, H. Schmidt – Böcking, Rep. Prog. Phys. 66, 1463 (2003)
- [van der Poel 2001] M. van der Poel, C. V. Nielsen, M. A. Gearba, N. Andersen, Phys. Rev. Lett. 87, 123201 (2001)
- [van der Poel 2001b] M. van der Poel, PhD thesis, Niels Bohr Institute, University of Copenhagen (2001)
- [van der Poel 2002] M. van der Poel, C. V. Nielsen, M. Rybaltov, S. E. Nielsen, M. Machholm, N. Andersen, J. Phys. B 35, 4491 (2002)
- [van der Straten 1986] P. van der Straten, R. Morgenstern, Phys. Rev. A 34, 4482 (1986)
- [Vetter 2008] P. A. Vetter, J. R. Abo – Shaer, S. J. Freedman, R. Maruyama, Phys. Rev. C 77, 035502 (2008)
- [Vogt 1986] H. Vogt, R. Schuch, E. Justiniano, M. Schulz, W. Schwab, Phys. Rev. Lett. 57, 2256 (1986)
- [von Hellermann 1991] M. von Hellermann, W. Mandl, H. P. Summers, A. Boileau, R. Hoekstra, F. J. de Heer, G. J. Frieling, Plasma Phys. Control. Fusion 33, 1805 (1991)
- [von Hellermann 1993] M. von Hellermann, Plasma Phys. Control. Fusion 35, 799 (1993)
- [Wang 2004] L.-B. Wang, P. Mueller, K. Bailey, G. W. F. Drake, J. P. Greene, D. Henderson, R. J. Holt, R. V. F. Janssens, C. L. Jiang, Z.-T. Lu, T. P. O'Connor, R. C. Pardo, K. E. Rehm, J. P. Schiffer, X. D. Tang, Phys. Rev. Lett. 93, 142501 (2004)
- [Weigold 1979] E. Weigold, C. J. Noble, S. T. Hood, I. Fuss, J. Phys. B 12, 291 (1979)
- [Wiley 1955] W. C. Wiley, I. H. MacLaren, Review of Scientific Instruments 26, 1150 (1955)
- [Wineland 1975] D. Wineland, H. Dehmelt, Bull. Am. Phys. Soc. 20, 637 (1975)
- [Winter 1987] H. Winter, M. Mack, R. Hoekstra, A. Niehaus, F. J. de Heer, Phys. Rev. Lett. 58, 957 (1987)
- [Wolf 1997] S. Wolf, H. Helm, Phys. Rev. A 56, 4385 (1997)
- [Wolf 2000] S. Wolf, H. Helm, Phys. Rev. A 62, 043408 (2000)
- [Wolfrum 1993] E. Wolfrum, F. Aumayr, D. Wutte, H. P. Winter, E. Hintz, D. Rusbuldt, R. P. Schorn, Rev. Sci. Instr. 64, 2285 (1993)
- [Wood 1997] C. S. Wood, S. C. Bennett, D. Cho, B. P. Masterson, J. L. Roberts, C. E. Tanner, C. E. Wieman, Science 275, 2963 (1997)
- [Wu 1995a] W. Wu, C. L. Cocke, J. P. Giese, F. Melchert, M. L. A. Raphaelian, M. Stöckli, Phys. Rev. Lett. 75, 1054 (1995)
- [Wu 1995b] W. Wu, K. L. Wong, C. L. Cocke, J. P. Giese, E. C. Montenegro, Phys. Rev. A 51, 3718 (1995)
- [Zapukhlyak 2005] M. Zapukhlyak, T. Kirchner, H. J. Lüdde, S. Knoop, R. Morgenstern, R. Hoekstra, J. Phys. B 38, 2353 (2005)
- [Zener 1932] C. Zener, Proc. R. Soc. 137, 696 (1932)

- [Ziemba 1959] F. P. Ziemba, E. Everhart, Phys. Rev. Lett. 2, 299 (1959)  
[Ziemba 1960] F. P. Ziemba, G. J. Lockwood, G. H. Morgan, E. Everhart, Phys. Rev. 118, 1552 (1960)



## 8 Annexe : calcul des incertitudes

Cette annexe a pour but de clarifier le calcul des incertitudes pour les résultats de sections efficaces relatives différentielles en  $Q$  de réaction présentées dans la partie 5.3.3.

### 8.1 Incertitudes sur les aires des spectres de sections efficaces différentielles en $P_{R//}^f$

La méthode utilisée pour déterminer les incertitudes sur les sections efficaces relatives différentielles en  $Q$  de réaction a pour point de départ les spectres de sections efficaces différentielles en  $P_{R//}^f$  des figures 5-8 et 5-9. A partir de ces spectres, deux types de calcul permettent d'obtenir les incertitudes sur les aires des pics. Par la suite, les incertitudes sur ces aires permettent de déduire les incertitudes sur les sections efficaces relatives différentielles en  $P_{R//}^f$ . Enfin, on peut obtenir les incertitudes sur les sections efficaces relatives différentielles en  $Q$  de réaction. Le premier type de calcul concerne les pics des spectres pas entièrement résolus et émergeant distinctement (pour la plupart) hors du bruit de fond. Le second type concerne les pics isolés, entièrement résolus, et émergeant faiblement hors du bruit de fond (typiquement pour les pics notés  $3d$  sur la figure 5-8).

i) Pour le premier type de calcul, les aires des pics sont déterminées à l'aide d'un ajustement gaussien. Cet ajustement est réalisé avec une méthode itérative d'ajustements gaussiens automatiques du logiciel Origin. Le logiciel donne, lors d'un premier ajustement, une estimation de l'aire de chaque pic ainsi que l'incertitude sur cette aire. La justesse de cette première estimation est évaluée avec le coefficient de corrélation  $R$ . Quel que soit le pic ajusté, la première estimation donnée par le logiciel donne toujours  $R > \frac{\sqrt{3}}{2}$ , ce qui signifie que l'ajustement est valide. On peut facilement comprendre cela car la forme des pics est clairement gaussienne. Cependant, d'autres ajustements successifs sont nécessaires pour améliorer l'ajustement des pics et faire tendre  $R$  vers 1. Typiquement, ces ajustements successifs sont arrêtés quand  $0.999 < R < 1$ . On obtient ainsi une estimation précise de l'aire de chaque pic et de l'incertitude sur chaque aire.

ii) Pour le second type de calcul, les incertitudes sur les aires des pics sont manuellement déterminées. Pour un intervalle donné  $\Delta P$  le long de l'axe des abscisses, l'aire  $A$  des pics isolés est donnée par :

$$A = N\Delta P \quad (8-1)$$

où  $N$  représente le nombre total d'événements (bruit de fond inclus) compris dans l'intervalle  $\Delta P$ . L'incertitude  $\Delta A$  est ensuite donnée par :

$$\Delta A = A \frac{\Delta n_{cor}}{n_{cor}} \quad (8-2)$$

où  $n_{cor}$  et  $\Delta n_{cor}$  représentent respectivement le nombre total d'événements corrigé du bruit de fond et son incertitude. Ils sont donnés par :

$$n_{cor} = N - n_{bdf} \quad (8-3)$$

$$\Delta n_{cor} = \sqrt{n_{cor} + 2n_{bdf}} \quad (8-4)$$

où  $n_{bdf}$  représente le nombre d'événements dus au bruit de fond dans un intervalle  $\Delta P$ . Le nombre  $n_{bdf}$  est déterminé pour un intervalle  $\Delta P$  hors des pics de capture électronique.

Ainsi, les deux types de calcul permettent d'obtenir les incertitudes sur les aires des pics. De là, on obtient l'incertitude sur les sections efficaces relatives différentielles en  $P_{R//}^f$ , puis celle sur les sections efficaces relatives différentielles en  $Q$  de réaction.

## 8.2 Incertitudes sur les sections efficaces relatives différentielles en $Q$ de réaction

Cette partie présente les calculs d'incertitudes des sections efficaces relatives des tableaux 5-2 et 5-3.

Les sections efficaces relatives depuis l'état Rb(5s) et leurs incertitudes sont calculées à partir des spectres de sections efficaces différentielles en  $P_{R//}^f$  pour l'état *off* des lasers de piégeage. Trois canaux de capture sont impliqués, vers les états Na( $n'l'$ ), avec  $n'l' = 3s, 3p$  ou  $3d$ . Après les méthodes précédemment décrites, on obtient les aires  $A_{n'l'}$  et leurs incertitudes  $\Delta A_{n'l'}$ .

Comme les sections efficaces relatives du tableau 5-2 sont normalisées par rapport à la capture totale depuis Rb(5s), on note  $A = \sum_{n'l'} A_{n'l'}$  la somme des aires des pics. La section efficace relative pour le canal Rb(5s)- Na( $n'l'$ ), notée  $\sigma_{n'l'}$ , est obtenue de cette manière :

$$\sigma_{n'l'} = \frac{A_{n'l'}}{A} \quad (8-5)$$

De plus, l'incertitude  $\Delta \sigma_{n'l'}$  est obtenue de la sorte :

$$\Delta \sigma_{n'l'} = \frac{\Delta A_{n'l'}}{A} + \frac{A_{n'l'}}{A^2} \Delta A \quad (8-6)$$

avec

$$\Delta A = \sqrt{\sum_{n'l'} (\Delta A_{n'l'})^2} \quad (8-7)$$

De la même manière on obtient les sections efficaces relatives pour les canaux Rb( $5p$ )-Na( $n'l'$ ) (avec  $n'l' = 3s, 3p, 4s, 4d$  ou  $n' \varepsilon'$  pour les états dégénérés  $3d, 4p$  et  $5s$ ), notées  $\sigma_{n'l'^*}$ , et leurs incertitudes  $\Delta\sigma_{n'l'^*}$  à partir des aires  $A_{n'l'^*}$  et de leur somme  $A^*$ , quand les lasers de piégeage sont *on*.

#### Incertitudes sur les rapports de sections efficaces totales

On souligne le fait que les rapports de sections efficaces totales (cf. tableau 5-4) sont donnés, via les spectres, par la relation :

$$\frac{\sigma_p}{\sigma_s} = \frac{A^*}{A} \times \frac{1-f}{f} \quad (8-8)$$

où l'on rappelle que  $f$  est la fraction excitée.

Le paragraphe 5.2.4 explique la méthode pour obtenir la fraction excitée, et son incertitude est déduite de (5-1) :

$$\Delta f = \Delta \left( \frac{A_{3s}^{on}}{A_{3s}^{off}} \right) \quad (8-9)$$

On peut ainsi en déduire l'incertitude  $\Delta \left( \frac{\sigma_p}{\sigma_s} \right)$ .

## **Couplage entre un piège magnéto-optique et un spectromètre d'impulsion d'ions de recul ; applications aux collisions ions-atomes**

Des atomes  $^{87}\text{Rb}$  ont été refroidis et piégés pour servir de cibles lors d'études de collisions avec des projectiles  $\text{Na}^+$  à 2 et 5 keV. La physique étudiée concerne le processus d'échange de charge. L'électron actif, qui est généralement l'électron le plus périphérique de l'atome cible, transite depuis la cible vers le projectile ionique. La cible ionisée s'appelle ion de recul. La technique utilisée pour appréhender cette physique est la technique MOTRIMS, qui associe un piège magnéto – optique et un spectromètre d'impulsion d'ions de recul. Le spectromètre sert à mesurer l'impulsion des ions de recul qui contient toute l'information de la collision : le  $Q$  de réaction (qui est la différence d'énergie potentielle de l'électron actif sur chacun de ses hôtes) et l'angle de diffusion du projectile. Le piège fournit des cibles extrêmement froides afin d'optimiser la mesure de l'impulsion et d'affranchir cette dernière de l'agitation thermique. Au travers d'expériences cinématiquement complètes, la technique MOTRIMS donne accès à de meilleures résolutions sur les mesures d'impulsion. Des mesures de sections efficaces différentielles en états initiaux et finaux de capture et en angle de diffusion ont été réalisées. Les résultats obtenus pour les sections efficaces différentielles en états initiaux et finaux sont globalement en accord avec la théorie et une autre expérience. Néanmoins, des désaccords avec la théorie et cette autre expérience apparaissent pour les mesures de sections efficaces doublement différentielles. Ces désaccords ne sont pas encore compris. La particularité du dispositif expérimental conçu et testé au cours de ce travail, à savoir un faible bruit de fond, permet une grande sensibilité aux canaux de capture faiblement empruntés et apporte ainsi une plus-value technique et scientifique par rapport aux travaux antérieurs.

## **Magneto Optical Trap Recoil Ion Momentum Spectroscopy; applications to ion-atom collisions**

$^{87}\text{Rb}$  atoms have been cooled, trapped and prepared as targets for collision studies with 2 and 5 keV  $\text{Na}^+$  projectiles. The physics studied deals with charge exchange processes. The active electron, which is generally the most peripheral electron of the atomic target, is transferred from the target onto the ionic projectile. The ionized target is called recoil ion. The technique used to study this physics is the MOTRIMS technique, which combines a magneto optical trap and a recoil ion momentum spectrometer. The spectrometer is used for the measurement of the recoil ions momentum, which gives access to all the information of the collision: the  $Q$ -value (which is the potential energy difference of the active electron on each particle) and the scattering angle of the projectile. The trap provides extremely cold targets to optimize the measurement of the momentum, and to release the latter from thermal motion. Through cinematically complete experiments, the MOTRIMS technique gives access to better resolutions on momentum measurements. Measurements of differential cross sections in initial and final capture states and in scattering angle have been done. Results obtained for differential cross sections in initial and final states show globally a good agreement with theory and an other experiment. Nevertheless, discrepancies with theory and this other experiment are shown for the measurements of doubly differential cross sections. These discrepancies are not understood yet. The particularity of the experimental setup designed and tested in this work, namely a low background noise, allows a great sensitivity to weak capture channels, and brings a technical and scientific gain compared with previous works.

**Mots-clefs :** interactions ion-atome, électrons--capture, pièges, atomes, transfert d'impulsion, spectromètres

**Discipline :** Milieux Dilués et Optique Fondamentale

Laboratoire de Physique Corpusculaire de Caen – UMR 6534  
ENSICAEN, 6 Boulevard du Maréchal Juin, 14050 CAEN CEDEX, France