



**HAL**  
open science

**Microscopie et spectroscopie de photodétachement;  
mesure de la section efficace de photodétachement de H-  
à 1064 nm par observation du comportement  
asymptotique du régime saturé**

Mickael Vandevraye

► **To cite this version:**

Mickael Vandevraye. Microscopie et spectroscopie de photodétachement; mesure de la section efficace de photodétachement de H- à 1064 nm par observation du comportement asymptotique du régime saturé. Autre [cond-mat.other]. Université Paris Sud - Paris XI, 2013. Français. NNT : 2013PA112319 . tel-00932446

**HAL Id: tel-00932446**

**<https://theses.hal.science/tel-00932446>**

Submitted on 17 Jan 2014

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

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



UNIVERSITÉ PARIS-SUD  
U.F.R. SCIENTIFIQUE D'ORSAY  
ÉCOLE DOCTORALE ONDES ET MATIÈRES

# THÈSE

*préparée au laboratoire Aimé-Cotton (UPR 3321)*

*pour obtenir le grade de*

DOCTEUR EN SCIENCES

Spécialité : **Physique**

*par*

**Mickaël VANDEVRAÏE**

MICROSCOPIE ET SPECTROSCOPIE DE PHOTODÉTACHEMENT ;  
MESURE DE LA SECTION EFFICACE DE PHOTODÉTACHEMENT DE  $H^-$  À  
1064 NM PAR OBSERVATION DU COMPORTEMENT ASYMPTOTIQUE DU  
RÉGIME SATURÉ

Soutenue publiquement le vendredi 13 décembre 2013 à Orsay devant le jury composé de :

- |      |                           |                                      |
|------|---------------------------|--------------------------------------|
| M.   | <b>Christophe BLONDEL</b> | directeur de thèse (U-PSUD XI ; LAC) |
| M.   | <b>Christian BORDAS</b>   | rapporteur (UCLB Lyon 1 ; ILM)       |
| Mlle | <b>Emily LAMOUR</b>       | examineur (UPMC ; INSP)              |
| M.   | <b>Tiberiu MINEA</b>      | président (U-PSUD XI ; LPGP)         |
| M.   | <b>Francis PENENT</b>     | rapporteur (UPMC ; LCPMR)            |
| M.   | <b>Alain SIMONIN</b>      | examineur (CEA Cadarache ; IRFM)     |



---

# Remerciements

Ma thèse s'est déroulée au laboratoire Aimé-Cotton, je remercie ses directeurs Pierre Pillet et son successeur Jean-François Roch pour m'y avoir accueilli.

Je tiens particulièrement à remercier mon directeur de thèse, Christophe Blondel, pour m'avoir accueilli au sein de son équipe. J'ai énormément apprécié sa disponibilité et la patience dont il a fait preuve pour répondre à toutes les questions, jusqu'à la plus absurde, que je lui ai posé tout au long de ma thèse. Il était également très présent durant ma période de rédaction où il a lu et relu mon manuscrit, y exposant des remarques toutes plus pertinentes et intéressantes les unes que les autres. Je remercie Cyril Drag pour toutes les techniques et astuces expérimentales qu'il m'a enseigné. Sa détermination, sa bonne humeur et son optimisme a rendu extrêmement agréable les centaines d'heures passées dans la salle de manip à chercher le signal, l'optimiser et trouver le bon protocole d'acquisition, en particulier lorsqu'il s'agissait de mesurer les courbes de saturation du photodétachement de  $H^-$ . J'adresse un grand merci à Christian Delsart, un ancien du groupe Ion négatif, pour ses encouragements et son soutien constant durant ces trois années. Je remercie Alain Simonin, mon correspondant CEA, pour sa disponibilité, pour ses conseils et pour son aide précieuse. Je remercie également mes successeurs Philippe et David pour toutes les discussions passionnées que l'on a eu. Je leur souhaite de grands succès.

Je remercie Christian Bordas, Francis Penent, Emily Lamour et Tiberiu Minea pour avoir accepté de faire parti de mon jury. En particulier, je remercie mes rapporteurs Christian Bordas et Francis Penent pour tout le temps et le soin qu'ils ont pris à lire mon manuscrit.

Je remercie l'ensemble du personnel technique et administratif du laboratoire pour leur sympathie et pour leur professionnalisme. Je remercie de tout mon cœur les mécaniciens Daniel, Henri, Lionel et Guillaume pour le travail colossal, toujours parfaitement exécuté, qu'ils ont réalisé pour notre expérience. Je n'oublierai jamais ces conversations agréables et ces fous rires que nous avons eu. Vous êtes exceptionnels. Je remercie les électroniciens

Jean-Paul, Alain, Arnaud, Élie, Haniffe et Joseph pour leur aide, pour leurs conseils et pour l'énorme travail réalisé, entre autre, sur l'alimentation et la connectique pour la nouvelle expérience. Je remercie les laséristes Louis et Christophe pour leur disponibilité, pour leur extrême sympathie et pour l'aide précieuse apportée autant d'un point de vue matériel, humain et intellectuel. Je remercie les informaticiens Jérôme et Michèle pour leurs nombreuses et salutaires interventions de débogage et autres sur mon ordinateur et celui de l'expérience. Une pensée à Floréal qui a malheureusement dû quitter le laboratoire au cours de ma thèse et avec qui j'avais d'agréables échanges vespéraux. Je remercie Pascal et Bruno du bureau d'études pour leurs plans. En particulier, je remercie Pascal pour m'avoir prêté main forte à plusieurs reprises lors de l'assemblage des différents éléments mécaniques de l'expérience et Bruno pour ses explications très instructives. Je remercie Hervé pour ses inappréciables interventions, notamment sur le plan électrique et pour les discussions plus personnelles que l'on a pu avoir. Je remercie les administratrices Josiane, Sandra et Magali pour leur patience, en particulier à Josiane pour avoir supporté mes demandes de dernières minutes et mes retards. Je remercie aussi Danielle, la bibliothécaire, pour sa gentillesse. Enfin, je remercie Sylvie pour son éternelle bonne humeur et pour ses sempiternels coups de balai dans mon bureau.

Je remercie Laurence Pruvost pour les nombreuses conversations scientifiques et personnelles que nous avons eu, et notamment lorsqu'elle m'a expliqué, avec beaucoup de pédagogie, le principe de la détection synchrone. Je remercie Jean-Louis Le Gouët pour ces échanges passionnés de politique, d'histoire ou de science que l'on a eu à table ou autour d'un café, en particulier je n'oublierai jamais celle sur la triangulation. Je remercie Thierry Chanelière pour ses histoires de plongée et pour ses conseils, notamment pour la construction du bobinage utile à notre expérience. Je remercie Anne Chauvet pour ses encouragements et pour son soutien, Maria Florencia Pascual-Winter pour sa gentillesse, sa sympathie et ses encouragements, Patrick Cheinet pour les bons moments passés au café la Havane ou autour d'une frite à Fribourg et Maurice Raoult pour sa sympathie, son soutien et ses explications scientifiques, notamment sur les profils de Fano qui malgré tout reste encore un peu un mystère pour moi. Enfin, je remercie Jean-Pierre Galaup pour sa gentillesse et son humour.

Un grand merci à tous les thésards et post-docs du laboratoire, à Matthieu et Julian avec lesquels j'ai partagé mon bureau pendant de nombreux mois et qui se sont révélés être de très sympathiques compagnons, à Guillaume pour les nombreuses discussions en tout genre, à Héloïse, Aurore, Isam, Azer, Robert-Christopher, Demis, Guyve, Yohann et

aux anciens Thomas, Vincent, Ridha, Oussama et Paul. Un merci tout particulier à Citlali pour sa gentillesse, sa bonne humeur, sa sincérité et pour les longues heures extrêmement agréables passées ensemble à discuter.

Je remercie les inconditionnels du groupe de 11h22, René-Jean Champeau, Anne Cru-bellier, Jean-François Wyart et Martin Schmidt pour les nombreux repas pris ensemble et pour toutes les conversations, parfois très passionnées, que nous avons eu.

La thèse fut pour moi une formidable occasion d'enseigner, je remercie Pascal Parneix, Cyril Falvo, Codruta Marinica, Mathieu Vincendon, Bartjan Van Tent, et Anaïs Moller, une équipe avec qui j'ai énormément apprécié de travailler.

Je remercie profondément ma famille sans qui cette aventure n'aurait jamais eu lieu. Je remercie en particulier ma mère pour m'avoir toujours soutenu et pour avoir toujours cru en moi. Je remercie de tout mon cœur ma femme Gabrielle et ma fille Salomé pour leur présence à tout instant y compris les plus difficiles. Elles m'ont soutenu et supporté au quotidien tout au long de ma thèse, sans elles, la rédaction du manuscrit aurait été une épreuve infiniment plus éprouvante.

Je remercie infiniment Julien et Benoît pour leur amitié et pour les longues, voire très longues, distances parcourues pour venir me voir, en particulier pour m'encourager le jour de ma soutenance.

Enfin, je remercie mes compagnons de navigation à la voile, Benoît Lantin, Jean-Marc Douguet, Claire Waelbroeck, Jean-Paul Vanderlinden, Anne Chauvet, Pascale Braconnot et Christophe Blondel qui m'ont initié à l'art de naviguer au vent et avec qui j'ai partagé un rêve de longue date. Je remercie tout particulièrement Benoît pour son extrême gentillesse, pour ses visites de Toulouse ou de son laboratoire et pour les moments agréables et chaleureux passés à discuter. Benoît a écrit l'hymne de l'Aigle, voilier sur lequel nous nous trouvions lors du challenge nautique de 2012. Chantons le encore une fois :

## AIGLE BLANC

Un beau jour, ou peut-être une nuit  
Par grand frais, tranquille on naviguait  
Quand soudain, semblant crever les flots  
Surgissant de bâbord, Tonnerre de Brest en tort

Dis caennais, laisse-moi naviguer  
Dis caennais, j'ai la priorité  
La bouée, tu ne la passes pas  
Et nous on la fera, derrière nous tu seras

Aigle blanc n'ai pas peur de Tonnerre  
Sors tes serres, tu te f'ras la côtière  
Va au vent, devant les concurrents  
Dans le vent tournoyant, remont'le classement

Lentement, sur chaque bouée au vent  
Lentement, just' devant l'Océan  
Lentement, Mistral quatre perdant  
Partir au spi devant, larguer les concurrents

Un beau jour, ou peut-être une nuit  
Par grand frais, tranquille on naviguait  
Aigle blanc, lancé à toute allure  
Semblant crever le ciel, tangon tribord amure!

---

# Table des matières

<b>I</b>	<b>Vers le photodétachement presque total de faisceaux de <math>H^-</math></b>	<b>1</b>
<b>1</b>	<b>Photodétachement d'ions négatifs : état de l'art pour <math>H^-</math></b>	<b>7</b>
1.1	L'ion négatif . . . . .	7
1.2	Interaction d'un ion négatif avec un photon : le photodétachement . . . . .	9
1.2.1	Règles de sélection et section efficace de photodétachement . . . . .	10
1.2.1.1	Règles de sélection [CTDL73a] . . . . .	10
1.2.1.2	Processus à seuil . . . . .	11
1.2.1.3	Comportement de la section efficace près du seuil de détachement : loi de Wigner [Wig48] . . . . .	11
1.2.1.4	Comportement de la section efficace loin du seuil . . . . .	14
1.3	État de l'art du photodétachement de $H^-$ . . . . .	15
1.3.1	Études et intérêts historiques . . . . .	16
1.3.2	Affinité électronique . . . . .	23
1.3.3	Section efficace de photodétachement de $H^-$ . . . . .	36
1.3.3.1	Section efficace autour du maximum . . . . .	36
1.3.3.2	Section efficace près du seuil . . . . .	48
1.3.3.3	Comportement très loin du seuil : résonances . . . . .	51
1.3.4	Photodétachement de $H^-$ en présence d'un champ extérieur . . . . .	57
1.3.4.1	Photodétachement en champ électrique . . . . .	57



1.3.4.2	Photodétachement en champ magnétique . . . . .	61
<b>2</b>	<b>Dispositif expérimental</b>	<b>63</b>
2.1	La source d'ions négatifs : SNICS II . . . . .	64
2.2	Le jet d'ions négatifs . . . . .	67
2.3	Les lasers . . . . .	68
2.3.1	Le laser continu Titane : Saphir . . . . .	68
2.3.2	Le laser pulsé Nd : YAG . . . . .	69
2.3.3	Mesure de la longueur d'onde . . . . .	71
2.3.3.1	Le lambdamètre . . . . .	71
2.3.3.2	Calibration du lambdamètre . . . . .	71
2.4	La chambre d'interaction . . . . .	72
2.4.1	Géométrie de la chambre d'interaction . . . . .	72
2.4.2	Les sources d'élargissement expérimentales . . . . .	73
2.5	La chaîne de détection . . . . .	78
2.5.1	Détection des ions négatifs . . . . .	78
2.5.2	Mesure de la puissance ou de l'énergie des faisceaux lasers . . . . .	78
2.5.2.1	En régime continu : le puissance-mètre . . . . .	78
2.5.2.2	En régime pulsé : les joulemètres . . . . .	79
2.5.3	Détection des neutres . . . . .	79
2.5.3.1	Compteur de neutres . . . . .	80
2.5.3.2	Spectrométrie de masse par temps de vol . . . . .	82
2.5.4	Détecteur bidimensionnel à phosphore . . . . .	83
<b>3</b>	<b>Mesure de la section efficace absolue de photodétachement de <math>H^-</math> à 1064 nm</b>	<b>87</b>
3.1	Mesure d'une section efficace absolue : la méthode de la saturation . . . . .	87
3.1.1	Principe général . . . . .	87

3.1.2	La méthode de la saturation dans la littérature . . . . .	88
3.2	Modélisation de l'interaction laser-jet . . . . .	91
3.2.1	Modélisation simplifiée de l'interaction laser-jet [HL73] . . . . .	91
3.2.2	Prise en compte des variations spatio-temporelles d'éclairement des ions . . . . .	94
3.2.2.1	Insertion du profil spatio-temporel du laser dans la dynamique [BBAH92] . . . . .	94
3.2.2.2	Volume de saturation . . . . .	96
3.2.2.3	Expressions de la section efficace $\sigma$ et du paramètre de saturation $S$ . . . . .	101
3.2.2.4	Prise en compte du profil du jet d'ions . . . . .	106
3.3	Montage expérimental et acquisition des données . . . . .	110
3.3.1	Saturation d'un jet de $H^-$ : principe général de l'expérience . . . . .	110
3.3.2	Le laser Nd:YAG pulsé . . . . .	112
3.3.2.1	Profil temporel d'une impulsion laser . . . . .	112
3.3.2.2	Profil spatial . . . . .	116
3.3.3	Modulation de l'énergie des impulsions laser . . . . .	119
3.3.4	Le jet d'ions : profil spatial . . . . .	119
3.3.5	Détection et acquisition . . . . .	123
3.3.5.1	Mesure de l'énergie des impulsions . . . . .	123
3.3.5.2	Détection des neutres . . . . .	124
3.3.5.3	Numérisation et acquisition des signaux impulsion par impulsion . . . . .	125
3.4	Traitement des données expérimentales . . . . .	125
3.4.1	Programme d'ajustement . . . . .	125
3.4.2	Analyse des mesures expérimentales . . . . .	128
3.4.2.1	Mesure de la section efficace absolue de $H^-$ à 1064 nm . . . . .	128

3.4.2.2	Variation de la géométrie spatio-temporelle des faisceaux ; étude de la saturation . . . . .	133
3.4.2.3	Mesure de la dimension longitudinale du volume de saturation	139
3.4.2.4	Impulsion laser secondaire : décalage de l'échelle des éner- gies et conséquences sur la valeur de la section efficace . .	141
3.5	Conclusion . . . . .	143
<b>4</b>	<b>Photodétachement en cavité Fabry-Perot</b>	<b>145</b>
4.1	Rappels : cavité Fabry-Perot linéaire à deux miroirs [ <a href="#">Tre07</a> ] . . . . .	146
4.1.1	Intensités en transmission et en réflexion . . . . .	146
4.1.2	Intervalle spectral libre et finesse . . . . .	147
4.1.3	Intensité intracavité : coefficient de surtension . . . . .	148
4.1.4	Pertes d'énergie . . . . .	149
4.1.4.1	Pertes durant la propagation . . . . .	150
4.1.4.2	Pertes par diffraction [ <a href="#">Del08</a> ] . . . . .	151
4.1.4.3	Pertes et finesse . . . . .	152
4.1.5	Faisceau gaussien dans une cavité Fabry-Perot à deux miroirs [ <a href="#">Sie86</a> ] . . . . .	152
4.1.5.1	Matching du faisceau dans la cavité . . . . .	152
4.1.5.2	Les modes de la cavité . . . . .	153
4.1.5.3	Sensibilité au désalignement et dégénérescence des modes . . . . .	155
4.2	Cavité Fabry-Perot concave-concave pour le photodétachement de $O^-$ . . . . .	156
4.2.1	Dimensionnement . . . . .	156
4.2.1.1	Choix des rayons de courbure . . . . .	156
4.2.1.2	Réfectivité des miroirs . . . . .	159
4.2.1.3	Taille des miroirs : diffraction . . . . .	159
4.2.2	Montage expérimental . . . . .	159
4.2.2.1	Miroirs et hublots . . . . .	159
4.2.2.2	L'asservissement de la cavité sur le laser . . . . .	159

4.2.3	Photodétachement d'ions $O^-$ en cavité Fabry-Perot linéaire concave-concave . . . . .	161
4.3	Dimensionnement de la cavité en anneau pour le photodétachement quasi-total d'un jet de $H^-$ . . . . .	163
4.3.1	Choix de la longueur d'onde . . . . .	163
4.3.2	Taille du waist . . . . .	163
4.3.3	Puissance nécessaire pour saturer le photodétachement . . . . .	164
4.3.4	Choix du laser . . . . .	166
4.3.5	Géométrie du faisceau intracavité . . . . .	166
4.3.6	Longueur de la cavité . . . . .	167
4.3.7	Taille du waist : rayon de courbure du miroir sphérique . . . . .	168
4.3.8	Tenue au flux des miroirs . . . . .	168
4.3.9	Taille des miroirs et diffraction . . . . .	169
4.3.10	Surtension et finesse : réflectivité des miroirs . . . . .	169
<b>5</b>	<b>Photodétachement en champ magnétique : résonances de Landau</b>	<b>171</b>
5.1	Trajectoire d'une particule chargée dans un champ magnétique . . . . .	171
5.1.1	Trajectoire classique . . . . .	171
5.1.2	Point de vue quantique . . . . .	176
5.1.2.1	Niveaux de Landau . . . . .	178
5.1.2.2	Quantification du flux magnétique . . . . .	180
5.2	Section efficace de photodétachement en champ magnétique : résonances de Landau . . . . .	182
5.2.1	Comportement de $\sigma$ au niveau d'une résonance . . . . .	182
5.2.2	Section efficace pour l'onde $s$ . . . . .	187
5.2.3	Théorie des orbites fermées . . . . .	188
5.3	Levée de dégénérescence Zeeman . . . . .	188
5.3.1	Choix de l'ion $O^-$ . . . . .	189

5.3.2	Structure Zeeman . . . . .	189
5.4	Écarts à la théorie : limites de résolution de l'expérience . . . . .	194
5.4.1	Effets des flous sur le profil de $\sigma$ . . . . .	194
5.4.2	Sources d'élargissement expérimental . . . . .	194
5.5	Les bobines de champ magnétique : dimensionnement et montage . . . . .	197
5.5.1	Simulations du champ magnétique produit par les bobines . . . . .	198
5.5.2	Réalisation expérimentale du champ magnétique . . . . .	199
5.5.2.1	Géométrie des bobines de champ magnétique . . . . .	199
5.5.2.2	Étude des échanges thermiques : refroidissement actif des bobines . . . . .	199
5.5.2.3	Construction et mise en place des bobines . . . . .	203
5.6	Conclusion . . . . .	204

## **II La microscopie de photodétachement 207**

### **6 Les principes de la microscopie de photodétachement 209**

6.1	Interférométrie d'électrons en chute libre . . . . .	210
6.2	Propagation d'ondes électroniques en champ électrique uniforme : description semi-classique . . . . .	212
6.2.1	Mouvement classique [BBG <sup>+</sup> 98] . . . . .	212
6.2.2	Intégrales de chemin et phase de l'interférogramme [BBD01] . . . . .	214
6.2.3	L'orbite fermée comme clef de voûte de l'interférogramme . . . . .	217
6.3	Densité de courant de probabilité de l'électron . . . . .	218

### **7 Spectroscopie de photodétachement des ions P<sup>-</sup>, Se<sup>-</sup> et Sn<sup>-</sup> 221**

7.1	Le microscope de photodétachement . . . . .	221
7.1.1	Diagramme de faisabilité : dimensionnement . . . . .	221
7.1.2	La colonne de champ électrique . . . . .	222

7.1.3	Correction de l'effet Doppler . . . . .	223
7.1.4	Dégradation du contraste des interférogrammes . . . . .	223
7.2	Spectroscopie de $P^-$ et $P$ : photodétachement vers un terme spectral excité [PBV <sup>+</sup> 11] . . . . .	225
7.2.1	Données spectroscopiques de $P^-$ et $P$ . . . . .	225
7.2.2	Mesures des seuils de détachement du phosphore et analyse des données	228
7.2.2.1	Analyse des données brutes . . . . .	231
7.2.2.2	Affinité électronique du phosphore et structures fines . . .	232
7.2.2.3	Structures hyperfines . . . . .	235
7.3	Affinité électronique du sélénium [VDB12] . . . . .	237
7.3.1	Dispositif expérimental . . . . .	238
7.3.2	Structure hyperfine et décalage isotopique . . . . .	238
7.3.3	Analyse des données : affinité électronique du sélénium . . . . .	239
7.4	Affinité électronique de l'étain [VDB13] . . . . .	240
7.4.1	Dispositif expérimental . . . . .	241
7.4.2	Données spectroscopiques du système $Sn^-$ - $Sn$ . . . . .	241
7.4.2.1	Spectroscopie de $Sn^-$ dans la littérature . . . . .	241
7.4.2.2	Spectre de l'étain neutre . . . . .	242
7.4.2.3	Décalages isotopiques . . . . .	242
7.4.2.4	Structures hyperfines . . . . .	244
7.4.3	Analyse des données : affinité électronique de l'étain . . . . .	245

*"Sachez que rien n'est laissé au hasard."*

Cyril Drag

---

# Introduction

Le contrôle des réactions de fusion nucléaire réglerait en grande partie le problème énergétique actuel. Pour une production continue d'énergie, ce contrôle passe par le confinement de particules de très haute température (plus de 10 keV, c'est-à-dire plus de 100 millions de kelvin). À haute température, les électrons se libèrent de l'attraction des noyaux (deutéron, triton), il y a génération d'un plasma.

Les tokamaks sont des machines qui génèrent un plasma de haute température et le confinent à l'aide d'un champ magnétique. Pour maintenir une température élevée et permettre aux particules de fusionner, le plasma doit être chauffé en continu.

Le chauffage peut être effectué par injection de particules de haute énergie dans le cœur du plasma qui, en heurtant les particules du plasma, vont le chauffer. Les particules injectées doivent être électriquement neutres pour ne pas être réfléchies par le champ magnétique.

Il est possible de produire de grandes quantités de particules neutres (deutérium, tritium) de haute énergie en neutralisant des particules chargées, initialement accélérées à l'aide d'un champ électrique. Cette fonction est assurée par les injecteurs de neutres (IDN) qui génèrent des particules chargées (ions négatifs), les accélèrent puis les neutralisent. La neutralisation s'opère actuellement par collision des particules chargées avec un gaz neutre, c'est le principe du neutraliseur à gaz.

Le neutraliseur à gaz présente deux inconvénients, l'efficacité limitée de son processus de neutralisation ( $\sim 55\%$ ), et les pertes en lignes dues à l'injection de gaz qui affaiblissent le rendement global de l'injecteur de neutres à  $\sim 20\%$ .

Pour les futurs réacteurs de fusion nucléaire contrôlée par confinement magnétique (les tokamaks ITER et DEMO), il sera nécessaire d'avoir des injecteurs de neutres puissants à haut rendement. Le remplacement du neutraliseur à gaz par un neutraliseur basé sur le photodétachement par laser d'ions négatifs à haute énergie (pour DEMO, 2 MeV, 30 A) permettrait, en s'affranchissant des inconvénients du neutraliseur à gaz, d'améliorer le rendement des injecteurs de neutres à hauteur de 60 %.



Le photodétachement presque total d'un faisceau d'ions négatifs (63 %) requiert l'utilisation de forts flux lumineux ( $5 \text{ MW/cm}^2$ ) qui peuvent être obtenus par l'injection d'un laser puissant ( $\sim 1 \text{ kW}$  à  $1064 \text{ nm}$ ) dans une cavité Fabry-Perot de finesse environ 10000. Les expériences menées dans le cadre de cette thèse, fruit d'une collaboration entre l'équipe Ions négatifs du laboratoire Aimé-Cotton (UPR 3321, CNRS) et l'Institut de recherche sur la fusion par confinement magnétique (IRFM) du CEA Cadarache, ont pour objectif d'initier la démonstration, à échelle réduite, de la faisabilité du concept.

Afin de répondre à cet objectif, nous avons ajouté, à un montage expérimental préexistant, une nouvelle chambre d'interaction avec sa chaîne de détection (cf. chapitre 2). La recherche bibliographique sur le photodétachement de  $\text{H}^-$  (cf. chapitre 1), fait apparaître que la section efficace de photodétachement à  $1064 \text{ nm}$  (sélectionnée pour les IDN) n'est connue qu'indirectement ou au travers d'études théoriques. Il est donc important de vérifier expérimentalement la valeur de cette section efficace. Nous avons, pour cela, élaboré une nouvelle méthode de mesure basée sur la saturation du processus de photodétachement (cf. chapitre 3).

En parallèle, nous avons dimensionné et fait assembler une cavité en anneau en vue de réaliser le photodétachement presque total d'un jet d'ions  $\text{H}^-$ . Avant le montage de cette cavité en anneau, nous avons fabriqué une cavité Fabry-Perot linéaire stable de finesse moyenne avec laquelle nous avons mené des expériences préliminaires de photodétachement amplifié d'un jet d'ions  $\text{O}^-$  (cf. chapitre 4).

Cette cavité de finesse moyenne présente un intérêt supplémentaire quant aux expériences que nous menons actuellement. L'utilisation des résonances (de Landau) qui apparaissent dans la section efficace de photodétachement en champ magnétique (cf. chapitre 5) permettrait de diminuer la puissance intracavité nécessaire au photodétachement presque total, donc de réduire les contraintes technologiques sur la cavité Fabry-Perot ou le laser. L'emploi de la cavité de finesse moyenne pourrait faciliter l'observation de ces résonances.

En parallèle avec le développement de cette nouvelle expérience sur le photodétachement de  $\text{H}^-$  visant à obtenir de hauts rendements de neutralisation, nous avons, dans le prolongement des travaux antérieurs de l'équipe Ions négatifs, réalisé des expériences de microscopie de photodétachement des ions négatifs (cf. chapitres 6 et 7).

Cette thèse a donné lieu à la publication de quatre articles :

[[SCdE<sup>+</sup>11](#)] Simonin et al., SIPHORE : Conceptual Study of a High Efficiency Neutral Beam Injector Based on Photodetachment for Future Fusion Reactors, AIP Conf. Proc. **1390**, pp 494-504 (2011)

[[PBV<sup>+</sup>11](#)] Peláez et al., Photodetachment microscopy to an excited spectral term and the electron affinity of phosphorus, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **44**, 195009 (2011)

[[VDB12](#)] Vandevraye et al., Electron affinity of selenium measured by photodetachment microscopy, Phys. Rev. A **85**, 015401 (2012)

[[VDB13](#)] Vandevraye et al., Electron affinity of tin measured by photodetachment microscopy, J. Phys B : At. Mol. Opt. Phys. **46**, 125002 (2013)



# Première partie

Vers le photodétachement presque  
total de faisceaux de  $H^-$



---

# Contexte technologique

Les tokamaks tels que les futurs réacteurs de fusion ITER ou DEMO, sont constitués d'une enceinte à vide de topologie toroïdale et d'un système de bobines permettant la génération d'un champ magnétique (cf. figure 1).

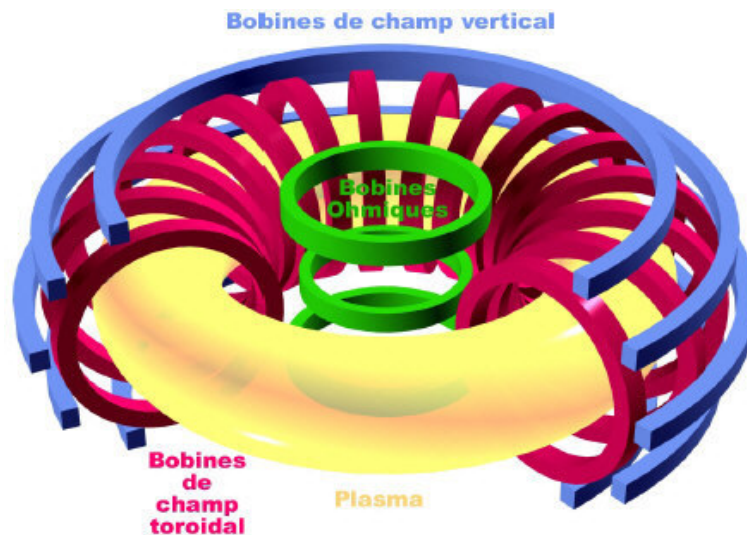


FIGURE 1 – Représentation schématique du système de bobines et du plasma d'un tokamak. Le rôle des bobines ohmiques est d'accélérer, par induction d'un champ électrique toroïdal, les ions résiduels présents dans la chambre torique et, par effet d'avalanche, de générer le plasma initial. Les bobines de champ toroïdal et de champ vertical permettent en s'ajoutant au champ poloïdal généré par le courant plasma d'assurer le confinement de ce dernier.

Un courant électrique d'intensité croissante, en circulant au travers des bobines ohmiques, permet de générer un champ magnétique vertical également croissant aligné sur l'axe de symétrie du tore qui, à son tour, induit un champ électrique toroïdal. Des ions résiduels présents naturellement dans la chambre torique sont accélérés et, par effet d'avalanche, génèrent un plasma. Le confinement de ce dernier est assuré par un champ magnétique engendré par un système de bobines toroïdales et poloïdales et par un champ induit via le courant plasma (autoconfinement).

Dans un tokamak, le confinement des particules et de l'énergie est imparfait, il est

donc indispensable, pour maintenir la température nécessaire à la production des réactions de fusion, de chauffer le plasma en continu. Pour atteindre cet objectif, des neutres de haute énergie cinétique sont injectés dans le cœur du plasma de manière à le chauffer par collisions. Outre l'auto-chauffage du plasma par les noyaux d'hélium produits lors des réactions de fusion (chauffage majoritaire dans les futurs réacteurs comme DEMO), cette méthode de chauffage est la plus importante dans un tokamak.

La production de faisceaux de neutres est assurée par les injecteurs de neutres qui génèrent des ions négatifs (deutérium ou tritium), les accélèrent électrostatiquement (1 MeV pour ITER, 2 MeV pour DEMO) puis les neutralisent au sein d'un neutraliseur avant de les injecter dans le cœur du plasma (cf. figure 2).

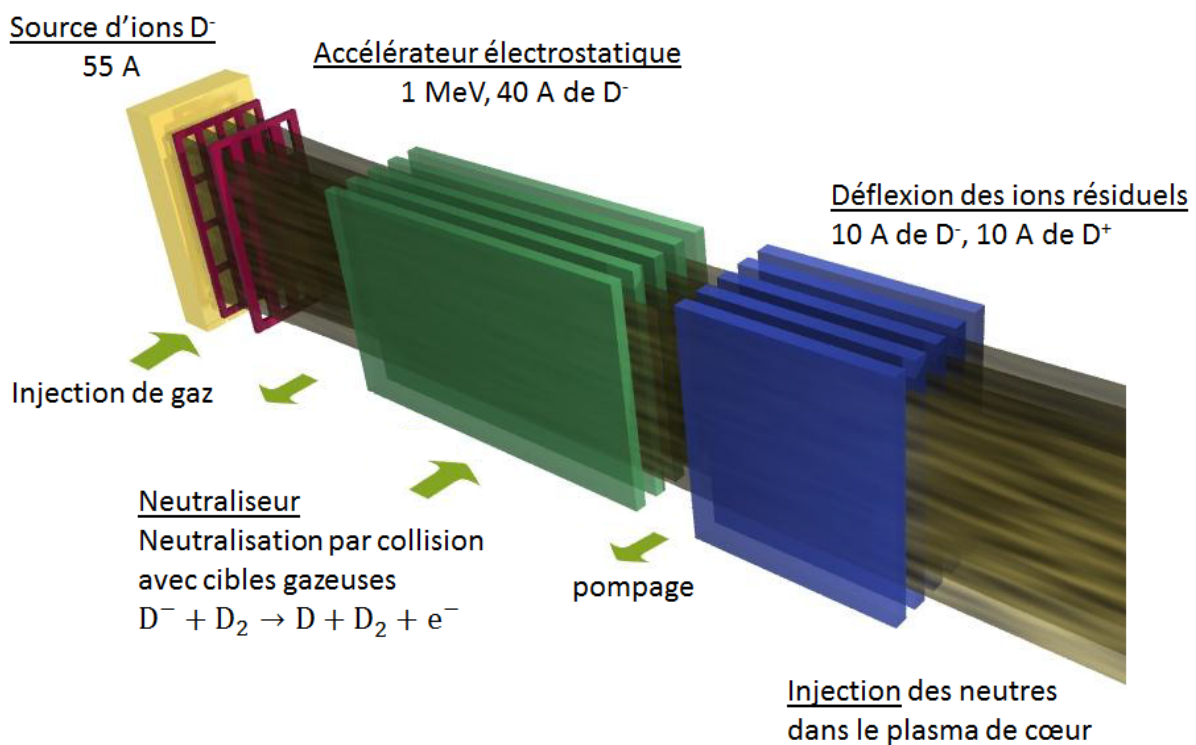


FIGURE 2 – Schéma de l'injecteur de neutres d'ITER constitué d'une source d'ions D<sup>-</sup>, d'un accélérateur électrostatique procurant une énergie cinétique de 1 MeV aux ions, d'un neutraliseur à gaz et d'un déflecteur extrayant du faisceau les ions présents en sortie du neutraliseur.

Pour ITER, la neutralisation s'opérera par collision des faisceaux d'ions négatifs avec un gaz de D<sub>2</sub>. Durant le passage du faisceau d'ions dans le gaz, la réaction qui contribue à la neutralisation du faisceau d'ions correspond à une réaction d'épluchage :  $D^- + D_2 \rightarrow D + D_2 + e^-$  dont l'efficacité est limitée à  $\sim 55\%$ .

Outre cette réaction, il y a de l'ionisation et de l'excitation contribuant à la formation

d'un plasma secondaire dans le neutraliseur. Ce plasma est à l'origine d'un gradient de potentiel qui entraîne l'apparition d'un flux d'ions positifs se dirigeant vers l'accélérateur. Ce phénomène, en plus de la nécessaire injection de gaz, est la cause de pertes d'ions négatifs durant leur acheminement vers le neutraliseur. Cela, ajouté à la faible efficacité du processus de neutralisation, entraîne une réduction du rendement global de l'injecteur à  $\sim 20\%$ .

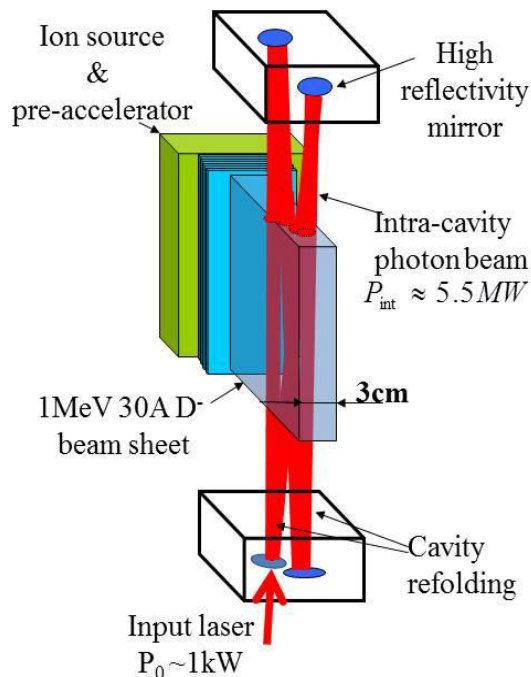


FIGURE 3 – Nouveau concept d'injecteur de neutres basé sur le photodétachement des ions négatifs (SiPhoRe) en cavité Fabry-Perot [SCdE<sup>+</sup>11]. Une source d'ions  $D^-$  produit des nappes d'ions négatifs accélérés électrostatiquement à 1 ou 2 MeV d'énergie cinétique pour un courant total en sortie d'accélérateur de  $\sim 30$  A. Les ions sont ensuite neutralisés par laser en cavité Fabry-Perot (puissance d'entrée de 1 kW pour une puissance stockée de 5 MW sur un centimètre carré). Plusieurs cavités Fabry-Perot pourraient être installées le long du faisceau pour augmenter le taux de neutralisation. La figure a été extraite du manuscrit d'habilitation à diriger des recherches d'Alain Simonin [Sim13].

Pour contourner ces difficultés, l'idée est de remplacer le neutraliseur à gaz par un neutraliseur basé sur le photodétachement d'ions négatifs par laser. La section efficace de photodétachement étant relativement faible, il est nécessaire d'éclairer le faisceau d'ions avec un faisceau laser de forte puissance, de l'ordre du mégawatt (cf. figure 3). À l'heure actuelle, il n'existe pas de laser continu atteignant un tel niveau de puissance. L'astuce est donc d'injecter un laser de puissance plus modeste (1 kW) dans une cavité Fabry-Perot, de manière à stocker intracavité la puissance nécessaire au photodétachement presque total des faisceaux d'ions négatifs (faisceau d'ions en forme de nappe pour faciliter le recouvrement



---

par le faisceau laser).

Ce nouveau concept d'injecteur appelé SiPhoRe [SCdE+11] (pour Single-gap-photonneutralizer injector with energy recovery) fait actuellement (en 2014) l'objet de nombreuses études dans différents laboratoires en France (source d'ions négatifs, accélérateur, neutraliseur etc.). Le rendement attendu pour SiPhoRe s'élève à  $\sim 60\%$ .

Les travaux de thèse présentés dans la première partie de ce manuscrit initient la démonstration, à échelle réduite (jet d'ions de 1 mm de diamètre de  $\sim 1$  nA), de la faisabilité du photodétachement presque total d'un jet de  $H^-$  en cavité Fabry-Perot.

# CHAPITRE 1

---

## Photodétachement d'ions négatifs : état de l'art pour $H^-$

### 1.1 L'ion négatif

L'ion négatif est un édifice constitué de l'assemblage d'un atome neutre et d'un électron. Au premier abord, l'existence des ions négatifs semble improbable. En effet, les lois de l'électrostatique prévoient que l'attraction entre une particule chargée et une particule neutre est nulle. Pour comprendre l'existence des ions négatifs, il faut considérer l'atome comme une particule composite constituée d'un noyau chargé positivement et d'un nuage électronique. Lors de la formation d'un ion négatif, l'électron libre se rapprochant de l'atome interagit avec le nuage électronique entraînant la polarisation de l'édifice atomique, il y a induction d'un dipôle électrique. Le potentiel d'interaction généré par ce dipôle induit est responsable de la force qui lie l'électron libre à l'atome formant ainsi l'ion négatif. Durant ce processus, l'atome perd une énergie potentielle que l'on appelle *affinité électronique* définie comme :

$${}^eA(A) = E_{tot}(A) - E_{tot}(A^-). \quad (1.1)$$

L'affinité électronique est la différence entre l'énergie *totale*  $E_{tot}(A)$  de l'atome et l'énergie *totale*  $E_{tot}(A^-)$  de l'ion négatif dans leurs états fondamentaux.

Le réarrangement du cortège privilégie les corrélations qui permettent aux électrons de se partager l'attraction. Plus précisément, les électrons s'organisent, en raison des corrélations coulombiennes (répulsions électrostatiques) et des corrélations de Pauli (principe

d'exclusion de Pauli), de manière à minimiser le recouvrement de leurs fonctions d'onde. Ceci mène à un abaissement suffisant de l'énergie totale du système pour le rendre stable.

Le potentiel d'interaction entre l'atome et l'électron excédentaire varie en  $\frac{1}{r^4}$  qui est de très courte portée au regard du potentiel coulombien qui lie les autres électrons à l'atome. Cette caractéristique est à l'origine de grandes différences de propriétés entre l'atome et son ion négatif.

L'ion négatif possède une structure d'énergie extrêmement simple composée de quelques états liés (n'entraînant pas l'autodétachement) qui, en général, sont associés à une même configuration électronique et souvent à un même terme spectral (avec sa structure fine et hyperfine). Les transitions dipolaires électriques au sein de son spectre discret sont en conséquence interdites (même parité). *A contrario*, la structure énergétique de l'atome est très complexe et le nombre de niveaux qui la constitue est infini (états de Rydberg). En outre, l'énergie de liaison de l'ion négatif est au moins d'un ordre de grandeur plus faible que celui de l'atome. À titre d'exemple, l'hydrogène a une énergie d'ionisation de 13,6 eV et son ion négatif  $H^-$  a une énergie de liaison (affinité électronique) d'un peu plus de 0,75 eV.

Certaines expériences de spectroscopie récentes ont montré que quelques ions comme l'ion osmium [BH00] et l'ion cérium [WGL+11] possèdent des niveaux d'énergie, situés sous le seuil de détachement, de parités différentes (et donc issus de configurations électroniques différentes). L'existence de ces niveaux, en rendant possible les transitions dipolaires électriques intra-ion négatif, offre la possibilité de les refroidir par laser [KF12], même si les essais restent actuellement infructueux. D'autres ions lanthanides ou actinides sont susceptibles d'avoir également des niveaux de parités différentes [OB10]. Par ailleurs, les énergies de liaison des ions négatifs sont très différentes d'un ion à l'autre. On peut citer le chlore dont l'affinité électronique est la plus élevée, 3,61 eV et le calcium qui à l'inverse forme l'ion stable le moins lié ( $\epsilon_A$  de 0,024 eV). De manière générale les alcalino-terreux forment des ions négatifs très peu liés (par exemple le baryum avec une affinité électronique de 144,2 meV [PVB+95]) voire instables comme le béryllium [BP84] et le magnésium [BMC76]. Certains de ces éléments instables peuvent néanmoins former des ions dans des états métastables (vis-à-vis de l'autodétachement). Ainsi, les ions  $He^-$  et  $Be^-$  ont pu être observés expérimentalement [BGH67, BP84].

## 1.2 Interaction d'un ion négatif avec un photon : le photodétachement

Lors de son interaction avec un ion négatif, un photon peut être absorbé par l'ion, le menant ainsi vers un niveau excité virtuel. Pour se stabiliser l'ion négatif redistribue l'énergie excédentaire apportée par le photon, à un électron du cortège électronique. Ceci entraîne sa libération vers le continuum avec une énergie cinétique égale à la différence entre l'énergie du photon et l'intervalle énergétique entre le niveau de départ de l'ion négatif et le niveau d'arrivée de l'atome neutre (voir fig. 1.1). L'électron émis ne laisse alors derrière lui qu'un atome neutre avec lequel il n'interagit quasiment plus faisant de son mouvement celui d'un électron libre, c'est le photodétachement.

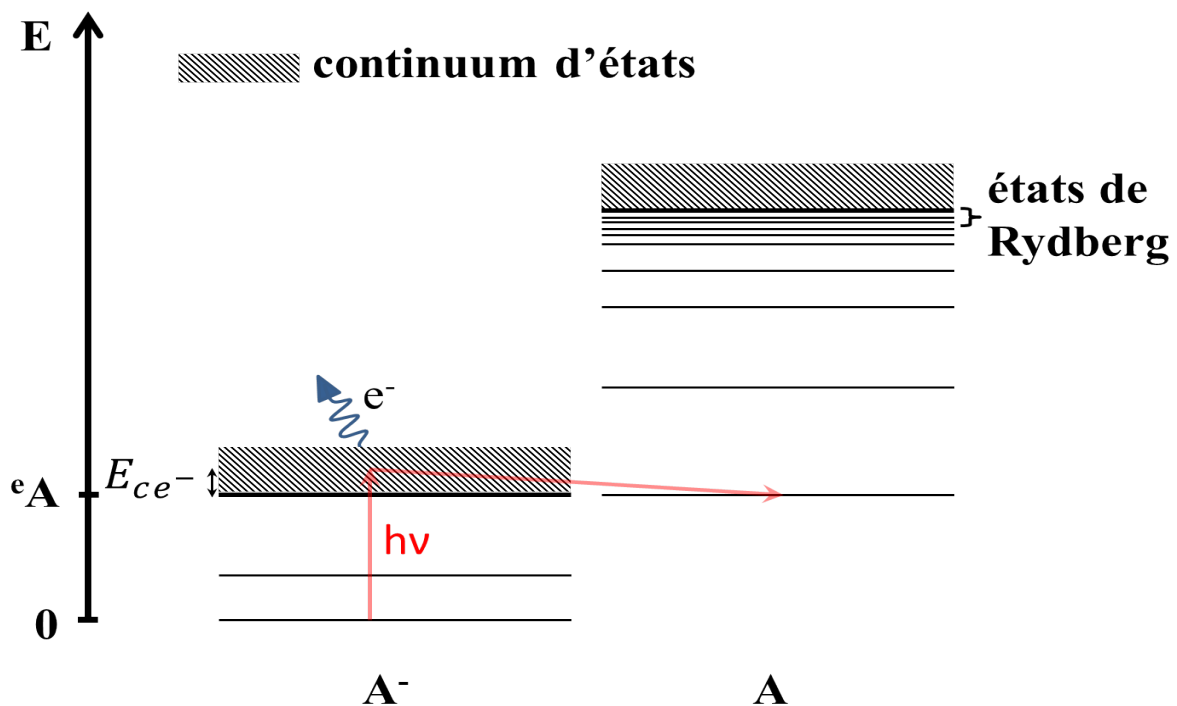


FIGURE 1.1 – Représentation schématique du processus de photodétachement. L'ion négatif  $A^-$ , initialement dans son état fondamental, absorbe un photon d'énergie  $h\nu$ . L'énergie est redistribuée à un électron du cortège. Une partie de cette énergie sert à extraire l'électron du cortège, l'excédent d'énergie est transmise à l'électron libéré sous forme d'énergie cinétique.

Le photodétachement d'un ion négatif ne peut avoir lieu que sous certaines conditions. Il faut, d'une part, que l'énergie du photon incident soit suffisante pour permettre la transition entre le niveau de départ de l'ion négatif et le niveau d'arrivée de l'atome. D'autre part, que

le moment cinétique total soit conservé et obéisse aux règles de sélection de la transition dipolaire électrique. La probabilité qu'il y ait photodétachement dépend donc de l'énergie du photon incident et du moment cinétique de l'électron détaché. On peut définir la notion de *section efficace* de photodétachement  $\sigma$  qui, en régime linéaire (processus à un photon), est la quantité homogène à une surface égale au quotient du taux de détachement  $\frac{dP}{dt}$  par le flux de photons incidents  $\Phi$  :

$$dP = \sigma \Phi dt,$$

où  $dt$  est une durée infinitésimale.

La section efficace est, par définition, une quantité complètement indépendante des conditions expérimentales concernant les flux de particules (cibles ou projectiles) et le temps d'éclairement.

## 1.2.1 Règles de sélection et section efficace de photodétachement

### 1.2.1.1 Règles de sélection [CTDL73a]

Dans les expériences, les longueurs d'onde utilisées sont, habituellement, bien plus grandes que les ions négatifs étudiés. Durant le photodétachement, la distribution de charges de l'ion n'est pas sensible au détail des variations spatiales du champ de l'onde avec laquelle il interagit. Les règles de sélection à considérer sont alors celles des transitions dipolaires électriques.

L'opérateur dipôle électrique est proportionnel à l'opérateur position qui est impair et ne connecte, par conséquent, que des états de parités différentes. Les parités des états sont celles de leurs moments cinétiques. Si  $l_i$  est le moment cinétique de l'état initial et  $l_f$  celui du niveau final alors la transition n'est permise que si :

$$\Delta l = l_f - l_i = \pm 1. \tag{1.2}$$

Dans le cas où il y a un couplage de Russell-Saunders, les règles de sélection sont :

$$\Delta S = 0; \Delta L = 0, \pm 1; \Delta l = \pm 1; \Delta J = 0, \pm 1 \text{ avec } J = 0 \not\rightarrow 0. \tag{1.3}$$

Où  $S$  est le moment de spin total du système,  $L$  le moment cinétique orbital total,  $J$

le moment cinétique total et  $l$  le moment cinétique orbital de l'électron détaché.

### 1.2.1.2 Processus à seuil

Le photodétachement est un processus à seuil. Plus précisément, cela signifie que la section efficace ne peut être non-nulle que lorsque l'énergie du photon incident est plus grande que l'énergie séparant le niveau de départ de l'ion négatif et le niveau d'arrivée de l'atome. Au-delà, mais néanmoins près du seuil, la section efficace a un comportement qui suit une loi démontrée par Wigner [Wig48].

### 1.2.1.3 Comportement de la section efficace près du seuil de détachement : loi de Wigner [Wig48]

Dans son article de 1948 [Wig48], Eugene Paul Wigner donne le comportement, près d'un seuil, de la section efficace de diffusion impliquant deux particules et dont les produits sont au nombre de deux. Il démontre que, quel que soit le mécanisme d'interaction mis en jeu, la dépendance de la section efficace en fonction de la norme du vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  (qui peut être assimilée à celle de l'électron dans le cas du photodétachement) dépend de l'interaction à grande distance entre les produits de la réaction. En particulier, il établit le comportement de la section efficace de diffusion, dans le cas d'une collision sans interaction, où la particule réduite de masse  $m$  subit le potentiel de la barrière centrifuge égal à  $\frac{\hbar^2 l(l+1)}{2mr^2}$ . La section efficace ne dépend alors que de la norme de  $\mathbf{k}$  et du moment cinétique total  $l$  du système dans le référentiel du centre de masse :

$$\sigma \propto k^{2l+1}. \quad (1.4)$$

Le photodétachement peut être décrit comme la collision entre un photon et un ion négatif dont les produits sont un atome et un électron. L'électron, en polarisant l'atome, entraîne la génération d'un potentiel d'interaction dipolaire de courte portée qui varie en  $\frac{1}{r^4}$ . Ce terme peut être considéré comme une petite perturbation en regard de la barrière centrifuge; le photodétachement s'inscrit donc parfaitement dans la théorie de Wigner. Ces potentiels étant de très courte portée, la particule réduite, qui peut être assimilée à l'électron en raison de la grande masse de l'atome neutre, peut être considérée comme libre. La relation 1.4 peut se réécrire sous la forme :

$$\sigma \propto \epsilon^{l+1/2} \quad (1.5)$$

où  $\epsilon$  et  $l$  sont respectivement l'énergie cinétique et le moment cinétique de l'électron détaché.

On représente sur la figure 1.2 le comportement de la section efficace, près d'un seuil, en fonction de l'énergie cinétique de l'électron  $\epsilon$  pour plusieurs valeurs du moment cinétique  $l$ .

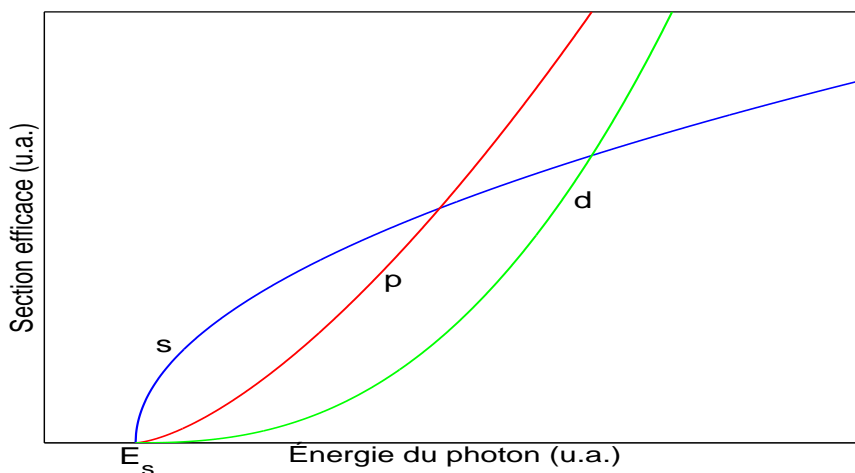


FIGURE 1.2 – Comportement, prévu par la loi de Wigner, de la section efficace, près d'un seuil (énergie  $E_S$ ), en fonction de l'énergie du photon incident. En bleu, l'électron est éjecté en onde  $s$  et possède un moment cinétique orbital nul. En rouge et en vert mêmes courbes mais avec des électrons de moment cinétique orbital  $l = 1$  (onde  $p$ , courbe rouge) et  $l = 2$  (onde  $d$ , courbe verte).

La loi de Wigner n'est valable que dans un domaine énergétique relativement proche du seuil de détachement (typiquement quelques centaines de  $\text{cm}^{-1}$ ), au-delà, il n'existe pas d'expression générale.

**Règle d'or de Fermi et loi de Wigner** La probabilité de photodétachement, par unité de temps, entre l'état initial  $|\psi_i\rangle$  et l'état final  $|\psi_f\rangle$  est donnée par la règle d'or de Fermi :

$$P_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} \rho_f(\epsilon) |\langle \psi_f(\epsilon) | \mathbf{W} | \psi_i \rangle|^2 \quad (1.6)$$

où  $\rho_f(\epsilon)$  est la densité d'états finals et  $\mathbf{W}$  est le hamiltonien de perturbation de l'ion négatif par le champ électromagnétique<sup>1</sup>.

1. Dans le cas où la longueur d'onde du photon est grande (basse énergie) devant la taille de l'ion négatif, seules les transitions dipolaires électriques jouent un rôle observable (développement multipolaire). On peut

L'électron détaché est libre dans un espace à trois dimensions, la densité d'états  $\rho_f(\epsilon) = \frac{1}{V} \frac{dN}{d\epsilon}$ , où  $V$  est le volume d'un état, se comporte donc comme :<sup>2</sup>

$$\rho_f(\epsilon) \propto \sqrt{\epsilon}. \quad (1.7)$$

De plus, on démontre que [Cha06], pour un état final de moment cinétique  $l$ , l'élément de matrice  $\langle \psi_f(\epsilon) | \mathbf{W} | \psi_i \rangle$  s'écrit sous la forme :

$$\langle \psi_f(\epsilon) | \mathbf{W} | \psi_i \rangle \propto j_l \left( \frac{\sqrt{2m\epsilon}}{\hbar} r \right), \quad (1.8)$$

où  $j_l$  est la fonction de Bessel sphérique d'ordre  $l$ .

Au premier ordre en  $\frac{\sqrt{2m\epsilon}}{\hbar} r$ , cette fonction s'écrit :

$$j_l \left( \frac{\sqrt{2m\epsilon}}{\hbar} r \right) \propto \left( \frac{\sqrt{2m\epsilon}}{\hbar} r \right)^l \propto \epsilon^{l/2}. \quad (1.9)$$

Le taux de photodétachement au premier ordre en  $\epsilon$  s'écrit donc (cf. équation 1.6) :

$$P_{i \rightarrow f} \propto \epsilon^{l+\frac{1}{2}}. \quad (1.10)$$

On retrouve le comportement prévu par Wigner.

D'après l'équation 1.6, la probabilité de transition est proportionnelle à  $\langle \psi_f(\epsilon) | \mathbf{W} | \psi_i \rangle$ . Or,  $\mathbf{W}$  est proportionnel à  $\mathbf{r}$ , l'élément de matrice fait donc intervenir le recouvrement des fonctions d'onde initiale et finale.

Si le photoélectron est initialement dans un état de moment cinétique  $l_i$  bien défini (pas de mélange de configuration), alors il doit se trouver dans un état de moment cinétique  $l_f = l_i \pm 1$  une fois photodétaché. L'électron peut donc se libérer selon deux voies correspondant à deux ondes de moments cinétiques différents (la différence de ces deux moments étant de deux unités).

---

donc écrire  $\mathbf{W} \propto \mathbf{D}$ . Où  $\mathbf{D}$  est l'opérateur dipôle électrique.

2. Si l'on avait choisi de normaliser la densité d'états par rapport à  $dk$  (c'est-à-dire  $\rho_f(\epsilon) = \frac{1}{V} \frac{dN}{dk}$ ), la fonction  $E = f(k)$  étant bijective, on aurait trouvé une relation de proportionnalité entre la densité d'états finaux  $\rho_f(\epsilon)$  et l'énergie  $\epsilon$ . Ce résultat trouve son origine dans la non-proportionnalité entre  $\epsilon$  et  $k$ . Ainsi, la vraie quantité invariante n'est pas la densité d'états. Dans la règle d'or de Fermi, la quantité invariante par changement de variable est le produit de la densité d'états par le carré de la fonction d'onde de l'état final (normalisée).



À l'état initial, l'électron est localisé près de l'atome. À l'état final, pour une énergie cinétique donnée, l'électron est repoussé par la barrière centrifuge d'autant plus loin de l'atome que son moment cinétique  $l$  est grand. Le recouvrement entre les fonctions d'onde initiale et finale est donc d'autant plus faible que  $l$  est grand. L'électron se détachera préférentiellement vers l'état de moment cinétique le plus bas.

#### 1.2.1.4 Comportement de la section efficace loin du seuil

Le comportement général de la section efficace de photodétachement est celui de la figure 1.3.

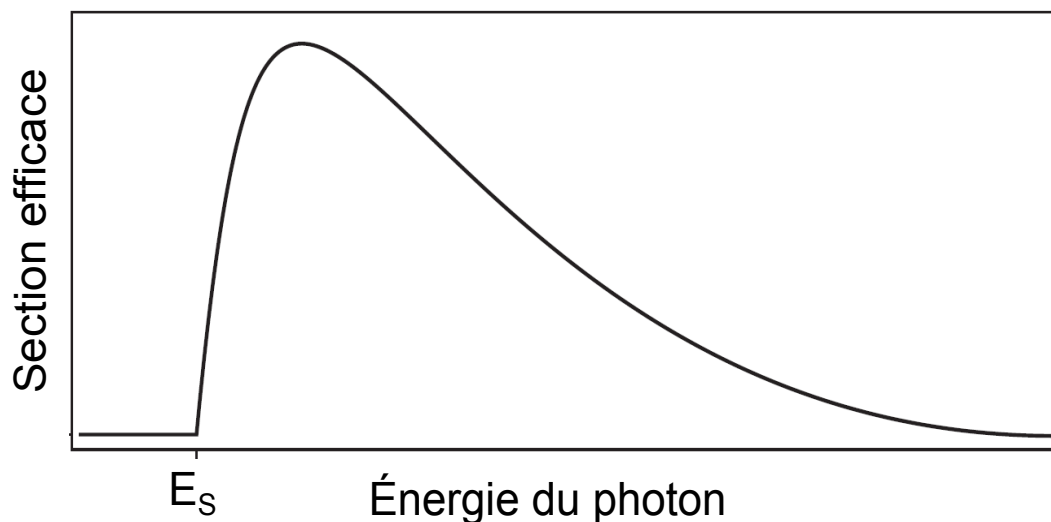


FIGURE 1.3 – Comportement général typique de la section efficace de photodétachement en fonction de l'énergie du photon. La figure a été extraite de la thèse de Pontus Andersson [And09].

Partant de zéro au seuil, la section efficace croît jusqu'à un maximum avant de décroître. Plus l'énergie du photon est grande plus sa longueur d'onde est courte, l'électron apparaît donc de plus en plus comme un électron libre du point de vue du photon. Or l'absorption d'un photon par un électron libre n'est pas possible physiquement en raison de la nécessité de conservation simultanée de l'énergie et de l'impulsion. D'où la décroissance de la section efficace aux hautes énergies.

Une deuxième manière de comprendre cette décroissance est de considérer les valeurs de l'intégrale de recouvrement  $\langle \psi_i | \mathbf{r} | \psi_f(\epsilon) \rangle$ . On a vu que, plus la valeur de cette intégrale est faible, plus la probabilité de détachement l'est aussi. La fonction d'onde initiale  $\psi_i(r)$  de l'électron lié à l'ion négatif est localisée près de l'atome et ne dépend pas de l'énergie du photon. La taille de la partie radiale de la fonction d'onde finale de l'électron  $\psi_f(r, \epsilon)$  est

d'autant plus grande que l'énergie du photon est élevée. Le recouvrement entre la fonction d'onde initiale et la fonction d'onde finale est donc d'autant plus petit que l'énergie du photon est grande, d'où la décroissance de la section efficace aux hautes énergies.

Entre ces deux comportements, la section efficace passe par un maximum. Dans sa thèse, Pontus Andersson [And09] détermine la valeur approximative de la longueur d'onde pour laquelle la section efficace de photodétachement est maximale. Pour cela, il modélise l'ion négatif comme un puits de potentiel de profondeur finie. Il trouve que le recouvrement maximal entre la fonction d'onde initiale et la fonction d'onde finale de l'électron a lieu lorsque la longueur d'onde de de Broglie de l'électron détaché  $\lambda_{db}$  est égale à la taille de l'ion négatif  $\langle r \rangle$ . Dans le cas particulier d'un électron initialement dans une orbitale  $s$  de l'ion négatif, le recouvrement est maximal lorsque l'égalité  $2\langle r \rangle = \frac{\lambda_{db}}{2}$  est vérifiée. Dans le cas d'un électron  $p$ , on doit avoir  $\langle r \rangle = \frac{\lambda_{db}}{2}$ . Si on considère que la totalité de l'énergie du photon est donnée à l'électron détaché sous forme d'énergie cinétique, on trouve :

$$E(\sigma_{max}) = \frac{h^2}{2m_e \lambda_{db}^2} \quad (1.11)$$

avec  $\lambda_{db} = 4\langle r \rangle$  ou  $2\langle r \rangle$  selon si l'électron se situe initialement sur une orbitale  $s$  ou  $p$ .  $E(\sigma_{max})$  correspond à l'énergie du photon pour laquelle la section efficace est maximale.

Cette expression permet, connaissant l'énergie du photon pour laquelle la section efficace est maximale, de remonter avec une précision relativement bonne à la taille de l'ion négatif.

## 1.3 État de l'art du photodétachement de $H^-$

Malgré son apparente simplicité, et après presque un siècle d'existence de la mécanique quantique, l'ion  $H^-$  reste un sujet de recherche très actif. L'atome d'hydrogène est l'un des seuls systèmes quantiques pour lesquels les calculs peuvent être menés jusqu'au bout dans le cas où l'on néglige les effets relativistes et les interactions entre spins. Le simple ajout d'un électron à cette structure (formation de l'ion  $H^-$ ) complique considérablement le problème au point de le rendre insoluble analytiquement puisqu'il s'agit d'un système à trois corps en interaction électrostatique. Si on pouvait considérer les électrons comme indépendants, c'est-à-dire s'il était possible de négliger le terme d'interaction coulombienne en  $\frac{1}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|}$  entre les électrons, le problème serait soluble analytiquement. L'hamiltonien serait, en effet, équivalent à la somme de deux hamiltoniens de l'hydrogène.

Écrivons le hamiltonien de  $H^-$  (même hamiltonien que l'hélium à la charge du noyau

près) pour lequel on néglige les termes relativistes et les effets de couplage entre les spins du noyau et des électrons, et en considérant un noyau de masse infinie :

$$\mathcal{H}_{H^-} = \sum_{i=1}^2 \frac{p_i^2}{2m_e} - \sum_{i=1}^2 \frac{e^2}{r_i} + \frac{e^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \text{ avec } e = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0}. \quad (1.12)$$

Les deux premiers termes correspondent respectivement à l'énergie cinétique des électrons et à l'énergie potentielle d'interaction entre le noyau et les électrons. Le troisième terme correspond à l'énergie potentielle d'interaction entre les électrons.

Le terme de répulsion coulombienne entre les électrons ne peut pas être traité comme une perturbation car le rapport  $\rho$  entre ce terme et l'énergie potentielle d'interaction noyau/électrons, en considérant que  $r_i \approx |r_1 - r_2| \approx \langle r \rangle$ , vaut  $\sim \frac{1}{2}$ . Les corrélations électroniques jouent donc un rôle majeur dans l'ion négatif  $H^-$ , elles sont même indispensables à son existence.

Beaucoup de travaux expérimentaux et théoriques concernant le comportement de la section efficace de photodétachement de  $H^-$  avec l'énergie du photon incident ont déjà été entrepris. Les calculs réalisés sont si précis que l'affinité électronique de l'hydrogène est mieux connue théoriquement qu'expérimentalement ( $H$  est le seul élément dans cette situation).

### 1.3.1 Études et intérêts historiques

**Stabilité de  $H^-$**  La première démonstration de l'existence de  $H^-$  comme système lié fut donnée par Bethe en 1929 [Bet29]. Il utilisa, pour la description de son état fondamental, la fonction d'onde variationnelle à trois paramètres construite par Hylleraas un an plus tôt (pour l'hélium) [Hyl28] :

$$\psi(r_1, r_2) = N e^{-\alpha(r_1+r_2)} (1 + \beta r_{12} + \gamma (r_1 - r_2)^2). \quad (1.13)$$

Où  $N$  est une constante de normalisation,  $r_1$  et  $r_2$  la position de chacun des deux électrons et  $r_{12} = |r_1 - r_2|$  est la distance interélectronique.

En utilisant le principe variationnel de Rayleigh-Ritz<sup>3</sup> pour le calcul des paramètres, il

---

3. Le principe variationnel de Rayleigh-Ritz consiste à calculer la valeur de l'énergie de l'état fondamental en utilisant le fait que  $E = \frac{\langle \psi_0 | H | \psi_0 \rangle}{\langle \psi_0 | \psi_0 \rangle}$ , où  $H$  est le hamiltonien du système étudié et  $\psi_0$  est la fonction d'essai qui dépend d'un ou plusieurs paramètres. Les paramètres sont optimisés en annulant la dérivée première de l'énergie par rapport à chacun d'eux (recherche des extrema). Le comportement

détermina une énergie de 14,34 eV pour l'état fondamental de  $H^-$ , supérieure à l'énergie de liaison de 13,6 eV de l'atome d'hydrogène. L'affinité électronique de l'hydrogène est donc au moins égale à 0,74 eV. Pour expliquer l'existence de l'ion négatif stable  $H^-$ , la présence de la coordonnée  $r_{12}$  dans la fonction d'onde, et donc des corrélations électroniques, s'est révélée indispensable.

En 1930, Hylleraas démontra indépendamment, par extrapolation le long de la séquence isoélectronique de l'hélium, l'existence d'un état lié pour  $H^-$  (éA de 0,715 eV) [Hyl30].

Quatorze ans plus tard, Chandrasekhar fit un pas supplémentaire dans cette direction [Cha44]. Il révéla la profonde différence de structure entre deux édifices à deux électrons tels que l'hélium et l'ion  $H^-$ . Alors que l'énergie de liaison de l'hélium peut être bien approchée par l'utilisation d'une fonction exponentielle du type :

$$\psi(r_1, r_2) = e^{-\alpha(r_1+r_2)},$$

son application à l'ion négatif d'hydrogène lui confère une nature instable (intrinsèquement cette fonction décrit deux électrons complètement décorrélés). Dès lors, Chandrasekhar symétrisa la fonction (niveau  $^1S$ ) pour tenir compte du principe d'exclusion de Pauli et ajouta un paramètre :

$$\psi(r_1, r_2) = e^{-ar_1-br_2} + e^{-ar_2-br_1}.$$

Utiliser un second paramètre variationnel  $b$  permet de ne pas limiter les électrons à voir la même charge effective du noyau (écranage). Ces considérations suffisent à prédire la stabilité de  $H^-$ . Chandrasekhar, ne se contentant pas de cette conclusion, alla plus loin en ajoutant un terme décrivant l'interaction entre les deux électrons à la fonction précédente :

$$\psi(r_1, r_2) = (e^{-ar_1-br_2} + e^{-ar_2-br_1})(1 + cr_{12}),$$

où  $r_{12}$  correspond à la distance interélectronique.

Ce terme supplémentaire permet de décrire la polarisation de l'édifice atomique. L'application du principe de Rayleigh-Ritz donne une énergie de liaison encore plus grande. On

---

asymptotique aux grandes distances interélectronique de la fonction d'essai, joue un rôle négligeable sur la valeur de l'intégrale, donc de l'énergie, rendant la méthode peu sensible aux erreurs sur le comportement asymptotique de la fonction d'onde. En particulier, l'énergie de liaison de l'ion  $H^-$  peut être calculée précisément malgré une grande imprécision de la fonction d'onde aux grandes distances interélectroniques.

conclut que  $H^-$  doit son existence aux corrélations et notamment, à l'écrantage incomplet du noyau par les électrons et à la polarisation de l'hydrogène atomique due à la présence de l'électron supplémentaire.

**Échecs des premiers calculs de la section efficace de  $H^-$**  En 1933, Jen [Jen33], motivé par la nécessité de donner quelques appuis théoriques aux études expérimentales encore infructueuses pour déterminer l'affinité électronique des ions négatifs, réalisa les premiers calculs de l'évolution de la section efficace de photodétachement de  $H^-$  en fonction de l'énergie du photon incident. Il utilisa, pour décrire l'état lié de l'ion négatif, la fonction de Hylleraas utilisée par Bethe dans son calcul de l'affinité électronique (équation 1.13). Il fit l'erreur de décrire l'électron éjecté par une fonction d'onde modifiée par un potentiel coulombien écranté (il était pourtant conscient de la pertinence du potentiel de Hartree 1.14) du type  $\frac{Z^*}{r}$  avec  $Z^*$  une constante. Cette description est incompatible avec le fait que  $H^-$  ne possède, *a priori*, qu'un seul état lié. En effet, si le potentiel d'interaction entre l'électron et le reste du système varie en  $1/r$ , la théorie prédit l'existence d'une infinité d'états de Rydberg. L'argument qui contraignit Jen à choisir ce potentiel au lieu du potentiel de Hartree est le manque de puissance de calcul. Avec cette hypothèse erronée il obtient une valeur finie de la section efficace au seuil de détachement.

Massey et Smith [MS36] firent un calcul similaire. Ils supposèrent, contrairement à Jen, l'absence d'interaction entre l'atome neutre H résiduel et l'électron éjecté le considérant ainsi comme libre. L'absence de toute interaction implique que la fonction d'onde de l'électron puisse s'écrire sous la forme d'une onde  $p$  libre (fonction d'onde symétrisée constitué du produit d'une onde plane et de la fonction associée à l'état fondamental de l'hydrogène). Cependant, l'utilisation d'une fonction d'onde déformée par un potentiel exponentiel pour décrire l'état lié mena à un résultat erroné. La section efficace bien que nulle au seuil, décroissait trop vite en s'approchant de la limite d'ionisation.

**Présence de  $H^-$  dans la photosphère du Soleil** C'est en 1939 quand Wildt [Wil39] émit l'hypothèse de la présence de  $H^-$  dans la photosphère du Soleil pour expliquer l'écart, dans le rouge-infrarouge (de 600 à 1600 nm), entre son spectre d'absorption et celui du corps noir, que la communauté scientifique s'intéressa à la question de l'évolution de la section efficace de photodétachement de  $H^-$  avec la longueur d'onde du photon. Jusque là, les recherches s'orientaient vers l'hydrogène neutre ou d'autres éléments relativement abondants (en particulier des métaux). Dès lors, les calculs des coefficients d'absorption

(ou section efficace) en fonction de l'énergie du photon incident se sont multipliés.

**Calculs de la section efficace de  $H^-$**  En 1940, Massey et Bates [MB40], en approximant la fonction d'onde de l'état lié par une fonction de Hylleraas à 3 paramètres et l'état libre par une onde  $p$  non-perturbée, ils obtinrent une section efficace satisfaisante, pour l'époque, quant à sa forme générale mais quantitativement imprécise (maximum de  $2,62 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$  à 400 nm). Wildt (1941) [Wil41], à partir des résultats des calculs de Massey et Bates, détermina le spectre d'absorption théorique de l'atmosphère du Soleil supposée être constituée d'hydrogène et d'électrons libres. La comparaison entre le spectre réel et la théorie montra de forts désaccords poussant Wildt à supposer l'existence d'un autre mécanisme d'absorption.

Chandrasekhar refusant de croire à cette hypothèse, supputa un manque de précision de la fonction d'onde utilisée pour l'état lié. Il encouragea Williamson (1942) [Wil42] à faire le même calcul mais en utilisant une fonction de Hylleraas à six paramètres (principe de Rayleigh-Ritz). Ce calcul permit de préciser un peu plus la forme de la section efficace. En particulier, le maximum ( $3,035 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$  à 475 nm) et le seuil ( $0,2646 \text{ Ha}$  soit  $0,72 \text{ eV}$ ) se trouvent être décalés vers le rouge par rapport au résultat de Massey et Bates (cf. figure 1.4). Williamson [Wil43] entreprit de comparer le spectre d'absorption de l'atmosphère du Soleil à un spectre théorique calculé en utilisant ses résultats sur le coefficient d'absorption de  $H^-$ . Il obtint un meilleur résultat que Wildt [Wil41] mais le désaccord entre la théorie et l'expérience restait significatif.

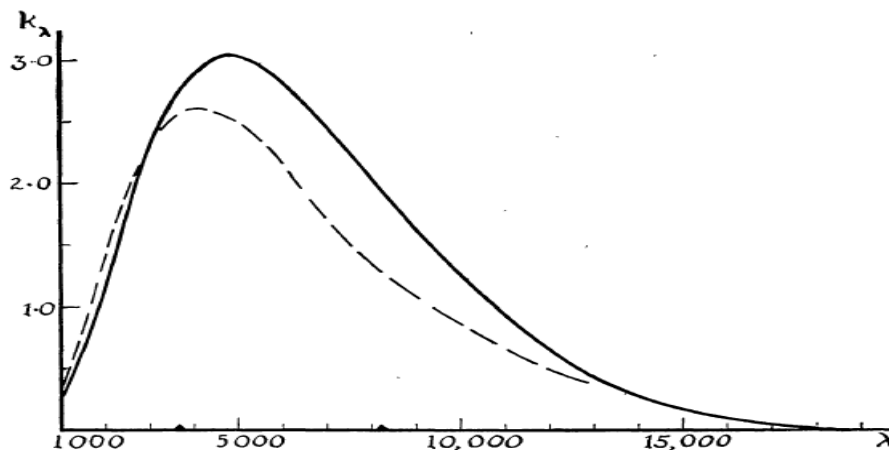


FIGURE 1.4 – Évolution du coefficient d'absorption (section efficace) de photodétachement en fonction de l'énergie du photon. En tiret, on peut voir le résultat du calcul de Massey et Bates [MB40], en trait plein, celui de Williamson [Wil42] (article duquel a été extraite la figure).

En 1943, Chandrasekhar et Kroghdahl [CK43] firent une importante découverte. Ils dé-

terminèrent que la partie de la fonction d'onde située à une distance allant de 4 à 5 rayons de Bohr du noyau jouait un rôle prépondérant dans l'évolution de la section efficace de photodétachement. Dans ce même article, ils proposèrent des règles permettant de vérifier la fiabilité des résultats théoriques. L'application de ces règles démontra une faible fiabilité des résultats de Williamson [Wil42], en particulier au-delà de 450 nm. Il fut, dès lors, nécessaire de procéder à de nouvelles investigations. Chandrasekhar suggéra à Henrich [Hen44] de réaliser un nouveau calcul en utilisant une fonction d'onde de Hylleraas à onze paramètres. La concordance entre le nouveau spectre d'absorption théorique et le spectre expérimental s'en trouva améliorée. De plus, Henrich calcula, avec sa nouvelle fonction d'onde et le principe de Rayleigh-Ritz, une affinité électronique plus précise que Williamson [Wil42] de  $\sim 0,75$  eV. En revanche, l'application des règles proposées par Chandrasekhar et Kroghdahl démontrait une faible fiabilité des résultats de Henrich.

**Jauges de longueur, de vitesse et d'accélération** Ce problème de convergence lente fut résolu par Chandrasekhar en 1945 [Cha45a]. Il remarqua que l'expression habituelle pour calculer les éléments de transition dipolaire électrique dite *jauge de longueur* n'est précise qu'aux grandes distances du noyau. De plus, il montra que cette partie ne joue qu'un rôle mineur dans le résultat final, d'où la lente convergence des calculs précédents. Pour pallier cela, il proposa des expressions alternatives *jauge de vitesse* et *jauge d'accélération* pour calculer l'élément de transition dipolaire électrique dont dépend la section efficace. Il démontra qu'il y avait une meilleure adéquation, entre les résultats de Williamson et Henrich et ses règles [CK43], lorsqu'ils étaient recalculés en jauge de vitesse. Plus précisément, Chandrasekhar montra que les éléments de matrice de transition étaient proportionnels à une intégrale mettant en jeu une fonction de poids (weighting function) qui dépendait de la distance interélectronique [Cha44] et dont la forme variait selon le formalisme utilisé (jauge de longueur, de vitesse ou d'accélération, cf. figure 1.5).

On constate, au vu des courbes représentées sur la figure 1.5, que les parties des fonctions d'onde (en terme de distance interélectronique) qui jouent le plus grand rôle dans les calculs de section efficace dépendent beaucoup de la jauge utilisée (les éléments de transition dont dépendent la section efficace sont proportionnels à une intégrale mettant en jeu cette fonction de poids). En particulier, en jauge de vitesse, les distances interélectroniques intermédiaires jouent un rôle central. Ces différentes jauges ne mènent au même résultat que dans le cas où les fonctions d'onde de l'état lié et libre sont exactes.

Dans la même année, Chandrasekhar publia le résultat d'un nouveau calcul [Cha45b],

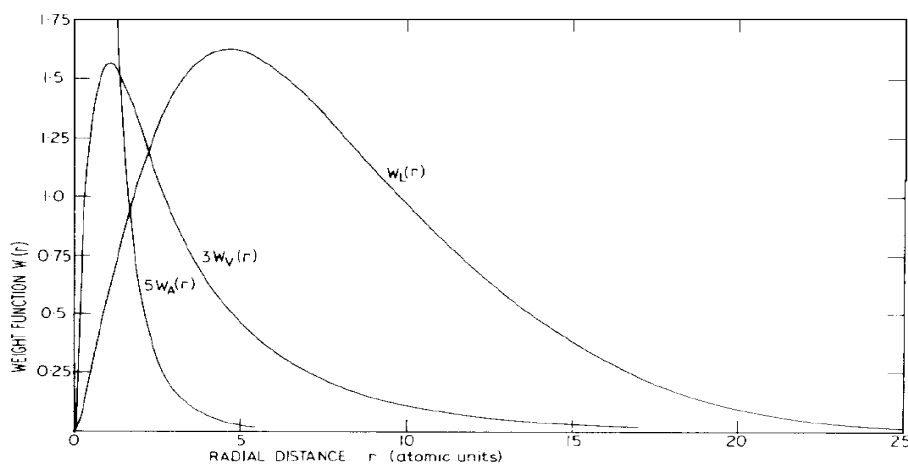


FIGURE 1.5 – Sur cette figure est représentée la fonction de poids (weighting function) dans les trois cas jauge de longueur  $W_L$ , de vitesse  $W_V$  et d'accélération  $W_A$ . Figure tirée de l'article de revue de Bates [Bat78].

réalisé en jauge de vitesse, dans lequel il considéra que l'électron éjecté et l'atome d'hydrogène résiduel, interagissent au travers du potentiel de Hartree<sup>4</sup> :

$$V(r) = -\left(\frac{1}{r} + 1\right)e^{-2r}. \quad (1.14)$$

Il calcula un maximum de section efficace un peu plus élevé que celui qu'il obtint dans l'hypothèse d'une onde  $p$  libre [Cha45a]. S'il avait considéré les corrélations électroniques de type échange (principe de Pauli), il aurait observé une diminution de la valeur du maximum de la section efficace [MB40].

On récapitule dans le tableau 1.1, l'ensemble des résultats obtenus concernant le photodétachement de  $H^-$  jusqu'à la publication de Chandrasekhar en 1945.

4. Le potentiel de Hartree est le potentiel moyen que voit un électron diffusant sur un atome neutre d'hydrogène dans le cas où la fonction d'onde de  $H$  est supposée ne subir aucune déformation durant l'interaction. Plus précisément, il s'agit de la moyenne sphérique du potentiel d'interaction des deux électrons, ce qui revient à ne considérer que certaines corrélations radiales entre les électrons (et aucune corrélation angulaire). Dans le cas du photodétachement, l'interaction a pour effet de déformer légèrement l'onde  $p$  libre précédemment considérée (absence d'interaction).



Réf.	$\psi$ lié	$\psi$ libre	$\sigma$ au max.							
			Pos. (nm)			Val. $10^{-21} m^2$				
			L	V	A	L	V	A		
[Jen33]	Hylleraas 3 param.	déformée par pot. coulomb. écranté		927				2,87		
[MB40]	Hylleraas 3 param.	Onde $p$ libre	400				2,62			
[Wil42]	Hylleraas 6 param.	Onde $p$ libre	475				3,035			
[Hen44]	Hylleraas 11 param.	Onde $p$ libre	750				3,963			
[Cha45a]	Hylleraas 6 param.	Onde $p$ libre	475	700	900		3,035	4,113	7,567	
	Hylleraas 11 param.		750	850	750		3,963	4,372	5,225	
[Cha45b]	Hylleraas 11 param.	Pot. de Hartree		827,5				4,52		
[Gel56]	Règles + pot. coulomb. tronqué			791,6				4,10		
[CE58]	Hylleraas 20 param.	onde $p$ libre	700	800		3,977		4,346		
[Cha58]	Hylleraas 20 param.	Pot. Hartree		826,3				4,49		
[Joh60b]	Hylleraas 20 param.	Hartree + échange		864				4,05		
[OO60]	Pekeris 203 param.			821				4,095		
[Arm63]	Pekeris 203 param.			821				4,095		
[Gel62]	Schwartz 70 param.	Corré. radiales et angulaires	826,3	850	826,3	4,103		3,95	3,179	
[DFM66]	Hylleraas 70 param.	Hartree-Fock (1s-3d)	864	864				4,13	3,93	
[BK67b]	Hylleraas 70 param.	Orbitales polarisées	824,7	863,7				4,238	4,414	
[AC75]	Hylleraas + $f^n$ asympt. 33 param.	Kohn-Feshbach open- + closed-channels	868,7	793,1				3,9677	3,8601	
[BR76]	orbitale Slater 8s, 6p, 4d combin. en 67 conf. $1S$ à $2 e^-$	voir le para. II. B.	824,7	863,7				4,238	4,414	
[Ste78]	Méthode perturbative et variationnelle	Köhn-Feshbach	792,1	792,1	792,1	3,978	4,012		3,377	
[Wis79]	Fonction collision + pseudoétats polar + Hylleraas		789			3,965				
[DG83]	Hylleraas 70 param.	Orbitales polarisées + distorsion fonction H	863,7			4,100				
[Sah88]	Hartree-Fock multiconfigurationnelle		867,2	867,2		4,007		3,990		
[AS96]	Méthode canal artificiel avec coord. hypersphériques		865,5		865,5	4,006			3,940	

TABLE 1.1 – Compilation des résultats théoriques obtenus concernant le photodétachement de H<sup>-</sup> depuis les premiers calculs et jusqu'à aujourd'hui. Les valeurs coloriées **en rouge** sont celles considérées comme les plus précises. Dans les dernières colonnes, on donne la valeur de la section efficace calculée la plus proche du maximum pour chacune des jauges.

### 1.3.2 Affinité électronique

L'affinité électronique est définie comme la différence entre l'énergie de liaison totale de l'atome et l'énergie totale de liaison de l'ion négatif associé (cf. équation 1.1). Cette quantité est donc étroitement liée aux corrélations électroniques. Sa connaissance précise est nécessaire pour les calculs de la section efficace de photodétachement avec l'énergie du photon excitateur. Une incertitude sur l'affinité électronique entraîne une incertitude sur la position du seuil et donc une incertitude globale sur la courbe de section efficace.

Après les travaux précurseurs de Bethe [Bet29], Hylleraas [Hyl30], Williamson [Wil42] et Henrich [Hen44], les théoriciens, mais aussi les expérimentateurs, continuèrent à préciser la valeur de l'affinité électronique de l'hydrogène. Pour les théoriciens, le travail consista à déterminer la forme la plus aboutie de la fonction d'onde décrivant l'état lié de  $H^-$  et d'en déduire, souvent via l'utilisation d'un principe variationnel (le principe de Rayleigh-Ritz par exemple), l'énergie de l'état fondamental. Dans cette course à la précision il y a, pour les théoriciens, deux aspects essentiels et complémentaires. Le premier aspect est la résolution de l'équation de Schrödinger à deux électrons, avec ou sans l'hypothèse d'un noyau de masse infinie, de manière à déterminer le plus précisément possible la valeur de l'affinité électronique non-relativiste et éventuellement à noyau de masse infinie. Le deuxième aspect est le calcul de termes correctifs non-pris en compte dans l'étape précédente incluant : les corrections relativistes, les corrections dues à la masse et à la taille finies du noyau, les corrections dues à l'existence de moments magnétiques de spin mais encore celles dues à la finitude de la vitesse de propagation des champs électromagnétiques générés par les particules etc. Les résultats théoriques intermédiaires comme l'affinité non-relativiste et à noyau de masse infinie sont précieux puisque leurs comparaisons avec les mesures expérimentales permettent d'extraire la valeur des corrections non-prises en compte.

On répertorie dans les tableau 1.2 et 1.3 une grande partie des données expérimentales et théoriques de l'affinité électronique de l'hydrogène obtenues au cours du temps.

Réf.	Méthode de mesure	$^e A$ ( $\text{cm}^{-1}$ )
[KD60]	Ionisation de surface	6452(810)
[WA64]	Extrapol. $\sigma$ photodétachement Smith et Burch [SB59]	6210(162)
[Ber69]	Spectre stellaire	6202(105)
[MW74]	Production paires ions ( $H^+ + H^-$ ) avec $H_2$	6081(17)
[Fel75]	Photodétachement seuil	6080(17)
[Fro81]	Photodétachement seuil	6073(41)
[LML91]	Photodétachement seuil H ( $F = 0$ )	<b>6082,99(15)</b>
[HZGM97]	Photodétachement seuil piège Penning	6082,8(7)
[LSH <sup>+</sup> 09],[SHHH99]	Reprise de [MW74] biblio récente	6082,04(100)
NIST	Production paires ions ( $H^+ + H^-$ ) avec $H_2$	

TABLE 1.2 – Liste non-exhaustive des mesures expérimentales de l'affinité électronique de l'hydrogène. On doit la mesure la plus précise à Lykke et al.[LML91] (en gras). Base de données atomiques du NIST : <http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm>

Réf.	$\psi$ liée P paramètres ; T termes	Énergie liaison H <sup>-*</sup> (Ha)	<sup>e</sup> A (cm <sup>-1</sup> )	Corrections (cm <sup>-1</sup> )*			<sup>e</sup> A corr.† (cm <sup>-1</sup> )
				Relat./Noyau	Polar.	Radiat.	
[Bet29]	Hylleraas 3 P	-0,54	8779				
[Hy130]	Extrap. séq. iso.		5646				
[Wi142]	Hylleraas 6 P	-0,52646	5807				
[Hen44]	Hylleraas 6 P	-0,52756	6049				
[HM56]	Hylleraas 20 P + 4 param. sup.	-0,52773	6086				
[HH57]	Hylleraas 20 P	-0,52764467	6067,304		-3,969		6063,335
[Pek58]	Pekeris 203 P	-0,5277509356	6091,626	-0,303	-3,928	-0,0037	6083,076
[Pek62]	Pekeris 444 P	-0,5277510063	6090,642	-0,304	-3,928		6083,091 <sup>+</sup>
[FP66]	Hylleraas log. 246 P	-0,52775101635*	6090,644				6083,093 <sup>+</sup>
[Aas70]	Hylleraas-Scherr-Knight	-0,5277513	6090,706	1,1556 <sup>-</sup>	-3,9283	-0,27479	6084,344
[Dra88]	Hylleraas-doubl. 616 T	-0,...,44203	6090,644126	-0,304232/5,03e-4	-3,921945	-0,003776	6083,099413
[TK94]	Hylleraas-frac. 455 P	-0,...,44240	6090,644126				6083,099413 <sup>+</sup>
[Ack95]	Éléments finis	-0,...,32	6090,644124				6083,099411 <sup>+</sup>
[KA97]	Gauss. corrél. 512 P non-adiabatique	-0,5277510116 -0,5274458762	6090,6430 6083,4058 <sup>†</sup>				6083,0983 <sup>+</sup> 6083,0983 <sup>+</sup>
[Fro98]	Exponentielles 3200 P non-adiabatique	-0,...,44302 -0,...,1114104	6090,644126 6083,40692				6083,099413 <sup>+</sup> 6083,099415 <sup>+</sup>
[DCN02]	Hylleraas-tripl. 2276 T	-0,...,44377196503	6090,644126				6083,099413 <sup>+</sup>
[FS03]	Exponentielles 4200 P non-adiabatique	-0,...,443771965531 -0,...,11141788933911	6090,644126 6083,406919				6083,099413 <sup>+</sup> 6083,099414 <sup>+</sup>
[Fro05]	Exponentielles 3700 P non-adiabatique	-0,...,443771965867 -0,...,11141788934109	6090,644126 6083,406919	-1,732899e-10		2,738028e-7 2,738028e-7	6083,099413 <sup>+</sup> 6083,099414 <sup>+</sup>

TABLE 1.3 – Résultats théoriques concernant l'affinité de H. La troisième colonne "Énergie liaison H<sup>-</sup>" donne l'énergie de liaison totale des deux électrons de H<sup>-</sup>. La quatrième colonne "<sup>e</sup>A" correspond à l'affinité calculée dans l'hypothèse adiabatique (noyau de masse infinie). Dans la dernière colonne, on donne l'affinité corrigée des termes des colonnes "Corrections" (relativistes, radiatifs...). Dans les colonnes assignées d'un astérisque, les données ont été extraites des articles. Les conversions en cm<sup>-1</sup> ont été réalisées avec les valeurs des constantes actuelles (constante de Rydberg,  $1 R_{\infty} = 109737,31568539(55) \text{ cm}^{-1}$  ou  $13,60569253(30) \text{ eV}$ ) [MTN12]. Le symbole † de la dernière colonne signifie que l'on a utilisé la constante de Rydberg de masse réduite  $R_M = 109677,583406(6) \text{ cm}^{-1}$  pour réaliser les calculs (cf. équation 1.15). Le symbole <sup>+</sup> signifie que l'on a utilisé les corrections les plus précises données dans des articles antérieurs pour calculer l'affinité. Pour finir, les points de suspension "..." dans la colonne "Énergie liaison H<sup>-</sup>" remplacent la suite de chiffres : 5277510165 dans l'hypothèse adiabatique et 52744588 en non-adiabatique.

C'est Hylleraas et Midtdal qui relancèrent le sujet en 1956 [HM56]. Ils calculèrent, à l'aide d'une fonction d'onde élaborée à partir de 24 termes dont 20 construits selon une méthode proposée par Hylleraas lui-même [Hyl30], une affinité électronique non-relativiste et à noyau de masse infinie plus grande que les valeurs antérieures de 0,7544 eV. L'approximation de la fonction d'onde par l'utilisation de termes logarithmiques dans le développement accélère la convergence du résultat.

**Calculs de termes correctifs de polarisation de la masse et relativistes** En 1957, Hart et Herzberg [HH57] réalisèrent indépendamment une étude similaire à celle de Hylleraas et Midtdal en calculant l'affinité électronique à l'aide d'une fonction de Hylleraas à 20 paramètres. Leur intention était initialement d'aller plus loin dans le développement mais ayant entretemps pris connaissance des résultats de Hylleraas et Midtdal, ils décidèrent d'en rester là pour comparaison. Leur valeur de 0,0276447 Ha (soit 0,7523 eV ou  $6060,03 \text{ cm}^{-1}$ ) était manifestement plus petite que celle d'Hylleraas et Midtdal. Cela s'expliquait par le fait que ces derniers avaient considéré 4 paramètres logarithmiques supplémentaires dans leur fonction d'onde. Contrairement aux travaux antérieurs, Hart et Herzberg calculèrent le décalage en énergie dû aux effets de polarisation de masse. Pour cela ils considérèrent, d'une part, la constante de Rydberg de masse réduite  $R_M = 109677,58 \text{ cm}^{-1}$  (valeur de l'époque) :

$$R_M = \frac{M}{m + M} R_\infty, \quad (1.15)$$

avec  $m$  la masse de l'électron et  $M$  la masse du noyau.

D'autre part, le décalage en énergie donné par une expression déterminée par Wilets et Cherry (réf. 5 de leur article). Le résultat est une réduction de l'affinité électronique de  $3,969 \text{ cm}^{-1}$ .

Pekeris publia deux articles importants en 1958 puis en 1962 [Pek58, Pek62] dans lesquels il calculait l'affinité électronique non-relativiste de l'ion négatif d'hydrogène avec une meilleure précision que ses prédécesseurs, et des termes correctifs de polarisation de masse et relativistes. Le deuxième article constituait un raffinement du premier. Pekeris utilisa, pour son calcul, les fonctions à 203 paramètres [Pek58] et à 444 paramètres [Pek62] un peu différentes de celles définies par Hylleraas [Hyl30]. La première différence entre sa fonction et celle d'Hylleraas réside dans le choix des coordonnées, il n'utilisa pas  $s = r_1 + r_2$ ,  $t = r_1 - r_2$  et  $u = r_{12}$  dans le développement mais les coordonnées périmétriques :

$$u = \epsilon(r_2 + r_{12} - r_1), v = \epsilon(r_1 + r_{12} - r_2), w = 2\epsilon(r_1 + r_2 - r_{12}).$$

Ce changement fait suite au constat de Pekeris selon lequel le jeu des trois variables d'Hylleraas ne constituait pas un ensemble de variables indépendantes, ce qui rendait difficile le développement de la fonction d'onde de l'état lié de  $H^-$ .

La fonction de Hylleraas contient un terme exponentiel décroissant dont le rôle est de décrire le comportement de la fonction à grande distance du noyau. Pekeris figea la valeur du paramètre contenu dans l'argument de l'exponentielle plutôt que de le considérer comme variationnel (comme le fit Hylleraas). Cela lui permit d'assurer un bon comportement asymptotique de la fonction d'onde.

Il obtint, avec sa fonction à 203 paramètres (et 444 paramètres), une affinité électronique non-relativiste avec noyau de masse infini de 0.0277509356 Ha (les cinq derniers chiffres ne sont pas significatifs) à comparer au résultat avec 444 paramètres 0.0277510062954 Ha.

Pekeris alla plus loin en calculant de nombreux termes correctifs. Il calcula, comme le firent Hart et Herzberg [HH57], quelques corrections dues à la finitude de la masse du noyau. Il détermina, en utilisant la constante de Rydberg de masse réduite, l'ordre 1 du terme dit de polarisation de la masse (mass-polarization) qui apparaît lorsque l'on exprime le hamiltonien dans le système de coordonnées du centre de masse. La valeur qu'il obtint était proche de celle de Hart et Herzberg,  $-3,927941 \text{ cm}^{-1}$  au lieu de  $-3,969 \text{ cm}^{-1}$  (le calcul à 444 paramètres confirmait ce résultat  $-3.927930 \text{ cm}^{-1}$ <sup>5</sup>).

De surcroît, il calcula un grand nombre de corrections relativistes (5 au total), le terme de Darwin (notée "1" dans le tableau 1.4), la correction due à la variation de la masse avec la vitesse ("2"), un terme caractéristique de l'équation de Dirac ("3"), le terme dû à l'interaction spin-spin des deux électrons ("4") et finalement un terme dû à la finitude de la vitesse de propagation du champ électromagnétique produit par les électrons ("5"). On donne les valeurs de l'ensemble des corrections obtenues par Pekeris dans le tableau 1.4 ainsi que celles déduites avec les valeurs actuelles des constantes (2013).

**Premières mesures expérimentales de l'affinité électronique de l'hydrogène** La valeur extrêmement précise de l'affinité électronique de l'hydrogène obtenue par Pekeris (en réalité, précise à  $10^{-2} \text{ cm}^{-1}$  près) ne demande qu'à être vérifiée expérimentalement. Le

---

5. Les résultats donnés dans le texte sont ceux obtenus avec les valeurs des constantes de l'époque. Pekeris nous donne la possibilité de réévaluer l'ensemble des termes avec les constantes actuelles (voir annexe B de [Pek62])

Terme	203 param. (cm <sup>-1</sup> )		444 param. (cm <sup>-1</sup> )	
	constantes Pekeris	actuelles	constantes Pekeris	actuelles
<b>Rydberg</b>	109677,577	cf. légende	109677,577	cf. légende
<b>Polar. masse</b>	-3,927941	<b>-3,9279792(4)</b>	-3,927930	<b>-3,9279680(5)</b>
<b>1</b>	-1,460093	-1,46012	-1,460093	-1,46012
<b>2</b>	7,191177	7,19130695(1)	7,191186	7,19131571(1)
<b>3</b>	-6,037590	-6,03769888(1)	-6,038257	-6,03836574(1)
<b>4</b>	-0,100693	-0,10069475(1)	-0,100555	-0,10055684(1)
<b>5</b>	0,103705	0,10370725(1)	0,103677	0,10367907(1)
<b>Somme</b>	-0,30349	<b>-0,303499(1)</b>	-0,30404	<b>-0,304048(1)</b>
<b>Total</b>	-4,23143	<b>-4,231479(1)</b>	-4,23197	<b>-4,232016(1)</b>
<sup>e</sup> <b>A sans corr.</b>	6087,3108	6087,3111	6087,3263	6087,3266
<sup>e</sup> <b>A avec corr.</b>	6083,0793	<b>6083,0796</b>	6083,0943	<b>6083,0946</b>

TABLE 1.4 – Dans ce tableau sont présentées, l’affinité électronique non-relativiste et adiabatique (noyau de masse infinie), les corrections de polarisation et les corrections relativistes, calculées par Pekeris avec ses fonctions à 203 et à 444 paramètres. Pekeris utilisait les constantes :  $R_M = R_\infty \frac{m_p}{m_p + m_e}$  (constante de Rydberg de masse réduite),  $a = 2 \frac{m_e}{m_p} R_M$  et  $b = \alpha^2 R_M$  données dans l’annexe B de son article de 1962 [Pek62]. Les valeurs actuelles des constantes fondamentales sont : la masse de l’électron  $m_e = 9,10938291(40) \cdot 10^{-31}$  kg, la masse du proton  $m_p = 1,672621777(74) \cdot 10^{-27}$  kg, la constante de structure fine  $\alpha = 7.2973525698(24) \cdot 10^{-3}$  et la constante de Rydberg de masse infinie  $R_\infty = 109737,31568539(55) \text{ cm}^{-1}$  [MTN12]. On recalcule les valeurs des constantes de Pekeris  $R_M$ ,  $a$  et  $b$ , avec les constantes fondamentales actuelles :  $R_M = 109677,583406(6) \text{ cm}^{-1}$  (constante de Rydberg réduite),  $a = 119,464558(11)$  et  $b = 5,840479878(5)$ .

manque de résultats expérimentaux a été en partie comblé durant les années 1960. On doit la première mesure à Khvostenko et Dukel'skii [KD60] qui obtinrent 0,8(1) eV. La précision de cette mesure est largement insuffisante pour constituer une vérification raisonnable des résultats théoriques.

En 1964, Weisner et Armstrong [WA64], en se basant sur l'expression analytique de la section efficace développée par Armstrong en 1963 (cf. sous-section 1.3.3.1), extrapolèrent jusqu'au seuil la courbe expérimentale de Smith et Burch [SB59]. Ils déterminèrent une affinité électronique un peu élevée de 0,77(2) eV mais cinq fois plus précise que la mesure de Khvostenko et Dukel'skii. Cette valeur est en accord avec l'ensemble des résultats théoriques depuis la publication de Hylleraas et Midtdal en 1956.

En 1969, Berry [Ber69] détermina l'affinité électronique de l'hydrogène à partir du spectre d'Aldébaran (une étoile géante rouge de la constellation du Taureau). Il obtint une valeur de 0,756(13) eV qui est un peu plus précise que celle obtenue par Weisner et Armstrong.

**Termes logarithmiques dans la fonction de Hylleraas** Entretiens, Frankowski et Pekeris [FP66] calculèrent l'affinité électronique de H par le biais d'une fonction contenant des termes logarithmiques et quelques termes rationnels inexistant dans le développement classique de Hylleraas. Tout comme Hylleraas et Midtdal [HM56], ils conclurent que l'ajout de ces termes a pour effet d'accroître, toutes choses égales par ailleurs, la vitesse de convergence vers la valeur exacte de l'affinité électronique. À titre de comparaison, ils obtinrent, avec une fonction à 170 paramètres, une affinité plus précise que Pekeris [Pek62] avec ses 444 paramètres. Ultérieurement, et en dépit de ces bons résultats, les théoriciens n'utilisèrent plus de termes logarithmiques dans leurs fonctions d'onde.

**Désaccord sur la valeur de l'affinité électronique de l'hydrogène** En 1970, Aashamar [Aas70] procéda à un calcul de l'affinité électronique de H avec la méthode variationnelle de Hylleraas-Scherr-Knight. Il inclut dans son calcul beaucoup de corrections toutes déjà calculées par Pekeris [Pek58, Pek62]. Il prit en compte la finitude de la masse du noyau en calculant, à l'ordre 1, le terme de polarisation de masse qui représente le mouvement du noyau imposé par les corrélations entre les électrons. Il calcula plusieurs termes relativistes, un terme dû à la variation de la masse avec la vitesse, un terme dû au retard de propagation du champ électromagnétique entre les électrons, un terme caractéristique de la théorie de Dirac et un terme représentant l'interaction entre les spins des deux électrons



Terme	Pekeris		Aashamar	
	Ha	( $\text{cm}^{-1}$ )	Ha	( $\text{cm}^{-1}$ )
<b>Polar. masse</b>	-0,0000179067	-3,9279	-0,0000179086	-3,9283
<b>Relat.</b>	-0,0000013861	-0,30405	0,0000052684	1,1556
Darwin	-0,0000066559	-1,4600	non-calculé	non-calculé
Sans Darwin	0,0000052702	1,1559	0,0000052684	1,1556
<b>Radiatif</b>	$-1,7 \cdot 10^{-8}$	-0,0037	-0,00000125274	-0,27479
<sup>e</sup> A sans corr.	0,02775100	6087,325	0,0277513	6087,391
<sup>e</sup> A avec corr.	0,02773174	6083,089	0,0277386	6084,343
<sup>e</sup> A Darwin	6083,089		6082,883	

TABLE 1.5 – Comparaison des résultats des calculs de Pekeris [Pek58, Pek62] et Aashamar [Aas70]. La constante de Rydberg de masse réduite utilisée est celle donnée par Aashamar :  $109677,58 \text{ cm}^{-1}$ . Le terme de Darwin correspond au terme "1" du tableau 1.4. La ligne "<sup>e</sup>A avec corr." correspond à l'affinité électronique "<sup>e</sup>A sans corr." corrigée des termes listés dans la première partie du tableau. La ligne "<sup>e</sup>A Darwin" est l'affinité électronique corrigée, pour Aashamar, du terme manquant de Darwin.

(le terme spin-orbite est nul dans le cas du niveau lié de  $H^-$  car il s'agit d'un état singulet). Contrairement à Pekeris, Aashamar ne considéra pas le terme de Darwin. Enfin, il détermina certaines corrections radiatives comme le décalage de Lamb dû aux fluctuations de l'état du vide (Pekeris calcula ce terme avec sa fonction à 203 paramètres). Les résultats de Aashamar et de Pekeris sont compilés et comparés dans le tableau 1.5

On remarque qu'Aashamar, dans son calcul de l'affinité électronique non-relativiste et avec noyau de masse infinie, a trouvé une valeur  $\sim 0,07 \text{ cm}^{-1}$  plus grande que celle de Pekeris. De plus, on constate que le terme correctif relativiste est très différent d'une théorie à l'autre :  $\sim 1,46 \text{ cm}^{-1}$  d'écart. On explique ce résultat en se souvenant que Aashamar a omis le terme de Darwin dans son calcul. Ce dernier engendre en effet un décalage en énergie de l'ordre de  $1,46 \text{ cm}^{-1}$  qui est, à  $0,003 \text{ cm}^{-1}$  près, l'écart entre les deux résultats de Pekeris et Aashamar. Quant au terme radiatif, on observe un très fort désaccord entre les deux théories (deux ordres de grandeurs). Par ailleurs, on constate que le terme correctif dû à la masse finie du noyau a une valeur extrêmement proche d'une théorie à l'autre (écart de  $0,0004 \text{ cm}^{-1}$ ). À partir de l'ensemble de ces résultats, on peut calculer une nouvelle valeur de l'affinité électronique en prenant en compte le terme de Darwin (cf. tableau 1.5). On constate que l'écart entre les deux valeurs est de  $\sim 0,3 \text{ cm}^{-1}$ . L'essentiel de cette différence provient du désaccord sur la valeur du terme de correction radiatif et, dans une moindre mesure, sur l'évaluation de l'affinité électronique non-relativiste et à noyau de masse infinie. Une mesure expérimentale est nécessaire pour départager les deux théories.

**Mesures expérimentales de l'affinité électronique de l'hydrogène** En 1974, McCulloh et Walker [MW74] étudièrent la formation photodissociative de la paire d'ions  $H^+ + H^-$  à partir de la molécule  $H_2$  dont ils déterminèrent le seuil à 17,323(2) eV (énergie notée  $E_{IP}$ ). Ce processus peut être décomposé en plusieurs processus, la dissociation de la molécule de dihydrogène puis la formation d'un hydrogène négatif et d'un hydrogène positif. Cela revient à considérer que l'énergie de la formation de la paire est reliée à l'affinité électronique selon la relation suivante :

$${}^eA(H) = D_0(H_2) + IE(H) - E_{IP}, \quad (1.16)$$

où  $D_0(H_2)$  est l'énergie de dissociation de la molécule  $H_2$ ,  $IE(H)$  est l'énergie d'ionisation de l'hydrogène.

McCulloh et Walker [MW74], sachant que  $D_0(H_2) = 4,478$  eV et  $IE(H) = 13,599$  eV, déterminèrent une affinité électronique de l'hydrogène de 0,754(2) eV (6081(17)  $cm^{-1}$ ) qui est en bon accord avec les résultats théoriques de Aashamar et Pekeris.

Depuis, d'autres mesures plus précises de ces quantités ont été obtenues. Liu *et al.* [LSH<sup>+</sup>09] mesurèrent une valeur précise de l'énergie de dissociation  $D_0(H_2) = 36118,06962(37)$   $cm^{-1}$  et Shiell *et al.* [SHHH99], l'énergie de photodissociation de  $H_2$  en une paire d'ions  $H^+ + H^-$ ,  $E_{IP} = 139714,8(10)$   $cm^{-1}$ . Finalement, l'énergie d'ionisation de l'hydrogène  $IE(H)$  est donnée par le NIST<sup>6</sup> 109678,77174307(10)  $cm^{-1}$ . À partir de ces données récentes, on peut déterminer une affinité électronique plus précise que celle obtenue par McCulloh *et al.*. L'application numérique donne une affinité électronique égale à **6082,04(100)  $cm^{-1}$**  (soit 0,75408(13) eV). Ce résultat est en très bon accord avec les résultats théoriques et expérimentaux. Actuellement, la mesure expérimentale la plus précise est celle donnée par Lykke *et al.* [LML91] à 6082,99(15)  $cm^{-1}$  (on discutera plus en détail de leurs travaux plus loin dans la section).

L'énergie la moins précise actuellement mesurée (parmi les quatre citées ci-dessus) est celle associée au processus de dissociation d'une molécule  $H_2$  en une paire  $H^+ + H^-$ . À partir des données bibliographiques récentes et de l'équation 1.16, on peut en déterminer une valeur plus précise : **139713,85(16)  $cm^{-1}$**  (soit 17,322231(3) eV).

En 1975, Feldmann [Fel75] mesura à son tour l'affinité de l'hydrogène avec le même degré de précision que McCulloh *et al.*. Son expérience consistait à faire s'intersecter un jet d'ions  $H^-$  de 3 keV avec un laser accordable. En balayant la longueur d'onde du laser autour

6. Base de données atomiques de NIST : <http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm>

du seuil de détachement de l'hydrogène négatif, il parvint à mesurer l'évolution, en relatif, de la section efficace de photodétachement. L'ajustement des données expérimentales avec une loi de Wigner permit à Feldmann d'extraire une valeur de l'affinité de  $0,7539(20)$  eV ( $6081(17)$   $\text{cm}^{-1}$ ) qui se situe bien dans les barres d'erreurs des mesures précédentes. On appelle cette méthode de mesure "Laser Photodetachment Threshold spectroscopy" (LPT).

En 1981, Charles Alan Frost [Fro81, BBC<sup>+</sup>81] publia ses travaux de thèse sur l'étude expérimentale de la section efficace de photodétachement, à un et deux électrons, de l'ion  $H^-$ . Pour ses expériences, il exploita un faisceau d'ions  $H^-$  relativistes (800 MeV, soit  $\sim 2,52 \cdot 10^5$  km/s), relativement fin (2 mm de diamètre) et peu divergent (0,2 mrad), en sortie de l'accélérateur du Los Alamos Meson Physics Facility (LAMPF). Il s'agissait d'un faisceau impulsif (durée 600  $\mu\text{s}$ , 120 Hz) ces impulsions étant elles-mêmes constituées de micro-impulsions de 0,25 ns et espacées de 5 ns. Pour réaliser le photodétachement, il utilisa les quatre premières harmoniques d'un laser Nd:YAG pulsé (fondamental à 1064 nm) produisant des impulsions longues, de 9 ns, très énergétiques (0,7 J soit  $\sim 78$  MW de puissance crête) et avec un taux de répétition de 10 Hz.

L'avantage de travailler avec un faisceau relativiste est qu'il lui fut possible de balayer la longueur d'onde du laser sur une bande spectrale extrêmement étendue allant de l'infrarouge (3647 nm, 0,34 eV) à l'ultraviolet (78 nm, 15,9 eV) en passant par le visible. Le seuil du photodétachement à deux électrons est situé à 14,35 eV. Pour réaliser un tel exploit, il balaya l'angle d'intersection du laser avec le jet d'ions de façon à modifier continûment le décalage Doppler perçu par les ions. Pour cela, il s'appuya sur un système de balayage sur  $360^\circ$ , avec 31  $\mu\text{rad}$  de résolution. Frost mesura, en relatif, la courbe de section efficace de photodétachement sur la gamme de longueur d'onde accessible (cf. sous-section 1.3.3.1). Pour cela, il mesura le nombre de neutres produits par photodétachement, le nombre d'ions négatifs et le nombre de photons incidents. En ajustant les mesures près du seuil avec la loi de Wigner (méthode LPT), il obtint une valeur de l'affinité électronique de l'hydrogène de  $0,753(5)$  eV. Cette valeur est moins précise mais est en accord avec les résultats antérieurs.

En 1991, Lykke *et al.* [LML91] déterminèrent, dans une expérience de photodétachement d'un jet d'ions  $H^-$  (ou  $D^-$ ) avec un laser à centres colorés (0,5 W, 1 GHz), l'affinité électronique de l'hydrogène. Ils mesurèrent, en faisceau copropageant et contrapropageant (le jet d'ions et le faisceau laser se propagent selon une même direction), la section efficace relative autour du seuil de détachement. L'ajustement de leurs données avec une loi de Wigner, compte tenu de la structure hyperfine du fondamental de l'hydrogène, leur per-

mettait d'extraire, dans les deux configurations, la position du seuil. Après prise en compte de l'effet Doppler, ils obtinrent une affinité électronique de  $^1H$  ( $F=0$ ) à  $6082,99(15) \text{ cm}^{-1}$  et de  $D$  ( $F = \frac{1}{2}$ ) à  $6086,2(6) \text{ cm}^{-1}$ . Ces mesures sont les plus précises actuellement disponibles.

En 1997, Harms et al. [HZGM97], avec leur dispositif expérimental constitué d'un piège de Penning dans lequel étaient produits (par attachement dissociatif d'électrons lents sur des molécules d'ammoniac  $NH_3$ ) et stockés des ions  $H^-$ , mesurèrent, par la méthode LPT, une valeur de  $6082,8(7) \text{ cm}^{-1}$  ( $0,75417(9) \text{ eV}$ ) pour l'affinité électronique de  $H$  (mesure la plus récente en 2013). Cette mesure est moins précise mais en accord avec celle de Lykke *et al.*.

### Structure hyperfine de l'état $1s$ de l'hydrogène et termes correctifs pour le calcul de l' $^eA$

En 1988, Drake [Dra88] calcula l'énergie de liaison non-relativiste de  $H^-$  à noyau de masse infinie ainsi qu'une grande quantité de corrections. Il utilisa une fonction d'onde de type Hylleraas doublée à 616 paramètres (deux sommes de termes contenant les mêmes combinaisons de puissances de  $r_1$ ,  $r_2$  et  $r_{12}$  mais ayant des paramètres exponentiels différents). Il considéra l'ensemble des corrections d'ordre  $\alpha^2$ ,  $\frac{\mu}{M}$ ,  $(\frac{\mu}{M})^2$  et  $\alpha^2 \frac{\mu}{M}$  avec  $\alpha$  la constante de structure fine,  $M$  la masse du noyau et  $\mu$  la masse de la particule réduite ; celles-ci comprennent les termes relativistes d'ordre 1 et 2, les termes de polarisation de la masse d'ordre 1 et 2, le décalage d'énergie dû au recul du noyau, les corrections radiatives (dont le terme d'ordre 1 du Lamb shift) et la correction due à la taille finie du noyau. Les résultats sont compilés dans le tableau 1.6 et comparés aux calculs antérieurs de Pekeris [Pek62] et Aashamar [Aas70].

D'après le tableau, les calculs de l'affinité non-relativiste et à noyau de masse infinie et de la correction radiative de Aashamar, ne concordent pas avec les résultats de Drake et de Pekeris. L'origine de ces écarts est à ce jour inconnue. En revanche, les résultats de Drake sont en accord avec ceux de Pekeris à  $10^{-2} \text{ cm}^{-1}$  près. Selon Drake, la précision de ses résultats est meilleure que  $10^{-6} \text{ cm}^{-1}$ . Il donne une valeur de l'énergie de liaison non-relativiste et à noyau de masse infinie avec une précision considérable :  $-0,527751016544203 \text{ Ha}$  (soit  $6087,328863(7) \text{ cm}^{-1}$  avec les constantes actuelles [MTN12]). En incluant les termes correctifs, l'affinité électronique est de  $6083,099413(7) \text{ cm}^{-1}$ .

Un problème persiste car ni Pekeris, ni Aashamar, ni Drake ne font allusion au doublet hyperfin du niveau fondamental de l'hydrogène dont l'écart de  $0,04737963594 \text{ cm}^{-1}$  [Kra10] dépasse très largement la précision affichée par Drake. Si l'on en croit Andersen *et al.* [AHH99], la valeur obtenue par Drake (communication privée) correspond au "bary-

Terme	Pekeris ( $\text{cm}^{-1}$ )	Aashamar ( $\text{cm}^{-1}$ )	Drake ( $\text{cm}^{-1}$ )
<b>Polar. masse ordre 1</b>	-3,9279	-3,9283	-3,925830
<b>Polar. masse ordre 2</b>	non-calculée	non-calculée	0,003885
<b>Relativiste</b>	-0,30405	1,1556 <b>-0,3044</b>	-0,304232
<b>Radiatif</b>	-0,0037	-0,27479	-0,003776
<b>Recul noyau</b>	non-calculée	non-calculée	0,000504
<b>Taille noyau</b>	non-calculée	non-calculée	-0,000001
<b><math>^eA</math> sans corr.</b>	6087,325	6087,391	6087,328863
<b><math>^eA</math> avec corr.</b>	6083,096	6084,32 <b>6082,88</b>	6083,099413
<b><math>^eA</math> avec SHF (<math>F = 0</math>)</b>	6083,060	<b>6082,84</b>	6083,063878(7)

TABLE 1.6 – Dans ce tableau, sont comparés les résultats de l’affinité électronique non relativiste et adiabatique (noyau de masse infinie) ainsi que diverses corrections calculées par Pekeris [Pek58, Pek62], Aashamar [Aas70] et Drake [Dra88]. On observe un très bon accord entre les résultats de Drake et ceux de Pekeris. En revanche, les résultats de Aashamar concernant les corrections radiatives et l’affinité électronique de l’hydrogène dans l’hypothèse adiabatique (noyau de masse infinie) sont très différents de ceux de Pekeris et Drake. On utilise une valeur de  $109677,583406(6) \text{ cm}^{-1}$  pour la constante de Rydberg de masse réduite. Les termes en rouge sont ceux pour lesquels on a ajouté la correction due au terme de Darwin calculé par Pekeris et omise par Aashamar. La dernière ligne donne les affinités avec prise en compte de la structure hyperfine (SHF) du niveau fondamental de l’hydrogène [Kra10].

centre" d'énergie. Sachant que la structure hyperfine de l'état fondamental de l'hydrogène est composé de deux niveaux  $F = 0$  et  $F = 1$  impliquant 1:3 comme poids statistiques, on déduit les énergies de transition vers les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental de l'hydrogène : **6083,063878(7)  $\text{cm}^{-1}$**  ( $F = 0$ ) et **6083,111258(7)  $\text{cm}^{-1}$**  ( $F = 1$ )<sup>7</sup>.

**Calculs de l’affinité électronique de l’hydrogène de masse infinie** En 1994, Thakkar et Koga [TK94] utilisèrent, pour décrire l’état lié de  $H^-$ , une fonction d’onde de type Hylleraas mais en considérant des puissances fractionnaires pour les éléments du développement. Avec 455 termes, ils calculèrent, sans considération de la structure hyperfine, l’énergie de liaison de  $H^-$  non-relativiste sous l’hypothèse d’un noyau de masse infinie de  $0,527751016544240 \text{ Ha}$  (meilleure précision que Drake [Dra88]).

Ackermann [Ack95] détermina la solution de l’équation de Schrödinger adiabatique (noyau de masse infinie) à deux électrons en utilisant la méthode des éléments finis. Cette méthode consiste à découper un domaine limité de l’espace (en dehors de celui-ci, les quantités pertinentes sont considérées comme négligeables) en cellules (en l’occurrence,

7. Harms *et al.* [HZGM97] prétendent que les calculs menés par Pekeris et Drake concernaient l’écart entre le niveau fondamental de  $H^-$  et le niveau hyperfin  $F = 0$  du fondamental de H.

de forme tétraédrique). Dans chacun de ces tétraèdres est définie la partie associée de la fonction d'onde solution approximative de l'équation de Schrödinger. Avec 2005 points (un point correspondant à un sommet d'un tétraèdre éventuellement dégénéré) et un domaine dont l'étendue est restreinte par la condition  $r_1 + r_2 \leq 120 a_0$ , il détermina une affinité électronique relativement précise (3 chiffres significatifs de moins que Drake [Dra88]).

En 2002, Drake [DCN02] affina sa méthode de calcul de l'énergie de liaison non-relativiste de  $H^-$  à noyau de masse infinie de 1988 [Dra88]. Il développa la fonction de l'état lié sur une base triplée de fonctions de type Hylleraas à 2276 termes. Il obtint avec celle-ci une énergie de liaison pour l'hydrogène d'une précision prodigieuse égale à 0,527751016544377197 Ha à comparer au résultat de Frolov [Fro98] de 0.527751016544302 Ha avec un noyau de masse infinie. La traduction de ces valeurs dans des unités plus conventionnelles pour comparaison n'est pas possible dû au manque de précision actuel sur les constantes fondamentales [MTN12].

### Calculs de l'affinité électronique du protium, du deutérium et du tritium et amélioration de l'affinité électronique de l'hydrogène de masse infinie

En 1997, une étape supplémentaire fut franchie par Kinghorn et al. [KA97] qui considérèrent pour la première fois le hamiltonien dans sa forme non-relativiste et non-adiabatique (masse finie du noyau). Ils utilisèrent pour leurs calculs une fonction à 512 paramètres développée sur la base des fonctions gaussiennes explicitement corrélées. Une méthode variationnelle fut employée pour optimiser les paramètres de la fonction d'onde. Le calcul avec cet hamiltonien non-adiabatique permit de prendre en compte le décalage complet dû à la finitude de la masse du noyau. Ils calculèrent une valeur de 6083,4058  $\text{cm}^{-1}$ . En retranchant à la valeur obtenue l'ensemble des corrections précédemment déterminées par Drake [Dra88] (0,307505  $\text{cm}^{-1}$ ), ils obtinrent une affinité électronique de 6083,0983  $\text{cm}^{-1}$ . Ce résultat est un peu différent de la valeur exacte obtenue par Drake (erreur de -0,0011  $\text{cm}^{-1}$ ) mais les auteurs conclurent que ce désaccord pouvait être corrigé en modifiant leur fonction d'onde de manière à accroître la vitesse de convergence de leur méthode. Une remise à l'échelle appropriée des corrections de Drake leur permit de déduire l'affinité électronique du deutérium 6086,7126  $\text{cm}^{-1}$  et du tritium 6087,9168  $\text{cm}^{-1}$  (ces valeurs étant entachées, *a priori*, de la même erreur que l'hydrogène).

Un an plus tard, Frolov [Fro98] calcula, comme le fit Kinghorn et al. (qu'il ne cite d'ailleurs absolument pas), l'affinité électronique non-relativiste et non-adiabatique du protium ( $^1\text{H}$ ), du deutérium, du tritium mais aussi du muonium. Il s'appuya sur une forme

variationnelle de la fonction d'onde qu'il exprima dans les coordonnées relatives ( $r_{21}$ ,  $r_{32}$  et  $r_{31}$ ) et développa sur une base de fonctions exponentielles (contenant chacune 3 paramètres variationnels). Il utilisa au mieux 800 termes (soient 3200 paramètres). Il calcula une énergie de liaison de l'hydrogène de 0,527445881114104 Ha (soit avec les constantes actuelles [MTN12] 6083,406920(7)  $\text{cm}^{-1}$ ). En retranchant les corrections relativistes (comprenant l'ensemble des corrections évoquées moins les corrections de polarisation) calculées par Drake [Dra88], on trouve une affinité électronique de  $\sim 6083,099415(7) \text{ cm}^{-1}$  identique à celle de Drake. Dans l'hypothèse d'une masse infinie, il obtint 0.527751016544302 Ha soit avec les conversions actuelles 6090,644126(7)  $\text{cm}^{-1}$ ).

En 2003, Frolov et Smith [FS03] calculèrent l'énergie de liaison du protium, du deutérium, du tritium et de l'hydrogène de masse infinie. Ils ne modifièrent (par rapport au calcul de 1998 [Fro98]) que l'algorithme d'optimisation des paramètres variationnels situés en argument des exponentielles qui constitue la base sur laquelle ils développent la fonction d'onde de l'état lié. Avec leur méthode ils obtinrent une affinité avec une précision de deux ordres de grandeurs meilleure que celle que Drake *et al.* [DCN02] déterminèrent pour l'hydrogène non-relativiste de noyau de masse infinie.

En 2005, Frolov [Fro05] affina encore une fois son calcul de l'énergie de liaison de l'hydrogène non-relativiste de masse infinie, du protium, du deutérium et du tritium. Pour cela, il calcula les termes d'ordre le plus bas des corrections radiatives. L'effet de sur l'énergie de liaison est extrêmement faible, il obtint pour le protium une valeur de 0,527445881114178893**4109** Ha (valeur actuelle la plus précise) à comparer à celle obtenue en 2003 égale à 0,527445881114178893**3911** Ha.

Le calcul le plus récent de l'énergie de liaison date de 2010 et a été réalisé par Klopper *et al.* [KBTH10]. La précision donnée est bien plus faible que celle obtenue dans les travaux antérieurs. Le mérite de cet article est de donner les affinités électroniques avec une précision comparable (5 chiffres significatifs) pour tous les éléments jusqu'au fluor.

### 1.3.3 Section efficace de photodétachement de $H^-$

#### 1.3.3.1 Section efficace autour du maximum

**Mesures, loin du seuil, de la section efficace de photodétachement de  $H^-$**  La première observation du photodétachement en laboratoire ne fut effective qu'en 1954 après que Wade L. Fite [Fit53] eut mis au point les premières sources d'ions négatifs à fort courant

( $H^-$  et  $O^-$ ). L'année d'après, Branscomb et Smith [BS55] réalisèrent des études quantitatives concernant l'évolution de la section efficace en fonction de l'énergie des photons absorbés. L'expérience consistait à éclairer un jet d'ions  $H^-$  avec la lumière émise par une lampe à tungstène. Le spectre de cette lampe étant large, la sélection en longueur d'onde se faisait au travers de filtres (9 au total de 420 à  $\sim$  990 nm) qui étaient placés entre la source et la zone d'interaction. Cependant, l'intensité lumineuse produite par la source était insuffisante ce qui contraignit les auteurs à utiliser des filtres large bande et ainsi mesurer des sections efficaces intégrées. Afin de déterminer de façon absolue la section efficace, ils mesurèrent simultanément la puissance du rayonnement (avec un radiomètre), le courant d'ions négatifs (avec une coupe de Faraday placée en aval de la zone d'interaction) et la fraction d'ions détruits par photodétachement (détection synchrone du signal d'électrons modulé par découpage temporel de la source de lumière). De plus, ils élaborèrent un modèle théorique simulant leur dispositif expérimental (spectre de la lampe à filaments de tungstène, coefficients de transmission des filtres etc) qui leur permit de confirmer le calcul de Chandrasekhar [Cha45a, Cha45b] (à 10 % près).

En 1959, Smith et Burch [SB59] modifièrent l'expérience de Branscomb et Smith [BS55] pour réaliser des mesures plus précises, mais relatives, de la section efficace de photodétachement de  $H^-$ . Ils substituèrent une lampe à arc (électrodes de graphite) à la lampe à tungstène, qui était moins stable mais qui émettait plus de puissance lumineuse. Un manque d'intensité avait contraint Branscomb et Smith à utiliser des filtres larges bandes. Avec cette nouvelle source, ils purent utiliser des filtres de bande suffisamment étroite (dont un à 528 nm utilisé comme référence) pour pouvoir considérer la lumière les traversant comme monochromatique et donc négliger les variations de section efficace en fonction de la longueur d'onde dans ces bandes de transmission. De plus, ils remplacèrent le radiomètre absolu par un bolomètre, sur lequel était défléchi  $\sim$  8 % de la lumière incidente, et un calorimètre situé en aval de la zone d'interaction. C'est un système plus précis mais ne donnant accès qu'à des valeurs relatives de la puissance lumineuse. Ils mesurèrent 25 points dans l'intervalle spectral allant de 420 à  $\sim$  1300 nm, avec une erreur plus petite que 3 % sur la forme globale de la courbe (cf. figure 1.6). Les résultats de Branscomb et Smith [BS55] peuvent être utilisés pour mettre les mesures de Smith et Burch sur une base absolue. C'est Geltman [Gel62] qui réalisa cette opération, il fixa à  $3,28 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$  la section efficace expérimentale à 528 nm avec une incertitude de 10 %.

**Premiers calculs après la mesure de Branscomb et Smith [BS55]** En 1956, Geltman [Gel56], détermina la fonction d'onde associée à l'état lié de  $H^-$ , sans utiliser de fonc-



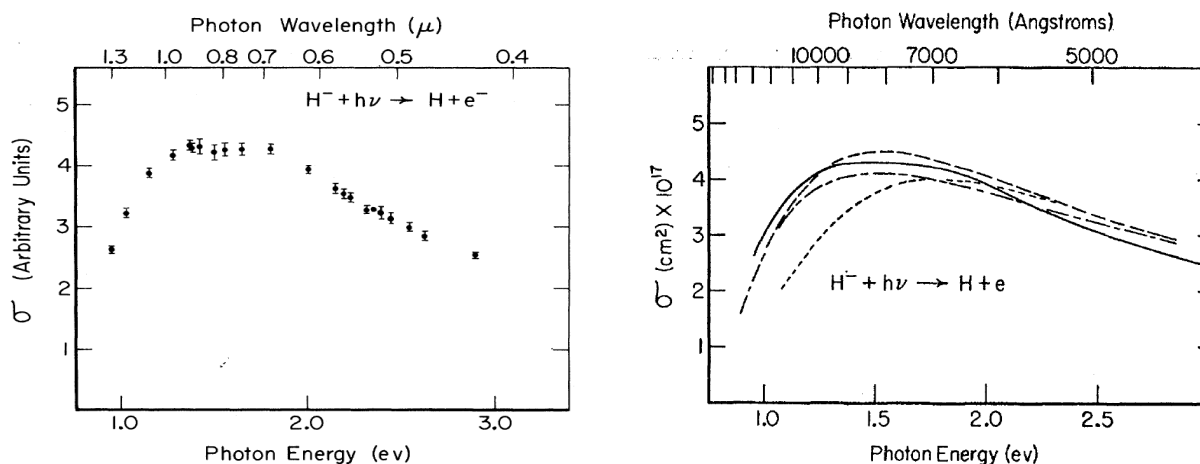


FIGURE 1.6 – À gauche : mesures relatives de la section efficace réalisées par Smith et Burch [SB59]. Le point sans barre d'erreur correspond à la valeur de référence (filtre à 528 nm). À droite : courbe expérimentale de Smith et Burch (—), Geltman [Gel56] (- - - -) Chandrasekhar (état libre onde plane) [Cha58] (- - - -), Chandrasekhar et Elbert (état libre Hartree) [CE58] (· · · · ·). On observe une forte dépendance du résultat théorique à la manière de décrire l'état libre. L'accord entre la théorie et l'expérience est meilleur lorsque l'électron éjecté et l'atome d'hydrogène résiduel interagissent au travers du potentiel de Hartree.

tion de Hylleraas et le principe variationnel de Rayleigh-Ritz. Au lieu de cela, il construisit les fonctions d'onde (état lié et libre) en s'appuyant sur le fait qu'elles obéissaient à certaines conditions, à savoir : l'équivalence, dans le cas d'une solution exacte, des éléments de transitions dipolaires des jauges de longueur, de vitesse et d'accélération, et des règles de somme [CK43]. Pour décrire l'interaction, il considéra un potentiel coulombien tronqué permettant d'assurer l'existence d'un seul état lié. Ses résultats étaient en fort désaccord avec ceux de Chandrasekhar [Cha45b], en particulier au voisinage du maximum ; mais étaient cohérents avec les mesures expérimentales de Branscomb et Smith [BS55] compte tenu des 10 % d'incertitude.

En 1958, Chandrasekhar et al. utilisèrent la fonction d'onde à vingt paramètres déterminée par Hart et Herzberg [HH57] pour calculer la section efficace de photodétachement de  $H^-$ . Chandrasekhar décrivit dans un premier article l'état libre par une onde plane [Cha58] puis dans un second, par une fonction d'onde déformée par un potentiel de Hartree [CE58] mais ne prit pas en compte les corrélations d'échange. Dans les deux cas, il obtint une section efficace similaire à celle de Henrich [Hen44] (fonction d'onde à onze paramètres) pour les deux jauges, de longueur et de vitesse. L'ajout de paramètres supplémentaires n'améliorait donc pas significativement la précision de la fonction d'onde aux grandes et moyennes distances interélectroniques.

**Hypothèses simplificatrices : calculs analytiques de la section efficace** En 1960, John [Joh60a, Joh60b] montra, en se basant sur des calculs de diffusion d'électrons basse énergie sur des atomes d'hydrogène [BDJS58], que la réduction de la section efficace due aux corrélations d'échange était non-négligeable (cf. tableau 1.1). D'après la figure 1.6, la section efficace calculée par Chandrasekhar, dans l'approximation où l'électron éjecté subit un potentiel de Hartree, est un peu au-dessus de la courbe expérimentale. Cela conforte les calculs de John qui prévoyaient une réduction de la section efficace due aux corrélations d'échange.

En 1960, Ohmura et Ohmura [OO60], s'intéressèrent à la diffusion d'un électron sur un hydrogène neutre. En se basant sur la fonction d'onde variationnelle à 203 paramètres de Pekeris [Pek58] qui décrit l'état lié de  $H^-$ , ils calculèrent la portée effective (effective range)  $\rho = 2,646 \pm 0,004$  u.a. du potentiel que subit un électron à l'approche d'un atome d'hydrogène. À partir de ce résultat, ils déterminèrent une expression approchée de la section efficace de photodétachement en étendant au cas de l'ion négatif, la théorie développée par Bethe et Longmire pour la photodésintégration d'un deutéron (réf 11 de l'article de Ohmura et Ohmura) :

$$\sigma(k) = \frac{6,847 \cdot 10^{-18} \gamma k^3}{(1 - \gamma \rho)(\gamma^2 + k^2)^3} \text{cm}^2. \quad (1.17)$$

où  $k$  est le vecteur d'onde de l'électron et  $\gamma^2/2$  l'affinité électronique de  $H$ , les deux étant exprimés en hartree ( $1 \text{ Ha} = 219474,63137078(110) \text{ cm}^{-1}$ , cf. figure 1.7<sup>8</sup>).

Bethe et Longmire considéraient, pour leur calcul, une approximation basée sur la faible stabilité de l'état lié d'un deutéron (noyau constitué d'un proton et d'un neutron) qui en se photodésintégrant, émet une onde  $p$ .

De manière similaire, le photodétachement de l'ion  $H^-$ , qui est un édifice faiblement lié, mène à l'éjection d'un électron  $p$ . La faible densité de présence, autour du noyau, de ce type d'orbitales (ondes  $p$ ) est à l'origine d'un faible recouvrement avec la fonction de l'état lié (localisée près du noyau). L'interaction de l'électron avec le noyau est, en conséquence, négligeable, la fonction du continuum peut être approximée par une onde plane. De plus, Ohmura et Ohmura supposèrent qu'en raison de la faiblesse du potentiel liant l'électron supplémentaire à l'atome d'hydrogène, la fonction d'onde de celui-ci pouvait être précisément décrite par la solution de l'équation de Schrödinger avec un potentiel d'interaction

---

8. Notons la petite coquille au niveau de l'étiquette de l'axe vertical de la figure 5 représentant la section efficace. Il faut comprendre  $\kappa_\nu \times 10^{17} \text{ cm}^2$  et pas  $\kappa_\nu \times 10^{19} \text{ cm}^2$ . En revanche, l'expression analytique est correcte.

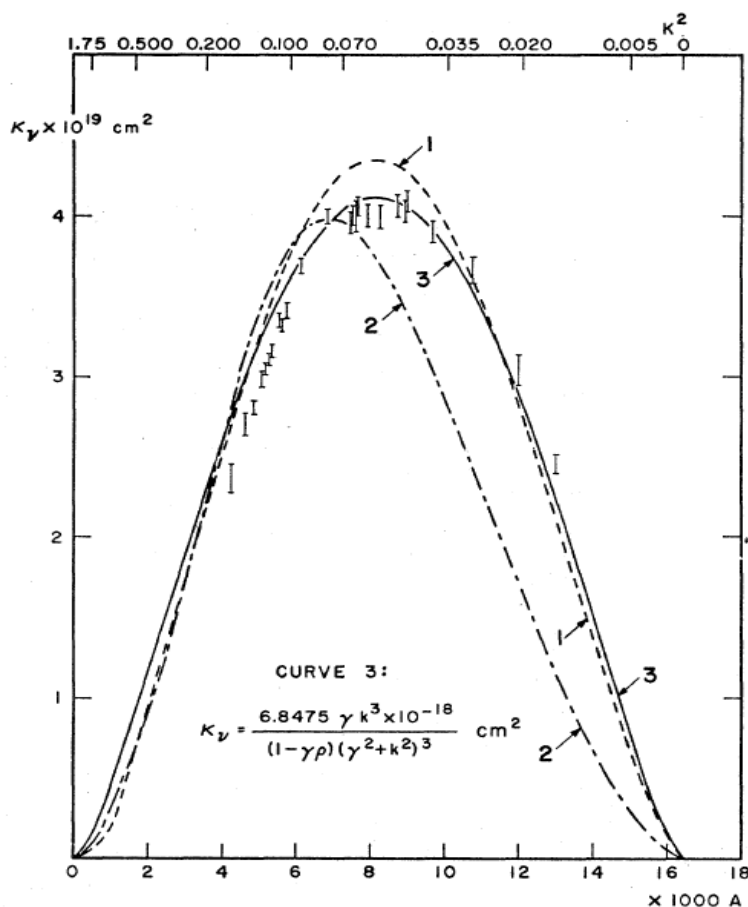


FIGURE 1.7 – Section efficace de photodétachement de  $H^-$  ( $\kappa_\nu$  multipliée par  $10^{17}$  et pas  $10^{19}$  comme indiqué) en fonction de la longueur d'onde du photon incident. Les points avec les barres d'erreurs correspondent aux mesures de Smith et Burch [SB59] remises sur une échelle absolue par Geltman [Gel62]. Les courbe 1 (jauge de longueur) et 2 (jauge de vitesse) ont été calculées, par Chandrasekhar [CE58], avec la fonction de Hart et Herzberg à 20 paramètres. La courbe 3 a été calculée à l'aide de l'équation 1.17 par Ohmura et Ohmura dans l'article [OO60] (article duquel a été extraite la figure).

nul, l'autre électron étant localisé près du noyau. En utilisant l'équation 1.17, l'affinité électronique obtenue par Pekeris  $\sim 0,7551$  eV et la portée effective calculée, ils obtinrent une courbe en très bon accord avec les valeurs expérimentales de Smith et Burch (meilleur qu'avec des calculs basés sur des fonctions variationnelles à vingt paramètres). La section efficace culminait à  $4,095 \cdot 10^{-21}$  m<sup>2</sup> pour une longueur d'onde de 821 nm ( $3,82 \cdot 10^{-21}$  à 1064 nm). Cette équation contient la loi de seuil de Wigner [Wig48]. On le vérifie en calculant l'équivalent quand  $k \rightarrow 0$  (l'énergie cinétique de l'électron détaché étant proportionnelle à  $k^2$ ) :

$$\sigma(k) \propto \epsilon^{\frac{3}{2}}.$$

On retrouve le comportement en  $\epsilon^{3/2}$  prévu par Wigner.

En 1963, Armstrong [Arm63] établit indépendamment et avec le même raisonnement que Ohmura et Ohmura la relation 1.17.

En différentiant cette expression par rapport à l'énergie du photon, il démontra que la position du maximum de la section efficace de photodétachement de  $H^-$  et l'affinité électronique de  $H$  étaient liées par la relation :

$$\hbar\omega_m = 2 \epsilon A,$$

$\omega_m$  correspond à la pulsation du photon exciteur au niveau du maximum.

**Améliorations, aux grandes distances interélectroniques, de la fonction d'onde de l'état libre** En 1962, Geltman [Gel62] utilisa, pour l'état libre, une fonction d'onde contenant des termes associés à des états excités de l'atome d'hydrogène. La présence de ces termes permettaient de décrire précisément les corrélations radiales et angulaires entre les deux électrons. Pour l'état lié, il se basa sur les fonctions d'onde proposées par Hart et Herzberg (Hylleraas à 20 paramètres) [HH57] et par Schwartz [Sch62] à 70 paramètres.

Geltman calcula, en utilisant la fonction d'onde de Hart et Herzberg pour l'état lié et plusieurs descriptions de l'état libre (trois cas : onde plane, corrélations radiales et toutes les corrélations), la section efficace et observa de fortes disparités des résultats selon si la jauge de longueur ou de vitesse était utilisée. En particulier, il constata que plus la description de l'état libre était bonne, plus les disparités, au voisinage du seuil, des résultats obtenus en jauge de longueur et de vitesse étaient grandes. En utilisant, pour l'état lié, la fonction d'onde de Schwartz à 70 paramètres, Geltman observa que seule la section efficace calculée en jauge de longueur se distinguait sensiblement des sections efficaces calculées avec la fonction de Hart et Herzberg. Or, d'après Chandrasekhar [Cha45a] la contribution des intégrales, en jauge de longueur, n'est significative que pour de grandes distances interélectroniques, alors qu'en jauge de vitesse et d'accélération, la contribution n'est forte que pour de plus courtes distances. Geltman conclut que les fonctions de Hart-Herzberg et de Schwartz différaient principalement aux grandes distances interélectroniques. C'est donc dans ces régions qu'il faut améliorer la fonction d'onde pour mieux décrire l'état lié de  $H^-$ .

Ce problème avait déjà été soulevé par Chandrasekhar en 1944 [Cha44]. Il remarqua que le principe de Rayleigh-Ritz n'était pas adapté pour déterminer le comportement

asymptotique de l'état lié (cf. note 3) et qu'il convenait de choisir une fonction ayant le bon comportement asymptotique pour trouver le minimum d'énergie.

En 1969, Rotenberg et Stein [RS69], adoptèrent cette idée en ajoutant à la fonction de Hylleraas habituelle, une fonction ("tail" function) pour mieux décrire le comportement asymptotique de l'état lié. Ils démontrèrent que l'énergie de liaison déduite par l'utilisation du principe de Rayleigh-Ritz convergeait beaucoup plus rapidement avec l'utilisation de cette fonction asymptotique. À titre d'exemple, 15 paramètres suffisaient à dépasser la précision obtenue par Hart et Herzberg [HH57] (Hylleraas 21 paramètres). Avec 57 paramètres, ils obtinrent une affinité électronique de l'hydrogène de noyau de masse infinie de 0,027750882 u.a. (soit  $\sim 0,755139$  eV) qui est formidablement proche de celle de Pekeris à 444 paramètres 0,027751016 u.a. [Pek62] ( $\sim 0,7551434$  eV).

En 1975, Ajmera et Chung calculèrent la section efficace en utilisant le formalisme variationnel simplifié de Köhn-Feshbach (référence 11-13 de leur article) basé sur les opérateurs de projections sur les voies ouvertes (open channels, ici l'état fondamental de l'hydrogène + une fonction donnant le bon comportement asymptotique) et sur les voies fermées (closed channels). Cette technique est particulièrement bien adaptée à l'étude des résonances. Pour l'état lié, ils utilisèrent soit la fonction d'onde de Rotenberg et Stein [RS69], soit une fonction d'onde incluant des corrélations radiales et angulaires qui manque de précision aux grandes distances interélectroniques. Les résultats qu'ils obtinrent, en jauge de longueur et de vitesse, étaient mutuellement en meilleur accord lorsque la fonction d'onde de Rotenberg et Stein était utilisée.

En jauge de longueur, c'est la partie de la fonction d'onde associée aux grandes distances interélectroniques qui joue le plus grand rôle dans le calcul et c'est précisément pour mieux décrire cette région que Rotenberg et Stein ont utilisé une fonction "tail". Ajmera et Chung vérifièrent effectivement que la section efficace calculée, en jauge de longueur, avec la fonction d'onde de Rotenberg et Stein, était celle qui s'approchait le plus des mesures expérimentales.

**Calculs sans considération de l'hypothèse de Geltman [Gel62]** En 1966, Doughty *et al.* [DFM66] employèrent la méthode de Hartree-Fock pour calculer la fonction du continuum en incluant successivement tous les états jusqu'au 3d de l'hydrogène.

En 1967, Bell et Kingston [BK67a] utilisèrent la méthode des orbitales polarisées (prouvée comme étant plus précise pour le traitement de la photoionisation de l'hélium [BK67b]) pour calculer l'état libre. Néanmoins, la méthode n'incorpore pas bien les corrélations à

courte distance. Bell et Kingston se placèrent, notamment, en jauge de longueur pour calculer la section efficace. Pour l'état lié, ils utilisèrent la fonction d'onde de Schwartz à 70 paramètres (et Hart et Herzberg à 20 paramètres). La section efficace qu'ils déterminèrent était en bon accord avec les mesures de Smith et Burch [SB59] loin du seuil (maximum de  $4,238 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$  à 824,7 nm) mais s'en écartait significativement près du seuil.

**Mesures de la section efficace absolue de photodétachement de  $H^-$ , par observation du rayonnement émis par un plasma d'hydrogène** L'étude du rayonnement émis par un plasma d'hydrogène produit par le passage d'un arc électrique dans un gaz de dihydrogène, et en particulier le rayonnement émis lors de l'attachement d'un électron à un hydrogène neutre (attachement radiatif, bilan détaillé), permit à Popp et Kruse [PK76], en 1975, de réaliser des mesures absolues de la section efficace de photodétachement. Ils mesurèrent, sur une gamme de longueur d'onde allant de 0,7 à 1,7  $\mu\text{m}$ , le rayonnement total émis par le plasma. La présence de résonances (séries de Paschen et Balmer) leur interdit la mesure à certains intervalles de longueur d'onde dont celui allant de 0,9 à 1,15  $\mu\text{m}$  dans lequel se trouve le maximum de section efficace de photodétachement. En supposant un équilibre thermodynamique local partiel (PLTE) des différentes particules présentes, une faible ionisation du plasma (équations de Saha utilisables) et la validité de la condition d'électroneutralité du plasma, ils purent remonter aux densités des différentes espèces. À partir des valeurs des densités, ils purent évaluer les rayonnements issus d'autres processus comme le Bremsstrahlung et la recombinaison radiative dus à l'interaction des électrons libres avec les protons libres ainsi que les processus similaires intervenant lors de l'interaction d'un hydrogène neutre avec un proton (dont le processus libre-lié de formation de l'ion  $H_2^+$ ). La soustraction de ces rayonnements au spectre expérimental leur permit de déterminer la section efficace de photodétachement (précision à 8 %) qu'ils comparèrent à celle de Smith et Burch [SB59] (réajustée de façon à avoir  $3 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$  à 528 nm) et aux résultats théoriques de Doughty *et al.* [DFM66] (cf. figure 1.8). On compile les valeurs numériques de la section efficace (valeurs extraites des courbes) et les incertitudes dans le tableau 1.7.

L'accord entre leurs mesures (précision de 8 %) et celles de Smith et Burch (précision de 10 %) est plutôt satisfaisant.

**Section efficace de photodétachement à un et deux électrons, résonances** Broad et Reinhardt [BR76] ont utilisé la technique "multichannel J-matrix" pour résoudre les

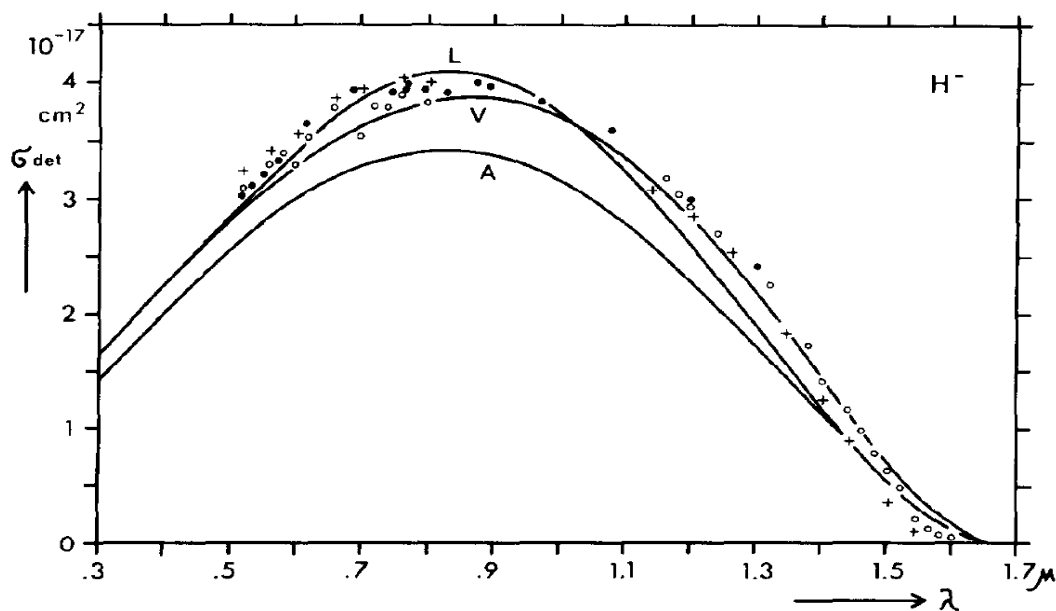


FIGURE 1.8 – Section efficace de photodétachement de  $H^-$  en fonction de la longueur d'onde du photon. Les croix (température du plasma de 8200 K) et les cercles (température du plasma de 8500 K) correspondent aux mesures de Popp et Kruse [PK76]. Les courbes en trait plein ont été calculées par Doughty *et al.* [DFM66] en jauge de longueur (L), de vitesse (V) et d'accélération (A). La figure a été extraite de l'article de Popp et Kruse [PK76].

"pseudostate close-coupling equations"<sup>9</sup>. Ils obtinrent ces équations en injectant, dans l'hamiltonien à trois corps de  $H^-$ , une fonction d'onde développée sur la base des états de diffusion (construits à partir des états  $10s$ ,  $10p$  et  $6d$  soit 36 voies de diffusion). Ces états sont issus du produit symétrisé de fonctions d'onde associés aux états internes de  $H$  neutre cible et de l'électron diffusant. Ils décrivent l'état lié de  $H^-$  à l'aide d'orbitales de type Slater des états  $8s$ ,  $6p$  et  $4d$  combinées en 67 configurations  $^1S$  à deux électrons. En optimisant ces paramètres, ils calculèrent une énergie de liaison de 14,3507 eV, à comparer au résultat de Pekeris de 14,3608 eV [Pek62].

À partir des éléments de transition dipolaires électriques entre l'état lié  $^1S$  et les états de diffusion, ils calculèrent la section efficace depuis le seuil de détachement à un électron jusqu'à une énergie de 70 eV (le seuil de détachement à deux électrons se situe à  $\sim 14,6$  eV). Ils révélèrent l'existence d'un grand nombre de résonances entre le niveau  $n = 2$  et  $n = \infty$  (résonances de forme – shape resonance – et de Feshbach, en particulier autour du seuil

9. La méthode consiste à séparer l'espace en deux sous-espaces, intérieur (inner) et extérieur (outer). Dans l'ion  $H^-$  en particulier, lorsque l'un des deux électrons est suffisamment loin du noyau (zone outer), il perd son caractère indiscernable vis-à-vis de l'autre électron et la description en est considérablement simplifiée. En revanche, près du noyau (zone inner) le comportement est plus complexe et il faut considérer le caractère quantique des électrons (indiscernabilité) et les corrélations. Le lien entre ces deux zones est donné par la "J-matrix" (voir section II A de l'article de Broad et Reinhardt).

$n = 2$ , cf. section 1.3.3.3). La section efficace calculée est en accord, à 1 % près, avec les résultats théoriques les plus récents (après 1962) et les mesures expérimentales de Popp et Kruse [PK76].

Une revue complète des travaux concernant l'évolution de la section efficace de photodétachement non loin du maximum (réalisés avant 1978) est donnée dans l'article de Bates [Bat78].

Mesures plasma à 8200 K			Mesures plasma à 8500 K		
$\lambda$ (nm)	$\sigma$ ( $10^{-21} \cdot \text{m}^2$ )	$\delta\sigma$ ( $10^{-21} \cdot \text{m}^2$ )	$\lambda$ (nm)	$\sigma$ ( $10^{-21} \cdot \text{m}^2$ )	$\delta\sigma$ ( $10^{-21} \cdot \text{m}^2$ )
1545	0,102	0,008	1602	0,0477	0,0038
1505	0,354	0,028	1583	0,0749	0,006
1445	0,885	0,071	1565	0,129	0,01
1404	1,239	0,099	1546	0,211	0,017
1348	1,825	0,146	1523	0,483	0,039
1266	2,526	0,202	1502	0,633	0,051
1205	2,832	0,227	1483	0,783	0,063
1142	3,07	0,246	1463	0,974	0,078
805,6	4,003	0,320	1441	1,157	0,093
764,5	4,044	0,324	1403	1,396	0,112
702	3,949	0,316	1382	1,716	0,137
661,3	3,867	0,309	1323	2,24	0,179
603,2	3,561	0,285	1244	2,682	0,215
562,5	3,411	0,273	1201	2,914	0,233
520,6	3,241	0,259	1183	3,03	0,242
			1164	3,173	0,254
			800,1	3,826	0,306
			760,6	3,887	0,311
			740,3	3,792	0,303
			718,5	3,806	0,304
			697,1	3,540	0,283
			657,3	3,792	0,303
			618,2	3,533	0,283
			599,4	3,3	0,264
			580,2	3,39	0,271
			559,6	3,3	0,264
			519,4	3,084	0,247

TABLE 1.7 – Tableau des mesures de section efficace, en fonction de la longueur d'onde, réalisées par Popp et Kruse [PK76], dans les deux conditions en température du plasma d'hydrogène. On donne également les barres d'erreur associées.



**Mesures de la section efficace à un et deux électrons** En 1981, Frost [Fro81] réalisa des mesures de sections efficaces relatives sur un spectre très étendu allant du seuil de détachement du premier électron jusqu'à une énergie allant au-delà du seuil de détachement du second électron (15,9 eV). Il utilisa, conjointement à un laser pulsé Nd :YAG, le faisceau d'ions relativistes (800 MeV) en sortie de l'accélérateur du Los Alamos Meson Physics Facility (LAMPF). Les ions étant extrêmement rapides, il lui était possible de balayer, par effet Doppler, la longueur d'onde par simple modification de l'angle d'incidence laser/faisceau d'ions. L'utilisation des quatre premières harmoniques du laser lui permettait de balayer la plage d'énergie susmentionnée. La section efficace mesurée, qui présentait un creux entre  $\sim 0,9$  et  $\sim 1,3$  eV, est en désaccord avec les résultats théoriques de Broad et Reinhardt [BR76] (cf. figure 1.9).

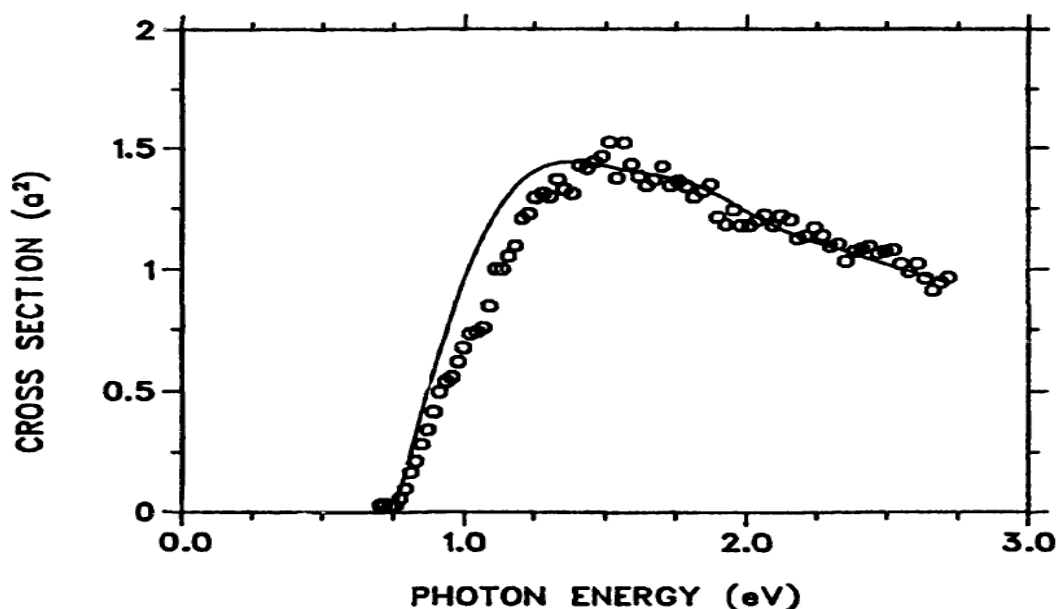


FIGURE 1.9 – Section efficace de photodétachement en fonction de l'énergie du photon exciteur. Les cercles correspondent aux mesures réalisées par Frost [Fro81] par photodétachement des ions relativistes en sortie de l'accélérateur du LAMPF. Le trait plein correspond au calcul de Broad et Reinhardt [BR76]. On observe un désaccord conséquent dans la région intermédiaire entre le seuil et le maximum. La figure a été extraite de la thèse de Frost [Fro81].

**Approfondissements théoriques** En 1978, Stewart [Ste78] utilisa une méthode perturbative et variationnelle (semblable à celle utilisée par Ajmera et Chung [AC75]) pour construire les fonctions d'onde des états liés et libres. Il porta une attention particulière à décrire correctement, comme Ajmera et Chung, le comportement asymptotique de la fonction d'onde de l'état lié. Il obtint des résultats en jauge de longueur, de vitesse et d'accélération, d'autant plus cohérents que l'énergie de l'électron éjecté considérée était

petite. En particulier, il fit mieux que Broad et Reinhardt pour une énergie inférieure à un électron-volt.

En 1979, Wishart [Wis79] calcula, dans la continuité de Broad et Reinhardt [BR76], les états lié et libre en considérant le développement "close-coupled" sur la base des états de diffusion. Pour mieux décrire les zones près du noyau, il ajouta dans sa description des états lié et libre, le pseudoétat de polarisation  $\bar{2}p$  et quelques termes de corrélations de type Hylleraas. Ses résultats sont en accord à mieux que 2 % avec ceux de Ajmera et Chung [AC75] et Broad et Reinhardt [BR76].

En 1983, Dashkan et Ghosh [DG83] étendirent au cas où la distorsion de la fonction d'onde de l'hydrogène est prise en compte, la théorie de Bell et Kingston [BK67b] des orbitales polarisées pour décrire l'état libre. Pour l'état lié, ils considèrent les fonctions d'onde à 20 et 70 paramètres de Hart et Herzberg [HH57] et Schwartz [Sch62] respectivement. Ils obtinrent des résultats en meilleur accord que ne sont ceux de Bell et Kingston avec les résultats récents les plus élaborés [AC75, BR76, Ste78, Wis79].

Fink et Zoller [FZ85], en 1985, et Park et al. [PSTL86], en 1986, publièrent quasi-indépendamment deux calculs de section efficace basé sur l'approche hypersphérique conjointement à l'utilisation d'une approximation adiabatique. Cette méthode consiste dans un premier temps, à exprimer la fonction d'onde à deux électrons suivant les paramètres hypersphériques (un rayon et cinq angles) puis moyennant l'approximation adiabatique à ne considérer que la voie principal de photodétachement dans le calcul (en l'occurrence, pour  $H^- : {}^1S \rightarrow {}^1P$ ). Leurs résultats sont cohérents entre eux mais présentent de grandes différences avec les calculs précédents. En particulier, le maximum, en jauge de longueur, de la section efficace,  $\sim 4,5 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$ , est bien plus élevé que les valeurs calculées ( $\sim 4 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$ ) dans les études théoriques antérieures.

En 1988, Saha [Sah88] utilisa la méthode multiconfigurationnelle de Hartree-Fock (MCHF) pour édifier les états liés et libres. L'état lié est construit à partir de 32 configurations couplées pour former un état  ${}^1S$ . Les fonctions radiales des différentes orbitales sont calculées en résolvant un système d'équations par la procédure itérative MCHF. La même technique est appliquée pour l'état libre, 36 configurations avec des états de diffusion en plus, sont utilisées pour construire l'état  ${}^1P^o$ . La section efficace calculée est en excellent accord avec les mesures expérimentales de Smith et Burch [SB59]. La section efficace est plus précise pour les grandes longueurs d'onde (au-delà de 1000 nm) que celles déterminées dans les études précédentes.

En 1994, Abrashkevich et Shapiro [AS96] calculèrent par la méthode très élaborée

de la voie artificielle, et en utilisant les coordonnées hypersphériques, la section efficace de photodétachement. L'avantage de la technique est qu'il n'est plus nécessaire de calculer indépendamment les états lié et libre. Les éléments de matrice de transitions pertinents sont calculés à partir d'un seul système d'équations qui permet de traiter, sur un pied d'égalité en terme de précision, les fonctions d'onde liée et libre. Leurs résultats reproduisent presque parfaitement les mesures expérimentales antérieures. De plus, la grande cohérence entre la section efficace calculée en jauge de longueur, et celle calculée en jauge d'accélération, démontre que la description des fonctions d'onde est excellente aussi bien pour les petites que pour les grandes distances interélectroniques.

En 1999, Kuan et al. [KJ99] utilisèrent une méthode de rotation complexe pour calculer la section efficace. Les fonctions d'onde de base des états lié et libre sont construites à partir de fonctions d'onde multiconfigurationnelles utilisant des orbitales de type Slater. Pour l'état du continuum, la méthode du col est utilisée. La section efficace calculée est en accord avec les mesures de Smith et Burch [SB59] et avec les calculs antérieurs, sauf en jauge d'accélération où leur calcul présente un fort désaccord.

### 1.3.3.2 Section efficace près du seuil

La question de l'évolution de la section efficace de photodétachement de  $H^-$  au voisinage du seuil a été très peu étudiée en comparaison de son comportement au niveau du maximum. Pourtant, connaître la valeur de celle-ci non-loin du seuil est crucial pour certaines études, notamment pour le projet GBAR [Deb12]. L'objectif est de démontrer l'obéissance ou non de l'antimatière au principe d'équivalence faible d'Einstein et en particulier de montrer que  $g = \bar{g}$  (accélération de l'antimatière au travers de l'interaction avec un champ gravitationnel). Certains modèles prévoient une brisure de symétrie entre la matière et l'antimatière lorsqu'elles sont soumises à un champ gravitationnel. En particulier, il existerait une composante de gravité répulsive supplémentaire que seule l'antimatière subirait (antigravité).

L'idée du projet est de mesurer précisément le temps de chute (hauteur de 20 cm) d'antimatière (antihydrogène) soumise au champ de pesanteur terrestre et d'en déduire l'accélération subie ( $\bar{g}$ ). La principale source d'incertitude vient de la vitesse initiale des antihydrogènes. L'idée, pour ce défaire de ce problème, sera de produire des ions  $\bar{H}^+$  pour pouvoir les confiner en compagnie d'ions  $Be^+$  dans un piège de Paul. Il sera alors possible de ralentir les anti-atomes à 20  $\mu K$  par refroidissement sympathique avec les ions béryllium (refroidissement indirect des ions  $\bar{H}^+$  par collision avec les ions béryllium eux-même préa-

lablement refroidis par laser). Une fois refroidis, leur libération du piège de Paul se fera par photodétachement avec un laser impulsif. Le recul des anti-atomes, conséquence de l'absorption du photon et de l'éjection du positon, devra être minimisé, ce qui oblige à se placer au plus près du seuil de photodétachement, où la section efficace est très faible.

**Détermination théorique du préfacteur de la loi de Wigner pour le photodétachement de  $H^-$  vers le niveau fondamental de  $H$**  Pour le dimensionnement de l'expérience, il est nécessaire de connaître précisément la section efficace. Photodétacher les ions positifs d'antihydrogène à  $1 \mu\text{eV}$  ( $\sim 0,01 \text{ cm}^{-1}$ ) au-dessus du seuil est un bon compromis, mais il faut connaître précisément l'affinité positronique ( ${}^pA$ ) de  $\bar{H}$ , qui est égale, en supposant une parfaite symétrie de la matière et de l'antimatière vis-à-vis des interactions coulombiennes, à l'affinité électronique de  $H$  (cf. section 1.3.2). À ce niveau d'énergie, la section efficace suit la loi de Wigner [Wig48] (cf. sous-section 1.2.1.3 de ce chapitre) :

$$\sigma = C\epsilon^{l+1/2}, \quad (1.18)$$

où  $C$  est une constante,  $\epsilon$  l'énergie cinétique du positron détaché et  $l$  son moment cinétique (onde  $p$  ici, donc  $l = 1$ ).

L'énergie cinétique étant égale à la différence entre l'énergie du photon absorbé et l'affinité positronique, on peut écrire pour l'antihydrogène :

$$\sigma = C(\hbar\omega - {}^pA)^{3/2}, \quad (1.19)$$

où  $\omega$  est la pulsation des photons. Connaître le comportement de la section efficace au voisinage du seuil revient à déterminer les valeurs de l'affinité et du préfacteur.

En 1960, Ohmura et Ohmura [OO60] établirent une expression donnant la section efficace de photodétachement en fonction de l'énergie du photon absorbé (cf. sous-section 1.3.3.1) :

$$\sigma(k) = \frac{6,8475 \cdot 10^{-18} \gamma k^3}{(1 - \gamma\rho)(\gamma^2 + k^2)^3} \text{cm}^2. \quad (1.20)$$

avec  $k$  l'énergie cinétique de l'électron détaché et  $\gamma^2/2$  l'affinité électronique (exprimés en hartree). Dans ce modèle l'état libre est décrit par une onde plane.

Cette expression nous donne accès au comportement de la section efficace absolue au voisinage du seuil de détachement dans la mesure où l'on connaît l'affinité électronique.

Lykke *et al.* déterminèrent expérimentalement une valeur de 6082,99(15) cm<sup>-1</sup> (Ohmura et Ohmura utilisaient la valeur donnée par Pekeris [Pek58, Pek62]). La substitution de cette valeur dans l'expression déterminée par Ohmura et Ohmura nous permet de tracer la courbe de section efficace au voisinage du seuil (cf. figure 1.10).

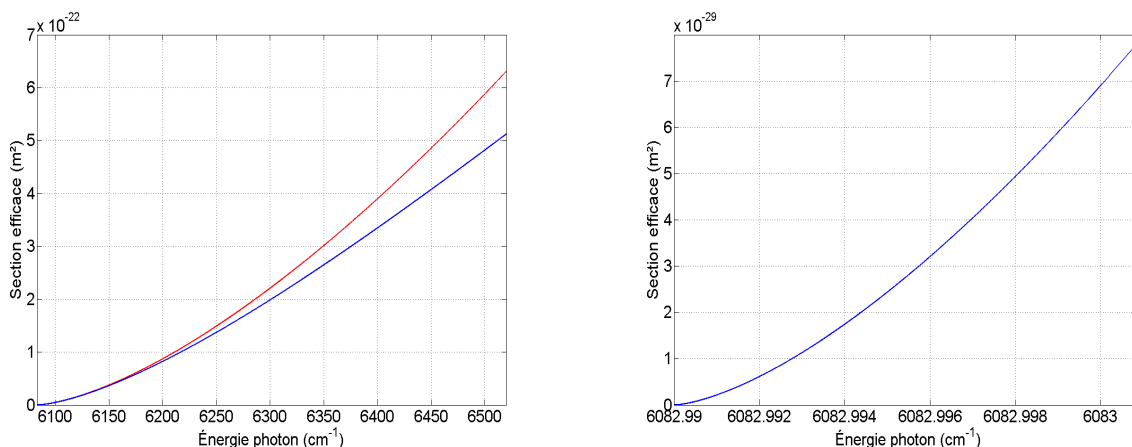


FIGURE 1.10 – À gauche : comparaison de la loi de Wigner (rouge) avec la courbe obtenue à partir de l'expression de Ohmura et Ohmura (bleue). Ces courbes sont en excellent accord jusqu'à 200 cm<sup>-1</sup> au-dessus du seuil. À droite : zoom sur la zone voisine du seuil. On remarque que la section efficace à 0,01 cm<sup>-1</sup> s'élève à seulement  $\sim 6,9 \cdot 10^{-29}$  m<sup>2</sup>.

Sur la figure, on compare la loi de Wigner et la courbe de Ohmura et Ohmura jusqu'à 400 cm<sup>-1</sup> au-dessus du seuil. Les deux courbes sont en excellent accord jusqu'à 6200 cm<sup>-1</sup> d'énergie.

Lorsque  $k \rightarrow 0$ , la relation de Ohmura et Ohmura tend vers la loi de Wigner. On déduit alors aisément la valeur du préfacteur  $C$  :  $\mathbf{6,9 \cdot 10^{-26} \text{ m}^2 / (\text{cm}^{-1})^{3/2}}$ .

On peut comparer ce résultat à celui donné par Armstrong en 1963 [Arm63] :

$$\sigma(\omega) = 2,46882 \cdot 10^{-20} (\text{eVm}^2) \frac{eA^{1/2} (\hbar\omega - eA)^{3/2}}{(\hbar\omega)^3} \quad (1.21)$$

Cette expression tend vers la loi de Wigner aux basses énergies :

$$\sigma(\omega) = C (\hbar\omega - eA)^{3/2} \quad (1.22)$$

avec  $C = \mathbf{6,9 \cdot 10^{-26} \text{ m}^2 / (\text{cm}^{-1})^{3/2}}$  le préfacteur, après substitution de l'affinité électronique obtenue par Lykke et al. à  $eA$ .

La valeur du préfacteur est identique à celle calculée à partir de l'expression 1.20 de Ohmura et Ohmura. On en déduit une valeur de la section efficace à 0,01 cm<sup>-1</sup> au-dessus

du seuil de  $6,9 \cdot 10^{-29} \text{ m}^2$ .

En 1976, Broad et Reinhardt [BR76] déterminèrent l'évolution de la section efficace sur un intervalle d'énergie étendu (de 0 à 70 eV au-dessus du seuil). Ils évaluèrent à quatre pour dix mille la capacité de leur théorie à prédire l'exposant associé à l'énergie de l'électron détaché donné par la loi de Wigner. Pour illustrer ce résultat, ils représentèrent leur courbe de section efficace absolue sur les premiers  $\text{cm}^{-1}$  au-dessus du seuil. À partir de cette courbe, on peut extraire le préfacteur :  $7 \cdot 10^{-26} \text{ m}^2 / (\text{cm}^{-1})^{3/2}$ .

En 1988, Du et Delos [DD88b], dans leur article dédié au calcul de la section efficace en champ électrique uniforme, retrouvent l'expression de Ohmura et Ohmura [OO60] et Armstrong [Arm63] en considérant la limite asymptotique, quand le champ tend vers 0, de leur formule. On en déduit un préfacteur de  $6,2 \cdot 10^{-26} \text{ m}^2 / (\text{cm}^{-1})^{3/2}$ .

**Démonstration expérimentale de la validité de la loi de Wigner** En 1988, Stewart et al. [SBH<sup>+</sup>88] démontrèrent, en étudiant le photodétachement du faisceau d'ions en sortie de l'accélérateur linéaire du LAMPF, que la loi de Wigner, pour le photodétachement de  $H^-$  vers le niveau fondamental de H, est valable jusqu'à une énergie de 46 meV (soient  $370 \text{ cm}^{-1}$ ) au-dessus du seuil. Ce résultat fut confirmé, en 1997, par Harms et al. [HZGM97], dans une expérience de photodétachement en piège de Penning. Ils déterminèrent que la loi de Wigner restait valable jusqu'à une énergie de  $400 \text{ cm}^{-1}$  au-dessus du seuil.

**Détermination expérimentale du préfacteur de la loi de Wigner** Popp et Kruse [PK76], en étudiant le rayonnement émis par un plasma d'hydrogène, déterminèrent de façon absolue la section efficace de photodétachement sur un intervalle relativement étendu (de 0,7 à  $1,7 \mu\text{m}$ , cf. figure 1.11 et sous-section 1.3.3.1). Certaines de leurs mesures se trouvant dans le domaine de validité de la loi de Wigner, il est possible de les ajuster pour en extraire les valeurs de l'affinité électronique et du préfacteur (cf. figure 1.11). La régression donne :  $6104(31) \text{ cm}^{-1}$  pour l'affinité électronique et  $2,71(59) \cdot 10^{-26} \text{ m}^2 / (\text{cm}^{-1})^{3/2}$  pour le préfacteur. On n'explique pas le désaccord entre la valeur du préfacteur mesurée et celles données par la théorie.

### 1.3.3.3 Comportement très loin du seuil : résonances

**Résonances de forme et résonances de Feshbach** Un aspect particulièrement important dans l'évolution de la section efficace de photodétachement est la présence de

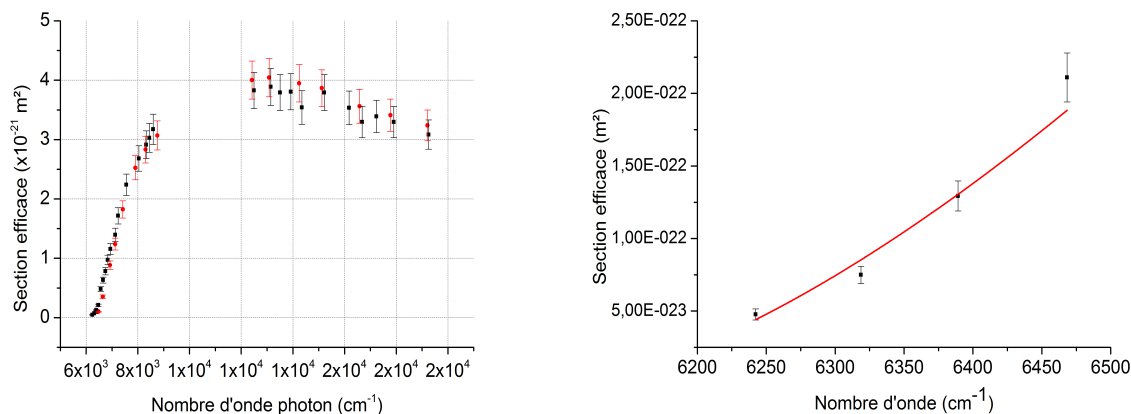


FIGURE 1.11 – À gauche, mesures absolues de la section efficace de Popp et Kruse [PK76]. L'absence de mesures dans l'intervalle  $8700\text{-}11100 \text{ cm}^{-1}$  s'explique par la présence de résonances dans le spectre d'émission du plasma d'hydrogène (séries de Paschen et Balmer). Les deux couleurs rouge et noire correspondent à deux séries de données pour lesquelles seule la température du plasma variait,  $8200 \text{ K}$  pour la courbe rouge et  $8500 \text{ K}$  pour la noire. À droite : zoom au voisinage du seuil de détachement. La courbe rouge est le résultat de l'ajustement des données expérimentales avec une loi de Wigner (voir texte pour les résultats quantitatifs).

résonances. Physiquement, une résonance correspond à un état dans lequel l'atome (ici l'hydrogène) et un électron se lient transitoirement. Elle se manifeste par un pic ou un creux (variations) dans le spectre de la section efficace dont la largeur est déterminée par la durée de vie de la liaison atome-électron (principe d'incertitude de Heisenberg). Il y a deux processus physiques principaux menant à la liaison passagère de l'électron à l'atome dans le cas du photodétachement à un électron.

D'une part, il y a les résonances de forme (shape resonance), elles s'interprètent par le passage de l'électron, par effet tunnel, au travers d'une barrière de potentiel (située à grande distance du centre attracteur) menant à son confinement, le temps de la résonance, dans une zone suffisamment attractive (entre cette barrière et le centre attracteur). L'électron se libère finalement du piège à nouveau par effet tunnel. Un exemple de résonance de forme, est le pic observé dans le spectre de section efficace juste au-dessus du seuil de détachement (cf. 1.3.3.1). Le maximum de la section efficace s'interprète simplement par le recouvrement optimal entre les fonctions de l'état lié et de l'état libre pour lequel l'électron est transitoirement confiné au voisinage de l'atome.

D'autre part, il y a les résonances de Feshbach. Elles ont lieu lorsqu'il y a transmission d'une partie de l'énergie de l'électron dans les degrés de liberté internes de l'atome menant à la liaison des deux fragments (atome + électron). Dans notre cas, une résonance de Feshbach correspond à la création temporaire d'un ion négatif doublement excité. Au bout

d'un certain temps, le cortège électronique se contracte et fournit une énergie suffisante à l'électron supplémentaire pour entraîner sa libération. Lors d'une collision atome-électron, il y a résonance de Feshbach lorsque l'énergie totale des deux fragments séparés coïncide avec l'énergie d'un état excité du système lié constitué des deux fragments. Ce type de résonance a une durée de vie beaucoup plus longue que la résonance de forme ce qui implique une extrême étroitesse et *a fortiori* une très grande amplitude du pic dans le profil de section efficace.

La principale distinction entre ces deux types de résonances est à trouver dans le comportement du cortège électronique de l'atome cible lors de la génération de la résonance. La résonance de forme peut exister grâce à une barrière engendrée par la somme d'un champ attractif et de la barrière centrifuge qui est donc essentiellement une propriété de l'atome non-perturbé. En effet, cette résonance est large, donc brève, lui conférant sa nature adiabatique (pas ou peu de déformations du cortège de l'atome cible durant le processus). En revanche, lors d'une résonance de Feshbach, la dynamique du système (ici atome + électron) et les corrélations électroniques jouent un rôle central.

**Photodetachement d'un électron unique** Bien qu'il n'existe aucun état simplement excité dans l'ion négatif d'hydrogène [Hil77b, Hil77a], il existe de très nombreux états doublement excités (résonances) autour des seuils  $n = 2$  à l'infini. Ho et Callaway en répertorient 150 rien que pour les seuils  $n = 3$  à 6 (il s'agit d'états doublement excités) [HC85]. La résonance de plus basse énergie associée à  $H^-$  correspond à l'état  $2s^2\ ^1S$ . Celle-ci s'avère donc inaccessible par excitation à un photon et en l'absence de champ électrique depuis le niveau fondamental  $1S^e$  de  $H^-$ . Les seules résonances accessibles, et donc visibles sur le spectre de section efficace de photodétachement, sont les résonances de symétrie  $1P^o$ . La première démonstration expérimentale de l'existence de la résonance  $2s^2\ ^1S$  susmentionnée fut celle de Schulz en 1964 [Sch64]. Il observait le signal en transmission d'un jet d'électrons passant au travers d'un gaz composé en partie de dihydrogène. Son système lui permettait de faire un tri en ne mesurant que les électrons non-diffusés. La présence d'une résonance dans le profil de section efficace induisait ainsi une modification de l'amplitude du signal d'électrons transmis. Son dispositif lui permit d'observer la résonance à 9,70(15) eV (un creux dans la section efficace) une fraction d'électron-volt sous le premier niveau excité ( $n = 2$ ,  $\sim 10,2$  eV) de l'atome d'hydrogène.

La présence de deux résonances (Feshbach et forme de symétrie  $1P^o$ ) au voisinage immédiat du seuil  $n = 2$  fut prédite dans les années 60 par Burke et Taylor [BT66] et



Macek [Mac67] respectivement. Lin [Lin75] calcula la forme des potentiels hypersphériques associés aux trois voies de photodétachement de  $H^-$  possibles et de symétrie  $^1P^o$  associés au niveau  $n = 2$ . Il vérifia l'existence, pour l'une des voies, d'une barrière de potentiel située à grande distance et semblant obstruer un puits attractif (insuffisamment profond pour permettre l'existence d'un état lié mais assez pour autoriser une résonance de forme juste au-dessus du seuil, cf. figure 1.12). De plus, il obtint, pour une seconde voie, un puits peu profond mais suffisamment large pour permettre l'existence d'un état lié associé à la résonance de Feshbach. Les deux résonances se situent de part et d'autre du seuil  $n = 2$ , Feshbach sous le seuil et forme au-dessus (cf. figure 1.12). La troisième voie est quant à elle purement répulsive interdisant l'existence d'une quelconque résonance.

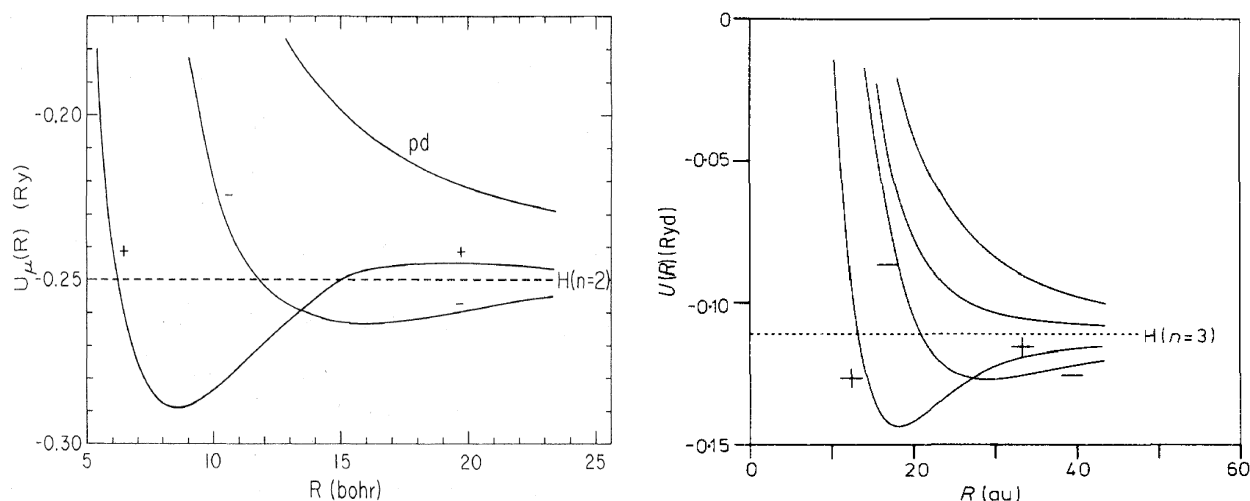


FIGURE 1.12 – À gauche, potentiels hypersphériques pour les voies  $^1P^o$  de photodétachement de  $H^-$  qui convergent vers le niveau  $n = 2$ . On remarque que la voie labélisée '-' présente un minimum sous le seuil  $n = 2$  qui donne naissance à une résonance de Feshbach. La voie labélisée '+', présente un minimum pour des petits  $R$  (racine carrée moyenne de la position des deux électrons). On aperçoit la présence d'un maximum autour de  $R = 19 a_0$ . L'électron en traversant cette barrière de potentiel, se retrouve confiné le temps de la résonance de forme, avant de se libérer à nouveau par effet tunnel. À droite, potentiels hypersphériques pour les voies  $^1P^o$  de photodétachement de  $H^-$  qui convergent vers le niveau  $n = 3$  [Gre80] (cf. texte).

En 1977, Bryant et al. [BDD+77] observèrent expérimentalement ces résonances (d'autres le firent avant eux, du moins concernant la résonance de forme, voir références 7 et 8 de l'article de Bryant et al.). Ils utilisèrent le faisceau d'ions relativistes de 800 MeV sortant de l'accélérateur du LAMPF. Leur expérience consistait à photodétacher un faisceau pulsé de  $H^-$  avec un laser à azote pulsé (longueur d'onde de 337,1 nm, soit 3,678 eV). Ils balayaient la longueur d'onde, par effet Doppler, en modifiant l'angle d'incidence du laser avec le faisceau d'ions (pour les détails de l'expérience, cf. [Fro81] et [BBC+81]). L'accord de leurs mesures avec la théorie de Broad et Reinhardt [BR76] était excellent, tant sur la

position des résonances que sur leur amplitude (du moins concernant la résonance de forme, cf. figure 1.13). La séparation énergétique entre la résonance de forme et de Feshbach fut évaluée à 53 meV en comparaison des 46 meV prévue par la théorie. De plus, l'expérience confirma les prédictions théoriques, de 15-28 meV, sur la largeur de la résonance de forme : 23(6) meV. En revanche, l'étrécissement de la résonance de Feshbach est telle que la résolution expérimentale de 10 meV ne suffit pas à en faire apparaître les détails. Une autre expérience également réalisée à Los Alamos permet de mesurer, avec beaucoup de précision, la position de la résonance de Feshbach depuis le niveau fondamental de  $H^-$  : 10,9264(6) eV (le niveau  $n = 2$  est à 10,9530 eV) [MBC+85].

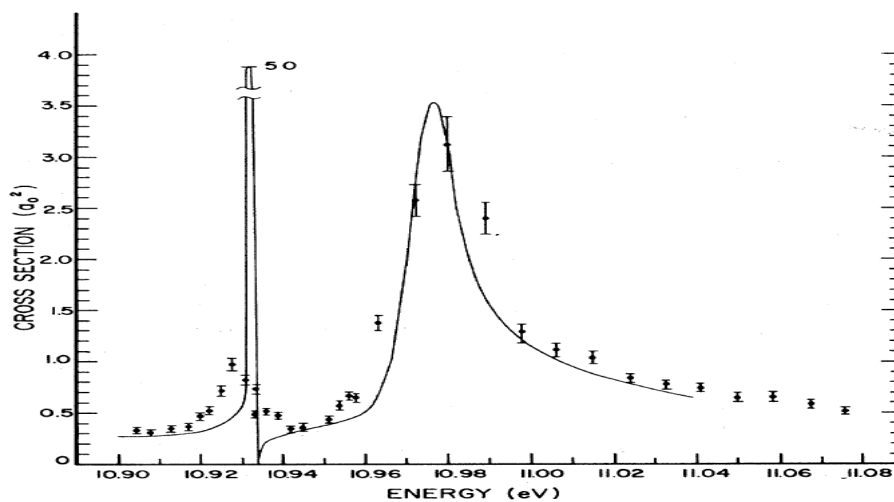


FIGURE 1.13 – Comparaison de la théorie de Broad et Reinhardt [BR76] (en trait plein) avec les mesures de Bryant *et al.* [BDD+77] (points avec barres d'erreur). On observe une résonance de Feshbach (la plus étroite) et résonance de forme dans la section efficace de photodétachement de  $H^-$  autour du niveau  $n = 2$  de  $H$ . L'accord entre théorie et expérience est excellent. La figure a été extraite de l'article [BDD+77].

Le comportement de la section efficace juste en deçà du niveau  $n = 3$  fut étudiée par Hamm *et al.* [HHD+79], avec le dispositif de Los Alamos. Ils observèrent les deux premières résonances de Feshbach (creux dans la section efficace) d'une même série à symétrie approximativement paire au regard de l'échange des coordonnées radiales des deux électrons (nombre quantique noté ' $+$ '). Qualitativement cela correspond à des états doublement excités pour lesquels les électrons se trouvent à une distance similaire du noyau. Ces observations confirmèrent les prédictions théoriques (réf. 10-12 de l'article [HHD+79]). En revanche, deux résonances de symétrie ' $-$ ' (états doublement excités dans lesquels un des électrons se situe près du noyau et l'autre très loin), également prédites par la théorie ne furent pas observées.

Un an après, Greene interpréta l'absence d'observation des résonances ' $-$ ' [Gre80]. Il

détermina les potentiels hypersphériques des voies menant à un niveau doublement excité sous le niveau  $n = 3$  (cf. figure 1.12). Il montra que le potentiel associé aux états de symétrie '+' confine les électrons plus près du noyau que ne le fait le potentiel '-'. Les fonctions d'onde des deux électrons dans les états '+' recouvrent en conséquence beaucoup mieux celle de l'état fondamental de H<sup>-</sup> que ne le font les états '-'. Par conséquent, la fréquence d'excitation vers les états '+' devrait être un à deux ordres de grandeurs plus grande que la fréquence d'excitation vers les états '-'. Les résonances de Feshbach des états '+' dominant *a priori*, ainsi que l'a démontré l'expérience à Los Alamos.

L'équipe de Los Alamos poursuivit ses études sur ce sujet et publia des résultats expérimentaux concernant les séries de résonances qui convergent vers les niveaux  $n = 5$  à  $n = 8$  [HBM<sup>+</sup>90]. On choisit de ne pas rentrer dans les détails car il s'agit essentiellement de la même problématique que précédemment.

**Photoéjection de deux électrons** On présente brièvement, dans ce paragraphe, le phénomène de photodétachement à deux électrons (pour les structures atomiques ou ioniques constituées de deux électrons seulement).

Wannier postula en 1953 [Wan53], qu'au voisinage du seuil, l'éjection simultanée de deux électrons ne peut se produire que dans le cas où les deux électrons se situent à même distance et aux antipodes du centre attracteur. Cette hypothèse reflète l'idée que si, durant le processus de double photoéjection, l'un des électrons ralentit l'autre, ce dernier serait capturé par le champ coulombien de l'ion. Il y aurait alors photodétachement d'un seul électron. À partir de là, il put déduire une loi de seuil pour  $Z = 1$  très similaire à la loi de Wigner :

$$\sigma(E) \propto (E - E_{th})^{1,1268}, \quad (1.23)$$

$E$  étant l'énergie du photon excitateur et  $E_{th}$  l'énergie du seuil.

Un fait remarquable est que, dans cette configuration singulière, chacun des électrons semble ignorer l'existence de l'autre et ainsi ne voir que le potentiel émis par le noyau (purement coulombien en  $1/r$ ). Le système se comporte alors approximativement comme deux atomes d'hydrogène imbriqués l'un dans l'autre. La conséquence est la quantification de l'énergie de chacun des deux électrons selon une série infinie (états de Rydberg) identique à celle de l'atome d'hydrogène. La section efficace sous le seuil devrait donc, selon ce modèle, présenter une série de résonances qui correspondent aux séries d'états de type Rydberg des

deux pseudo-atomes d'hydrogène.

La première démonstration expérimentale du double photodétachement fut réalisée à Los Alamos avec l'utilisation du faisceau d'ions relativistes de l'accélérateur du LAMPF. L'énergie nécessaire pour atteindre et balayer le seuil était colossale (région VUV du spectre électromagnétique, soient des énergies  $\sim 14,354$  eV) mais restait accessible avec le dispositif par l'utilisation congrue du décalage Doppler perçu par les ions. La détection des ions positifs et des neutres produits durant le processus leur permet de déduire l'évolution de la section efficace relative au voisinage du seuil à deux électrons. Leurs résultats furent en bonne adéquation avec les prédictions de Wannier, du moins concernant la section efficace au-dessus du seuil.

Des articles de revues très intéressants sont disponibles sur le sujet de cette sous-section. Il y a le très complet article de Buckman et Clark traitant exclusivement des résonances dans les ions négatifs atomiques [BC94]. Il y a celui de Rau, plus court et exposant uniquement les travaux sur l'ion négatif d'hydrogène [Rau96]. Et pour finir, il y a celui de Bryant publié en 2001, dans lequel il discute des expériences menées durant 23 ans sur l'ion  $H^-$  avec l'accélérateur linéaire de Los Alamos [Bry01].

### 1.3.4 Photodétachement de $H^-$ en présence d'un champ extérieur

Jusqu'à présent, nous avons considéré le photodétachement de l'ion  $H^-$  en l'absence d'interactions extérieures. Dans cette section, nous examinerons les conséquences de l'action de champs extérieurs d'origine électrique ou magnétique, sur la structure des ions négatifs, sur le photodétachement et la section efficace associée.

#### 1.3.4.1 Photodétachement en champ électrique

Il existe une infinité de configurations possibles pour un champ électrique. Nous nous restreindrons, en conséquence, au cas d'un champ électrique uniforme qui présente les aspects les plus fondamentaux du problème du photodétachement en champ électrique. Le microscope de photodétachement en constitue une importante application, notamment pour la mesure des affinités électroniques (cf. partie II).

**Champ électrique uniforme** Un champ électrique uniforme est à l'origine de plusieurs modifications de la section efficace de photodétachement par rapport au cas en l'absence de champ.

D'abord, la déformation du puits de potentiel attracteur qui lie l'électron supplémentaire à l'atome par le champ électrique extérieur autorise l'électron à s'échapper vers l'aval du champ, par effet tunnel, du puits qui le confine. Ceci est à l'origine, d'une part, de l'*abaissement du seuil* de photodétachement et d'autre part, d'une modification de la loi de seuil (la loi de Wigner ne s'applique plus). En-dessous du seuil, la section efficace est exponentiellement décroissante. Ensuite, contrairement au cas sans champ, la section efficace n'est pas nulle au seuil (celui en l'absence de champ) mais est proportionnelle à l'intensité du champ électrique appliqué.

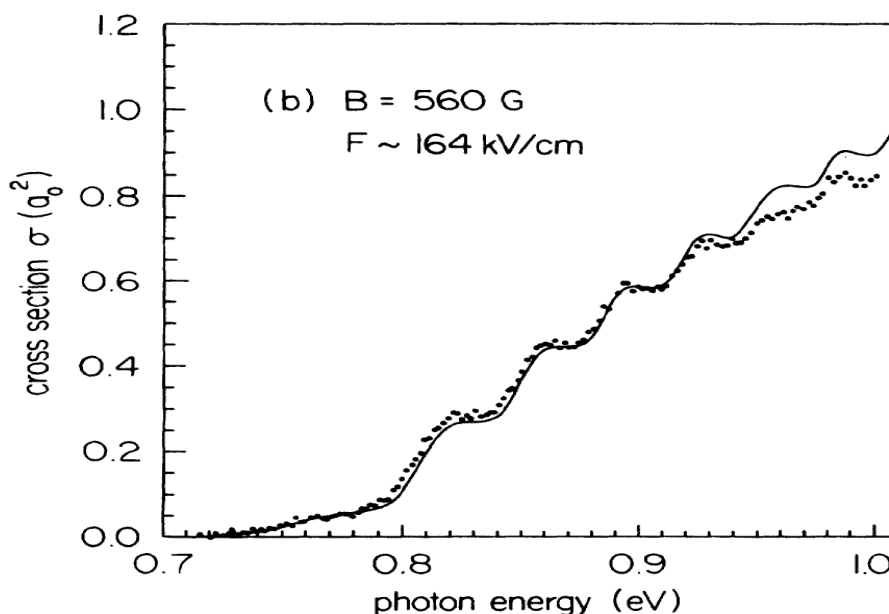


FIGURE 1.14 – Section efficace de photodétachement (en onde  $p$ ) au voisinage du seuil, en présence d'un champ électrique de 16,4 MV/m, en fonction de l'énergie des photons. On compare la courbe théorique calculée par Du et Delos [DD88b] avec les mesures expérimentales de Bryant *et al.* [BMS+87]. Le champ électrique est motionnel, d'où la présence d'un champ magnétique de 0,056 T. Le bon accord théorie (pas de champ magnétique) expérience est excellent. On observe clairement l'abaissement du seuil de photodétachement (l'affinité électronique de l'hydrogène vaut  $\sim 0,75 \text{ eV}$ ) et une structure oscillante.

Enfin, il y a apparition d'une structure oscillante dans la section efficace (cf. figure 1.14). L'origine de ce phénomène est à trouver dans l'interférence entre les différentes trajectoires empruntées par l'électron pour atteindre un même point de l'espace des configurations. Fabrikant [Fab80] est le premier à avoir interprété, en utilisant l'approche semi-classique (qui consiste à considérer que  $\hbar \rightarrow 0$ ) les oscillations comme un phénomène d'interférences.

Du et Delos [DD87, DD88a] démontrèrent que les trajectoires qui interfèrent sont celles, communément appelées orbites fermées, qui reviennent au point source (on détaille un peu plus la théorie des orbites fermées dans le chapitre 5, sous-section 5.2.3). Ces phénomènes sont d'autant plus manifestes que le champ électrique appliqué est intense.

La première expérience de photodétachement de  $H^-$  en champ électrique a été accomplie avec le faisceau d'ions relativistes du LAMPF [BMS+87, SBH+88]. Bryant *et al.* étudièrent les cas où le laser était polarisé parallèlement (polarisation  $\pi$ ) et perpendiculairement au champ électrique (polarisation  $\sigma$ ). Un champ magnétique dans le référentiel du laboratoire est en partie perçu, dans le référentiel d'un ion, comme un champ électrique motionnel. La transformation de Lorentz permet de connaître le lien entre les champs perçus dans le référentiel du laboratoire et ceux perçus par l'ion dans son référentiel barycentrique (quantités primées) :

$$\begin{aligned}\mathbf{F}'_{\perp} &= \gamma(\mathbf{F}_{\perp} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}), \\ \mathbf{F}'_{\parallel} &= \mathbf{F}_{\parallel}.\end{aligned}$$

où  $\mathbf{F}_{\parallel}$  et  $\mathbf{F}_{\perp}$  correspondent aux champs électriques parallèle et perpendiculaire à la direction de déplacement des ions dans le référentiel du laboratoire.

À partir de ces relations, on déduit qu'un champ magnétique situé, dans le référentiel du laboratoire, dans le plan laser-faisceau d'ions est perçu comme un champ électrique perpendiculaire à ce plan dans le référentiel barycentrique. Des systèmes d'électroaimants et d'aimants permanents permirent aux auteurs de générer les champs électriques voulus. En polarisation  $\sigma$ , l'intensité des champs pouvait atteindre 132 MV/m et en polarisation  $\pi$ , 16 MV/m.

Ces mesures firent apparaître des différences de comportement de la section efficace de photodétachement selon la polarisation laser employée. Alors que le seuil se déplaçait dans les deux cas (effet tunnel, déplacement d'autant plus grand que le champ électrique était intense), les oscillations de la section efficace n'étaient visibles qu'en polarisation  $\pi$ . En réalité, les oscillations, en polarisation  $\sigma$ , existent mais sont d'amplitudes beaucoup plus faibles. Du et Delos [DD89] expliquent que cette différence provient de la distribution angulaire de densité de probabilité de l'électron éjecté. Lors du photodétachement l'onde  $s$  initiale de l'électron est excitée dans le continuum en une onde  $p$ . La distribution angulaire de cette onde dépend de l'état de polarisation du photon exciteur. L'amplitude des

oscillations, conséquence des interférences entre l'état initial et l'état final, dépend du taux de recouvrement entre la fonction d'onde initiale et la partie de la fonction d'onde finale de l'électron éjecté réfléchi par le champ électrique. La figure 1.15 extraite de l'article en question permet de bien comprendre ce phénomène.

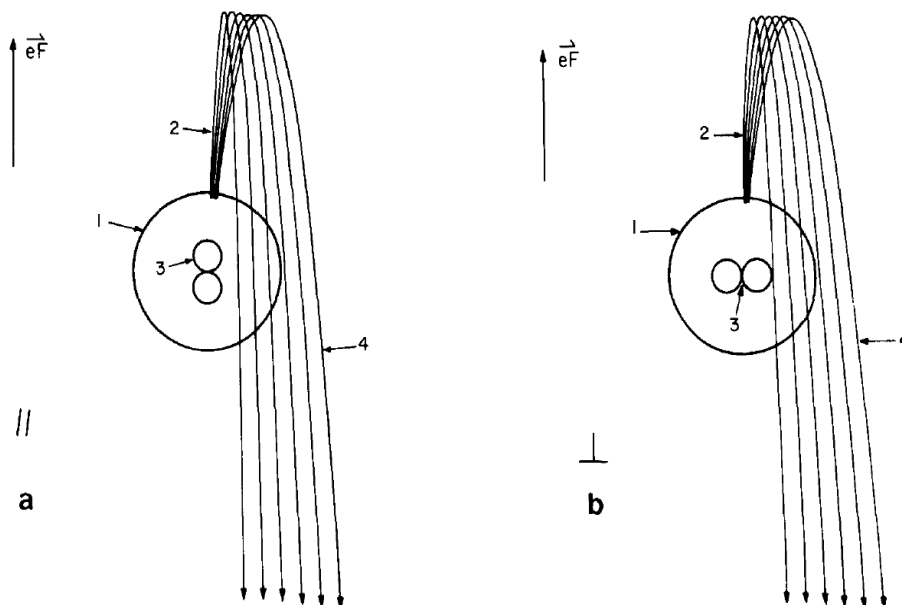


FIGURE 1.15 – Photodétachement, en champ électrique  $\mathbf{F}$ , d'un électron, initialement dans un état  $S$  (1). L'onde électronique  $p$  (3) remonte le champ (2) puis est réfléchi (4) et traverse la région de son état initial. L'interférence entre l'état initial et l'onde libre engendre des oscillations sur la section efficace. Lorsque le photon excitateur est polarisé parallèlement au champ électrique (schéma de gauche), la densité de probabilité de l'état final est forte sur l'axe parallèle au champ électrique passant par le centre de la zone d'émission de l'électron. L'onde réfléchi a donc une densité de probabilité forte sur l'axe, le recouvrement est donc fort et les oscillations de section efficace également. En revanche, en polarisation perpendiculaire, la densité de probabilité est faible sur l'axe, le recouvrement avec l'onde réfléchi est faible et les oscillations de section efficace aussi.

En 1988, Du et Delos [DD88b] dérivèrent une expression théorique de la section efficace en déterminant la densité de force d'oscillateur dont dépend la section efficace. Pour cela, ils firent des hypothèses similaires à celles de Ohmura et Ohmura [OO60] et Armstrong [Arm63] dans le cas du photodétachement en l'absence de champ extérieur (cf. sous-section 1.3.3.1), pour déterminer les fonctions d'onde des états initial et final. Selon ces hypothèses, l'état final est solution de l'équation de Schrödinger en champ électrique et stationnaire. Le résultat est une fonction proportionnelle à une fonction d'Airy qui dépend de l'énergie initiale de l'électron et de l'intensité du champ électrique (cf. partie II, chapitre 6, section 6.3). Dans la limite à champ électrique faible ou haute énergie de photons, Du et Delos obtinrent une expression de la section efficace (en unités atomiques) composée d'un terme indépendant du champ électrique (section efficace en l'absence de champ

électrique) et un terme sinusoïdal responsable des oscillations :

$$\sigma(\epsilon, F) = 0,05408 \frac{\epsilon^{3/2}}{(eA + \epsilon)^3} + 0,02868 \frac{F}{(eA + \epsilon)^3} \cos \left[ \frac{4\sqrt{2}}{3} \frac{\epsilon^{3/2}}{F} \right] a_0^2, \quad (1.24)$$

avec  $\epsilon$  l'énergie cinétique de l'électron détaché et  $F$  le champ électrique.

D'après cette expression, l'amplitude des oscillations est proportionnelle au champ électrique et décroît avec l'énergie du photon. La longueur d'onde des oscillations est quant à elle inversement proportionnelle du champ électrique. Plus le champ est intense, plus les oscillations sont visibles.

#### 1.3.4.2 Photodétachement en champ magnétique

Aucune expérience de photodétachement de H<sup>-</sup> en champ magnétique n'a été réalisée.

Blumberg *et al.* [BJL78, BIL79] réalisèrent les premières expériences de photodétachement en champ magnétique sur l'ion S<sup>-</sup>. Ils observèrent des oscillations dans le profil de section efficace de photodétachement qu'ils attribuèrent aux niveaux de Landau de l'électron éjecté se déplaçant dans un champ magnétique (cf. chapitre 5).





## CHAPITRE 2

---

# Dispositif expérimental

Dans ce chapitre, on décrit le dispositif expérimental (cf. figure 2.1) mis en place pour démontrer la faisabilité du photodétachement presque total d'un jet d'ions négatifs en cavité optique Fabry-Perot de finesse intermédiaire pour ITER.

Avant le montage de la cavité Fabry-Perot, ce dispositif a été utilisé pour mesurer la section efficace absolue de photodétachement de  $H^-$  à 1064 nm (cf. chapitre 3).

Ce montage sera également utilisé pour tenter de mettre en évidence les résonances de Landau qui doivent apparaître lors d'une expérience de photodétachement en champ magnétique (cf. chapitre 5). S'asservir sur l'une de ces résonances permettrait d'augmenter considérablement la probabilité de photodétachement à flux lumineux donné.

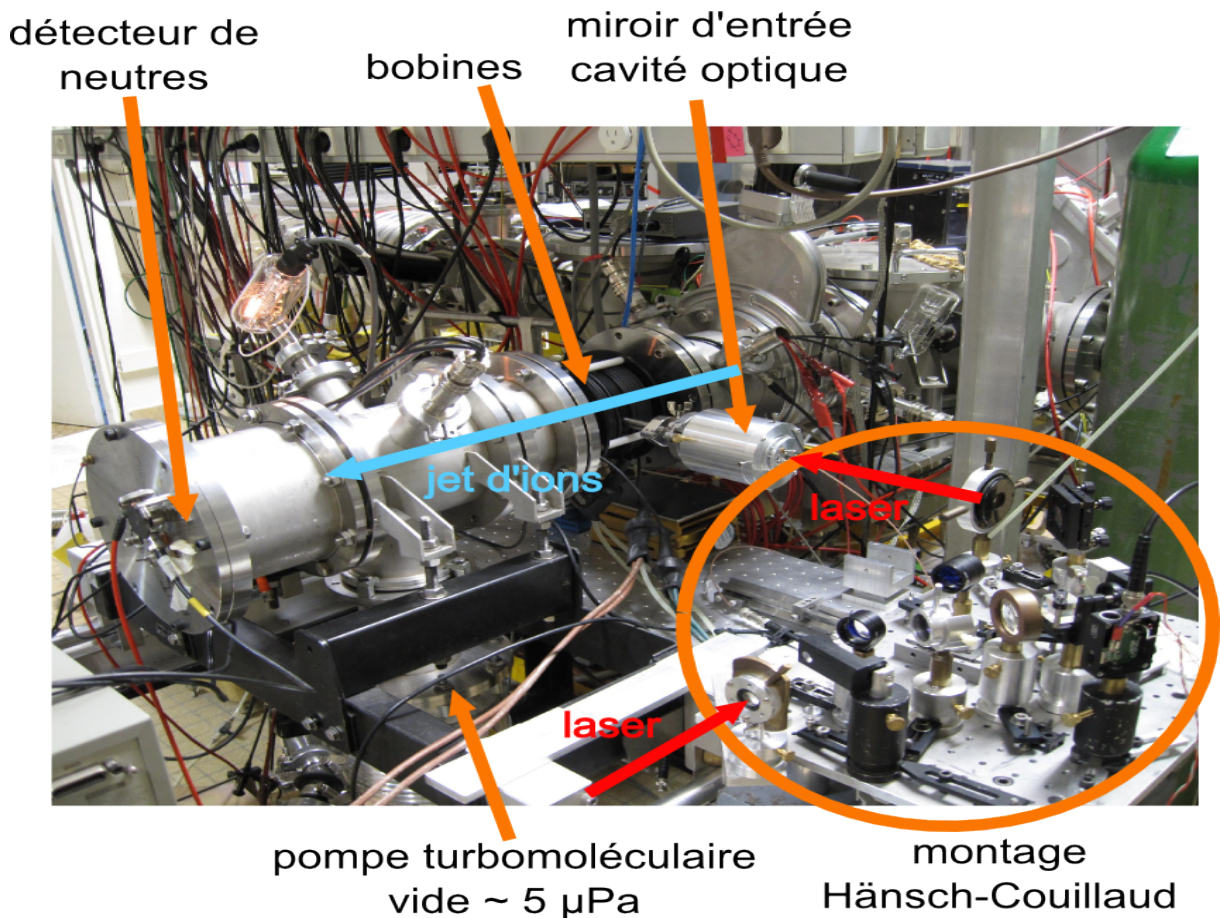


FIGURE 2.1 – Photographie du dispositif expérimental. On peut y voir le montage optique Hänsch-Couillaud pour l’asservissement de la cavité optique de finesse intermédiaire (cf. chapitre 4, section 4.2) et le système de bobines de champ magnétique (cf. chapitre 5, sous-section 5.5.2.1).

## 2.1 La source d’ions négatifs : SNICS II

La source SNICS II, installée depuis 2010 sur notre expérience, utilise une technologie basée sur la pulvérisation (sputtering, bombardement) de césium sur une cible solide. Le schéma de principe est donné sur la figure 2.2.

Le césium, placé dans une enceinte chauffée (oven), s’évapore dans la chambre à vide. Au contact d’un "ionizer" constitué d’une surface de tungstène chauffée à plus de  $1000 \text{ }^\circ\text{C}$ , le Cs neutre s’ionise. Le tungstène est choisi en raison de sa haute température de fusion et de sa tension de sortie élevée, de  $4,6 \text{ eV}$  (énergie à apporter pour arracher un électron du métal). D’après la loi de Saha-Langmuir, la probabilité d’ionisation au niveau d’une surface varie comme l’exponentielle de la différence entre le travail de sortie du métal adsorbant et l’énergie d’ionisation de l’élément à ioniser ( $3,9 \text{ eV}$  pour le césium, la plus petite du tableau

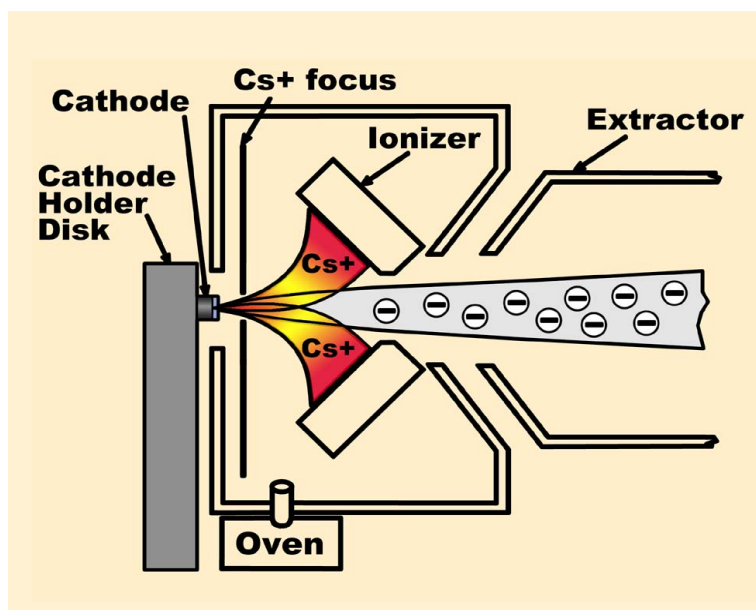


FIGURE 2.2 – Schéma de principe fourni par le constructeur (National Electrostatics Corporation, <http://www.pelletron.com/region.htm>) de la source d'ions SNICS II.

périodique, d'où le choix du Cs).

Les ions  $\text{Cs}^+$  sont ensuite accélérés vers une cathode (cible solide) polarisée négativement et contenant les éléments avec lesquels on veut produire des ions négatifs. En outre, une partie du césium neutre se condense sur la cathode activement refroidie. La fine couche ainsi formée est à l'origine d'une forte réduction du travail de sortie de la cible (le césium est l'élément le plus électropositif du tableau périodique, excepté le francium qui est radioactif). Autrement dit, la forte électropositivité du césium va favoriser les transferts d'électrons depuis les atomes de Cs vers les neutres atomiques ou moléculaires produits par sputtering (les ions positifs produits sont attirés par la cathode polarisée négativement) augmentant ainsi la probabilité de production d'ions négatifs.

Les ions négatifs formés sont extraits de la cathode à l'aide d'une électrode polarisée plus positivement (extractor). En sortie de source, les ions ont une énergie de plusieurs keV qui dépend des potentiels appliqués au niveau de la cathode et de l'extracteur (par rapport à l'enceinte du jet d'ions négatifs, cf. figure 2.3).

La source SNICS II présente deux avantages : le premier est de pouvoir produire des ions négatifs pour la quasi-totalité des éléments, le second est d'offrir la possibilité de changer de cible solide (cathode) en quelques minutes sans avoir à isoler le césium et à tout remettre à la pression atmosphérique.

Afin d'adapter la source au montage expérimental, un décélérateur et une lentille élec-

trostatique (de type Einzel) ont été ajoutés en sortie de source. Les ions sont ralentis à une énergie de 1,2 keV typiquement, ce qui provoque un étalement du jet d'ions (augmentation de l'émittance). La lentille de sortie permet de contrebalancer cet étalement dans les limites imposées par le théorème de Liouville. Les courants mesurés en sortie de source sont cependant plus faibles de plus de deux ordres de grandeur que ce qui est indiqué dans la documentation.

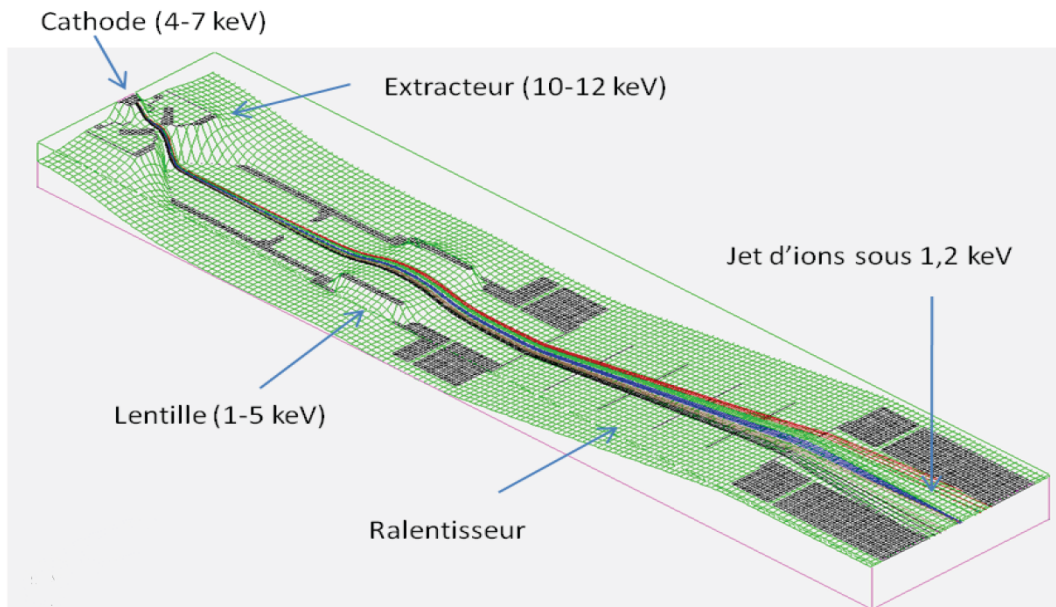


FIGURE 2.3 – Représentation en perspective des potentiels de notre source SNICS II (on donne les ordres de grandeur des potentiels utilisés). Les lignes correspondent aux trajectoires simulées (logiciel Simion [DDA90]) suivies par les ions depuis leur production au niveau de la cathode jusqu'à leur sortie de la source. On observe clairement l'étalement du jet après son passage dans le ralentisseur. La figure a été extraite du mémoire d'HDR de Cyril Drag [Dra10].

**Histoire de la conception et de la réalisation de la source d'ions négatifs à pulvérisation de césium** On en doit la découverte initiale à Krohn [Kro62] qui démontra que la présence d'une fine couche de césium sur la surface d'une cible solide, améliorerait considérablement la probabilité de production d'ions négatifs (des éléments contenus dans la cible) par bombardement avec du césium.

En 1969, Mueller et Hortig [MH69] mirent au point une source d'ions de faible émittance basée sur les travaux de Krohn. L'idée était de produire des ions positifs de krypton issus de collisions avec des électrons générés avec un filament chauffé (duoplasmatron), et de les accélérer pour bombarder la cible solide (sur laquelle était déposée une fine couche de césium).

Au début des années 1970, Middleton et Adams [MA74] eurent l'idée de remplacer le duoplasmatron par un "ionizer" constitué d'une surface métallique chauffée. Au contact de cette surface, des alcalins injectés dans la chambre à vide étaient ionisés positivement puis accélérés pour bombarder la cible solide. Ils démontrèrent que cette source était capable de produire efficacement la quasi-totalité des ions négatifs atomiques.

Par la suite, Middleton [Mid83], mais aussi Alton [Alt94] poursuivirent le développement de la source. Middleton mena une étude empirique systématique qui lui permit de déterminer la composition des cibles utilisables pour former les ions négatifs de la quasi-totalité des éléments du tableau périodique. L'ensemble des observations et résultats est publié dans son "cookbook" [Mid89], ouvrage indispensable à tout expérimentateur utilisant une source à pulvérisation de césium.

## 2.2 Le jet d'ions négatifs

Une fois sorti de la source, le jet d'ions négatifs doit être piloté jusqu'à la zone d'interaction. Pour cela, on utilise quelques éléments d'optique électrostatique :

- des plaques défléctrices, c'est-à-dire des condensateurs, qui permettent lorsqu'elles sont polarisées (plus ou moins quelques dizaines de volts) de défléchir le jet d'ions de sa trajectoire,
- deux types de lentilles électrostatiques pour jouer sur la divergence du jet. Il y a, d'une part, des lentilles de type Einzel qui, du fait de leur symétrie cylindrique focalisent le jet d'ions de la même façon dans toutes les directions. D'autre part, des lentilles quadripolaires qui ajoutent un degré de liberté en autorisant la focalisation du jet d'ions selon l'une ou l'autre des deux directions orthogonales (astigmatisme) et permettent de corriger son ellipticité.
- Un filtre de Wien qui, par application d'un système de champs électrique et magnétique croisés, permet de sélectionner en vitesse (et donc en masse) les ions du jet.
- Un virage quadripolaire qui, en déviant le jet d'ions d'un angle droit, le purifie des neutres produits par collision durant la propagation.

Ce dernier élément permet de piloter le jet d'ions soit vers la partie historique de l'expérience où se situe le microscope de photodétachement, soit vers la partie nouvellement construite pour réaliser le photodétachement presque total d'ions négatifs d'hydrogène en

cavité Fabry-Perot de finesse intermédiaire.

Après le passage d'une des zones d'interaction, les ions sont finalement envoyés vers une coupe de Faraday pour en mesurer le courant en bout de course.

## 2.3 Les lasers

### 2.3.1 Le laser continu Titane : Saphir

Ce laser Ti:Sa commercial (MBR-110, Coherent®) pompé par un laser Verdi-V10 (Coherent®,  $\text{Nd}^{3+}$   $\text{YVO}_4$  doublé, 532 nm) de 10 W, accordable sur une large bande spectrale (700 à 1000 nm) émet un faisceau, de  $\sim 1$  W, polarisé rectilignement (horizontal) dans le mode fondamental gaussien ( $\text{TEM}_{00}$ ). Sa largeur spectrale ne dépasse pas 75 kHz. Le schéma général de la cavité est donné sur la figure 2.4.

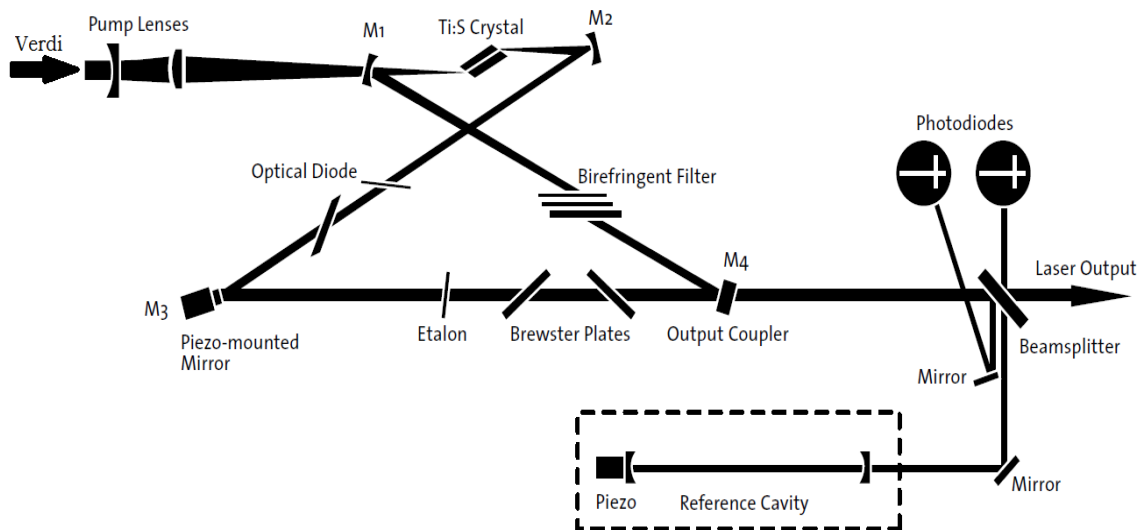


FIGURE 2.4 – Schéma optique du laser Ti:Sa MBR-110 fourni par le constructeur <http://www.coherent.com/products/?846/MBR-Ring-Series>.

Le laser vert de pompe (Verdi) est focalisé, à l'aide d'un système de deux lentilles, sur le milieu amplificateur (barreau de Ti:Sa) situé intracavité. Outre le milieu amplificateur, d'autres éléments optiques ont été placés à l'intérieur de la cavité. On y trouve :

- quatre miroirs, dont un coupleur de sortie ( $M_4$ , plan) et un miroir relié à une cale piézoélectrique ( $M_3$ , plan) qui sert à modifier la longueur de la cavité. Les deux autres miroirs  $M_1$  et  $M_2$  ont un rayon de courbure de 10 cm et sont très réfléchissants sur une large gamme de longueurs d'onde.

- Des éléments de filtrage spectral dont un filtre biréfringent de Lyot (filtrage grossier) et un étalon Fabry-Perot (filtrage fin). Ce dernier est relié à un galvanomètre qui permet, par rotation de l'étalon sur l'axe vertical, de rester sur un mode de la cavité. Les modes peuvent, en effet, se déplacer en raison des dérives thermiques par exemple.
- Des lames à incidence de Brewster qui, par leur rotation autour de l'axe vertical, permettent de modifier la longueur optique de la cavité. Si la longueur optique augmente (diminue), l'intervalle spectral libre diminue (augmente), il y a décalage des fréquences de résonance de cavité vers les basses (hautes) fréquences. Le décalage relatif de fréquence est toujours égal (au signe près) au décalage relatif de longueur de la cavité. Pour rester à résonance, l'étalon tourne simultanément pour verrouiller le mode sur lequel on se trouvait avant rotation des lames. De cette manière, il est possible de balayer la fréquence du laser.
- Une diode optique (rotateur de Faraday plus une lame à retard) qui, en brisant la symétrie aller/retour, permet au laser de ne résonner que dans un seul sens, en l'occurrence, dans le sens  $M_1, M_2, M_3, M_4 \dots$

L'ensemble des éléments intracavité est disposé à incidence brewsterienne pour rendre la polarisation rectiligne, de cette manière les photons sont tous identiques.

Le système possède aussi une cavité de référence (interféromètre confocal) thermostatée en invar (dilatation thermique très faible). Il est possible, en utilisant la cale piézoélectrique placée à l'arrière du miroir  $M_3$ , de verrouiller l'onde en sortie du Ti:Sa sur une résonance de la cavité de référence. De cette manière, on fixe la longueur d'onde émise par le Ti:Sa. La cale piézoélectrique située dans la cavité de référence, permet de régler la position des résonances (de la cavité de référence) de manière à choisir finement la longueur d'onde émise par le Ti:Sa.

Durant nos expériences, nous ne nous sommes pas servis de ce système car nous mesurons en continu la longueur d'onde qui était somme toute très stable sans asservissement.

### 2.3.2 Le laser pulsé Nd:YAG

Ce laser pulsé, dont la particularité est de pouvoir émettre des impulsions monomodes de durée modulable, a été conçu et construit au laboratoire Aimé-Cotton par Louis Cabaret et Cyril Drag [CD07].

Il s'agit d'un laser Nd:YAG émettant une onde polarisée rectilignement dans l'infrarouge (à 1064 nm). Il fonctionne dans un régime dit Q-switché. Ce régime est obtenu en



introduisant, dans la cavité, un atténuateur variable appelé commutateur-Q ou Q-switch, constitué dans notre cas d'une lame  $\lambda/4$  (et pas  $\lambda/2$  car l'onde réalise des aller-retours dans la cavité) et d'une cellule de Pockels (juxtaposition de deux cristaux biaxes de Rubidium Titanyl Phosphate RTP), de façon à pouvoir contrôler le facteur de qualité  $Q$  en rendant la cellule plus ou moins opaque. L'atténuateur est d'abord placé dans un état empêchant à la lumière de réaliser des aller-retours (petit facteur de qualité) et donc empêchant le laser d'émettre. Pendant ce temps, le milieu amplificateur est pompé jusqu'à atteindre la saturation. L'atténuateur est ensuite très rapidement rendu transparent, permettant à la lumière de circuler et de s'amplifier par émission stimulée produisant en sortie une impulsion très énergétique et relativement brève. Le processus est ensuite répété. Dans notre cas, le laser produit des impulsions d'une trentaine de millijoules (5 mJ plus amplification dans un barreau de Nd:YAG extracavité pompé par une lampe flash), longues d'une quarantaine de nanosecondes et avec un taux de répétition de 20-22 Hz. Cela correspond à des puissances crêtes de 0,75 mégawatt.

Sélectionner un mode d'un laser impulsionnel est plus ardu que dans le cas continu en raison du peu de temps dont on dispose pour réguler la compétition entre les modes (cf. [Sie86], chapitre 26, pp. 1034-1038). Une fois l'atténuateur rendu transparent, les ondes émises par le milieu amplificateur et satisfaisant un bon couplage avec la cavité laser se mettent à osciller. La grande quantité d'énergie disponible permet l'amplification quasi-équivalente de plusieurs modes, ce qui rend l'onde laser multimode. On peut penser qu'en raison de la différence de pertes perçues par chacun des modes (pertes plus grandes à certaines fréquences qu'à d'autres), l'un d'entre-eux, après des aller-retours successifs, finit par dominer les autres. Or, l'impulsion n'est générée que durant quelques dizaines d'aller-retours dans la cavité ce qui ne laisse pas beaucoup de temps pour discriminer le mode dominant. Il faut donc fortement privilégier l'un des modes par rapport aux autres.

Dans le cas d'un laser continu, on utilise généralement des filtres fréquentiels de type Lyot et des étalons Fabry-Perot de manière à accroître les pertes pour l'ensemble des modes à l'exception d'un seul. En régime pulsé, cette opération est plus délicate à réaliser en raison de la difficulté à garder un bon couplage durant la génération de l'impulsion (à cause par exemple des variations d'indices dues aux effets thermiques). Une manière plus sûre pour rendre le laser monomode est de donner à un des modes un avantage permanent en réalisant l'injection d'une onde laser déjà monomode (souvent issue d'un autre système laser) et d'asservir le laser injecté sur l'un des modes de la cavité pulsée, situé dans la bande de gain du milieu amplificateur (du laser pulsé). Dans notre cas, le laser injecté est

un laser continu monomode Nd:YVO<sub>4</sub>. Un système d'asservissement permet de verrouiller un mode de la cavité pulsée sur le laser injecté. De cette manière, lorsque la cavité est Q-switchée (atténuateur rendu transparent), c'est l'onde issue du laser Nd:YVO<sub>4</sub> qui est amplifiée donnant ainsi naissance à une impulsion monomode. Le spectre de l'impulsion n'est limité que par sa transformée de Fourier.

### 2.3.3 Mesure de la longueur d'onde

#### 2.3.3.1 Le lambdamètre

Pour mesurer la longueur d'onde du laser continu Ti:Sa, on utilise un lambdamètre (HighFinesse<sup>TM</sup> WS-U) qui compare les systèmes d'interférences produits par cinq interféromètres de Fizeau identiques avec celui d'un interféromètre de Fizeau plus large. Cette méthode permet d'atteindre une très haute précision absolue de 30 MHz (à  $3\sigma$ ). Le lambdamètre couvre un large domaine spectral, de 350 à 1100 nm.

#### 2.3.3.2 Calibration du lambdamètre

Pour calibrer le lambdamètre, nous utilisons comme source de référence une diode calée en fréquence grâce à un montage d'absorption saturée (cf. figure 2.5).

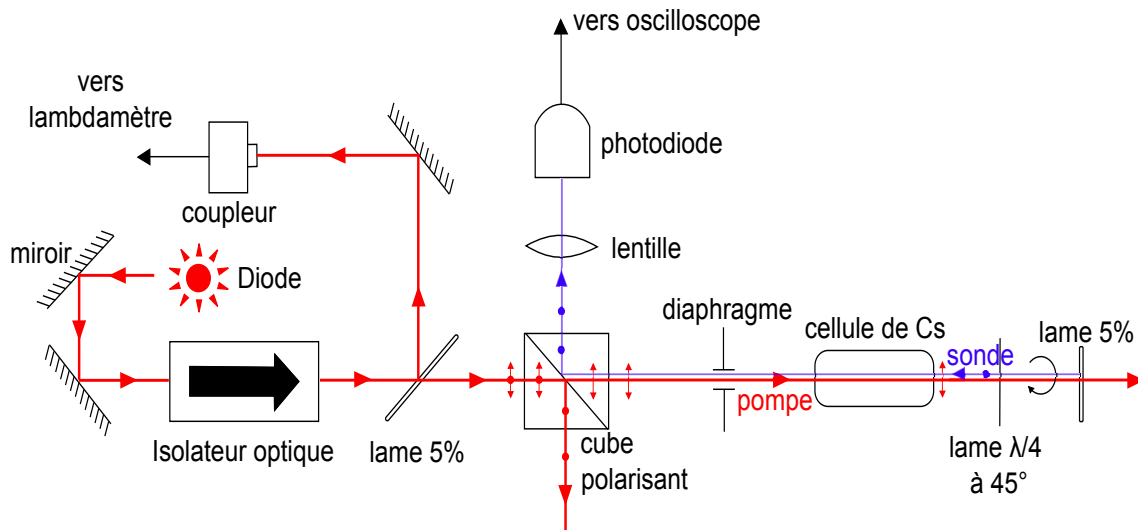


FIGURE 2.5 – Schéma optique du montage d'absorption saturée pour la calibration du lambdamètre. Les faisceaux pompes et sondes ont été volontairement décalés l'un de l'autre pour plus de visibilité.

Une diode génère un faisceau infrarouge qui est envoyé dans une cellule contenant de la

vapeur de césium. En traversant la vapeur, s'il y a résonance, l'interaction du faisceau laser *pompe* avec les atomes de césium va les faire transiter vers un niveau excité. Le milieu étant gazeux, la longueur d'onde perçue varie d'un atome à l'autre (effet Doppler). Les atomes qui entrent en résonance sont ceux dont la composante de vitesse parallèle au faisceau laser, compense, par effet Doppler, le décalage en fréquence.

Le faisceau pompe (5 % de la puissance), réfléchi par une lame de verre, est renvoyé sur lui-même et passe, une fraction de nanoseconde plus tard, à nouveau dans la cellule de vapeur de césium (faisceau *sonde*). Les atomes excités par ce faisceau de retour sont ceux dont la vitesse longitudinale compense un éventuel désaccord Doppler. Mais le changement de sens du laser modifie le signe de la composante de vitesse pertinente de sorte que ce ne sera qu'à vitesse nulle que les atomes excités à l'aller et au retour seront les mêmes. Si le faisceau aller est saturant, la vapeur devient transparente au faisceau retour à la fréquence de résonance non affectée d'effet Doppler et à cette fréquence seulement (à la largeur naturelle près)<sup>1</sup>.

L'intensité en transmission de la cellule de vapeur de césium du faisceau sonde est mesurée par une photodiode pour visualisation sur un oscilloscope. Si la fréquence de la diode est modulée, on observe une succession de résonances dont chacune correspond à un maximum local de transmission.

Nous nous sommes placés sur une résonance hyperfine D2 du césium ( $6^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{3/2}$ ) à 852,34727582(27) nm de 30,32(5) ns de durée de vie [AG03]. Elle sert de référence pour notre lambda-mètre.

## 2.4 La chambre d'interaction

### 2.4.1 Géométrie de la chambre d'interaction

La chambre d'interaction dans laquelle le faisceau laser intersecte le jet d'ions est constituée de deux tubes en inox 304L (amagnétique) de 10 mm de diamètre. Les longueurs totales des tubes dans lesquels passent le jet d'ions et le laser sont respectivement de 138 et 257 mm (cf. figure 2.6).

À chaque extrémité du bras dans lequel passe le faisceau laser, on a ajouté une pièce

---

1. Un autre occasion de voir le milieu devenir transparent à la longueur d'onde d'émission de la diode est lorsque l'énergie des photons émis par la diode se situe exactement à mi-distance entre deux transitions (crossing-over).

de 7,6 mm de long supportant un hublot. Avec ces pièces, la distance  $L$  que parcourt le faisceau laser dans la croix mesure 409 mm.

La zone d'interaction (zone de recouvrement du jet d'ions et du faisceau laser) potentielle correspond au volume accessible à la fois par le jet d'ions et par le laser. Il s'agit approximativement d'un cube de 10 mm de côté (volume de  $1 \text{ cm}^3$ , cf. figure 2.6)).

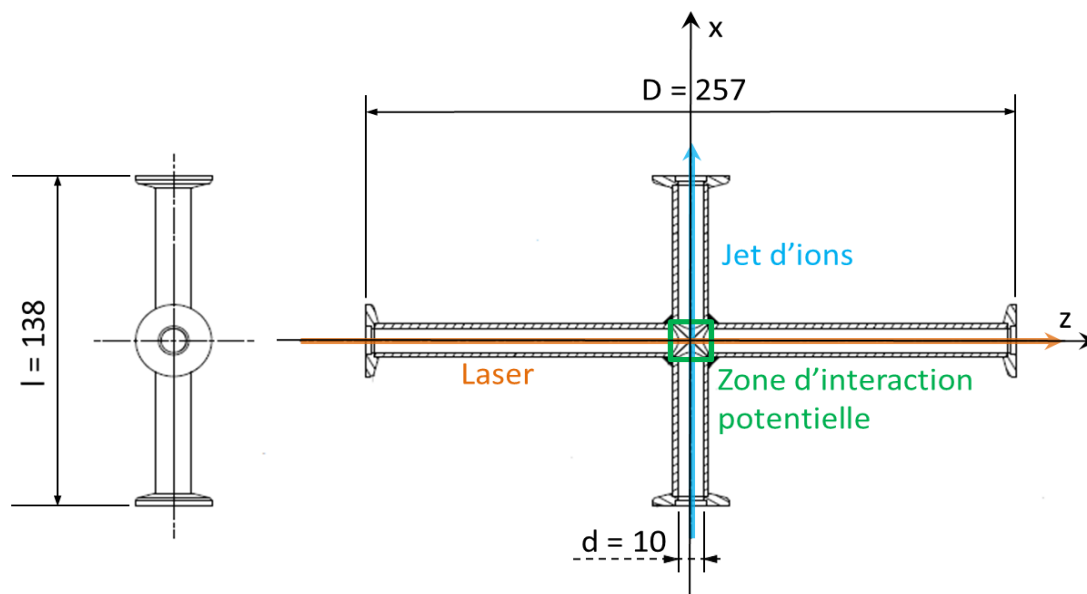


FIGURE 2.6 – Dessin de la chambre d'interaction. Elle est constituée de deux tubes en inox 304L (asténitique donc amagnétique) formant une croix. Les cotes sont données en millimètres sur la figure.

### 2.4.2 Les sources d'élargissement expérimentales

Plusieurs facteurs peuvent entraîner une baisse de résolution énergétique lors d'une expérience de photodétachement. L'objectif de la section est de déterminer les *ordres de grandeur* du flou engendré par ces facteurs.

**Élargissement Doppler et temps de transit** L'écart à l'orthogonalité entre le laser et le jet d'ions lors de leur interaction engendre un décalage, par effet Doppler, de l'énergie des photons perçue par les ions. Ce phénomène, couplé à la divergence du laser et à la distribution en vitesses des ions, génère un flou.

Soient  $(R)$  le référentiel lié au laboratoire et  $(R')$  le référentiel lié au jet d'ions, on choisit leur orientation de telle sorte que leurs axes  $Ox$  et  $Ox'$  soient parallèles l'un à

l'autre. (R') étant lié au jet, il est en translation uniforme par rapport à (R) à la vitesse  $\vec{v}_{ions}$  (dirigée selon  $Ox$ , cf. figure 2.7). L'axe  $Oz$  ( $Oz'$ ) selon lequel se propage le faisceau laser sera assimilé à l'horizontale dans le cas du photodétachement de  $H^-$  (partie I, et à la verticale dans le cas de la microscopie de photodétachement, partie II).

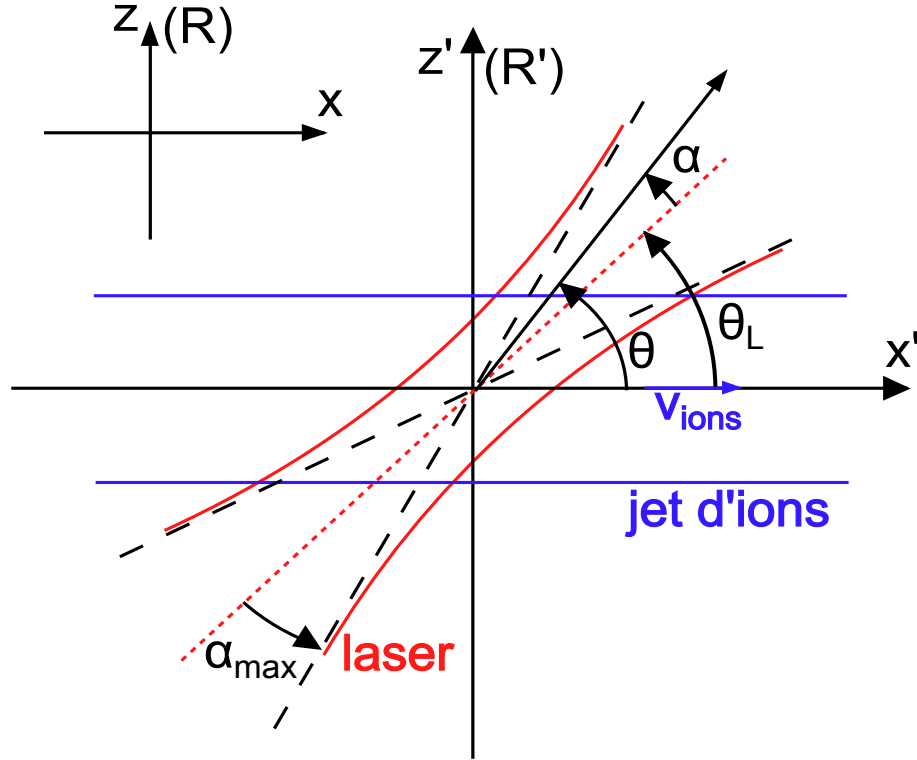


FIGURE 2.7 – Schéma de l'intersection du jet d'ions avec un faisceau laser gaussien.  $\theta_L$  est l'angle entre le jet d'ions et l'axe de symétrie du laser. La divergence du faisceau laser est donnée par l'angle  $\alpha_{max}$ . Ces angles ont été exagérés pour plus de clarté.

Les effets relativistes peuvent ici être complètement négligés. L'expression donnant l'énergie des photons perçue par les ions en fonction de l'énergie dans le référentiel du laboratoire est :

$$E_{ions} = E_{lab}(1 - \beta_{ion}\cos\theta), \quad (2.1)$$

où  $E_{lab}$  est l'énergie d'un photon dans le référentiel du laboratoire et  $E_{ions}$  l'énergie du même photon dans le référentiel des ions et  $\beta_{ions} = \frac{v_{ions}}{c}$ .

D'après la figure 2.7, l'angle  $\theta$  entre l'axe des  $x$  et le vecteur d'onde du photon d'énergie  $E_{ions}$  peut s'exprimer en fonction de  $\alpha$  selon la relation :

$$\theta = \theta_L + \alpha. \quad (2.2)$$

$\theta_L$  est l'angle entre le jet d'ions et l'axe de symétrie du laser. Étant donné la configuration de notre expérience (cf. sous-section 2.4.1),  $\theta_L$  ne peut s'écarter de l'angle droit de plus d'un angle de  $\arctan\left(\frac{d}{L}\right) \simeq 1,4^\circ$ .

Dans notre expérience, l'intersection laser/jet est quasi orthogonale, de plus l'angle d'ouverture du laser est relativement faible. On peut donc considérer l'approximation des petits angles et écrire au premier ordre la dispersion (demi-largeur à  $\frac{1}{e^2}$ ) en énergie  $\Delta E_{ions}$  en fonction de  $\alpha_{max}$  :

$$\Delta E_{ions} = E_{lab}\beta_{ions}\alpha_{max}. \quad (2.3)$$

La divergence d'un faisceau gaussien s'écrit dans l'approximation des petits angles :  $\alpha_{max} \approx \frac{\lambda}{\pi w_0}$ , avec  $\lambda$  la longueur d'onde et  $w_0$  son waist. On peut réexprimer l'équation 2.3 en fonction de ces paramètres :

$$\Delta E_{ions} = \frac{v_{ions}\lambda}{\pi c w_0} E_{lab}, \quad (2.4)$$

ou en nombre d'onde :

$$\Delta\sigma_{ions} = \frac{v_{ions}}{\pi c w_0}. \quad (2.5)$$

On trace sur la figure 2.8 l'évolution de la dispersion  $\Delta E_{ions}$  en fonction du waist du laser dans le cas d'un jet d'ions d'oxygène se déplaçant à 120 km/s (énergie cinétique de 1200 eV) que l'on photodétache juste au-dessus du seuil  ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^3P_2$  à 848,54 nm.

Pour un waist de 500  $\mu\text{m}$ , la dispersion en énergie due à la divergence du laser est donc de 0,0026  $\text{cm}^{-1}$  (soit 2,6  $\text{mk}^2$ ).

L'élargissement Doppler trouve son origine dans la dispersion angulaire des vecteurs d'onde de l'onde laser, causée par la finitude de son extension spatiale (diffraction). La distribution des vecteurs d'onde  $k_x$  dans la direction du jet d'ions est donnée par la transformée de Fourier de la distribution d'amplitude (gaussienne) :

$$\text{TF}\left[e^{-\frac{x^2}{w_0^2}}\right] \propto e^{-\frac{w_0^2 k_x^2}{4}}. \quad (2.6)$$

La distribution d'intensité le long de l'échelle des vecteurs d'ondes est donc proportionnelle

---

2. 1  $\text{mk} = 10^{-3} \text{cm}^{-1}$

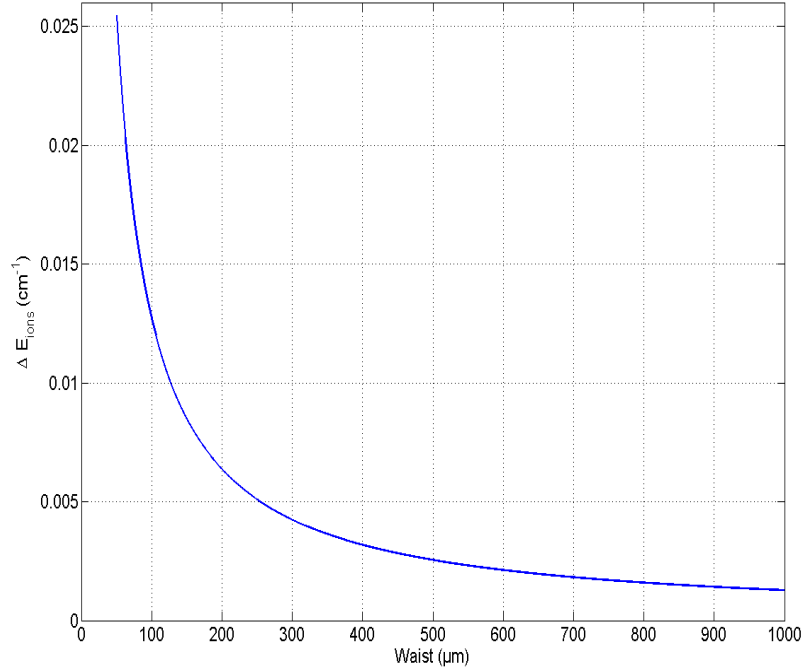


FIGURE 2.8 – Évolution de la dispersion énergétique  $\Delta E_{ions}$  (en  $\text{cm}^{-1}$ ) due à la divergence du faisceau laser (effet Doppler) en fonction du waist  $w_0$  du faisceau laser au niveau de la zone d'interaction (en  $\mu\text{m}$ ).

au facteur  $e^{-\frac{w_0^2 k_x^2}{2}}$ .

La dispersion Doppler du vecteur d'onde  $\delta k_{ions} = \delta(k'_x - k_x)$  où  $k'_x$  est le vecteur d'onde  $k_x$  vu dans le référentiel des ions, est liée à la vitesse  $v_{ions}$  des ions par la formule Doppler habituelle (cf. equation 2.1, avec  $\theta = 0$ ). L'élargissement est donné, en nombre d'onde, par :

$$\delta\sigma_{ions} = \frac{\delta k_x v_{ions}}{2\pi c} = \frac{v_{ions}}{\pi c w_0}. \quad (2.7)$$

$\delta k_x$  est la demi-largeur à  $\frac{1}{e^2}$  (le waist) de la distribution d'intensité. On retrouve l'équation 2.5 obtenue à partir de la géométrie du faisceau diffracté.

Cet élargissement peut aussi être considéré comme étant dû au temps de transit fini des ions dans le faisceau laser.

L'amplitude de l'onde laser perçue par les ions est, en raison de leur mouvement, proportionnelle à  $e^{-\frac{v_{ions}^2 t^2}{w_0^2}}$ . Le carré de la transformée de Fourier de cette distribution temporelle d'amplitude donne accès à la forme de la distribution de la densité spectrale de puissance :

$$\text{TF}\left[e^{-\frac{v_{ions}^2 t^2}{w_0^2}}\right]^2 \propto e^{-\frac{w_0^2 \omega^2}{2v_{ions}^2}}. \quad (2.8)$$

$\omega$  est la pulsation de l'onde laser.

La mi-largeur (le waist) de cette distribution correspond à l'élargissement énergétique (nombre d'onde) :

$$\delta\sigma_{ions} = \frac{v_{ions}}{\pi c w_0}. \quad (2.9)$$

À nouveau, on retrouve l'équation 2.5.

L'élargissement spectral par réduction du waist peut donc s'interpréter comme de l'élargissement Doppler (cf. supra) ou comme de l'élargissement par temps de transit (les deux étant liés par la diffraction) [BDG01].

**Élargissement Doppler dû à la dispersion en vitesse des ions** Le fait que le jet d'ions ne soit pas parfaitement collimaté et monocinétique est également à l'origine d'une perte de résolution énergétique. Supposons que le faisceau laser intersecte orthogonalement le jet d'ions (angle  $\theta$  nul). Soit  $\psi$  la divergence (écart à la collimation) du jet d'ions, le décalage Doppler s'écrit (cf. équation 2.1) :

$$E_{ions} = E_{lab} \left(1 + \frac{v_{ions} \sin \psi}{c}\right). \quad (2.10)$$

Si maintenant on tient compte du caractère polycinétique du jet d'ions, l'élargissement Doppler s'écrit :

$$\Delta E_{ions} = E_{lab} \frac{(v_{ions} + \Delta v_{ions}) \sin \psi}{c}. \quad (2.11)$$

Le calcul donne pour une divergence de 1 mrad et pour une dispersion en vitesse de 1 % (qui est négligeable car correspond à 1 % de l'élargissement total, ici 0,047 mk par mrad de divergence dans l'approximation des petits angles) un élargissement de  $0,0047 \text{ cm}^{-1}$  (soit 4,7 mk). Nous avons intérêt à limiter au maximum la divergence du jet d'ions. Pour le calcul, on a pris une vitesse de 120 km/s (vitesse d'un ion  $\text{O}^-$  de 1,2 keV d'énergie cinétique).



**Largeur spectrale du laser** La largeur spectrale du laser peut jouer évidemment un rôle premier dans la perte de résolution énergétique. Le laser continu monomode Ti:Sa (MBR 110) que l'on utilise, possède un spectre relativement fin  $< 100$  kHz ( $3 \cdot 10^{-6}$  cm<sup>-1</sup>). La comparaison avec les autres sources d'élargissement (élargissement Doppler) montre que l'élargissement spectral du laser est complètement négligeable.

Il faut également considérer les dérives fréquentielles lentes, dues notamment aux changements de températures de la salle d'expérience. Typiquement, ces dérives sont de 20 MHz/h pour notre système (estimation *in situ*). Une mesure qui s'étale sur quelques minutes connaît une dérive maximale de la fréquence de quelques MHz. La perte de résolution due à ce phénomène est donc également négligeable (0,33 mk pour une déviation de 10 MHz).

## 2.5 La chaîne de détection

### 2.5.1 Détection des ions négatifs

Pour mesurer le courant d'ions, plusieurs coupes (ou cavités) de Faraday sont disposées sur le trajet du jet. Le courant est mesuré à l'aide d'un picoampèremètre (soit avec le modèle analogique Keithley 4171, soit avec le numérique 6485). La gamme de mesure de ces appareils est large de quelques dizaines de fA à plusieurs dizaines de mA.

Le modèle numérique 6485 (résolution 10 fA) peut être piloté par ordinateur. Il a été interfacé sous LabView<sup>®</sup> dans un objectif d'automatisation, pour l'étude du photodétachement en champ magnétique (résonances de Landau, cf. chapitre 5).

### 2.5.2 Mesure de la puissance ou de l'énergie des faisceaux lasers

#### 2.5.2.1 En régime continu : le puissancemètre

Notre puissancemètre (Coherent<sup>®</sup> PowerMax-USB LM-3) est sensible sur une large bande spectrale allant de l'UV (250 nm) à l'infrarouge lointain (10,6  $\mu$ m). Il peut mesurer des puissances allant de 10 mW à 3 W avec une incertitude de 3 % (calibration constructeur plus écart à la linéarité en fonction de la puissance). Il supporte un flux de 6 kW/cm<sup>2</sup> (pour un watt de puissance, la surface du faisceau laser ne doit pas être sous 0,017 mm<sup>2</sup> soit 73,6  $\mu$ m de rayon pour un faisceau circulaire).

### 2.5.2.2 En régime pulsé : les joulemètres

Les deux joulemètres utilisés font partie de la série Pulsar construite par Ophir. Le joulemètre basse énergie (modèle PE10-C) est sensible sur une gamme énergétique très large, allant du  $\mu\text{J}$  à plusieurs dizaines de mJ. Il mesure l'énergie des impulsions avec une bonne précision (3 %, calibration NIST). Il ne tient pas bien au flux, son seuil de dommage se situe à  $1 \text{ mJ/mm}^2$  pour une impulsion d'une durée de moins de 100 ns. Sa réponse est linéaire avec l'énergie à 1,5 % près.

Le joulemètre haute énergie (modèle PE50BF-DIF-C) est composé d'un cristal pyro-électrique qui se polarise proportionnellement à la chaleur qu'il emmagasine générant une différence de potentiel aux bornes d'un condensateur placé en parallèle. La différence de potentiel est numérisée et peut être enregistrée informatiquement. Ce joulemètre est capable de séparer les impulsions jusqu'à une cadence de 250 Hz et est sensible sur une gamme énergétique allant de  $200 \mu\text{J}$  à 10 J. Son seuil de dommage est assez élevé et se situe à  $40 \text{ mJ/mm}^2$  (pour une impulsion  $< 100 \text{ ns}$  de durée). Sa précision est bonne, 3 %, au dessus de 0,5 mJ mais descend à 4-6 % pour des énergies plus basses.

Ces deux joulemètres acceptent un déclenchement externe. Celui-ci nous a permis de mesurer et d'enregistrer tir-à-tir l'énergie des impulsions.

### 2.5.3 Détection des neutres

Pour détecter les neutres, on utilise un multiplicateur d'électrons à dynodes (Hamamatsu, modèle R5150-10), originellement conçu pour détecter des photons et des particules chargées, que l'on place en face de la zone d'interaction ( $\sim 50 \text{ cm}$  plus loin). Cet appareil, dont l'ouverture est un disque de 8 mm de diamètre, est constitué de 17 dynodes de Cu-BeO connectées les unes aux autres par des résistances de 1 à 3 M $\Omega$  formant un pont diviseur de tension (cf. figure 2.9). Il n'est opérationnel que dans un environnement basse pression  $< 133.10^{-4} \text{ Pa}$ . Il permet une forte amplification du signal d'entrée, de quelques  $5.10^6$  lorsqu'il est polarisé à 2 kV (maximum 3,5 kV), tout en offrant un faible bruit parasite (0,02 coups/s à 2 kV). Sa réponse est rapide avec un temps caractéristique de 1,7 ns.

Nous avons eu quelques difficultés à détecter nos premiers neutres. Après plusieurs essais, nous nous sommes rendu compte qu'il existe un seuil de détection en tension ( $\sim 2 \text{ kV}$ ) contrairement à ce qui est indiqué dans la documentation (ce que peut expliquer le fait que le détecteur a été conçu pour la détection de photons et de particules chargées).

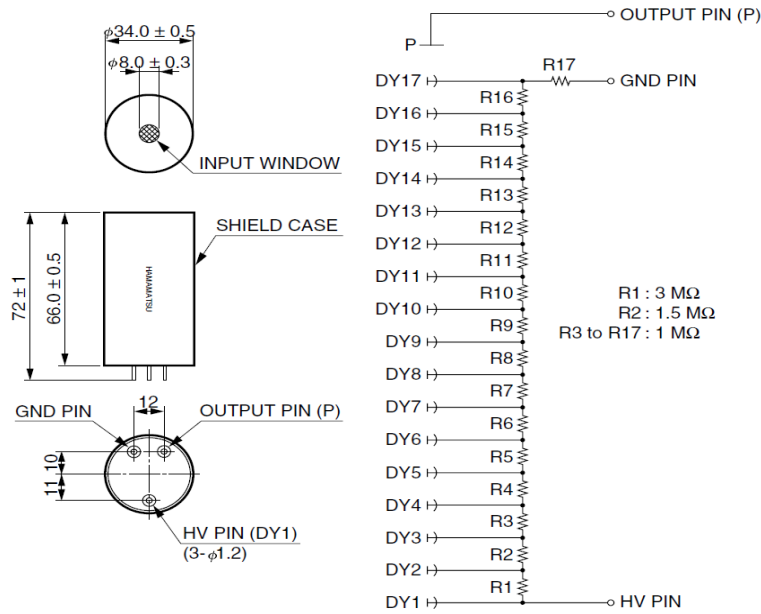


FIGURE 2.9 – Schéma électrique du multiplicateur d'électrons. Les 17 dynodes sont connectées par un pont diviseur de tension. Dans nos expériences, il importe de ne détecter que les neutres. Pour éviter la détection d'ions négatifs ou d'électrons produits par détachement collisionnel au sein du jet, nous polarisons négativement l'électrode d'entrée du détecteur (HV pin) à environ -2,2 kV de manière à les repousser. Ce potentiel est effectivement supérieur en valeur absolue au potentiel d'accélération auquel sont soumis les ions au niveau de la source (1,2 ou 2 kV). Le signal d'électrons (produit par l'impact initial du neutre) est ensuite extrait au niveau de l'anode (OUTPUT pin) puis envoyé dans un préamplificateur.

Pour apercevoir un signal dont l'amplitude est de quelques mV seulement (inférieure à la valeur donnée dans la documentation) et d'une durée de quelques ns, il nous faut polariser l'électrode HV à moins de -2,2 kV (cf. figure 2.9).

Ces quelques mV d'amplitude ne sont cependant pas suffisants pour que le signal ressorte suffisamment du bruit. Nous avons donc placé, en aval du détecteur, un préamplificateur (gain de  $10^2$ ) fabriqué spécialement par le service électronique du laboratoire. Ainsi, le signal typique mesuré dans les mêmes conditions a une durée de quelques ns et une amplitude de quelques centaines de mV (cf. figure 2.10).

### 2.5.3.1 Compteur de neutres

**En régime continu** Le signal mesuré par le détecteur de neutres (cf. supra) peut être envoyé vers un compteur de photons (Stanford Research Systems modèle SR400) de large bande passante (continu à 300 MHz).

Il accepte un déclenchement externe (impédance d'entrée de 10 k $\Omega$ ) avec une largeur

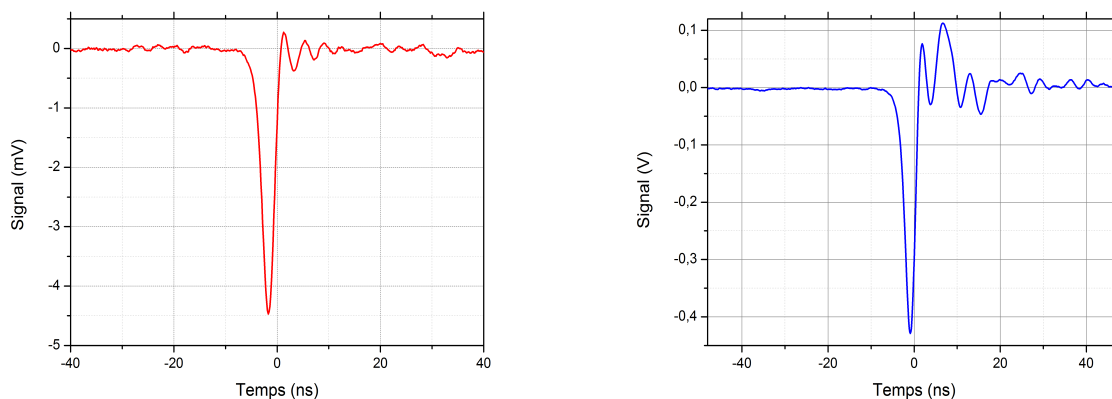


FIGURE 2.10 – À gauche : signal mesuré en sortie du détecteur lors de l’impact d’un neutre. À droite : signal correspondant mesuré en sortie du préamplificateur. Son amplitude  $-420$  mV – est bien 100 fois supérieure à celle du signal mesuré en sortie de détecteur. L’adaptation d’impédance n’est pas parfaite, ce qui explique les oscillations après l’impulsion principale. Le préamplificateur accentue cet effet.

minimale de 10 ns. Le seuil peut être ajusté entre  $-2$  et  $2$  V, avec une résolution de 1 mV. L’amplitude minimale acceptée est de 0,1 V. En mode externe, la fréquence maximale du déclenchement est de 1 MHz ( $1 \mu\text{s}$ ). Il possède un déclenchement interne de fréquence 10 MHz fixe.

Le compteur possède deux entrées (impédances d’entrée de  $50 \Omega$ ) pour les signaux à mesurer. À chacune de ces entrées est associé un discriminateur indépendant pouvant être fixé entre  $-300$  et  $300$  mV (front montant ou descendant), avec une résolution de 0,2 mV. L’amplitude minimale mesurable pour une impulsion est de 10 mV. Sa résolution temporelle est de 5 ns (intervalle minimal entre deux impulsions pour les distinguer). La gigue sur le délai et la position des portes s’élève à seulement 200 ps.

Il est possible de générer, pour chacune des deux entrées, une porte permettant de sélectionner l’intervalle temporel des mesures. Le délai minimal entre le déclenchement (trigger) et la génération de la porte est de 25 ns. Un délai additionnel de 0 ns à 999,2 ms peut être programmé avec une résolution de 1 ns. La largeur de la porte est ajustable entre une durée de 5 ns et 999,2 ns, avec une résolution de 1 ns.

Ce compteur est pilotable par ordinateur (connexion RS-232). Il a été interfacé sous LabView<sup>®</sup> dans un objectif d’automatisation pour l’étude du photodétachement en champ magnétique (résonances de Landau, cf. chapitre 5).

**En régime impulsionnel** Les neutres produits lors d'une impulsion laser sont mesurés dans un intervalle de temps égal à celui de l'impulsion laser. La résolution temporelle du détecteur n'est pas suffisante pour observer indépendamment chaque impulsion élémentaire. Il est donc nécessaire de moyenner le signal de neutres.

Pour ce faire, on utilise soit un oscilloscope (*Agilent Technologies* DSO3024A, 200 MHz) soit un intégrateur à porte "boxcar". Le boxcar nous permet, en l'associant à un numériseur de tension USB-6008 (National Instruments<sup>TM</sup>), de mesurer le signal de neutres impulsion par impulsion.

Ces deux méthodes ont été employées dans l'expérience portant sur la mesure de la section efficace de photodétachement de  $H^-$  à 1064 nm (cf. sections 3.3.5.2 et 3.3.5.3 du chapitre 3).

Comme expérience test de notre système de détection, nous avons mesuré, en régime d'éclairement impulsionnel, le seuil de détachement  ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^3P_2$  de  $O^-$ . Chaque point correspond à la moyenne du signal de neutres sur 200 impulsions (cf. figure 2.11). Cette mesure démontre l'aptitude de notre multiplicateur d'électrons à détecter des neutres.

### 2.5.3.2 Spectrométrie de masse par temps de vol

Après le passage d'une impulsion laser au sein du jet d'ions, les neutres produits par photodétachement doivent parcourir la distance séparant la zone d'interaction du détecteur de neutres. La vitesse varie, pour une énergie cinétique donnée, en fonction de la masse de l'atome considéré (les ions de notre jet ont tous la même énergie cinétique). Ainsi, il est possible de réaliser de la spectrométrie de masse par temps de vol.

Sur la figure 2.12, on donne un exemple de spectre de masse d'un jet d'oxygène  ${}^{16}O$  et de cuivre de 1,2 keV d'énergie cinétique. La longueur d'onde du laser est de 775 nm (photons d'énergie 1,6 eV, impulsion de 4 mJ et  $\sim 30$  ns de durée). La distance séparant la zone d'interaction du détecteur est de 45,5 cm. Les temps de vol mesurés, 3,81, 7,53 et 7,65  $\mu s$ , correspondent respectivement à  ${}^{16}O$  et aux deux isotopes naturels du cuivre  ${}^{63}Cu$  et  ${}^{65}Cu$ . Les amplitudes des pics observés sont en accord avec la composition d'un échantillon naturel de cuivre (69,17 % de l'isotope 63 et 30,83 % de l'isotope 65, premier et deuxième pic respectivement).

L'utilisation de cette méthode avec un filtre de masse permet de connaître la composition du jet d'ions en sortie de filtre (du moins, pour les éléments dont l'affinité électronique ne dépasse pas l'énergie des photons).

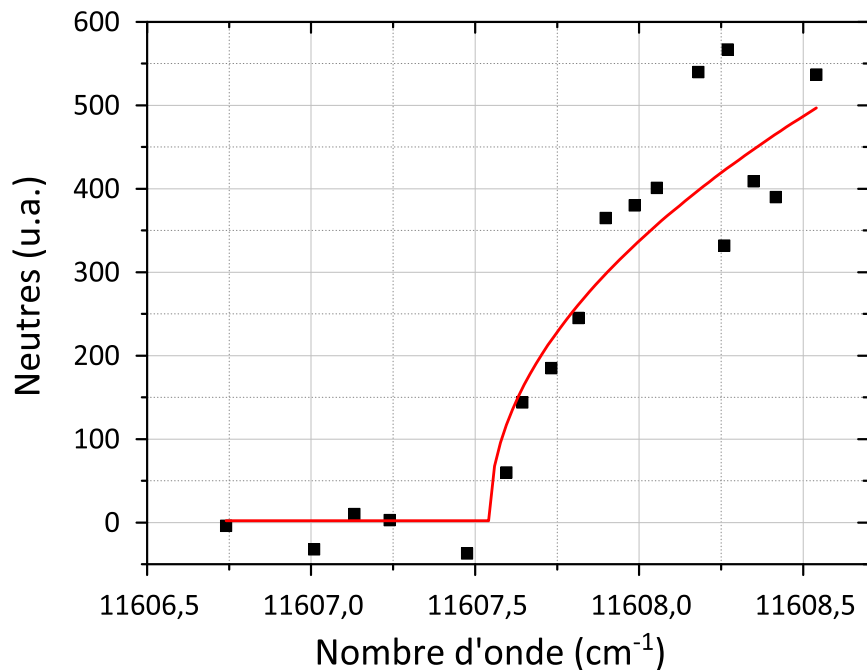


FIGURE 2.11 – Mesure (carrés noirs), en régime d’éclairage impulsif, du seuil de détachement  ${}^2P_{1/2} \rightarrow {}^3P_2$  de  $O^-$  avec notre multiplicateur d’électrons (Hamamatsu, modèle R5150-10). La courbe rouge est le résultat de l’ajustement des points expérimentaux avec une loi de Wigner (onde  $s$ ). On trouve une affinité électronique de  $11607,59(5) \text{ cm}^{-1}$  à comparer à la mesure de Blondel *et al.* de  $11607,596(18)$  [BDV<sup>+</sup>01].

#### 2.5.4 Détecteur bidimensionnel à phosphore

Le détecteur bidimensionnel à phosphore (Beam Imaging Solutions<sup>TM</sup> BOS-25) est un assemblage de deux galettes de microcanaux (MCP, gain supérieur à  $10^7$ ) et d’un écran de phosphore (aluminisé P-43 pour augmenter l’intensité perçue, émission maximale de l’écran à 545 nm) dont le diamètre actif atteint 25 mm. Le détecteur doit fonctionner sous un vide meilleur que  $10^{-6}$  torr.

Pour ne pas endommager l’appareil, le courant ne doit pas dépasser  $3,2 \text{ nA/mm}^2$ . Cette limite est du même ordre de grandeur que les courants présents au niveau de la zone d’interaction de notre expérience. Le détecteur peut aussi être utilisé pour détecter les neutres.

Les potentiels à appliquer sont typiquement de 2 kV au travers des MCP et +2 kV supplémentaires (+4 kV) au niveau de l’écran de phosphore.

On peut voir, sur la figure 2.13, le portrait de notre jet d’ions négatifs, en l’occurrence

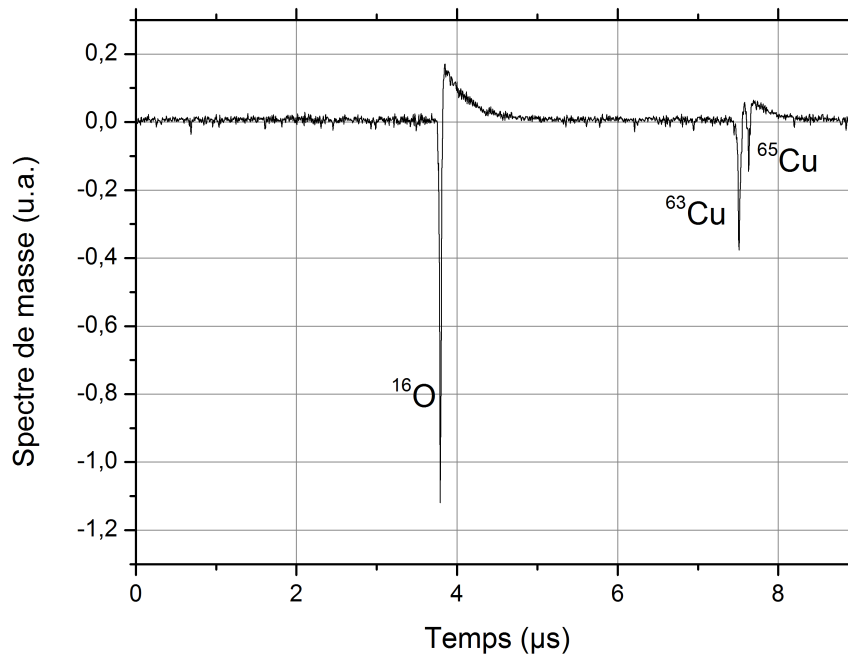


FIGURE 2.12 – Spectre de masse d’un jet d’ions d’énergie cinétique de 1,2 keV produit avec une cathode d’oxygène (composition  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). La longueur d’onde du laser est de 775 nm (1,6 eV). La présence du cuivre vient du fait que le bombardement de la cible d’ $\text{Al}_2\text{O}_3$  par les ions  $\text{Cs}^+$  est décentré (cf. section 2.1). La cathode étant constituée de cuivre, il y a production d’ions  $\text{Cu}^-$ . L’absence d’atome d’aluminium s’explique sans doute par une faible section efficace de photodétachement à 1,6 eV (affinité électronique de  $\text{Al}^-$  de 0,433 eV). Une expérience ultérieure avec une longueur d’onde plus grande a permis de mettre en évidence la présence d’ions  $\text{Al}^-$ ,  $\text{AlO}^-$  et  $\text{Al}_2^-$ . L’adaptation d’impédance imparfaite lors de la mesure explique la présence de rebonds après chaque pic.

un jet d’ $\text{O}^-$ , après son passage dans la croix (cf. sous-section 2.4.1).

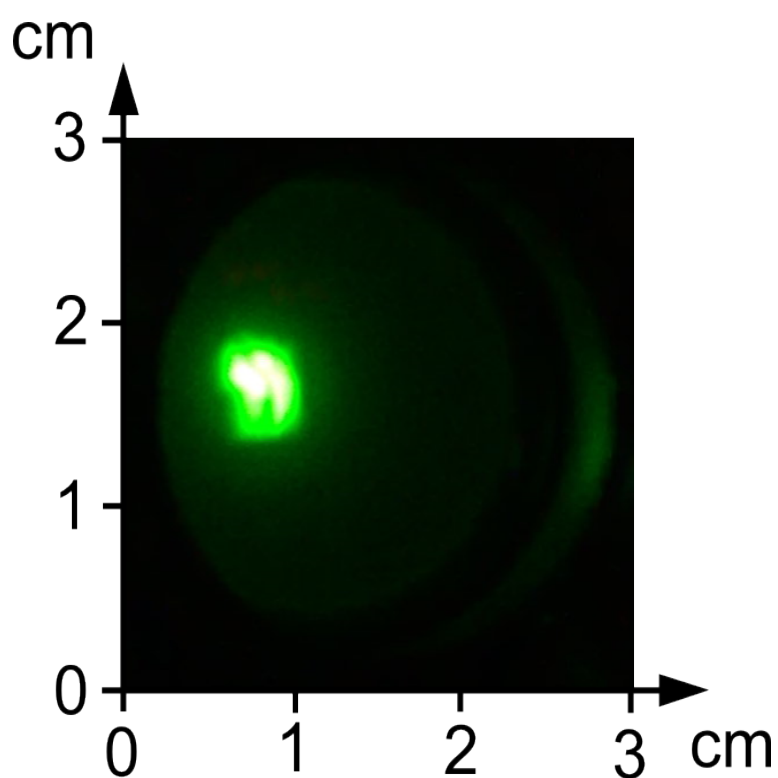


FIGURE 2.13 – Photographie de l'écran de phosphore sur lequel on distingue une tache représentant notre jet d'ions négatifs d'oxygène après son passage dans la croix.





## CHAPITRE 3

---

# Mesure de la section efficace absolue de photodétachement de $\text{H}^-$ à 1064 nm

### 3.1 Mesure d'une section efficace absolue : la méthode de la saturation

#### 3.1.1 Principe général

La section efficace d'un processus d'interaction est, en régime linéaire, la quantité homogène à une surface et indépendante des conditions expérimentales, définie comme le quotient de la probabilité d'interaction par le flux de particules incidentes (en l'occurrence le flux de photons, cf. sous-section 1.2, chapitre 1).

La méthode de la saturation permet de mesurer une section efficace absolue d'un processus d'interaction lumière-matière. Elle consiste à observer l'évolution du nombre d'événements (le nombre de neutres produits dans le cas du photodétachement, par exemple) en fonction du flux de la source de lumière. Quand le flux devient suffisamment fort, le processus sature.

Habituellement, pour mesurer une section efficace absolue, on doit calibrer l'efficacité de détection et le nombre d'ions éclairés pour connaître l'effet d'un flux lumineux donné. La saturation, en montrant à quel flux on commence à converger vers une probabilité de

photodétachement de 1, permet de s'affranchir de cette calibration.

Historiquement, la méthode fut utilisée pour la première fois par Hall *et al.* [HRB65]. Ils saturèrent le photodétachement de l'ion  $H^-$  avec un laser à rubis ( $\lambda = 684,3$  nm) pulsé. Les auteurs n'apportèrent pas de précision quant au résultat numérique de la section efficace obtenue, mais indiquèrent qu'il était en accord avec celui de Geltman [Gel62]. La méthode fut ensuite adaptée, et parfois redécouverte indépendamment comme c'est le cas pour la photoionisation [AFLP76, HSZ77], pour la mesure de la section efficace (voire de la section efficace généralisée) d'une grande variété de processus (détachement multiphotonique, photoionisation etc.).

### 3.1.2 La méthode de la saturation dans la littérature

**Saturation du photodétachement d'ions négatifs** Dans leur expérience, Hotop et Lineberger [HL73] firent s'intersecter un laser à colorant pulsé avec un jet constitué d'ions  $Au^-$ ,  $Ag^-$ ,  $Pt^-$  et/ou  $PtN^-$ . Ils mirent en œuvre la méthode de saturation partielle du photodétachement des ions  $Ag^-$  et  $Pt^-$  (à  $16900$   $cm^{-1}$ ) utilisée quelque temps plus tôt par Hall *et al.* sur  $H^-$ . À partir de la valeur de la section efficace de  $Ag^-$  à  $16900$   $cm^{-1}$  et d'un modèle qu'ils élaborèrent (cf. sous-section 3.2.1), ils purent déduire la valeur de la section efficace de  $Pt^{*-1}$  (à  $16900$   $cm^{-1}$ ) en comparant la courbe de saturation de cet ion avec celle de  $Ag^-$ . Cette technique qui consiste à comparer les courbes de saturation de deux éléments dont la section efficace de l'un est connue fut réutilisée au moins à trois reprises (par le groupe de D. J. Pegg) sur l'ion  $Li^-$  (précision 8-11%) [DLT<sup>+</sup>92], sur l'ion  $C^-$  (à 2,076 eV précision 15 %) [LBPH97] puis en 1998 sur l'ion  $Ca^-$  (à 2,08 eV, précision 8-11 %) [LPH98]. Dans le cas du carbone, le photodétachement eut lieu à partir d'un terme spectral excité. En 1992, P. Balling *et al.* [BBAH92], dans un article consacré à la mesure de la section efficace de photodétachement de  $Cu^-$ , améliorèrent le modèle ébauché par Hotop et Lineberger (cf. sous-section 3.2.2).

**La saturation avec des ions piégés** D'autres expériences du même type furent réalisées sur des ions piégés. C'est Kwon *et al.* en 1989 [KAO<sup>+</sup>89] qui en firent la première démonstration. Ils saturèrent le photodétachement (à un, deux et trois photons) des ions  $F^-$  qu'ils confinaient dans un piège de Penning (somme d'un champ magnétique axial et d'un champ quadrupolaire électrique) à l'aide d'un laser Nd:YAG pulsé opérant à 1064 nm

---

1. D'après les auteurs, ce niveau excité correspond soit au niveau excité  $^2D_{3/2}$ , soit au niveau  $^2S_{1/2}$ , soit aux deux.

(et les deux premières harmoniques). L'avantage du confinement est l'apparente immobilité des ions durant le passage des impulsions, entraînant un découplage complet entre les coordonnées spatiales et temporelles. Leur expérience consistait à mesurer l'évolution du nombre d'ions présents dans le piège en fonction du nombre d'impulsions émises par le laser. La confrontation de ces mesures à un modèle théorique adapté leur permettait d'en déduire la section efficace avec une précision relative de 18 %. Plus tard, Champeau et al. [CCM<sup>+</sup>98] réalisèrent, avec la même technique de saturation, d'autres mesures de section efficace de photodétachement sur une large bande spectrale (447 à 532 nm) des ions Au<sup>-</sup>, mais dans un piège de Paul (champ électrique RF).

**Saturation multiphotonique** Dans le même temps, des expériences utilisant la technique de la saturation furent mises en place dans le cas du photodétachement multiphotonique. C. Blondel et al. saturèrent, en 1989, le photodétachement à trois photons des ions I<sup>-</sup>, Br<sup>-</sup> et F<sup>-</sup> à 1064 nm [BCC<sup>+</sup>89]. Ils extrayèrent de ces mesures les sections efficaces associées. Pour cela, ils élargirent au cas du photodétachement multiphotonique d'ions négatifs en mouvement uniforme, le modèle d'interaction laser-neutres immobiles (photoionisation multiphotonique non-résonante également applicable pour le photodétachement) développé par Cervenán et Isenor (1975) [CI75], puis par Boulassier (1976) [Bou76] dans le cas d'une onde gaussienne, qu'ils comparèrent à leurs données expérimentales. La relation de proportionnalité entre la probabilité d'un processus non-linéaire à  $k$  photons et la puissance  $k$ ième de l'intensité de l'onde laser est à l'origine d'une modification de comportement de la courbe de saturation à bas flux selon le nombre de photons impliqués durant l'interaction. L'évolution est linéaire à un photon et quadratique à deux photons. On peut citer l'article de Kwon et al. sur le photodétachement de F<sup>-</sup> à un, deux et trois photons réalisé dans un piège de Penning [KAO<sup>+</sup>89]. La section efficace à trois photons obtenue est en excellent accord avec celle publiée par Blondel et al. quelques mois plus tôt. Il est à noter que l'expérience avec un jet d'ions donne une meilleure précision qu'avec un piège.

**Application à la photoionisation** La technique de la saturation fut et est encore très couramment utilisée pour déterminer les sections efficaces de photoionisation. Ambartzumian et al. [AFLP76], en 1976, furent les premiers à décrire cette méthode (pour la photoionisation et indépendamment du photodétachement). Ils saturèrent un jet de rubidium atomique avec un laser à rubis pulsé dont les atomes avaient été préalablement envoyés vers l'état excité  $6^2P_{1/2}$  ou  $6^2P_{3/2}$ , à l'aide d'un laser à colorant également pulsé. Ils déterminèrent de cette manière des sections efficaces précises à 25 %. Ils n'étaient pas les

premiers utilisateurs de la méthode puisque en 1977, Heinzmann et al. [HSZ77] publièrent un article commentant celui de Ambartzumian et al. pour préciser qu'ils avaient mesuré, trois ans plus tôt, et avec une méthode similaire certaines sections efficaces de photoionisation du césium. Depuis, la méthode a été utilisée sur un grand nombre de transitions pour un grand nombre d'éléments [SGNS80, BLXL88, HBCL91, SIS+12] (précision pouvant atteindre les 10 %) et fut également appliquée comme diagnostic de mesure de la densité d'ions ou d'atomes présents dans un jet [BLXL88].

**La saturation utilisée comme diagnostic dans les plasmas d'ions négatifs** Parallèlement à ces travaux, la saturation du photodétachement fut utilisée pour la réalisation de diagnostics permettant la mesure de la densité et, jusqu'à une certaine mesure, de la température des ions négatifs au sein de plasmas. La technique consiste à envoyer dans le plasma une onde laser impulsionnelle de manière à photodétacher les ions négatifs présents dans son sillage. Il est possible par un choix de longueur d'onde appropriée du laser, de ne photodétacher efficacement qu'une seule espèce ionique ( $H^-$ ,  $O^-$  etc.) tout en évitant, en raison de la faiblesse des affinités électroniques, les autres processus générant des électrons (par exemple la photoionisation). De plus, si l'énergie des impulsions est suffisamment grande, le photodétachement est saturé et chaque ion présent donne lieu à la libération d'un électron. La mesure (réalisée par exemple par une sonde de Langmuir placée dans le faisceau laser) de la densité électronique durant le passage de l'impulsion permet d'avoir accès à la valeur de cette surdensité générée par photodétachement qui est exactement égale à celle des ions négatifs présents juste avant le passage du laser. Cette technique a été appliquée pour la première fois par Joseph Taillet pour mesurer la densité d'ions  $O^-$  au sein d'une décharge [Tai69], puis, dix ans plus tard, sur  $H^-$  et  $D^-$  par M. Bacal et G.W. Hamilton [BH79] dans un plasma d'hydrogène.

En plus de la mesure de densité, a été démontrée la possibilité de mesurer la température des ions en déterminant l'évolution de la densité d'ions en fonction du temps après l'impulsion [DAB+89]. Pour ce faire, une seconde impulsion (sonde) superposée spatialement à la première est envoyée pour photodétacher les ions qui se sont entretemps réunis dans la zone balayée par la première impulsion. Une succession de mesures de ce type permet de connaître la progression de la densité d'ions après la première impulsion. Un modèle théorique décrivant l'évolution du plasma dans cette situation permet de déduire la température des ions négatifs. Cette technique ne fonctionne cependant que dans un certain domaine de densité, tel que le rapport densité d'ions sur densité électronique soit inférieur à 0,2. Au-delà plusieurs problèmes interviennent [Bac00].

Ces diagnostics sont beaucoup utilisés pour comprendre le comportement des plasmas dans les sources d'ions négatifs dont les développements sont cruciaux pour l'injecteur de neutres d'ITER.

**Saturation du photodétachement de  $H^-$**  Les seules mesures de la section efficace de photodétachement de  $H^-$  effectuées avec un laser sont celles de Hall et al. [HRB65] (cf. supra) et de Frost [Fro81, BBC+81] qui réalisa des mesures *relatives* depuis le seuil de détachement à un électron jusqu'au delà du seuil à deux électrons à l'aide d'un laser Nd:YAG pulsé. Il exploita, pour ses mesures, le faisceau d'ions relativistes en sortie de l'accélérateur du LAMPF (cf. chapitre 1, section 1.3.3.1).

Pour extraire une section efficace précise de photodétachement de  $H^-$  à 1064 nm à partir des données expérimentales, il convient d'établir le modèle décrivant l'interaction laser-jet. Sa construction se fait en deux étapes. Dans la première, le faisceau laser et le jet d'ions sont considérés comme étant homogènes et immobiles de manière à mettre en lumière les points clés de la méthode de la saturation. Dans la seconde étape, est intégré au modèle l'ensemble des aspects spatio-temporels et notamment les profils d'intensité du faisceau laser et du jet d'ions qui sont à l'origine, en raison de certains effets de volume, de déformations de la courbe de saturation.

## 3.2 Modélisation de l'interaction laser-jet

Le principe même de la méthode de la saturation nécessite d'utiliser une source lumineuse de grande puissance. Le mode de fonctionnement Q-switché (pulsé) d'un laser permet d'atteindre des puissances crêtes de l'ordre du mégawatt (l'utilisation d'un laser fonctionnant dans le régime de blocage de modes est aussi possible *a priori*, à condition que l'énergie par impulsion soit suffisante et que le détecteur ait un temps de réponse suffisamment court). On observera l'évolution du nombre de neutres produits avec l'énergie des impulsions laser.

Dans le modèle construit ci-après le rayonnement considéré est supposé impulsionnel.

### 3.2.1 Modélisation simplifiée de l'interaction laser-jet [HL73]

La probabilité qu'un ion négatif exposé à un flux lumineux  $\Phi$  soit photodétaché pendant un temps infinitésimal  $dt$  est  $\sigma\Phi dt$  où  $\sigma$  est la section efficace de photodétachement à la

longueur d'onde du rayonnement.

Soit un volume infinitésimal  $dV$  centré sur un point quelconque M en mouvement avec le jet, on suppose que dans ce petit volume, le flux  $\Phi$  est *uniforme*. On note  $n_0$  la densité initiale d'ions négatifs et  $n(t)$  la densité de neutres. Au fur et à mesure que cet élément traverse le faisceau laser, la population de neutres croît. À chaque instant, le nombre d'ions négatifs encore présents au sein du volume  $dV$  est égal à  $(n_0 - n(t))dV$ .

La variation de la densité de neutres au sein du petit élément le long de sa trajectoire peut donc s'écrire :

$$dn = \sigma\Phi(t)(n_0 - n(t))dt. \quad (3.1)$$

Cette équation décrit l'histoire vue par chaque élément mésoscopique du jet d'ions.

Si on considère des ions répartis uniformément au sein du jet alors l'intégration temporelle de l'équation précédente donne :

$$n = n_0 \left[ 1 - \exp \left( -\sigma \int \Phi(t) dt \right) \right]. \quad (3.2)$$

Le rapport  $\frac{n}{n_0}$  représente la probabilité de photodétachement d'un ion durant son passage au sein du faisceau laser.

Cette équation présente un comportement exponentiellement décroissant de la densité d'ions avec le flux, qui mène à la *saturation* du processus de photodétachement lorsqu'il devient suffisamment grand.

Si les ions sont tous éclairés pendant une durée  $t_{int}$  (déterminée par leur temps de transit dans le faisceau laser) par un flux constant et homogène de durée  $\tau$ , alors on peut écrire (en oubliant les effets de bord, début et fin de l'impulsion)  $\int \Phi(t) dt = \Phi t_{int} = \frac{E}{\hbar\omega A} \frac{t_{int}}{\tau}$ , où  $E$  est l'énergie d'une impulsion,  $A$  est la section constante du faisceau et  $\hbar\omega$  l'énergie d'un photon. Dans ces conditions l'équation 3.2 s'écrit :

$$n = n_0 \left[ 1 - \exp \left( -\frac{\sigma E}{\hbar\omega A} \frac{t_{int}}{\tau} \right) \right]. \quad (3.3)$$

Cette équation implique que  $n$  ne dépend, à un facteur d'échelle  $n_0$  près, que du produit  $\sigma E$ .

Pour les bas flux, on observe un accroissement linéaire de la densité de neutres avec

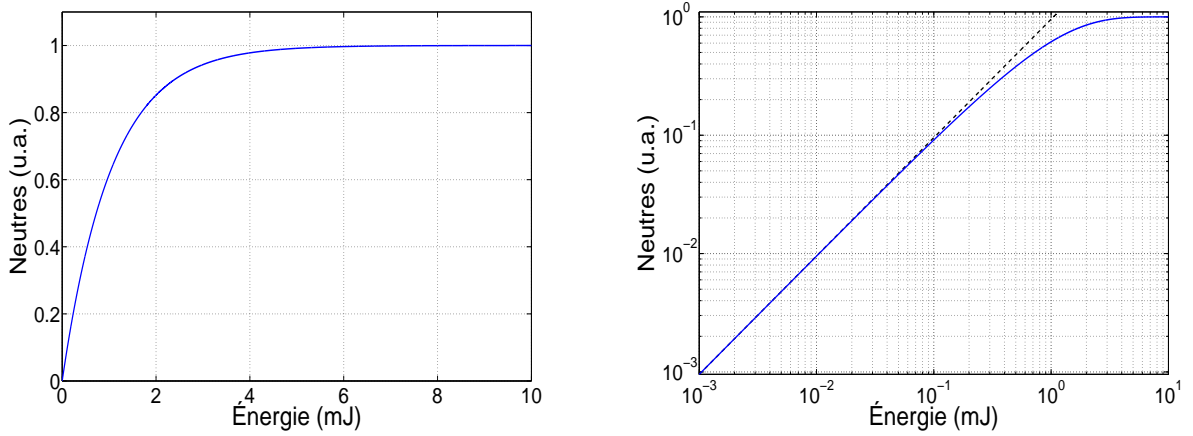


FIGURE 3.1 – À gauche, courbe représentant l'évolution de la fraction de neutres produite par photodétachement en fonction de l'énergie des impulsions du laser. Cette courbe a été calculée pour une impulsion spatio-temporellement homogène de  $3,14 \text{ mm}^2$  de section et de durée 30 ns. À droite, même courbe représentée sur des échelles logarithmiques. On voit très bien le comportement linéaire, aux basses énergies, représenté par la droite de pente 1 tirée en noir. À haute énergie, la courbe s'écarte de cette droite traduisant le passage au régime saturé.

l'énergie :

$$n \sim n_0 \sigma \Phi t_{int} = n_0 \frac{\sigma E}{\hbar \omega A} \frac{t_{int}}{\tau}. \quad (3.4)$$

En régime linéaire, le taux de photodétachement est si faible que le remplacement des ions éclairés par le faisceau laser, par de nouveaux ions durant une impulsion n'a pas d'incidence sur l'évolution macroscopique de la population de neutres produite. Dans ce régime, l'argument de l'exponentielle (sans le signe moins) fixe la proportion de neutres produite lors de l'éclairement des ions par le flux lumineux  $\Phi$ . Le nombre absolu de neutres produits sera d'autant plus élevé que la densité initiale d'ions est grande.

L'équation 3.4 se traduit, dans un diagramme log-log représentant le nombre de neutres en fonction de l'énergie des impulsions, par une droite de pente 1. Ce comportement est caractéristique d'un photodétachement non-saturé. La saturation apparaît, à partir d'un flux  $\Phi_S$  dont la valeur dépend de conventions quantitatives à préciser, sous forme d'une flexion de la courbe vers des pentes plus faibles (cf. figure 3.1).

Comme le temps d'interaction avec le flux lumineux est le même pour tous les ions, le nombre  $N$  de neutres produits est relié à  $N_0$  comme :

$$N = N_0 \left[ 1 - \exp \left( - \frac{\sigma E}{\hbar \omega A} \frac{t_{int}}{\tau} \right) \right]. \quad (3.5)$$



Dans un diagramme log-log, la variation du nombre d'ions se traduit par une translation uniquement verticale de la courbe de saturation et la variation du produit  $\sigma E$  entraîne une translation uniquement horizontale. Dès lors, si les points mesurés couvrent les régimes saturé et non-saturé, la connaissance du nombre d'ions  $N_0$  (ou de la densité d'ions initiale  $n_0$ ) n'est plus nécessaire pour déduire la section efficace du processus. Connaître le courant d'ions s'il est constant au cours du temps, et l'efficacité du détecteur si sa réponse est linéaire, est donc inutile. Par conséquent, connaissant l'énergie des impulsions du laser, on peut, en positionnant par simple translation la courbe de saturation théorique sur la courbe expérimentale, déduire la section efficace de photodétachement.

### 3.2.2 Prise en compte des variations spatio-temporelles d'éclairement des ions

Dans le but de décrire plus rigoureusement l'interaction, et par la suite, de dégager une valeur plus fiable et précise de la section efficace à partir des données expérimentales, il faut intégrer dans le modèle l'ensemble des restrictions spatio-temporelles de l'impulsion laser et du jet d'ions négatifs.

Le modèle de la sous-section précédente ne prend pas en compte la non-uniformité des distributions de photons et d'ions négatifs qui sont à l'origine de déformations de la courbe de saturation.

Si la distribution en énergie n'est pas uniforme, les histoires de chaque ion du jet seront différentes. La saturation du photodétachement commencera dans les zones où le flux de photons est le plus fort. On verra qu'à énergie plus élevée, la forme de la courbe donnant l'évolution de la population de neutres en fonction de l'énergie des impulsions reproduit l'accroissement du volume de la zone dans laquelle la saturation est atteinte.

#### 3.2.2.1 Insertion du profil spatio-temporel du laser dans la dynamique [BBAH92]

Pour modéliser l'impulsion, nous supposons que le profil transverse d'intensité du faisceau laser est le même le long de l'impulsion. Nous pouvons donc exprimer le profil spatio-temporel comme le produit de deux fonctions, l'une incluant les dépendances spatiales, l'autre les variations temporelles (onde progressive) :

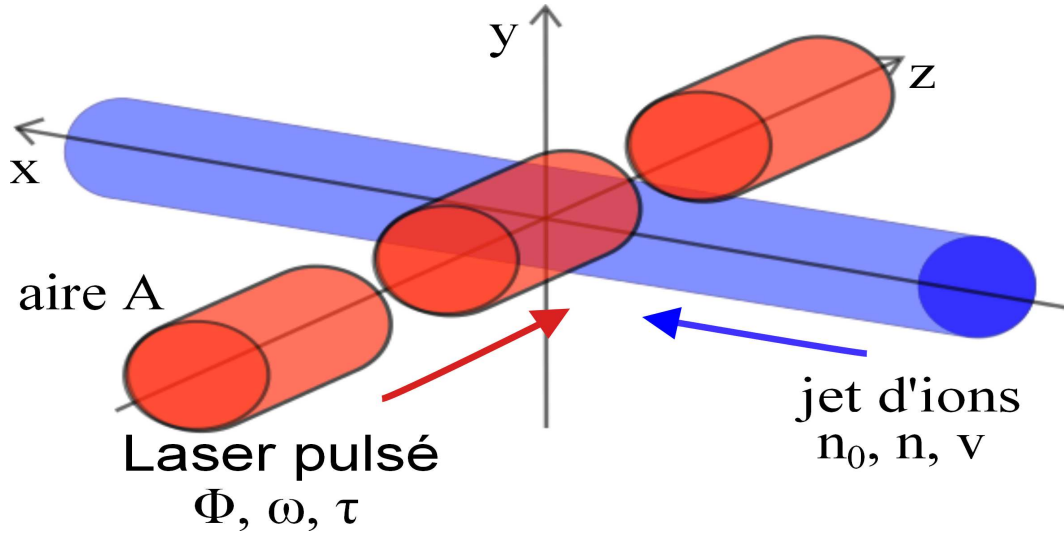


FIGURE 3.2 – Schéma de l'interaction laser-jet. Le plan  $Oxz$  est horizontal par rapport à la salle d'expérience. L'axe  $Oy$  est vertical dirigé vers le haut.

$$\Phi(x, y, z, t) = \frac{E}{\hbar\omega} f(x, y) g\left(t - \frac{z}{c}\right). \quad (3.6)$$

On suppose les fonctions  $f$  et  $g$  normalisées, c'est-à-dire que  $\int f(x, y) dx dy = 1$  et  $\int g(t) dt = 1$ ,  $f$  et  $g$  ont respectivement les dimensions de l'inverse d'une surface et de l'inverse d'un temps.

On reporte l'expression du flux 3.6 dans l'équation 3.1 :

$$dn = \sigma \Phi(x, y, z, t) (n_0 - n(t)) dt. \quad (3.7)$$

Cette équation décrit l'histoire vue par chaque élément mésoscopique du jet d'ions.

L'intégration temporelle de cette équation doit, en outre, faire intervenir le déplacement à vitesse  $v$  des ions le long de l'axe  $Ox$  (cf. figure 3.2). Il peut être pris en compte en ajoutant un terme  $vt$  dans l'expression de la fonction  $f$  décrivant le profil spatial du laser. L'intégration temporelle donne :

$$n(x, y) = n_0 \left[ 1 - \exp\left(-\sigma \frac{E}{\hbar\omega} \int_{-\infty}^{+\infty} f(x + vt', y) g(t') dt'\right) \right]. \quad (3.8)$$

Le changement de variable  $t' = t - \frac{z}{c}$  a permis de supprimer le terme en  $-\frac{z}{c}$  (intégration de  $-\infty$  à  $+\infty$ ).

L'équation 3.8 s'interprète comme la densité de neutres produite dans un élément de

volume du jet situé à  $t' = 0$  en  $(x, y, z)$  après son passage à travers l'impulsion laser.

On obtient, après intégration dans tout l'espace, le nombre total de neutres produits pendant l'interaction d'une impulsion laser avec le jet d'ions négatifs (par commodité, on remplace  $t'$  par  $t$  - variable muette -) :

$$N = n_0 L \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ 1 - \exp \left( -\sigma \frac{E}{\hbar\omega} \int_{-\infty}^{+\infty} f(x+vt, y) g(t) dt \right) \right] dx dy, \quad (3.9)$$

où l'on considère une répartition très étendue des ions (donc uniforme devant les dimensions du faisceau laser). On suppose que la diffraction de l'onde laser est négligeable et la longueur de Rayleigh grande par rapport au diamètre du jet d'ions (faisceau approximativement collimaté). Le faisceau laser présente donc une topologie cylindrique le long de sa direction de propagation Oz. L'intégration selon Oz de l'équation 3.9 fournit un facteur constant égal à L, la taille du jet selon Oz.

Pour de faibles énergies, on peut procéder au développement limité de l'exponentielle dans l'équation 3.9. On obtient à l'ordre 1 en  $E$  :

$$N = n_0 L \sigma \frac{E}{\hbar\omega} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} f(x+vt, y) g(t) dt dx dy = n_0 L \sigma \frac{E}{\hbar\omega} \quad (3.10)$$

On retrouve le comportement linéaire à bas flux dans le cas où les conditions d'éclairement ne sont pas identiques pour tous les ions.

En revanche, aux hautes énergies, le comportement de la courbe diffère nettement du cas où les profils sont considérés homogènes. La saturation commence dans les régions où le flux est le plus fort. Dans les autres zones, le photodétachement des ions est encore dans le régime linéaire. La convergence vers la saturation totale s'opère donc beaucoup plus lentement que dans le cas homogène (cf. figure 3.3)

### 3.2.2.2 Volume de saturation

Le faisceau laser est considéré dans le modèle comme un tube de lumière (flux macroscopiquement invariant selon sa direction de propagation Oz) dont les variations transverses d'intensité sont gaussiennes. Le régime de saturation n'est donc atteint que progressivement pour l'ensemble des ions. La partie de l'espace où le régime est saturé, c'est-à-dire où le flux est supérieur au flux de saturation  $\Phi_S$ , définit le volume de saturation (cf. figure 3.4).

La finitude du temps d'interaction et de la durée de l'impulsion confèrent une dimen-

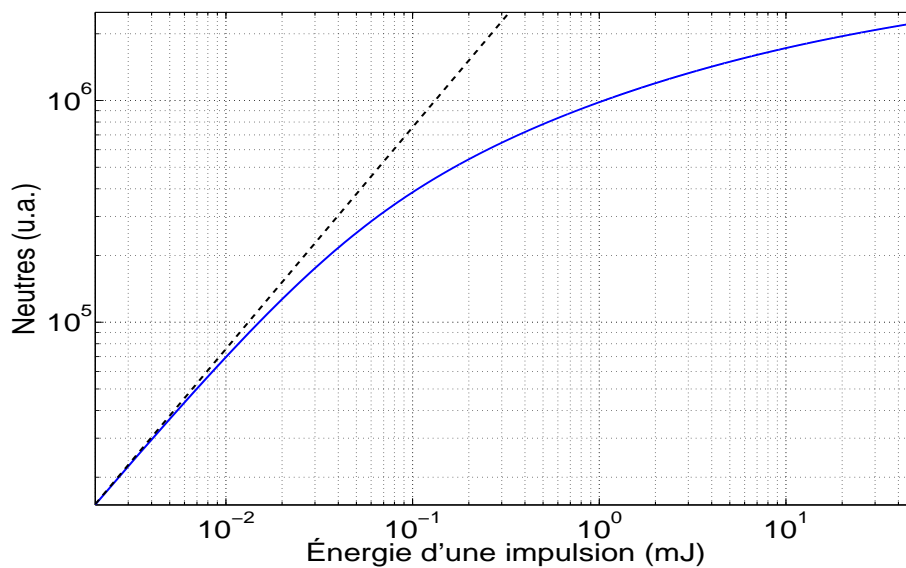


FIGURE 3.3 – Courbe de saturation calculée numériquement, tracée en représentation log-log (en bleue). L'impulsion laser de  $70 \mu\text{m}$  de waist et de profil temporel gaussien de  $18,1 \text{ ns}$  de durée (demi-largeur à  $\frac{1}{e^2}$ ), traverse un jet d'ions se déplaçant à  $\sim 4,8 \cdot 10^5 \text{ m/s}$  ( $1,2 \text{ keV}$  d'énergie cinétique). À basse énergie, en noir, on observe le comportement linéaire (pente 1 en log-log). À haute énergie, la courbe ne converge pas vers la saturation totale contrairement au cas sans profil (cf. figure 3.1). On explique ce phénomène par des effets de volume qui apparaissent en raison de la distribution spatio-temporelle non-uniforme de l'énergie de l'impulsion (le flux perçu par tous les ions n'est pas le même).

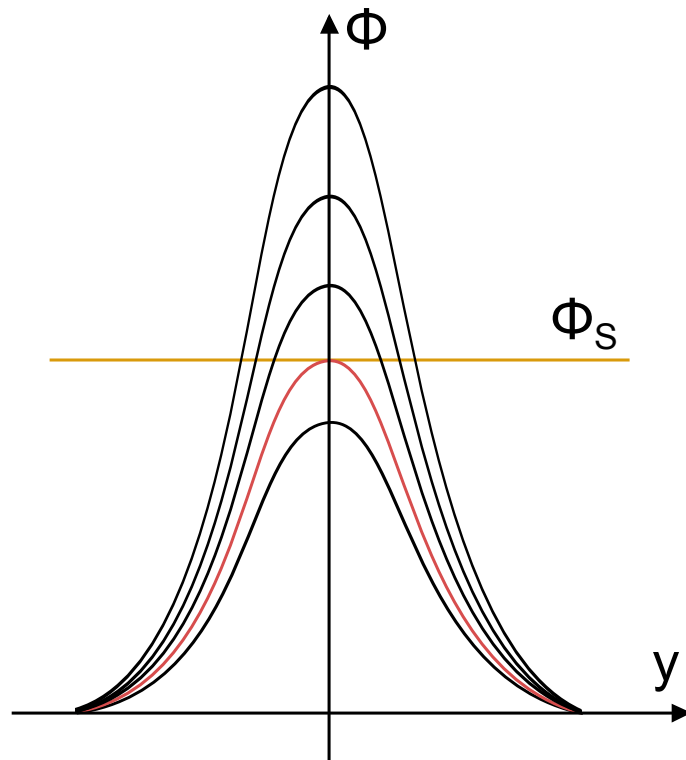


FIGURE 3.4 – Profils du flux du laser en fonction de  $y$  (axe vertical  $Oy$ ) à un temps  $t$  de l'impulsion pour plusieurs énergies. La ligne orange représente le flux  $\Phi_S$  au-delà duquel il y a saturation. Le domaine spatial pour lequel le flux dépasse  $\Phi_S$  définit le volume de saturation. La gaussienne en rouge représente le flux seuil à partir duquel le volume commence à exister.

sion temporelle au volume de saturation. Tous les ions produits par la source ne peuvent évidemment pas être éclairés par l'impulsion. Si l'on considère des valeurs typiques de la durée de l'impulsion (30 ns) et de la vitesse des ions ( $4,8 \cdot 10^5$  m/s), l'extension du volume selon l'axe  $Ox$  est au maximum de 14,4 mm. De la même façon que pour le profil spatial, l'énergie n'est pas uniformément distribuée durant l'impulsion. Par conséquent, le flux qu'un ion reçoit dépend de l'instant auquel il traverse le faisceau laser (ce qui détermine la probabilité de photodétachement est la valeur de l'intégrale temporelle du flux reçu par l'ion durant son passage dans le faisceau laser).

Nous allons établir, sous certaines hypothèses, l'expression en fonction des paramètres du problème de ce volume de saturation.

**Hypothèses** Pour un calcul analytique du volume de saturation, *le profil temporel sera considéré comme gaussien.*

Le régime de photodétachement saturé ou non-saturé, pour un ion situé à  $t = 0$  à la position  $(x,y)$ , est directement gouverné par l'argument de l'exponentielle de l'équation 3.8. La condition de saturation, moyennant l'hypothèse précédente, se traduit par une inéquation :

$$Q\sigma \frac{E}{\hbar\omega} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\frac{2((x+vt)^2+y^2)}{w_0^2}\right) \exp\left(-\frac{2t^2}{\tau^2}\right) dt \geq S. \quad (3.11)$$

Où  $Q$  est le facteur de normalisation des gaussiennes  $Q = \frac{2\sqrt{2}}{\pi\sqrt{\pi w_0^2 \tau}}$ .

Prendre  $S = 1$  revient à définir la saturation comme le point où l'argument de l'exponentielle dépasse -1, c'est-à-dire, pour un taux de détachement de  $1 - \frac{1}{e} \simeq 63\%$ .

**Géométrie du volume de saturation** L'intégration temporelle de l'intégrale précédente conduit à l'inéquation :

$$\frac{2\sigma}{\pi w_0^2 \sqrt{1+\rho}} \frac{E}{\hbar\omega} e^{-\left(\frac{2x^2}{w_0^2(1+\rho)}\right)} e^{-\frac{2y^2}{w_0^2}} \geq S. \quad (3.12)$$

Où on a posé  $\rho = \frac{v^2 \tau^2}{w_0^2} \geq 0$ .

Que l'on peut réécrire sous la forme suivante :

$$\frac{E}{\hbar\omega} \frac{2\sigma}{\pi w_0 \delta} e^{-\left(\frac{2x^2}{\delta^2} + \frac{2y^2}{w_0^2}\right)} \geq S, \quad (3.13)$$

avec  $\delta^2 = w_0^2(1 + \rho) = w_0^2 + v^2\tau^2$ .

On cherche l'ensemble des couples (x,y) concernés par la saturation et on trouve, d'après l'inéquation 3.12 :

$$\frac{2x^2}{\delta^2} + \frac{2y^2}{w_0^2} \leq \ln \left( \frac{2\sigma}{S\pi w_0 \delta \hbar \omega} E \right) = F(E). \quad (3.14)$$

Il s'agit d'une surface elliptique dont les demi-longueurs des axes sont  $a = \delta \sqrt{\frac{F(E)}{2}}$  et  $b = w_0 \sqrt{\frac{F(E)}{2}}$ . Le volume de saturation prend donc la forme d'un cylindre de base elliptique :

$$V_S = \pi ab \times L = L \frac{\pi}{2} w_0 \delta F(E) = L \frac{\pi}{2} w_0 \delta \left[ \ln E + \ln \left( \frac{2\sigma}{S\pi w_0 \delta \hbar \omega} \right) \right]. \quad (3.15)$$

Où L est le diamètre du jet d'ions<sup>2</sup>.

On remarque d'après cette équation que le volume de saturation est une fonction affine de  $\ln E$  (cf. figure 3.5).

À haute énergie, on suppose (cf. figure 3.4) que l'essentiel des neutres supplémentaires produits par photodétachement, en fonction de l'énergie, sont ceux qui le sont dans les nouvelles zones saturées. La population de neutres produite est donc proportionnelle au volume de saturation (la densité d'ions est supposée la même partout) :

$$N = n_0 V_S + \epsilon - \epsilon' \approx n_0 V_S = p_2 \ln(E) + d. \quad (3.16)$$

Les paramètres  $\epsilon$  et  $\epsilon'$  représentent respectivement, la quantité de neutres produite hors saturation, et la quantité d'ions non détachés dans le volume saturé. Ces quantités deviennent négligeables, à haute énergie, devant la population produite par extension du volume de saturation.

On a posé  $p_2 = n_0 \frac{\pi}{2} L w_0 \delta$  qui est un paramètre purement géométrique ( $n_0$  mis à part), et  $d = n_0 L \frac{\pi}{2} w_0 \delta \ln \left( \frac{2\sigma}{S\pi w_0 \delta \hbar \omega} \right)$  qui dépend du rapport  $\frac{\sigma}{S}$ .

La pente  $p_2$  est strictement indépendante de la section efficace. *Une fois la saturation atteinte, l'accroissement de la quantité de neutres ne dépend plus de  $\sigma$ .* À noter que le

---

2. En réalité, on devrait plutôt définir le volume de saturation comme la région où le photodétachement est potentiellement saturé. Le volume de saturation s'étend donc dans toutes les régions où le flux (intégré dans le temps) dépasse le flux de saturation. On restreint ici le volume aux régions où il y a des ions et donc du photodétachement.

logarithme dans l'expression de  $d$  est dimensionné (logarithme de l'inverse d'une énergie).

Il semblerait que l'on puisse déterminer à partir des paramètres  $p_2$  et  $d$ , la section efficace de photodétachement. Cependant, il se cache dans  $d$  un paramètre  $S$  de valeur apparemment arbitraire. Nous verrons que la contrainte définie par l'accroissement, sous forme d'une droite de pente 1 en représentation log-log, de la population de neutres à basse énergie est suffisante pour lever l'indétermination.

**Condition d'existence du volume de saturation** Le volume de saturation  $V_S$  n'existe que s'il a une valeur réelle et positive. D'après l'équation 3.15, ce n'est vrai que si l'on a :

$$\frac{2\sigma}{S\pi w_0\delta} \frac{E}{\hbar\omega} \geq 1. \quad (3.17)$$

La contrainte imposée sur l'énergie des impulsions pour que le volume de saturation existe est donc :

$$E \geq \frac{S\pi w_0\delta}{2\sigma} \hbar\omega = E_S. \quad (3.18)$$

L'énergie  $E_S$  est le seuil au-delà duquel il y a saturation.<sup>3</sup> Avec cette nouvelle définition, on peut réécrire l'équation 3.15 sous une forme plus simple :

$$V_S = L \frac{\pi}{2} w_0\delta \ln \left( \frac{E}{E_S} \right). \quad (3.19)$$

On a représenté sur la figure 3.5, un exemple d'évolution du volume de saturation dans la situation où un faisceau laser focalisé ( $w_0 = 70 \mu\text{m}$ ) de durée caractéristique  $\tau = 15 \text{ ns}$  intersecte un gros jet d'ions ( $L = 2 \text{ mm}$ ) de vitesse  $v = 479820 \text{ m/s}$  (1,2 keV d'énergie cinétique). On a supposé la section efficace égale à  $\sigma = 3.10^{-21} \text{ m}^2$ .

### 3.2.2.3 Expressions de la section efficace $\sigma$ et du paramètre de saturation $S$

On a vu qu'à haute énergie, l'évolution de la quantité de neutres produits est proportionnelle au volume de saturation (cf. équation 3.16).

---

3. Le paramètre  $\delta$  peut, dans la plupart des situations, être assimilé au produit  $v\tau$  (car on vérifie souvent que  $w_0 \ll v\tau$ ). L'énergie de saturation est, dans ce cas, proportionnelle au waist  $w_0$  et pas à son carré comme lorsque les ions sont immobiles, car dans la direction du transit des ions, la variation comme  $w_0$  du temps de transit, donc du temps d'éclairement, compense en partie la variation en  $\frac{1}{w_0^2}$  de l'éclairement lui-même.



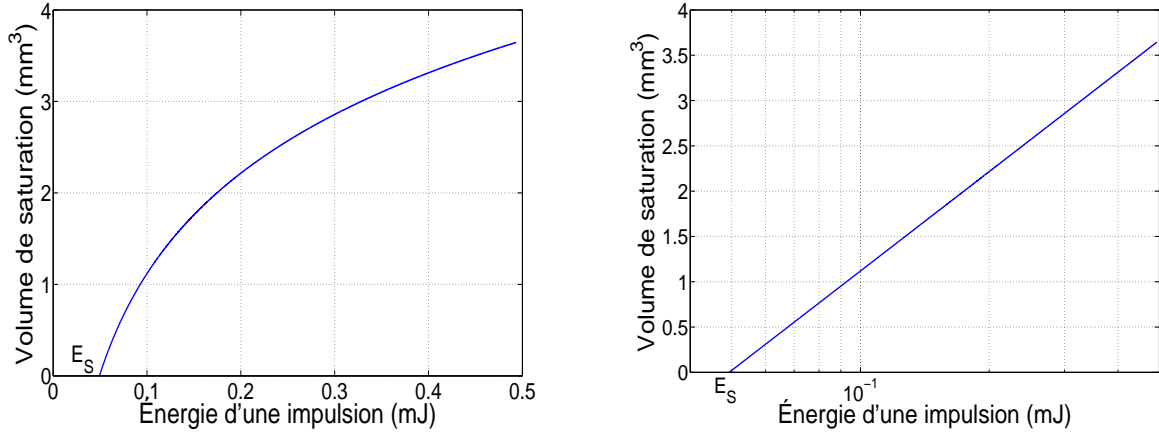


FIGURE 3.5 – Évolution du volume de saturation (en  $\text{mm}^3$ ) en fonction de l'énergie des impulsions (en mJ). À gauche, évolution du volume de saturation en représentation linéaire. À droite, représentation lin-log de la même courbe. On remarque qu'il s'agit d'une fonction affine déterminée par deux paramètres : sa pente et son ordonnée à l'origine. Les courbes ont été tracées en fixant  $w_0 = 70 \mu\text{m}$ ,  $\tau = 15 \text{ ns}$ ,  $L = 2 \text{ mm}$ ,  $v = 479820 \text{ m/s}$  (1,2 keV d'énergie cinétique) et  $\sigma = 3.10^{-21} \text{ m}^2$ .

Il est possible de se débarrasser du coefficient  $n_0$  inconnu contenu dans  $p_2$  et  $d$  en écrivant le rapport :

$$\frac{d}{p_2} = \ln \left( \frac{2\sigma}{S\pi w_0 \delta \hbar \omega} \right). \quad (3.20)$$

Cette expression s'écrit simplement en fonction de l'énergie du seuil de saturation :

$$E_S = e^{-\frac{d}{p_2}}, \quad (3.21)$$

Cette énergie constitue l'abscisse de transition vers le régime saturé. La rupture de la droite linéaire (de pente 1 en log-log) n'est cependant visible qu'un peu plus haut en énergie lorsque les effets de volume peuvent dominer. La mesure des paramètres de la droite affine du régime saturé donne accès à cette énergie et *a fortiori*, au rapport  $\frac{\sigma}{S}$ . La connaissance de la valeur naturelle de  $S$  imposée par l'expérience ouvrirait un accès direct à la valeur de la section efficace de photodétachement par la simple observation des effets de volume.

Par ailleurs, on sait que  $p_2$  ne dépend que des paramètres géométriques du problème qui sont mesurables expérimentalement. Par conséquent, la pente de la droite permet aussi de remonter à la valeur de  $n_0$ , produit de la densité d'ions par l'efficacité du détecteur.

Le rapprochement de ces résultats avec l'équation 3.10 donnant l'évolution de la population de neutres à basse énergie permet d'extraire la section efficace. Cette équation

peut se réécrire, dans le cadre des hypothèses mentionnées plus haut (c'est-à-dire que les fonctions  $f$  et  $g$  décrivant les profils spatial et temporel d'une impulsion sont supposées gaussiennes), sous la forme :

$$\begin{aligned} N &= n_0 Q L \sigma \frac{E}{\hbar \omega} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\frac{2((x+vt)^2 + y^2)}{w_0^2}\right) \exp\left(-\frac{2t^2}{\tau^2}\right) dt dx dy \\ &= n_0 L \frac{E}{\hbar \omega} \frac{2\sigma}{\pi w_0 \delta} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\left(\frac{2x^2}{\delta^2} + \frac{2y^2}{w_0^2}\right)} dx dy, \end{aligned} \quad (3.22)$$

où  $Q$  est la constante de normalisation définie plus haut. On obtient finalement après intégration :

$$N = n_0 L \sigma \frac{E}{\hbar \omega} = p_1 E. \quad (3.23)$$

Il s'agit d'une droite de pente  $p_1 = \frac{n_0 L}{\hbar \omega} \sigma$ .

D'après l'équation 3.23, la section efficace s'écrit en fonction de  $p_1$  et  $p_2$  :

$$\sigma = \frac{p_1 \hbar \omega}{n_0 L} = \frac{\pi}{2} \hbar \omega w_0 \delta \frac{p_1}{p_2}. \quad (3.24)$$

Cette équation montre qu'il est possible d'extraire une section efficace expérimentale de l'observation des deux régimes non-saturé et saturé et de la mesure de leurs paramètres asymptotiques. La transition entre ces deux régimes ne contient, semble-t-il, pas d'informations indispensables à la connaissance de  $\sigma$ .

On peut aussi exprimer à partir de cette équation, l'expression du paramètre de saturation  $S$  en fonction de  $p_1$ ,  $p_2$  et  $E_S$  :

$$S = \frac{p_1}{p_2} E_S. \quad (3.25)$$

Cette équation montre que le paramètre  $S$  peut être entièrement déterminé par les paramètres asymptotiques de la courbe (paramètres  $p_1$ ,  $p_2$  et  $E_S$ )<sup>4</sup>.

---

4. Dans notre raisonnement, nous avons considéré un profil transverse de symétrie circulaire pour le faisceau laser. S'il était elliptique, il suffirait de remplacer le waist  $w_0$  situé dans l'expression de  $\delta$  par  $w_{0x}$ , et le waist  $w_0$  seul par  $w_{0y}$ .

**Expression analytique du paramètre de saturation S** La courbe de saturation suit, à haute énergie, l'évolution du volume de saturation  $V_S$ . Ce comportement peut, dans certains cas, être établi analytiquement à partir de l'expression générale 3.9 donnant le nombre de neutres produits en fonction de l'énergie.

On a vu que, dans l'hypothèse d'un faisceau laser pulsé gaussien de waist  $w_0$  de profil temporel gaussien de durée  $\tau$  intersectant un jet d'ions de vitesse  $v$ , l'intégrale dans l'argument de l'exponentielle se calculait explicitement (cf. équations 3.11 et 3.12). L'intégrale 3.9 s'écrit dans ces conditions :

$$N = n_0 L \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ 1 - \exp \left( -\frac{2\sigma}{\pi w_0^2 \sqrt{1+\rho}} \frac{E}{\hbar\omega} e^{-\left(\frac{2x^2}{w_0^2(1+\rho)}\right)} e^{-\frac{2y^2}{w_0^2}} \right) \right] dx dy. \quad (3.26)$$

On peut symétriser cette expression en effectuant le changement de variable  $x' = \frac{x}{\sqrt{1+\rho}}$  :

$$N = n_0 L \sqrt{1+\rho} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ 1 - \exp \left( -A e^{-2\frac{x'^2+y^2}{w_0^2}} \right) \right] dx' dy. \quad (3.27)$$

Où on a posé  $A = \frac{2\sigma}{\pi w_0^2 \sqrt{1+\rho}} \frac{E}{\hbar\omega}$ .

Pour simplifier, on passe en coordonnées cylindriques en posant  $R = \sqrt{2\frac{x'^2+y^2}{w_0^2}}$  :

$$N = n_0 L \frac{w_0^2 \sqrt{1+\rho}}{2} \int_0^{+\infty} \int_0^{2\pi} \left[ 1 - \exp \left( -A e^{-R^2} \right) \right] R d\theta dR. \quad (3.28)$$

Cette expression peut, à son tour, faire l'objet de trois changements de variable  $X = R^2$  puis  $e^{-X} = T$  et enfin  $t = AT$  :

$$N = \frac{\pi}{2} n_0 L w_0^2 \sqrt{1+\rho} \int_0^A \left[ 1 - e^{-t} \right] \frac{dt}{t}. \quad (3.29)$$

Cette dernière expression s'intègre explicitement :

$$N = \frac{\pi}{2} n_0 L w_0^2 \sqrt{1+\rho} \text{Ein}(A) = \frac{\pi}{2} n_0 L w_0^2 \sqrt{1+\rho} (-\text{Ei}(-A) + \ln A + \gamma), \quad (3.30)$$

où  $\gamma$  est la constante d'Euler-Mascheroni, Ein et Ei sont respectivement les fonctions exponentielle intégrale entière et exponentielle intégrale (cf. [AS72] p. 228).

La fonction  $\text{Ei}(-A) = \int_{-\infty}^{-A} \frac{e^t}{t} dt$  devient rapidement inférieure à  $\int_{-\infty}^{-A} e^t dt = e^{-A}$  ( $A > 1$ ) quand  $A$  tend vers l'infini. L'expression asymptotique de l'équation 3.30 quand  $E \rightarrow +\infty$  (car  $A \propto E$ ) s'écrit donc :

$$N = \frac{\pi}{2} n_0 L w_0^2 \sqrt{1 + \rho} \left[ \ln E - \ln \left( \frac{\pi}{2} \frac{w_0^2 \sqrt{1 + \rho} \hbar \omega}{\sigma} \right) + \gamma \right] = n_0 V_S. \quad (3.31)$$

Cette relation s'identifie au produit de la densité d'ions par le volume de saturation  $n_0 V_S$  (cf. sous-section 3.2.2.2). La pente  $p_2$  de la fonction affine (en lin-log) est donc  $\frac{\pi}{2} n_0 L w_0^2 \sqrt{1 + \rho}$  et son ordonnée à l'origine  $d = \frac{\pi}{2} n_0 L w_0^2 \sqrt{1 + \rho} \left[ \gamma - \ln \left( \frac{\pi}{2} w_0^2 \sqrt{1 + \rho} \frac{\hbar \omega}{\sigma} \right) \right]$ .

Le rapport de ces deux paramètres est connecté à l'énergie du seuil de saturation  $E_S = \frac{S \pi w_0^2 \sqrt{1 + \rho}}{2\sigma}$  (cf. équation 3.21) :

$$-\ln E_S = \frac{d}{p_2} = \gamma - \ln \left( \frac{\pi}{2} w_0^2 \sqrt{1 + \rho} \frac{\hbar \omega}{\sigma} \right) = \gamma - \ln \left( \frac{E_S}{S} \right). \quad (3.32)$$

On déduit finalement l'expression du paramètre de saturation  $S$  :

$$S = e^{-\gamma}. \quad (3.33)$$

*S est une caractéristique de la transition vers la saturation pour toutes les expériences réalisées en faisceaux gaussiens et pour tous les processus d'interaction linéaires (photo-détachement, photoionisation) mis en jeu.* Dès lors, on dira qu'un processus sature si et seulement si sa probabilité dépasse  $1 - e^{-e^{-\gamma}} = 0,43854 \dots$

Cette relation est fondamentale en ce sens qu'elle constitue une *contrainte*. On sait (cf. équations 3.24 et 3.25) que le paramètre de saturation et la section efficace sont reliés par le rapport des pentes  $\frac{p_1}{p_2}$ . On déduit une relation simple entre la section efficace  $\sigma$  et l'énergie du seuil de saturation  $E_S$  :

$$\sigma = S \frac{\pi w_0 \delta \hbar \omega}{2 E_S}, \quad (3.34)$$

avec  $\delta = w_0 \sqrt{1 + \rho}$ .

*La simple observation des effets de volume dans le régime saturé, suffit à déterminer la valeur de la section efficace absolue* (connaissant les paramètres du faisceau laser et du jet d'ions). On remarque que la connaissance de la taille du jet d'ions n'est pas nécessaire au calcul de la section efficace (dans l'hypothèse d'un éclaircissement identique le long de la direction de propagation du faisceau laser).

On verra (cf. section 3.4) que les résultats donnés par cette *nouvelle méthode de mesure de  $\sigma$*  sont parfaitement cohérents avec ceux déterminés avec la méthode complexe qui consiste à ajuster la courbe de saturation avec l'équation 3.9.

La relation 3.34 fait apparaître la fluence de saturation  $F_S$  :

$$F_S = \frac{2E_S}{\hbar\omega\pi w_0\delta} = \frac{S}{\sigma}. \quad (3.35)$$

*Il y a saturation (potentielle) lorsque le nombre de photons (intégré dans le temps) traversant une surface d'aire  $\sigma$  dépasse  $S = e^{-\gamma} = 0,561459\dots$*

On peut réexprimer le volume de saturation en fonction de la fluence  $F = \frac{E}{\hbar\omega\frac{\pi}{2}w_0\delta}$  du faisceau lumineux (nombre de photons passés par une surface de  $\frac{\pi}{2}w_0\delta$ ) :

$$V_S = L\frac{\pi}{2}w_0\delta \ln\left(\frac{F}{F_S}\right). \quad (3.36)$$

### 3.2.2.4 Prise en compte du profil du jet d'ions

Dans le cas où le volume de saturation est suffisamment grand devant les dimensions du jet mais trop petit pour l'englober, il n'est plus possible de négliger la forme géométrique du jet et la distribution des ions en son sein. La courbe de saturation devrait s'écarter de la droite affine du régime partiellement saturé (de pente  $p_2$  en lin-log) vers des pentes plus faibles.

On suppose un jet d'ions dont le profil (relatif) transverse de densité (dans le plan  $Oyz$ ) est invariant par translation selon sa direction de propagation (selon  $Ox$ ). On suppose, de plus, que le courant est constant. On peut écrire la densité d'ions initiale comme une fonction de  $y$  et  $z$  :

$$n_0(y, z) = \rho_{0x}h(y, z), \quad (3.37)$$

où  $n_0(y, z)$  est la densité d'ions au point  $(y, z)$  (et  $x$  quelconque). La fonction  $h(y, z)$  est homogène à l'inverse d'une surface et est normalisée :  $\iint h(y, z)dydz = 1$ .  $\rho_{0x}$  est la densité linéique du jet d'ions selon  $Ox$ .

Avec ces nouvelles considérations, l'équation 3.8 devient, après intégration dans tout l'espace :

$$N = \rho_{0x} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} h(y, z) \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ 1 - \exp \left( -\sigma \frac{E}{\hbar\omega} \int_{-\infty}^{+\infty} f(x + vt, y) g(t) dt \right) \right] dx \right\} dy dz. \quad (3.38)$$

Si  $h(y, z)$  est factorisable en une fonction de  $y$  et une fonction de  $z$  (normalisées), l'expression 3.38 se simplifie :

$$N = \rho_{0x} \int_{-\infty}^{+\infty} H(y) \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ 1 - \exp \left( -\sigma \frac{E}{\hbar\omega} \int_{-\infty}^{+\infty} f(x + vt, y) g(t) dt \right) \right] dx \right\} dy. \quad (3.39)$$

Jusqu'ici, nous avons considéré une section transverse du jet de géométrie rectangulaire qui supposait une valeur de  $L$  (épaisseur du jet dans la direction de propagation du faisceau laser  $Oz$ ) constante quelle que soit l'altitude  $y$  considérée. C'est une bonne approximation tant que l'on n'explore pas des domaines d'énergie où le volume de saturation devient trop grand. Et tant que les dimensions du faisceau laser restent petites ou du même ordre de grandeur que les dimensions du jet. Si tel n'est pas le cas, il faut ajouter un facteur de forme  $\Pi_{L(y)}$  :

$$N = \rho_{0x} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \Pi_{L(y)} h(y, z) \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ 1 - \exp \left( -\sigma \frac{E}{\hbar\omega} \int_{-\infty}^{+\infty} f(x + vt, y) g(t) dt \right) \right] dx \right\} dz dy. \quad (3.40)$$

La fonction  $\Pi_{L(y)}$  est une fonction porte dont la dimension  $L(y)$  est égale à celle du jet dans la direction  $Oz$  à une altitude  $y$ . Dans le cas d'un jet de section circulaire par exemple, on a  $L(y) = 2\sqrt{\frac{L^2}{4} - y^2}$  où  $L$  est le diamètre du jet d'ions.

Le régime non-saturé reste évidemment linéaire. Le développement à basse énergie de l'équation précédente donne :

$$N = \rho_{0x} \sigma \frac{E}{\hbar\omega} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \Pi_{L(y)} h(y, z) \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} f(x + vt, y) g(t) dt dx \right\} dz dy. \quad (3.41)$$

Si le profil de densité  $h(y, z)$  est factorisable en une fonction de  $y$  et une fonction de  $z$  (normalisées), l'expression 3.40 devient :

$$N = \rho_{0x} \int_{-\infty}^{+\infty} H(y) \left( \int_{-\frac{L(y)}{2}}^{\frac{L(y)}{2}} G(z) dz \right) \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ 1 - \exp \left( -\sigma \frac{E}{\hbar\omega} \int_{-\infty}^{\infty} f(x + vt, y) g(t) dt \right) \right] dx \right\} dy \quad (3.42)$$

Si, de plus, le profil est gaussien (normalisé), on a :

$$N = \rho_{0x} \int_{-\infty}^{+\infty} H(y) \operatorname{erf} \left( \sqrt{2} \frac{L(y)}{L} \right) \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} \left[ 1 - \exp \left( -\sigma \frac{E}{\hbar\omega} \int_{-\infty}^{\infty} f(x + vt, y) g(t) dt \right) \right] dx \right\} dy \quad (3.43)$$

Le demi-largeur du jet d'ions (à  $\frac{1}{e^2}$ ) a été définie comme étant égal à  $\frac{L}{2}$ . La fonction erf correspond à la fonction d'erreur.

**Conséquences sur le volume de saturation et sur la production de neutres dans le régime saturé** C'est à haute énergie, lorsque la dimension selon  $Oy$  du volume de saturation devient suffisamment grande par rapport aux dimensions du jet, que la géométrie du jet doit être considérée. Dans cette situation, le volume de saturation (cf. équation 3.19) est affecté par le facteur de forme et s'écrit :

$$V_S = \bar{L} \frac{\pi}{2} w_0 \delta \ln \left( \frac{E}{E_S} \right). \quad (3.44)$$

Où  $\bar{L} = \frac{1}{2b} \int_{-b}^b L(y) dy$  est la longueur moyenne de la partie du jet d'ions (selon  $Oz$ ) incluse dans le volume de saturation (cf. note 2). Et  $b = w_0 \sqrt{\frac{F(E)}{2}}$  (avec  $F(E) = \ln \left( \frac{2\sigma}{S\pi w_0 \delta} \frac{E}{\hbar\omega} \right)$ ), est la demi-longueur d'un des deux axes de l'ellipse qui définit les frontières de la section transverse du volume de saturation (selon  $Oy$ ).

À haute énergie la courbe (droite affine en lin-log) décrivant l'évolution du volume de saturation devrait fléchir vers les pentes plus faibles ou plus fortes en accord avec l'évolution du facteur  $\bar{L} = \frac{1}{2b} \int_{-b}^b L(y) dy$ .

Par ailleurs, on a vu (cf. équation 3.16) que la quantité de neutres produite dans le régime saturé est proportionnelle au volume de saturation. L'inhomogénéité de la distribution des ions dans le plan  $Oyz$  oblige à reformuler cette équation. En effet, le terme décrivant la densité d'ions qui intervient dans le produit densité par volume doit tenir compte de ces inhomogénéités, ce qui revient à écrire :

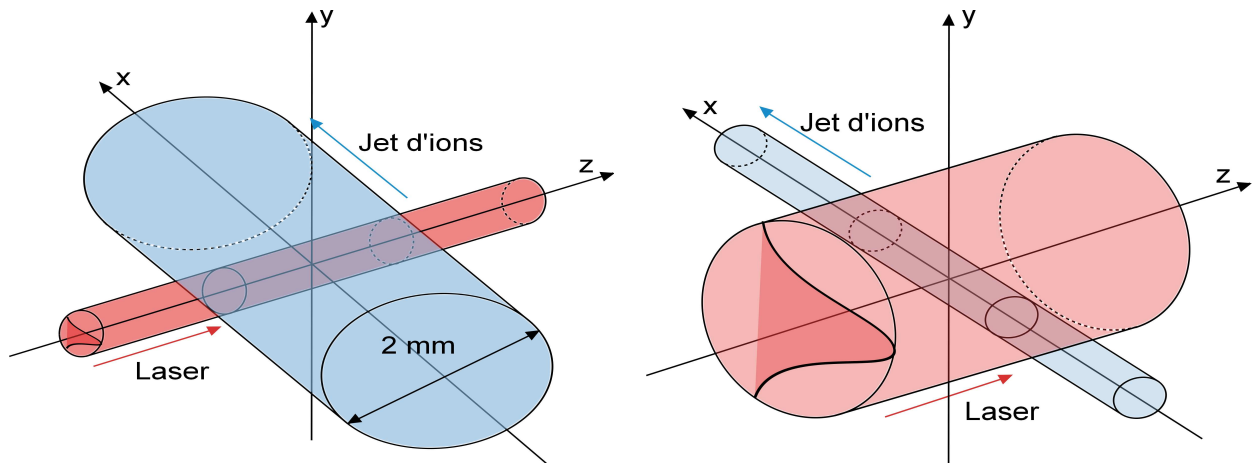


FIGURE 3.6 – Schéma représentant l'interaction du faisceau laser avec le jet. À gauche, le faisceau laser a un diamètre petit devant le jet d'ions. Le flux lumineux (dont les dépendances spatiales sont représentées par une gaussienne) ne couvre que la partie centrale (selon la verticale  $Oy$ ) du jet d'ions. La densité ionique perçue par le laser est approximativement constante (selon  $Oy$ ). À droite, le diamètre du faisceau laser est grand devant celui du jet d'ions. Les ions perçoivent un flux identique quelle que soit leur position dans le plan  $Oyz$ .

$$N = \rho_{0x} \int_{-a}^a \left[ \int_{-b\sqrt{1-\frac{x^2}{a^2}}}^{b\sqrt{1-\frac{x^2}{a^2}}} \left( \int_{-\frac{L(y)}{2}}^{\frac{L(y)}{2}} h(y, z) dz \right) dy \right] dx. \quad (3.45)$$

Le calcul avec une densité d'ions uniformément répartie ( $\rho_0 h(y, z) = \rho_0 h = n_0$ ) redonne le résultat de l'équation 3.44 multiplié par  $n_0$ . Cette équation montre une structure complexe. Il est donc indispensable de se placer dans les conditions les plus favorables pour pouvoir la simplifier.

Si les dimensions du jet sont grandes devant celles du laser (cf. figure 3.6), on se retrouve dans le cas du paragraphe précédent. C'est-à-dire que les variations de densité d'ions sont négligeables à l'échelle du diamètre du faisceau laser. Le régime non-saturé s'étend sur une plage d'énergie petite devant le régime saturé dans lequel le volume de saturation s'accroît (en  $\ln E$ ).

À l'inverse, si le jet est de taille petite devant celle du laser (cf. figure 3.6), le flux est presque le même pour tous les ions, les effets de volume sont réduits. Dans ce cas, on peut considérer le profil laser comme constant.

Nous avons tout intérêt à nous placer dans le cas d'un faisceau laser dont les dimensions sont petites devant celles du jet d'ions, le terme  $\bar{L}$  se réduisant alors à une constante  $L$ . Les effets de densité étant également réduits, on peut légitimement déduire la section efficace



en utilisant l'équation 3.24 ou l'équation 3.34.

## 3.3 Montage expérimental et acquisition des données

On décrit dans cette section le dispositif mis en place pour réaliser des mesures de la section efficace de photodétachement de  $H^-$  à 1064 nm.

### 3.3.1 Saturation d'un jet de $H^-$ : principe général de l'expérience

Le laser Nd:YAG pulsé, émettant dans l'infrarouge à 1064 nm, que l'on utilise est envoyé dans la zone d'interaction au travers d'un système optique comprenant, une lame  $\lambda/2$  et un prisme de Glan-Taylor. La rotation de la lame permet, en modifiant l'orientation de la polarisation rectiligne du laser, de moduler la proportion de la puissance transmise par le prisme. L'impulsion est ensuite envoyée dans la chambre d'interaction où elle intersecte le jet d'ions  $H^-$  produisant ainsi des neutres par photodétachement. Dans le meilleur des cas, avec une impulsion de 2 mm de waist et de 30 ns de durée, un jet de diamètre 2 mm et des ions de vitesse  $4,8 \cdot 10^5$  m/s, le volume de saturation est de  $60 \text{ mm}^3$ . Avec des courants d'ions de l'ordre du nanoampère, la densité moyenne d'ions est de  $4,2 \cdot 10^9$  ions/ $\text{m}^3$ , ce qui fait une production d'au mieux 250 neutres par impulsion. Une impulsion contenant une énergie de 1 mJ seulement éclaire le faisceau d'ions avec  $5,4 \cdot 10^{15}$  photons  $\gg$  250. Le nombre absolu de neutres produit est si faible, même dans le cas où il y a saturation, que l'on peut considérer que le nombre de photons, avant et après interaction, est le même.

Un dispositif de détection constitué d'un joulemètre et d'un multiplicateur d'électrons à dynodes permettent respectivement de mesurer, l'énergie des impulsions laser et un signal dont l'intégrale est proportionnelle au nombre de neutres produits (cf. figure 3.7).

Les signaux issus du joulemètre et du multiplicateur d'électrons sont, soit moyennés sur quelques centaines de tir du laser puis enregistrés, soit enregistrés individuellement tir après tir de façon synchrone.

Dans la suite, on décrit un peu plus dans le détail chacun des éléments essentiels du dispositif expérimental.

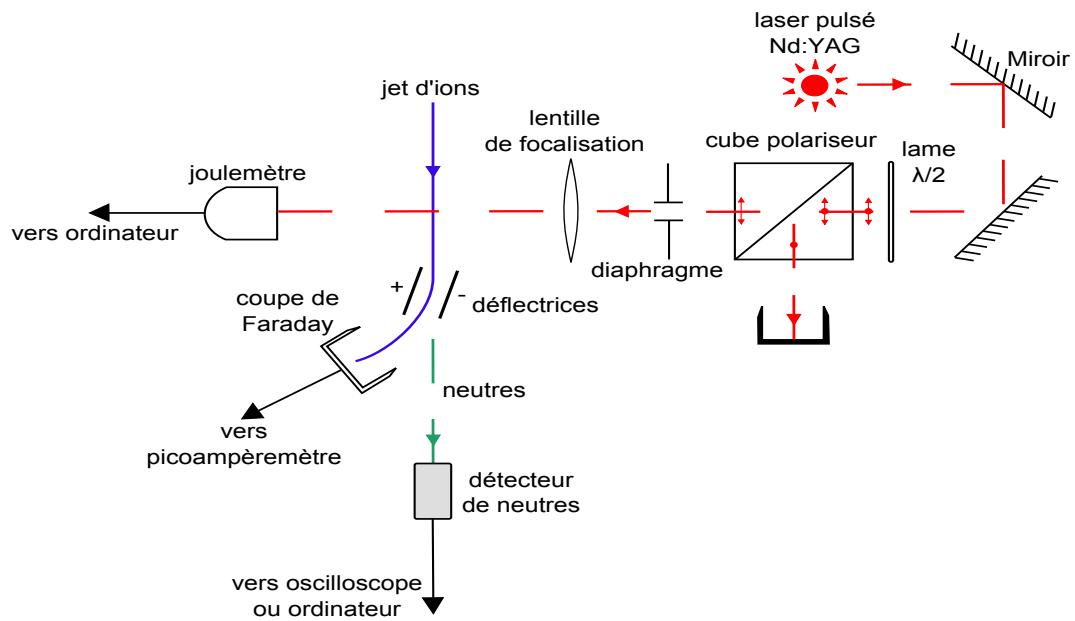


FIGURE 3.7 – Schéma de l'expérience de la saturation du photodétachement de  $H^-$  à  $1064\text{ nm}$ . Le laser Nd:YAG émet une onde polarisée rectilignement dont le plan de polarisation peut être modifié à l'aide de la lame  $\lambda/2$ . Cette lame, couplée à un cube polariseur, permet de choisir l'énergie des impulsions qui intersectent le jet d'ions (sous vide). L'énergie des impulsions est mesurée en bout de course par un joulemètre. Le courant d'ions et les neutres sont mesurés en parallèle. Le diaphragme n'est présent que lors des expériences avec un grand waist. L'échelle n'est pas respectée.

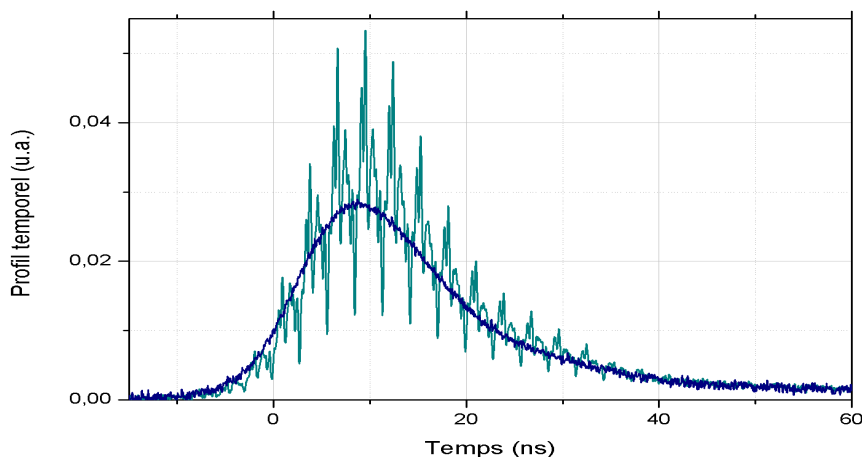


FIGURE 3.8 – En vert-bleu, profil temporel d’une impulsion multimode du laser Nd:YAG lorsqu’il n’est pas injecté, on observe une période d’oscillations de 3 ns. En bleu, l’impulsion est monomode et le profil est parfaitement lisse. Dans le cas monomode l’impulsion prend sensiblement la forme du carré d’une sécante hyperbolique asymétrique (cf. texte) de 4,4 ns temps de montée et 20,8 ns de temps de descente. Ces profils ont été mesurés à l’aide d’une photodiode (Newport® modèle 818-BB-31) de temps de réponse  $< 225$  ps, et un oscilloscope 2,5 GHz (Agilent Technologies DSO9254A). La décroissance lente du signal observable suite au passage des impulsions s’explique par la mauvaise réponse de la photodiode. Les profils mesurés avec une autre photodiode (Thorlabs, modèle DET10A, silicium) de 1 ns de temps de réponse, pour la détermination de la section efficace ne sont pas affectés par ce problème.

### 3.3.2 Le laser Nd:YAG pulsé

Ce laser pulsé Q-switché injecté émet des impulsions polarisées rectilignement monomodes de quelques dizaines de millijoules (5 mJ plus amplificateur flash) et d’environ 30 ns de durée (cf. sous-section 2.3.1 du chapitre 2).

#### 3.3.2.1 Profil temporel d’une impulsion laser

Une photodiode (Newport®, modèle 818-BB-31, InGaAs) de temps de réponse  $< 225$  ps et un oscilloscope 2,5 GHz (Agilent Technologies DSO9254A) nous permettent de mesurer le profil temporel des impulsions monomode ou multimode (cf. figure 3.8).

On remarque sur la figure, lorsque le laser est multimode, la présence de modulations rapides de l’intensité en fonction du temps issues de l’interférence entre les différents modes longitudinaux qui composent l’impulsion. La période de battement est de  $\sim 3$  ns, à comparer au temps de transit des ions au sein du faisceau laser qui varie selon la taille du

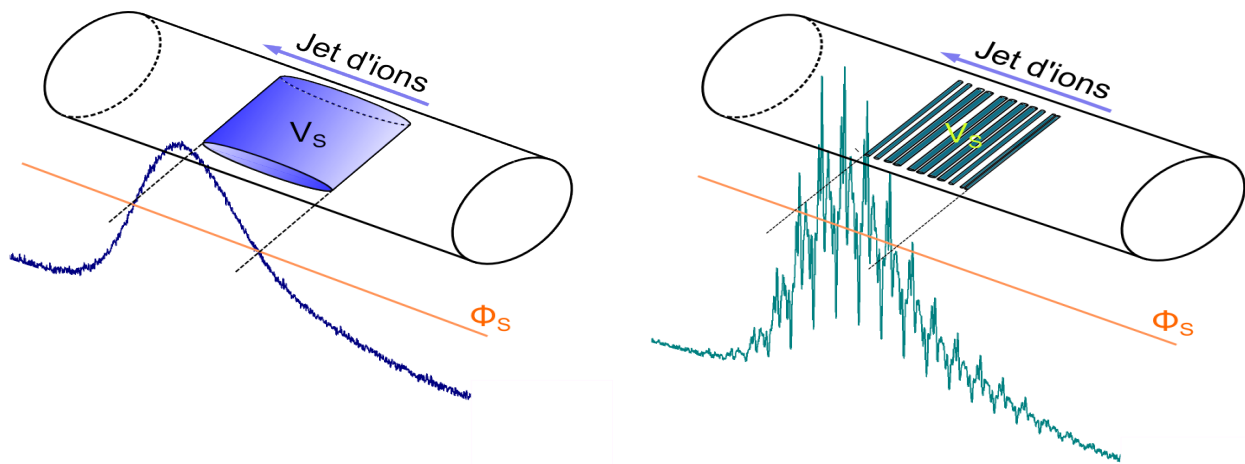


FIGURE 3.9 – À gauche, représentation schématique de la forme du volume de saturation lorsque le photodétachement a lieu avec une impulsion monomode. La base du cylindre est elliptique sur la figure. L’asymétrie temporelle de l’impulsion introduit une distorsion par rapport à cet idéal. La partie verticale la plus haute du volume est centrée sur le maximum de l’impulsion. L’ellipse est une très bonne approximation tant qu’on reste dans un régime modérément saturé. À droite, même situation mais lorsque l’impulsion est multimode. On observe que la partie de l’impulsion pour laquelle le flux dépasse le seuil de saturation se fractionne en plusieurs morceaux. Le défilement du jet d’ions donne naissance à un volume de saturation multi-cylindrique.

waist, de 8,3 à 0,29 ns pour un waist allant de 2 mm à 70  $\mu\text{m}$ . Les variations d’intensité sont d’autant mieux perçues par les ions que la durée du transit est brève. Avec un waist de 2 mm, les oscillations sont partiellement moyennées.

En multimode, les surintensités (par rapport à la moyenne) font démarrer la saturation à plus basse énergie qu’en monomode (rupture de la pente 1 en log-log). Lorsque l’énergie d’une impulsion est suffisamment grande pour qu’il existe des zones où le flux de photons dépasse le flux de saturation, le volume de saturation commence à exister. Sa structure est très différente de celle obtenue avec une impulsion monomode, lisse et monotone (cf. figure 3.9). Dans la direction de propagation du faisceau laser (axe  $Oz$ ), il apparaît plusieurs volumes de topologie cylindrique (de sections différentes) dont le nombre est égal au nombre d’oscillations dont le flux (l’énergie) dépasse le seuil de saturation. Les creux d’intensité, quant à eux, retardent l’arrivée de la saturation complète, ce qui se traduit par une flexion (à haute énergie) plus tardive, de la courbe de saturation, vers des pentes plus faibles que la pente du comportement asymptotique (fonction affine en représentation lin-log, cf. figure 3.3).

Des mesures expérimentales du profil de saturation ont été réalisées dans les deux cas, monomode et multimode, puis comparées (cf. section 3.4).

Pour réaliser nos mesures de section efficace, nous choisissons d’utiliser des impulsions

monomodes en raison de la stabilité de leur forme temporelle. En multimode, il peut y avoir des variations de fréquences des modes constituant l'impulsion qui entraînent une mauvaise répétabilité d'une impulsion à l'autre.

L'impulsion est générée à partir de l'énergie emmagasinée initialement (avant le Q-switch) dans le milieu amplificateur (cristal de Nd:YAG). Les temps caractéristiques de montée et descente de l'impulsion dépendent de l'énergie emmagasinée et des pertes intracavité. Le temps de montée dépend de ces deux paramètres. Le temps de descente dépend uniquement des pertes, la quasi-totalité de l'énergie du milieu amplificateur ayant été rayonnée. Ces différences expliquent l'asymétrie du profil temporel (cf. [Sie86], chapitre 26, pp. 1018-1019). L'ajustement de ce profil par le carré d'une sécante hyperbolique asymétrique :

$$P(t; K, C, \tau, T_1, T_2) = K + \frac{C}{\left( e^{-\frac{t-\tau}{T_1}} + e^{\frac{t-\tau}{T_2}} \right)^2}, \quad (3.46)$$

permet de chiffrer les temps de montée et de descente de l'impulsion. Ces temps sont typiquement  $T_1 = 5$  ns pour la montée et  $T_2 = 20$  ns pour la descente (cf. figure 3.8). Les autres paramètres de l'ajustement  $K$ ,  $C$ ,  $\tau$  représentent respectivement, le fond, un facteur de normalisation et un paramètre de recentrage temporel.

Durant une expérience, les variations, d'une impulsion à l'autre, de ces temps caractéristiques sont inférieures à la nanoseconde.

**Prise en compte de l'asymétrie de l'impulsion dans le modèle du volume de saturation** Le calcul analytique du volume de saturation n'est valide que si les profils spatio-temporels de l'impulsion laser sont gaussiens. Or, on vient de voir que le profil temporel présente une forme de sécante hyperbolique asymétrique au carré.

Pour décrire au mieux la forme de l'impulsion mesurée, tout en conservant la possibilité d'une résolution analytique du problème, on utilise deux gaussiennes de durées caractéristiques  $\tau_1$  et  $\tau_2$  (ces durées ne sont pas définies de la même façon que  $T_1$  et  $T_2$  et sont donc différentes) dont les valeurs sont typiquement de 15 ns et de 20 ns respectivement (cf. figure 3.10).

Le signal de neutres dans le régime saturé est donc simplement la moitié de la somme des contributions de deux impulsions laser qui ne diffèrent que par leur durée caractéristique :

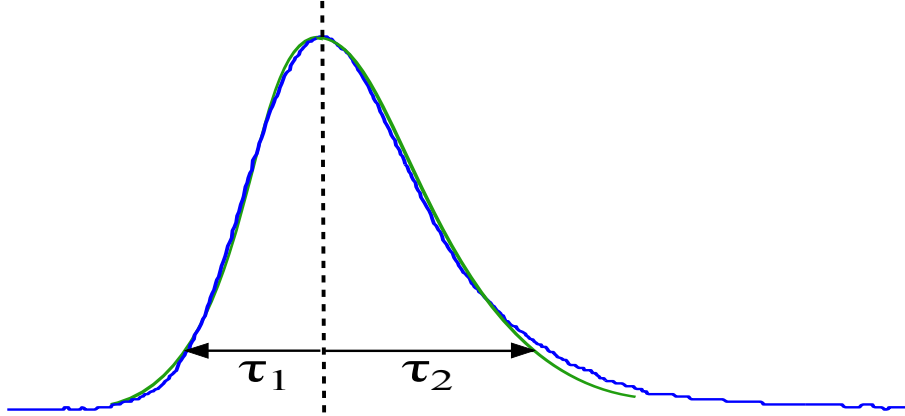


FIGURE 3.10 – Profil temporel d’une impulsion laser (sécante hyperbolique au carré, courbe bleue) dont on approche la forme avec les moitiés de deux gaussiennes de durées caractéristiques  $\tau_1$  et  $\tau_2$  (courbe verte).

$$N = \frac{\pi}{4} n_0 L w_0^2 \sqrt{1 + \rho_1} \left[ \ln E - \ln \left( \frac{\pi w_0^2 \sqrt{1 + \rho_1} \hbar \omega}{2 \sigma} \right) + \gamma \right] + \frac{\pi}{4} n_0 L w_0^2 \sqrt{1 + \rho_2} \left[ \ln E - \ln \left( \frac{\pi w_0^2 \sqrt{1 + \rho_2} \hbar \omega}{2 \sigma} \right) + \gamma \right], \quad (3.47)$$

où  $\rho_1 = \frac{v\tau_1}{w_0}$  et  $\rho_2 = \frac{v\tau_2}{w_0}$ .

Cette expression peut se réécrire sous la forme :

$$N = p_2 \ln E + d, \quad (3.48)$$

où  $p_2 = \frac{\pi}{4} n_0 L w_0^2 (\sqrt{1 + \rho_1} + \sqrt{1 + \rho_2})$  et

$$d = \frac{\pi}{4} n_0 L w_0^2 \left[ (\sqrt{1 + \rho_1} + \sqrt{1 + \rho_2}) \left[ \ln \left( \frac{2\sigma}{\pi w_0^2 \hbar \omega} \right) + \gamma \right] - \sqrt{1 + \rho_1} \ln \sqrt{1 + \rho_1} - \sqrt{1 + \rho_2} \ln \sqrt{1 + \rho_2} \right].$$

Le rapport de ces deux paramètres est lié à l’énergie de saturation  $E_S$  par la relation :

$$\frac{d}{p_2} = -\ln E_S = \gamma - \ln \left( \frac{\pi}{2} w_0^2 \hbar \omega \right) - \Delta + \ln \sigma. \quad (3.49)$$

où  $\Delta = \frac{\sqrt{1+\rho_1} \ln \sqrt{1+\rho_1} + \sqrt{1+\rho_2} \ln \sqrt{1+\rho_2}}{\sqrt{1+\rho_1} + \sqrt{1+\rho_2}}$ .

La section efficace s’écrit alors :

$$\sigma = S \frac{\pi}{2} w_0^2 e^{\Delta} \frac{\hbar \omega}{E_S}. \quad (3.50)$$

Si  $\rho_1 = \rho_2$  (profil temporel gaussien et symétrique), on retrouve l'équation 3.34.

### 3.3.2.2 Profil spatial

Un mode spatial simple à produire et à modéliser qui ne présente pas de creux d'intensité et dont l'énergie est confinée près de l'axe de propagation, est le mode fondamental gaussien TEM<sub>00</sub>. On cherche dans notre expérience à se rapprocher de cet optimum. La distribution d'une petite partie de l'énergie dans quelques modes d'ordres supérieurs est inévitable en raison de l'imperfection du couplage dans la cavité laser, des optiques etc. Ce mode est aussi celui qui a été utilisé dans le modèle qui visait à établir l'expression du volume de saturation (cf. sous-section 3.2.2.2)

Le profil bidimensionnel d'intensité du laser est mesuré à l'aide d'une caméra haute-résolution (1,4 mégapixels, pixels d'aire  $9,3 \times 9,3 \mu\text{m}^2$ , Newport LBP-HR), sensible dans le visible et l'infrarouge proche, de 350 à 1310 nm. La caméra accepte un déclenchement permettant de réaliser de la profilométrie en régime pulsé.

Nous réalisons des expériences de saturation avec des faisceaux dont le waist est fixé entre 2 mm et 70  $\mu\text{m}$ . On prend soin, pour chaque expérience, de bien centrer dans la direction longitudinale Oz, le waist du laser sur le jet de manière à toujours pouvoir considérer comme négligeables les variations de flux dans la direction de propagation du laser. La longueur de Rayleigh, de 11,8 m à 1,45 cm est dans tous les cas supérieure au diamètre du jet (2 mm).

Nous nous sommes aperçus que, dans le cas d'un faisceau laser de  $\sim 2$  mm de waist, l'énergie des impulsions en amont de la zone d'interaction était  $\sim 20$  % plus grande que l'énergie en aval. Nous n'avons pas d'argument clair pour expliquer une telle différence. Pour cerner ce problème, nous disposons sur le chemin du faisceau, juste avant l'entrée dans la zone d'interaction (cf. figure 3.7), un diaphragme de diamètre ( $\varnothing = 4,15$  mm) suffisamment petit pour éliminer tout signal parasite mais suffisamment grand pour tronquer le moins possible le faisceau utile.

Lorsque l'on travaille avec des petits waists (de l'ordre d'une centaine de micromètres), il n'est pas nécessaire d'avoir beaucoup d'énergie par impulsion pour atteindre la saturation. On peut retirer l'amplificateur flash.

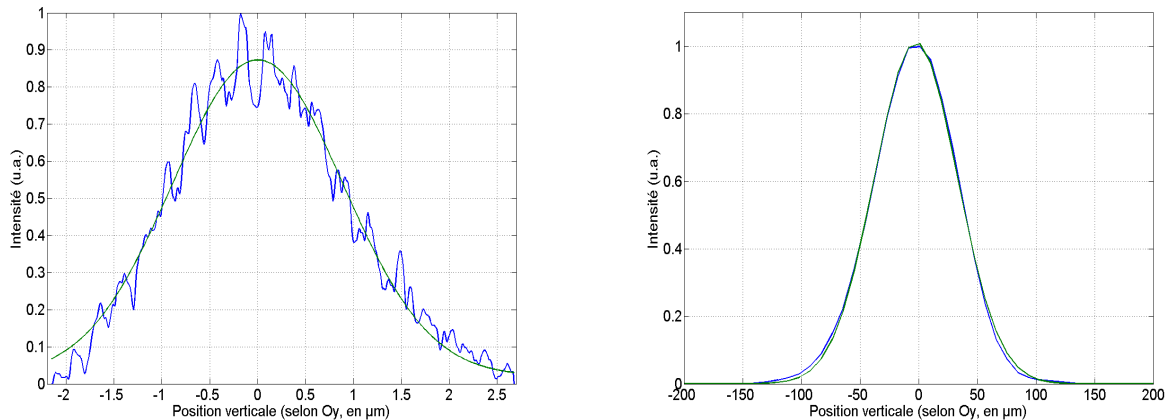


FIGURE 3.11 – Profils spatiaux verticaux (coupe du profil 2D selon un axe parallèle à  $Oy$  passant par le barycentre d’intensité du profil mesuré) du faisceau laser, mesurés avec la caméra Newport LBP-HR. À gauche, profil d’un faisceau de  $\sim 2$  mm de waist mesuré à 30 cm en amont de la zone d’interaction (longueur de Rayleigh supérieure à 11 mètres). Les oscillations sont dues à deux systèmes d’interférences. Le premier est un système d’anneaux résultant de la diffraction après le passage du diaphragme. Le second est un système de franges dues à des réflexions sur la face d’entrée de la caméra. La courbe verte correspond à l’ajustement du profil avec une gaussienne. À droite, profil spatial d’un faisceau laser de  $\sim 70 \mu\text{m}$  de waist. Le faisceau est monomode spatial (mode fondamental gaussien) comme semble le montrer le résultat de l’ajustement avec une gaussienne (courbe verte) et la valeur du  $M^2$  mesurée (proche de l’unité).

**Mesure des waists par imagerie de faisceau** On représente sur la figure 3.11, deux exemples de profils verticaux (selon  $Oy$ ), l’un avec un waist de  $\sim 2$  mm, l’autre avec un waist de  $\sim 70 \mu\text{m}$ .

On observe, sur le profil du laser à grand waist de 2 mm, des oscillations qui résultent de la superposition de deux systèmes d’interférences : un système d’anneaux qui est dû à la diffraction du faisceau lors de son passage dans le diaphragme, et un système de franges qui résulte de l’interférence entre le faisceau principal et les réflexions sur la face d’entrée de la caméra.

Le profil du laser avec un waist de  $\sim 70 \mu\text{m}$  s’ajuste parfaitement avec une gaussienne (la valeur mesurée du  $M^2$  confirme qu’il s’agit d’un  $\text{TEM}_{00}$ , cf. infra). Son profil 2D montre que la distribution d’intensité est légèrement elliptique.

**Mesure du  $M^2$**  On sait que, dans le régime saturé, l’évolution du volume de saturation, qui existe dans les zones où le flux lumineux est le plus fort (et suffisamment fort), détermine la production de neutres.

Le mode fondamental gaussien ( $\text{TEM}_{00}$ ) d’un laser est celui qui confine le plus l’énergie.



C'est donc dans les zones occupées par ce mode que le flux est le plus fort.

Expérimentalement, un faisceau laser n'est jamais parfaitement monomode (en particulier, monomode  $TEM_{00}$ ). Pour extraire la taille du mode fondamental incrusté dans le profil d'intensité d'un faisceau multimode, il faut mesurer son  $M^2$ . Le  $M^2$  est un nombre, supérieur ou égal à un, qui permet de quantifier le degré de différences du profil d'un faisceau laser par rapport au profil idéal gaussien ( $TEM_{00}$ ).

L'expérience consiste à mesurer l'évolution de la taille du faisceau laser  $w$ , de part et d'autre de son waist  $w_1$  (waist mesuré) sur quelques longueurs de Rayleigh, en fonction de la position sur son axe de propagation (axe horizontal  $Oz$ ). La symétrie cylindrique du faisceau n'étant pas parfaite, on a mesuré le waist (et donc le  $M^2$ ) selon les deux directions  $Ox$  et  $Oy$  en imageant le faisceau laser à l'aide de la caméra Newport LBP-HR (cf. figure 3.12).

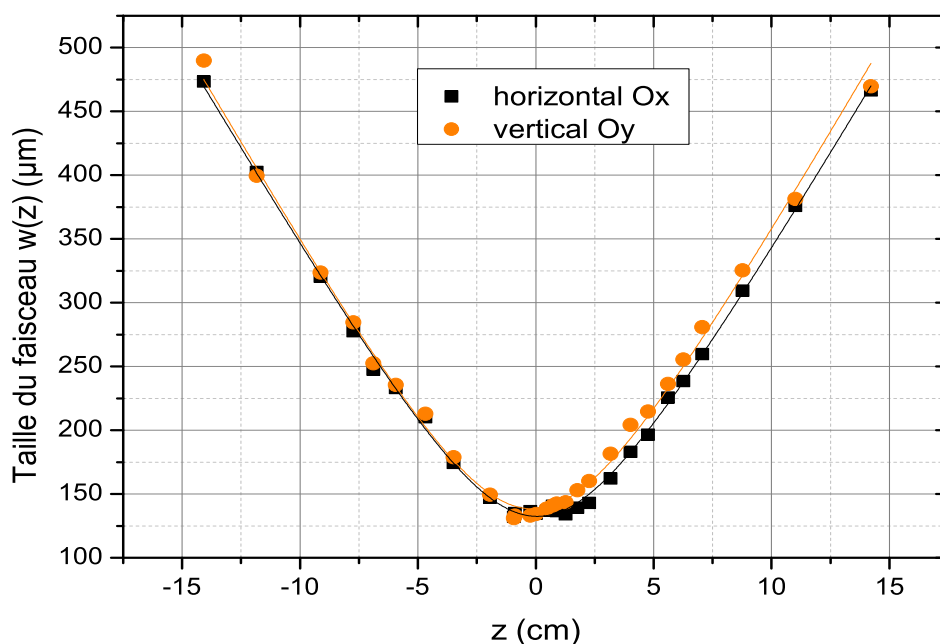


FIGURE 3.12 – Mesure de la taille horizontale (points noirs) et verticale (points oranges) du faisceau laser en fonction de la position sur l'axe  $Oz$ . Le résultat de l'ajustement par la fonction 3.51 est représenté par les courbes noire (horizontale) et orange (verticale). On trouve  $M_x^2 = 1,246(10)$  et  $M_y^2 = 1,331(18)$ .

L'ajustement de ces courbes avec l'expression :

$$w^2(z; M, w_1, z_0) = w_1^2 + \frac{M^4 \lambda^2}{\pi^2 w_1^2} (z - z_0)^2, \quad (3.51)$$

caractéristique des faisceaux gaussiens, permet de remonter à  $M^2$ .  $M^2$ ,  $w_1$  et  $z_0$  sont les paramètres d'ajustement,  $w_1$  est le waist mesuré et  $z_0$  est sa position sur l'axe Oz.

On trouve  $M_x^2 = 1,246(10)$  ( $M_x = 1,116(5)$ ) et  $M_y^2 = 1,331(18)$  ( $M_y = 1,154(8)$ ). Le faisceau est de très bonne qualité.

Ces valeurs permettent de remonter au waist  $w_0$  (selon Ox et Oy) du mode fondamental incrusté en utilisant la relation  $w_0 = \frac{w_1}{M}$ .  $w_0$  est le paramètre qui est utilisé dans les équations du modèle du volume de saturation et, en particulier, celles donnant la section efficace (cf. sous-sections 3.2.2.2 et 3.2.2.3).

### 3.3.3 Modulation de l'énergie des impulsions laser

Pour sélectionner précisément l'énergie d'une impulsion, on utilise un système optique comprenant une lame demi-onde et un prisme polariseur de Glan-Taylor.

La lame  $\lambda/2$  d'ordre 0 effectif (Thorlabs WPQ10M-1064) que l'on utilise, est taillée dans un cristal biréfringent uniaxe de quartz traité anti-reflet à la longueur d'onde de 1064 nm (intensité réfléchie inférieure à 0,25 %) et est capable de supporter des intensités de 100 mJ/mm<sup>2</sup> (pour une impulsion de 10 ns de durée).

Le prisme polariseur de Glan-Taylor (CVI Melles Griot PBSO-1064-100) est également traité anti-reflet à 1064 nm (intensité réfléchie inférieure à 0,25 %). Son seuil de dommage est élevé, de 5 J/cm<sup>2</sup>, pour des impulsions de 20 ns émises à une cadence de 20 Hz à 1064 nm (cf. figure 3.7).

### 3.3.4 Le jet d'ions : profil spatial

On a vu, dans la section 3.2.2.4, que la forme du jet et la répartition spatiale des ions en son sein, peut jouer un rôle fort sur l'évolution de la population de neutres en fonction de l'énergie des impulsions. Et en particulier à haute énergie, où elles influent sur les paramètres asymptotiques du régime saturé (droite affine en lin-log, cf. section 3.2.2.4). Il est donc important de mesurer ce profil.

Pour nos expériences nous avons utilisé deux géométries distinctes pour le jet. L'une circulaire et l'autre rectangulaire. Le choix de la géométrie se fait en plaçant un orifice

dont on choisit la forme en amont de la zone d'interaction (placé à  $\sim 15$  cm de la zone d'interaction). Dans le premier cas, on utilise un diaphragme de 2 mm de diamètre, dans l'autre, une fente rectangulaire de dimensions  $2 \times \sim 0,2$  mm<sup>2</sup>, le grand côté étant orienté selon l'axe  $Oz$  (horizontalement), qui est la direction de propagation du laser. Cette dernière géométrie, en nappe, se rapproche, à une échelle très réduite, de celle proposée pour les injecteurs de neutres de DEMO (cf. figure 3.13).

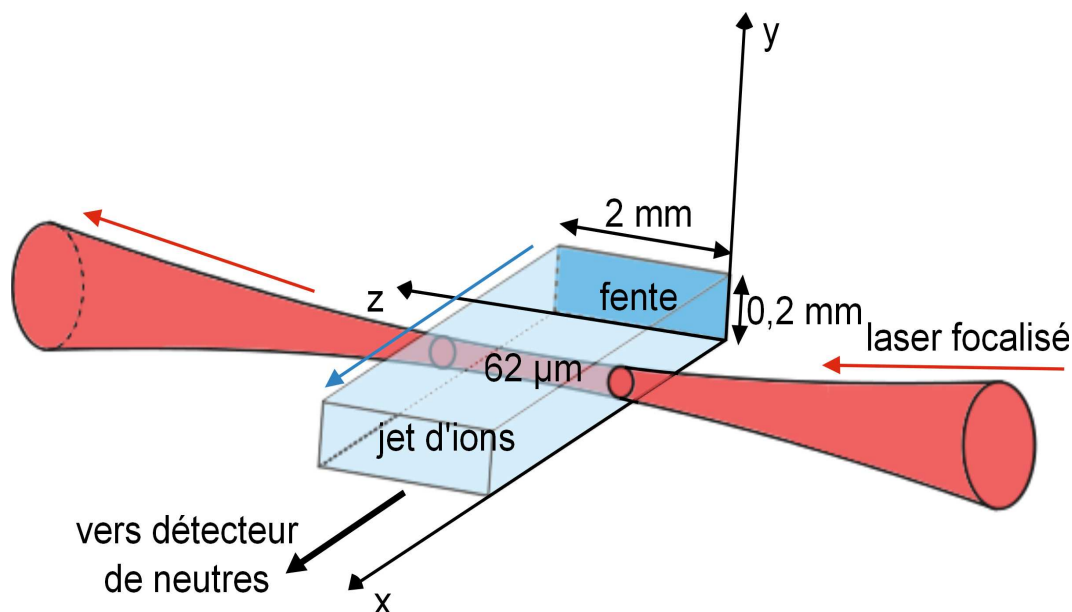


FIGURE 3.13 – Schéma de l'interaction d'un laser focalisé avec un jet d'ions de section rectangulaire (fente  $2 \times 0,2$  mm<sup>2</sup>). Pour mesurer le profil transverse du jet d'ions, le laser est balayé selon la verticale (axe  $Oy$ ). L'échelle n'est pas respectée.

Le profil transverse (selon  $Oy$ , vertical) est mesuré expérimentalement dans les deux cas par *profilométrie laser*. Pour ce faire, le laser pulsé Nd:YAG est fortement focalisé (waist de  $\sim 62$   $\mu\text{m}$ ) puis, balayé sur le jet d'ions par translation verticale de la lentille de focalisation (selon  $Oy$ ). Nous mesurons, pour plusieurs positions, les neutres produits. Le résultat est exposé sur la figure 3.14.

On peut négliger, dans le cas d'un jet d'environ 2 mm, la convolution avec le profil du faisceau laser. On considère donc le profil du jet d'ions comme gaussien de rayon (à  $1/e^2$ ) de 1,1 mm (le résultat de l'ajustement est représenté en rouge sur la figure). Le jet d'ions étant de taille nécessairement finie (ce n'est pas le cas d'une gaussienne), on décide de tronquer son profil à 1,1 mm de rayon.

Dans le cas rectangulaire, le jet semble avoir une largeur (selon  $Oy$ ) de  $\sim 0,2$  mm. Mais il faut garder en tête qu'il s'agit du résultat de la convolution du profil réel du jet d'ions

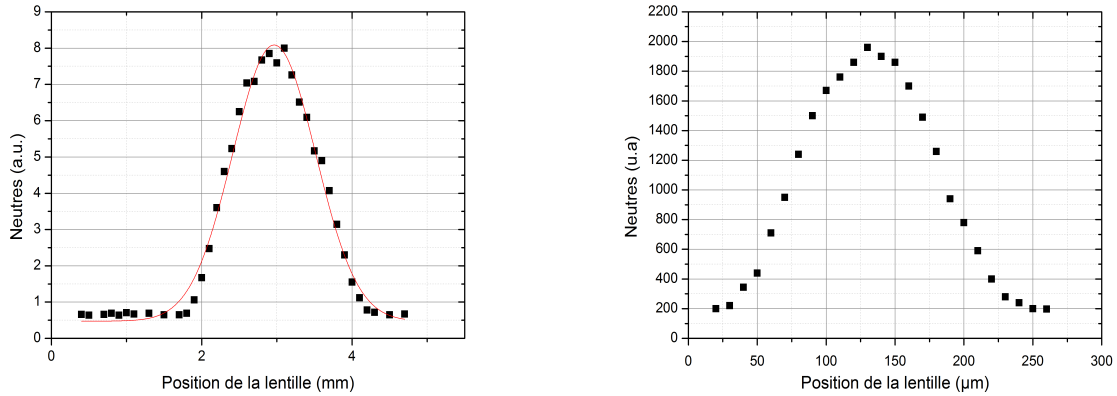


FIGURE 3.14 – Signal proportionnel à la quantité de neutres produite en fonction de la position de la lentille de focalisation. À gauche, on a représenté le profil du jet dans le cas où il traverse un diaphragme circulaire de diamètre 2 mm placé 15 cm en amont de la zone d’interaction. La forme se rapproche d’un trapèze quoique arrondie au sommet, avec un rayon proche de celui du diaphragme. Pour l’analyse des données, on considérera qu’il s’agit d’un profil gaussien. L’ajustement, en rouge, donne un rayon de 1,1 mm (à  $\frac{1}{e^2}$ ). À droite : même courbe mais avec une fente de  $\sim 200 \mu\text{m}$  de large dans la direction transverse  $Oy$ .

avec un faisceau laser de  $\sim 62 \mu\text{m}$  de waist dont les dimensions ne sont pas négligeables devant celles du jet. Le profil réel est probablement moins large et les flancs plus abrupts. Les simulations montrent que ces effets sont faibles (cf. infra), on peut considérer, avec une bonne approximation, que ce profil est carré de  $200 \mu\text{m}$  de large (selon  $Oy$ ). La dimension verticale (selon  $Oy$ ) du volume de saturation doit, pour ne pas englober les zones où la densité d’ions varie beaucoup, être plus petite que cette largeur.

**Origine géométrique de la forme du jet mesuré** À une dimension, l’intensité perçue par un détecteur, d’une source placée derrière deux diaphragmes prend, lorsqu’on trace l’intensité qui lui parvient en fonction de l’écart de sa position à l’axe de symétrie, la forme d’un trapèze. À deux dimensions, il en va différemment du fait que les diaphragmes peuvent avoir des formes variées.

Dans le cas présent où le jet prend la forme d’une nappe, nous sommes en présence de deux orifices. Le premier, un diaphragme de forme circulaire, est placé à  $\sim 55 \text{ cm}$  de la zone d’interaction. Le second correspond à la fente à laquelle on a fait référence plus haut. Elle est située à  $15 \text{ cm}$  de la zone d’interaction. On peut calculer la forme du signal en fonction de la position d’une lentille fictive (on ne considérera pas le cas de deux diaphragmes circulaires). On trouve :

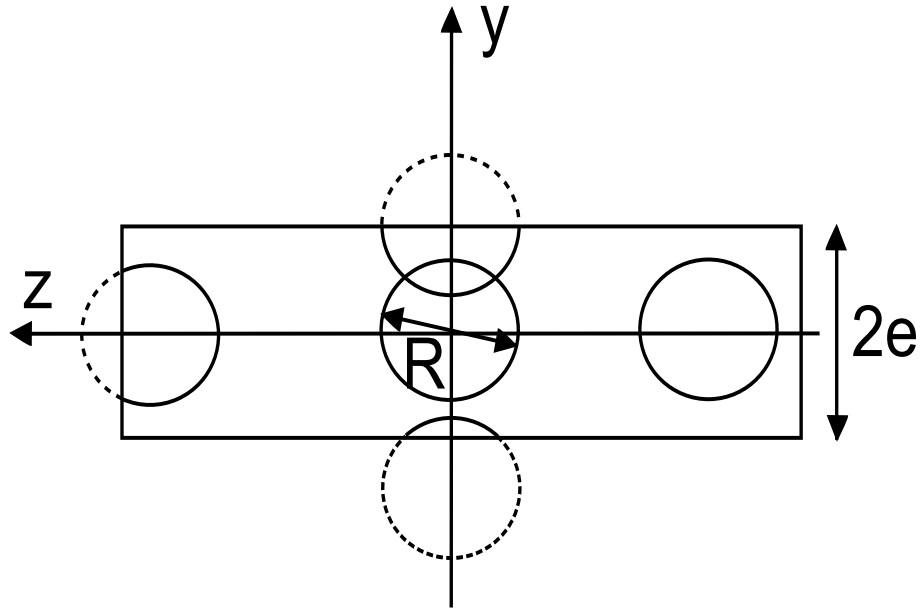


FIGURE 3.15 – Schéma représentant la vision qu’a un observateur situé au niveau de la zone d’interaction et regardant au travers de la fente située à 15 cm. Selon la position de l’observateur dans le plan  $Oyz$ , la position relative du diaphragme situé à 55 cm change. Évidemment, la position apparente de la fente par rapport diaphragme change aussi. Pour plus de clarté, nous n’avons pas représenté cet effet sur la figure. La densité d’ions au point d’observation est proportionnelle à la section visible du diaphragme. Dans le cas représenté, le diamètre apparent du diaphragme est plus petit que  $2e$ . Le profil de densité présente une forme trapézoïdale dans ce cas (plateau).

$$\frac{S}{R^2} = \arcsin\left(\frac{y+e}{R}\right) - \arcsin\left(\frac{y-e}{R}\right) + \frac{1}{2} \left[ \sin\left(2 \arcsin\left(\frac{y+e}{R}\right)\right) - \sin\left(2 \arcsin\left(\frac{y-e}{R}\right)\right) \right]. \quad (3.52)$$

Où  $R$  est le rayon apparent qu’a le diaphragme le plus éloigné, vu depuis la zone d’interaction.  $e$  est la demi-largeur de la fente.  $y$  est l’altitude du point de focalisation du faisceau laser sur le jet (cf. figure 3.15).

Cette expression doit être convoluée avec le profil gaussien du laser (waist de  $62 \mu\text{m}$ ). Le résultat est exposé sur la figure 3.16 dans le cas où le diaphragme situé à 55 cm de la zone d’interaction a un diamètre de 1,5 et 0,5 mm.

Outre sa largeur, la forme du profil calculé est similaire au profil expérimental dans le cas où le diamètre du diaphragme est supposé être de 1,5 mm. Lorsque le diamètre du diaphragme est réduit à 0,5 mm, le profil se rapproche d’une forme trapézoïdale (le diamètre apparent  $R$  du diaphragme est plus petit que  $2e$ ).

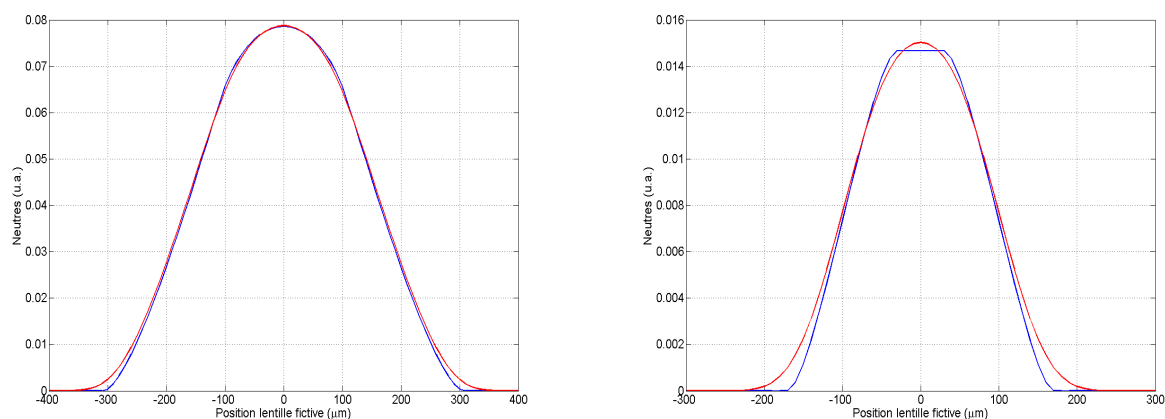


FIGURE 3.16 – À gauche, profil simulé du jet d’ions dans le cas où le jet traverse, à 55 cm de la zone d’interaction, un diaphragme de 1,5 mm de diamètre puis la fente (située à 15 cm de la zone d’interaction) dont il est question dans le texte. On représente, en bleu, la forme du jet d’ions au niveau de la zone d’interaction et en rouge la forme que l’on mesurerait en balayant un faisceau laser de  $62 \mu\text{m}$  de waist. Autour du maximum, comme pour le profil expérimental, la forme est arrondie. Lorsqu’on s’éloigne de l’axe de symétrie, la densité d’ions décroît à peu près linéairement. La convolution avec le profil laser rend la décroissance plus progressive aux extrémités. À droite, on représenté les mêmes profils mais dans le cas d’un diaphragme de 0,5 mm (à 55 cm). Le profil général se rapproche d’une forme trapézoïdale. La convolution avec le profil laser gaussien adouci les formes de l’ensemble.

### 3.3.5 Détection et acquisition

Après interaction avec le jet d’ions, l’impulsion laser est envoyée sur un joulemètre. Quant aux neutres, ils sont détectés 0,5 m plus loin à l’aide d’un multiplicateur d’électrons.

#### 3.3.5.1 Mesure de l’énergie des impulsions

L’énergie par impulsion nécessaire pour atteindre la saturation dépend du waist du laser. Pour les petits waists (de l’ordre d’une centaine de  $\mu\text{m}$ ), la saturation commence autour de  $100 \mu\text{J}$ . En revanche, pour des grands waists (2 mm), il faut aller au-delà du millijoule (l’évolution de  $E_S$  avec le waist est approximativement linéaire, cf. sous-section 3). Pour mesurer l’énergie des impulsions et être capable, dans tous les cas, d’observer les deux régimes non-saturé et saturé, nous avons utilisé deux joulemètres. Un joulemètre basse énergie (Ophir PE10-C) pour les petits waists et haute énergie (Ophir PE50BF-DIF-C) pour les grands waists (pour les détails, cf. sous-section 2.5.2.2 du chapitre 2).

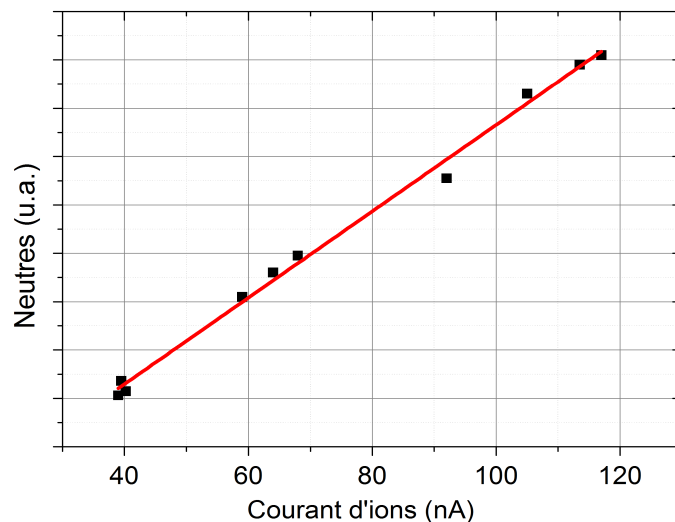


FIGURE 3.17 – On a représenté, sur ce graphe, l'évolution de la quantité de neutres produite lors du passage d'une impulsion laser, en fonction du courant du jet d'ions (courant en sortie de source). La réponse du détecteur est bien linéaire.

### 3.3.5.2 Détection des neutres

Pour détecter les neutres, on utilise un multiplicateur d'électrons à dynodes (Hamamatsu R5150-10, cf. sous-section 2.5.3 du chapitre 2 pour les détails).

Les neutres produits par photodétachement ne sont pas les seuls à être détectés, il y a aussi ceux issus des collisions entre ions au sein du jet. Dans notre cas, l'utilisation d'un laser impulsionnel permet, par temps de vol (cf. sous-section 2.5.3.2 du chapitre 2), d'identifier le signal utile et de l'intégrer soit à l'aide d'un intégrateur à porte (boxcar) soit directement avec un oscilloscope (*Agilent Technologies DSOX3024A*, 200 MHz).

À la différence du boxcar, l'oscilloscope est incapable de renvoyer tir après tir la valeur de l'intégration. Il est donc utilisé dans une optique de moyennage des signaux de neutres détectés (typiquement sur 200 à 1000 impulsions).

**Linéarité de détection** On a vu que, pour mesurer une section efficace par la méthode de la saturation, il est possible, à condition que la réponse du détecteur soit linéaire, de s'affranchir de la connaissance de son efficacité de détection et du courant d'ions. Nous nous sommes assurés de la linéarité de sa réponse en mesurant, en fonction du courant d'ions, le signal de neutres produit après chaque impulsion (cf. figure 3.17).

### 3.3.5.3 Numérisation et acquisition des signaux impulsion par impulsion

Pour numériser les signaux issus du joulemètre et du multiplicateur d'électrons (en réalité, les signaux issus du multiplicateur d'électrons sont intégrés par un boxcar qui renvoie un signal qui leur est proportionnel), nous utilisons le numériseur *USB-6008* de National Instruments<sup>TM</sup>. Il possède huit entrées permettant de numériser jusqu'à huit signaux (des tensions) simples (quatre en différentiel) en même temps à raison de 10 kéch/s répartis sur les différentes voies. La tension maximale acceptée est de 10 V. Le numériseur est, de plus, capable de déclencher ses mesures sur un signal extérieur (type TTL de niveau logique haut).

Ce numériseur est pilotable par LabVIEW. L'écriture d'un programme dédié à ce système a rendu possible la récupération, en temps réel, des données.

Pour synchroniser l'acquisition, nous avons déclenché le joulemètre, le multiplicateur d'électrons et le numériseur, sur un signal TTL produit de façon synchrone à la génération des impulsions. Il nous a ainsi été possible de réaliser les premières mesures tir-à-tir pour ce type d'expériences.

Une fois les données acquises, il nous faut les comparer entre elles, vérifier leur cohérence puis déduire la section efficace de photodétachement soit en utilisant un programme d'ajustement adapté (cf. sous-section 3.4.1), soit en utilisant les résultats du modèle du volume de saturation (cf. équation 3.2.2.3).

## 3.4 Traitement des données expérimentales

### 3.4.1 Programme d'ajustement

Le programme d'ajustement, réalisé sous MatLab<sup>®</sup>, qui nous permet d'extraire une valeur de section efficace, est basé sur une équation à trois paramètres ajustables  $P_1$ ,  $P_2$  et  $P_3$  (cf. équation 3.43) :

$$N = P_1 + P_2 \int_{-\infty}^{+\infty} h(y) \operatorname{erf} \left( \sqrt{2} \frac{L(y)}{L} \right) \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} \left[ 1 - \exp \left( -P_3 \frac{E}{\hbar\omega} \int_{-\infty}^{\infty} f(x + vt, y) g(t) dt \right) \right] dx \right\} dy. \quad (3.53)$$



On suppose que la fonction qui décrit le profil du jet d'ions dans le plan  $Oyz$  est factorisable en une fonction de  $y$  et une fonction de  $z$ . On considère ce profil comme gaussien (dans le cas d'un jet de 2 mm) de demi-largeur à  $\frac{1}{e^2}$  de  $\frac{L}{2}$ , en accord avec la sous-section 3.3.4. Dans le cas d'un jet rectangulaire (2 mm  $\times$  0,2 mm), le produit  $h(y) \operatorname{erf}\left(\sqrt{2}\frac{L(y)}{L}\right)$  sera remplacé par une constante (absorbée par le paramètre  $P_2$ , cf. sous-section 3.3.4).

Les fonctions  $f$  et  $g$  correspondent aux profils spatial et temporel du laser et  $h$  représente le profil du jet d'ions.

Les paramètres de l'ajustement sont représentés par les trois variables  $P_1$  (le fond),  $P_2$  et  $P_3$ .  $P_2$  contient les informations concernant le courant du jet et l'efficacité du détecteur.  $P_3$  est exactement la section efficace de photodétachement.

La méthode des moindres carrés est utilisée à travers la fonction *lsqnonlin* de MatLab<sup>®</sup>, pour calculer les paramètres qui minimisent la somme des résidus (le  $\chi^2$  à un facteur de normalisation près) :

$$\min(\chi^2) = \min\left(\frac{1}{G} \sum_i^n r_i^2\right) = \min\left(\frac{1}{G} \sum_i^n \left[\frac{N_i^{\text{exp}} - N^{\text{theo}}(E_i)}{s_i}\right]^2\right), \quad (3.54)$$

où  $N_i^{\text{exp}}$  et  $s_i$  correspondent respectivement au signal de neutres expérimental et à l'incertitude associée. Le modèle calcule, pour chaque  $E_i$  expérimental, le paramètre  $N^{\text{theo}}(E_i)$  qui minimise la somme du carré des résidus.  $n$  correspond au nombre de points expérimentaux et  $G$  est le nombre de degrés de liberté.

Le somme des carrés des résidus doit être normalisée par le nombre de degrés de liberté  $G = n - n_P$ . Il est égal au nombre de points expérimentaux  $n$  auquel on retranche le nombre de paramètres  $n_P$  utilisés pour l'ajustement (ici égal à trois,  $P_1$ ,  $P_2$  et  $P_3$ ). Un bon ajustement affiche une valeur du  $\chi^2$  de variance inférieure à l'unité.

Une fois le minimum trouvé, nous avons accès à la valeur de la section efficace contenue dans  $P_3$ .

Pour faciliter l'interprétation des paramètres d'ajustement, il est judicieux de tracer la courbe de saturation dans un diagramme log-log. Dans cette représentation, les variations des paramètres d'ajustement  $P_2$  et  $P_3$  se traduisent (en l'absence de fond, c'est-à-dire  $P_1 = 0$ ) par une simple translation de la courbe de saturation. Plus exactement, la variation de  $P_2$  seul conduit à un déplacement global de la courbe selon l'axe vertical, et la variation de  $P_3$  se traduit par un déplacement selon l'axe horizontal. L'ajustement optimisé de ces deux paramètres nécessite une mesure conjointe des deux régimes non-saturé et saturé qui

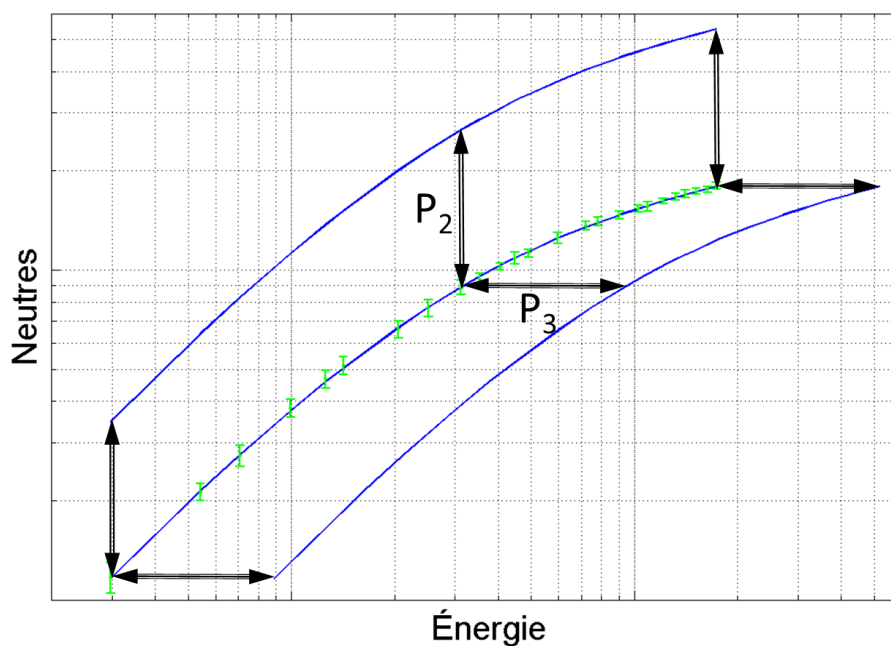


FIGURE 3.18 – Effets, en représentation log-log, des paramètres  $P_2$  et  $P_3$  sur la courbe d'ajustement (le fond,  $P_1$ , est ici considéré comme nul). Le logarithme d'un produit étant la somme des logarithmes des termes du produit, modifier la valeur de  $P_2$  a pour conséquence une translation verticale de la courbe de saturation. Une variation de  $P_3$  peut être compensée par une variation inverse de l'énergie  $E$ . Sur une échelle logarithmique, l'opération qui consiste à faire varier  $P_3$  d'un facteur constant se traduit donc par une translation horizontale de la courbe de saturation.

ajoute les contraintes suffisantes pour que le couple  $(P_2, P_3)$  optimal soit unique. Quant au paramètre  $P_1$ , ses variations ont pour effet, lorsqu'il s'écarte de zéro, de déformer la courbe et en particulier de modifier la valeur de la pente dans le régime linéaire (écart à la pente 1, cf. figure 3.18).

### 3.4.2 Analyse des mesures expérimentales

#### 3.4.2.1 Mesure de la section efficace absolue de $H^-$ à 1064 nm

Parmi l'ensemble des mesures réalisées, celles acquises avec un laser focalisé (waists de  $\sim 70$  et  $\sim 80 \mu\text{m}$ ) sont les seules qui permettent d'extraire une section efficace précise.

**Détails expérimentaux** Avant chaque acquisition de données, on casse le vide, on image le faisceau au niveau de la zone d'interaction à l'aide de la caméra Newport LBP-HR puis on place la lentille de focalisation (sur platines micrométriques) de manière à ce que le waist du faisceau soit au niveau de la zone d'interaction (cf. figure 3.19). Finalement, on mesure le waist vertical (selon  $Oy$ ) et horizontal (selon  $Ox$ ).

Pour les deux waists utilisés, on mesure  $w_x = 68,2(20) \mu\text{m}$ ,  $w_y = 70,6(20) \mu\text{m}$  et  $w_x = 119,7(20) \mu\text{m}$ ,  $w_y = 80,2(20) \mu\text{m}$ . La barre d'erreur est déduite des fluctuations observées durant l'acquisition. Les longueurs de Rayleigh correspondantes sont d'environ 1,4 cm (waist  $\sim 70 \mu\text{m}$ ) et 1,9 cm (waist  $\sim 80 \mu\text{m}$ ). Le jet d'ions ayant un diamètre de 2 mm, on peut considérer que la section du faisceau laser est constante.

On va plus loin que nos prédécesseurs en utilisant une impulsion monomode dont on mesure le profil temporel. On déduit, après ajustement du profil temporel avec l'équation 3.46, le temps de montée  $T_1$  et de descente  $T_2$ . On obtient  $T_1 = 6,08$  ns,  $T_2 = 18,94$  ns (waist  $\sim 70 \mu\text{m}$ ) et  $T_1 = 6,19$  ns,  $T_2 = 18,91$  ns (waist  $\sim 80 \mu\text{m}$ ).

On calcule, à partir des paramètres ci-dessus et en supposant une section efficace de  $4.10^{-21} \text{ m}^2$ , l'ordre de grandeur de l'énergie de saturation  $E_S \sim 20 \mu\text{J}$  (cf. équation 3.18). On peut donc retirer l'amplificateur pompé par flash du laser (cf. sous-section 2.3.2, chapitre 2) et le diaphragme (cf. figure 3.7). Dans ces conditions, le profil spatial du laser est de très bonne qualité (cf. figure 3.11).

On mesure l'énergie des impulsions avec le joulemètre basse énergie (Ophir PE10-C, cf. chapitre 2, sous-section 2.5.2.2).

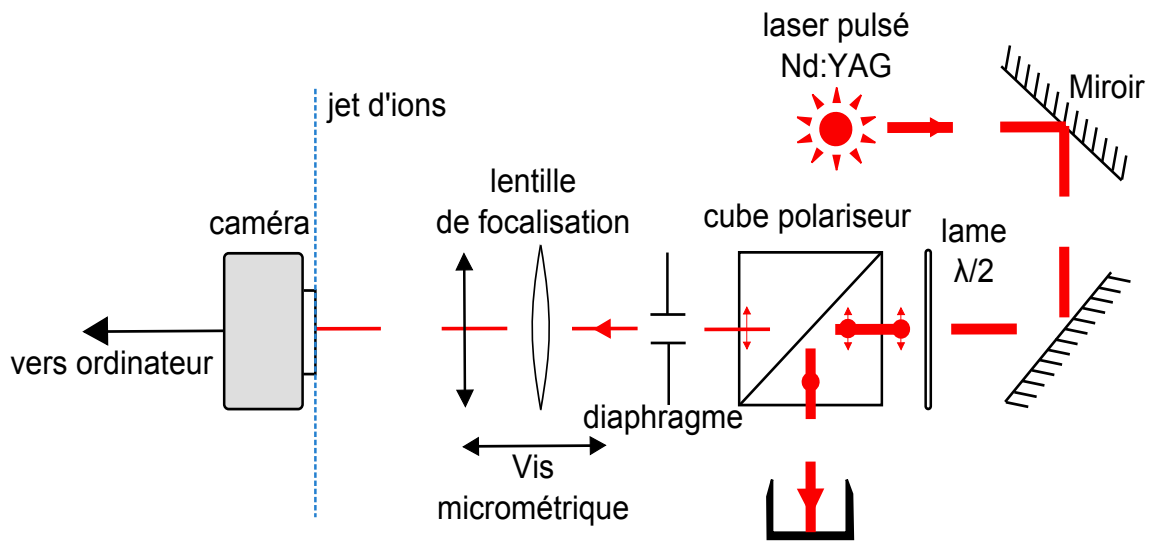


FIGURE 3.19 – Schéma du dispositif expérimental, après remise à l'air de la zone d'interaction, lors de la mesure du waist du faisceau laser. La caméra Newport LBP-HR est disposée, dans la zone d'interaction, au niveau du plan de focalisation du faisceau laser. Le diaphragme n'est présent que dans les cas où le waist du faisceau laser est millimétrique. Les échelles spatiales et temporelles ne sont pas respectées.

**Détermination de la section efficace** Cette géométrie est celle qui s'approche le plus des conditions de notre modèle qui décrit et définit la saturation en se basant sur le concept de volume de saturation (on le nommera, dans la suite, "modèle du volume de saturation", cf. sous-sections 3.2.2.2 et 3.2.2.3). Le profil du jet d'ions sera négligé.

Le "modèle du volume de saturation" permet de remonter, grâce à la contrainte représentée par la constance du paramètre de saturation  $S$ , à une expression algébrique simple de la section efficace absolue de photodétachement et, par extension, des sections efficaces absolues de toutes les interactions lumière-matière linéaires dans l'hypothèse d'un profil spatio-temporel de l'impulsion gaussien (cf. équation 3.34).

En ajustant, en représentation lin-log, les points expérimentaux du régime saturé par une droite, on déduit l'énergie du seuil de saturation  $E_S$  dont dépend la section efficace (cf. figure 3.21). Chaque point correspond à la moyenne sur 2000 impulsions (mesures avec l'oscilloscope *Agilent Technologies* DSOX3024A, 200 MHz). Les points fluctuants sont exclus de l'ajustement.

Outre l'énergie de saturation, on a besoin de la vitesse du jet d'ions de 479820(600) m/s (1200(3) eV d'énergie cinétique), du waist et de la durée d'une impulsion laser.

En réalité, c'est le waist du mode fondamental incrusté dans le faisceau laser (dans les deux directions horizontale  $Ox$  et verticale  $Oy$ ) qui nous intéresse (cf. fin de la

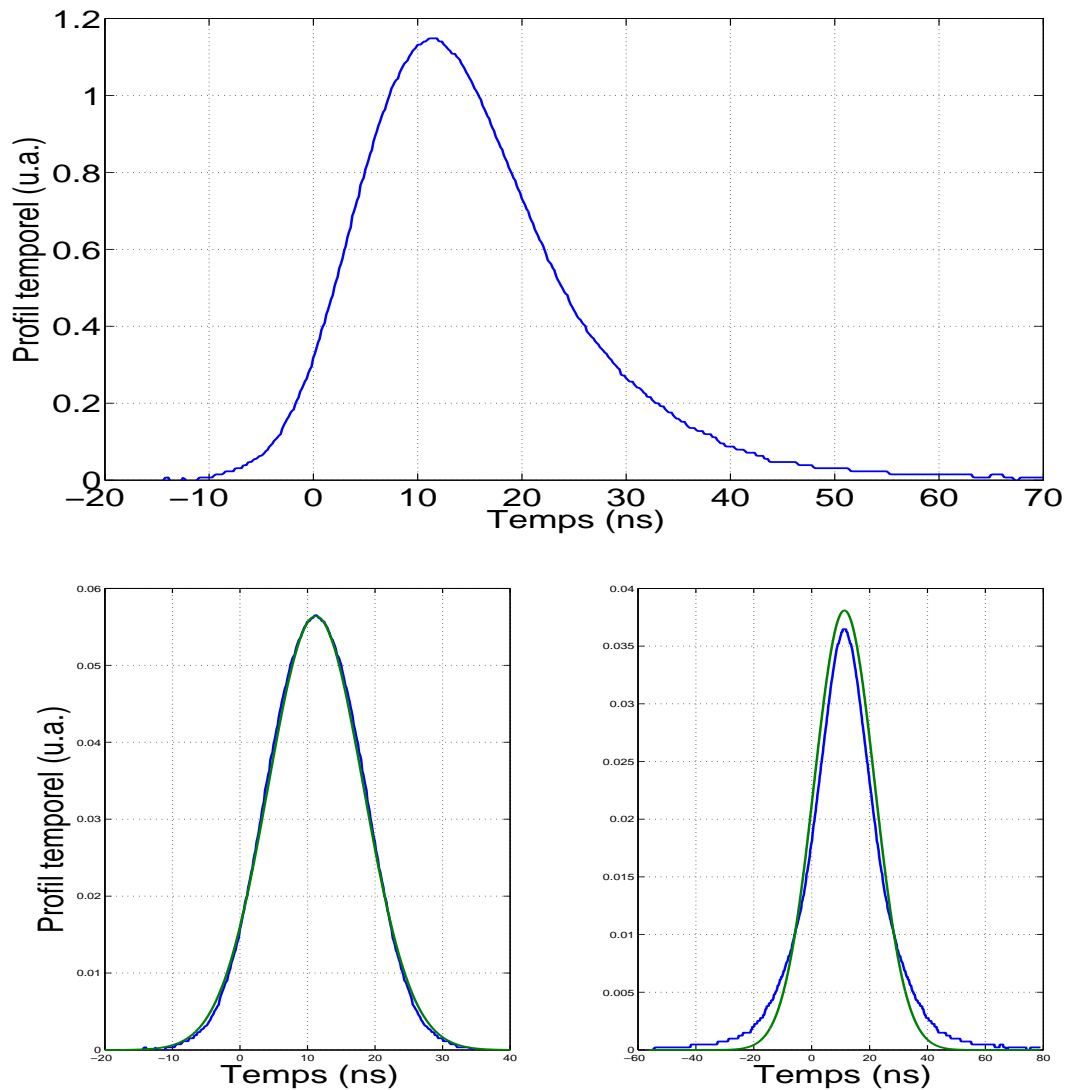


FIGURE 3.20 – En haut : profil temporel mesuré (waist  $\sim 80 \mu\text{m}$ ). En bas : À gauche partie croissante de l'impulsion temporelle. Le profil a été symétrisé pour plus de clarté. La courbe bleue est issue de l'ajustement du profil réel par une sécante hyperbolique asymétrique. La courbe verte représente le résultat du meilleur ajustement d'une gaussienne sur la courbe bleue. À droite, partie décroissante de l'impulsion temporelle (courbe bleue) et résultat de l'ajustement avec un profil gaussien (courbe verte).

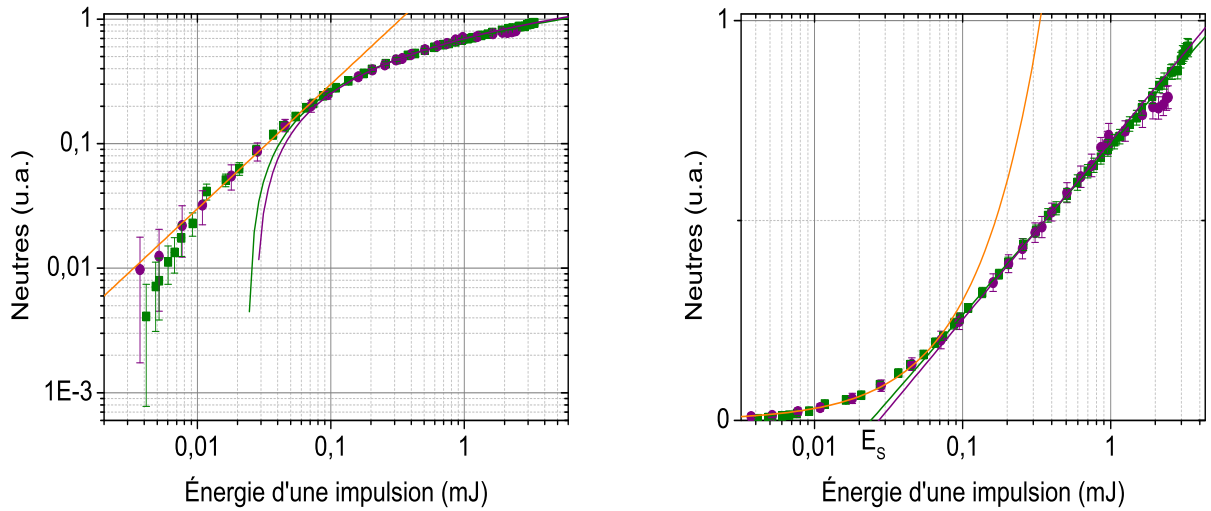


FIGURE 3.21 – À gauche, mesures acquises avec un waist de  $\sim 70 \mu\text{m}$  (points verts) et  $\sim 80 \mu\text{m}$  (points violets) tracées en représentation log-log. La droite orange (de pente 1 en log-log) correspond au régime linéaire (non-saturé). Pour l’ajustement, les points qui s’écartent de la droite de pente 1 (en log-log) n’ont pas été considérés. Les courbes vertes et violettes traduisent l’évolution du volume de saturation pour un waist de  $70 \mu\text{m}$  (courbe verte) et  $80 \mu\text{m}$  (courbe violette). À droite, représentation lin-log des mêmes courbes. Dans le régime saturé, les points expérimentaux suivent asymptotiquement l’évolution du volume de saturation, c’est-à-dire des droites affines. L’abscisse d’intersection de ces droites avec l’axe des énergies est égal à l’énergie de saturation. La saturation démarre à énergie plus basse ( $24,0(21) \mu\text{J}$ ) avec un waist de  $\sim 70 \mu\text{m}$  qu’avec un waist de  $\sim 80 \mu\text{m}$  ( $27,4(68) \mu\text{J}$ ). Les points fluctuants n’ont pas été considérés dans l’ajustement.

sous-section 3.4.1). On calcule, connaissant le waist du faisceau et le M<sup>2</sup> du laser,  $w_{0x} = \frac{w_x}{M_x} = 61,1(22) \mu\text{m}$ ,  $w_{0y} = \frac{w_y}{M_y} = 61,2(22) \mu\text{m}$  (waist  $\sim 70 \mu\text{m}$ ) et  $w_{0x} = 69,5(22) \mu\text{m}$ ,  $w_{0y} = 107,3(23) \mu\text{m}$  (waist  $\sim 80 \mu\text{m}$ ).

Le profil temporel est une sécante hyperbolique au carré. Il faut donc utiliser l'expression de la section efficace 3.50 qui tient compte de l'asymétrie de la forme temporelle de l'impulsion.

Pour déterminer les durées caractéristiques  $\tau_1$  et  $\tau_2$ , on sépare le profil temporel mesuré en sa partie croissante et sa partie décroissante (la séparation étant fixée au niveau du maximum). L'ajustement de celles-ci par des gaussiennes donne  $\tau_1 = 14,45(50)$  ns et  $\tau_2 = 21,24(50)$  ns (waist  $70 \mu\text{m}$ ) et  $\tau_1 = 14,15(50)$  ns et  $\tau_2 = 20,95(50)$  ns (waist  $80 \mu\text{m}$ , cf. figure 3.20).

Les résultats sont rassemblés dans le tableau 3.1.

$w_0$ ( $\mu\text{m}$ )	$p_2$	$d$	$E_S$ ( $\mu\text{J}$ )	$\sigma_1$ ( $10^{-21} \text{ m}^2$ )	$\sigma_2$ ( $10^{-21} \text{ m}^2$ )
$\sim 70$	0,0320(4)	0,339(3)	25,1(57)	3,35(106)	3,50(82)
	0,03290(16)	0,3500(13)	24,0(21)	3,50(64)	3,66(37)
	0,0334(2)	0,3590(12)	21,5(22)	3,91(75)	4,09(44)
$\sim 80$	0,1940(26)	2,040(21)	27,1(68)	3,46(117)	3,62(93)
	0,1990(45)	2,110(36)	24,8(105)	3,78(193)	3,78(170)

TABLE 3.1 – Tableau rassemblant les résultats des mesures expérimentales réalisées avec un faisceau laser focalisé. Les paramètres  $p_2$  et  $d$  sont les paramètres asymptotiques du régime saturé (mesurés en représentation lin-log) de la courbe de saturation.  $E_S$  est l'énergie du seuil de saturation.  $\sigma_1$  est la section efficace de photodétachement de H<sup>-</sup> à 1064 nm mesurée en utilisant un profil temporel gaussien ajusté sur le profil temporel mesuré de durée  $\tau = 17,37(50)$  ns (waist  $\sim 70 \mu\text{m}$ ) et  $17,08(50)$  ns (waist  $\sim 80 \mu\text{m}$ , cf. équation 3.34).  $\sigma_2$  est la section efficace de photodétachement de H<sup>-</sup> obtenue avec un profil temporel construit avec deux moitiés de gaussiennes (cf. texte). Les barres d'erreurs ont été calculées en considérant les incertitudes sur les waists  $w_{0x}$  et  $w_{0y}$ , la durée de l'impulsion  $\tau$  (ou  $\tau_1$  et  $\tau_2$ ), la vitesse des ions  $v$  (cf. texte) et l'énergie du seuil de saturation  $E_S$ .

La moyenne pondérée des résultats du tableau (colonne  $\sigma_2$  car le modèle utilisé dans ce cas, prend en compte l'asymétrie de l'impulsion) conduit à une valeur pour la section efficace de H<sup>-</sup> à 1064 nm de  $3,79(26) \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$ . Ce résultat est en accord avec les calculs théoriques (cf. par exemple [KJ99]). Cependant, l'ajustement avec une gaussienne de la partie décroissante du profil temporel montre que l'on sous-estime sa largeur ; on sous-estime donc aussi la section efficace.

**Section efficace et programme d'ajustement** L'ajustement de la courbe de saturation expérimentale avec l'équation à trois paramètres ajustables 3.53 nécessite l'observation

des deux régimes non-saturé et saturé. L'évolution du signal dans le régime linéaire ne dépend pas de la taille du faisceau laser, toute l'énergie de l'impulsion participe de la même manière à l'évolution du signal de neutres. En revanche, le démarrage de la saturation et l'évolution asymptotique du nombre de neutres dans le régime saturé dépendent de la taille du mode fondamental gaussien incrusté. Pour l'ajustement, on choisit d'utiliser un profil gaussien ajusté sur le profil spatial mesuré (cf. figure 3.22)

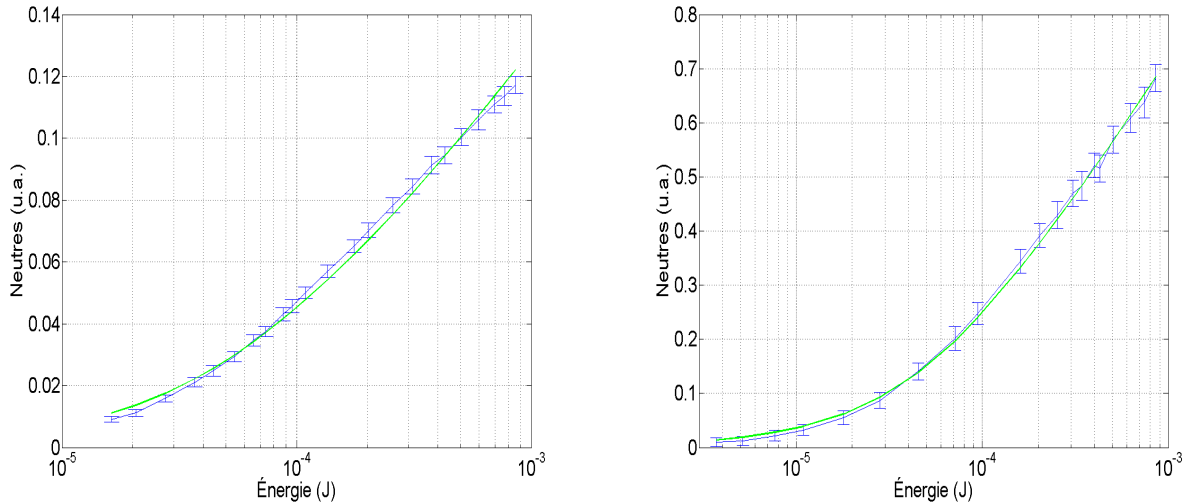


FIGURE 3.22 – À gauche, résultat de l'ajustement, par la méthode des moindres carrés, de la courbe de saturation théorique (courbe verte, cf. équation 3.53 avec un fond nul  $P_1 = 0$ ) sur les données expérimentales obtenues avec un waist de  $w_{0x} = 68,16 \mu\text{m}$  et  $w_{0y} = 70,55 \mu\text{m}$  (points bleus avec leurs barres d'erreurs). On observe des désaccords entre la théorie et l'expérience à basse et à haute énergie (cf. texte). À droite, mêmes courbes avec un waist de  $w_{0x} = 119,7 \mu\text{m}$  et  $w_{0y} = 80,18 \mu\text{m}$ . L'accord entre la théorie et l'expérience est excellent. Là aussi le fond est considéré comme nul.

Les résultats sont donnés dans le tableau 3.2.

Si le paramètre  $P_1$  est laissé libre, les valeurs de section efficace calculées s'envolent vers des valeurs de plus de  $6 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$ . Nous n'avons pas d'explication claire d'un tel comportement.

### 3.4.2.2 Variation de la géométrie spatio-temporelle des faisceaux ; étude de la saturation

**Géométrie petit jet, grand waist** On mesure les waists horizontal (selon  $Ox$ ) et vertical (selon  $Oy$ ),  $w_x = 2,02 \text{ mm}$ ,  $w_y = 2,12 \text{ mm}$  et la durée  $T_1 = 6,06 \text{ ns}$  et  $T_2 = 21,6 \text{ ns}$  de l'impulsion. La longueur de Rayleigh est très grande, supérieure à 10 m. On calcule, dans ces conditions, une énergie de saturation de l'ordre du millijoule. On utilise donc



Profil temporel	$w_0$ ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma$ ( $10^{-21} \text{ m}^2$ )	$\chi^2$
sécante	$\sim 70$	3,96	2,9
		4,44	1,43
		4,76	1,40
sécante	$\sim 80$	4,53	0,227
		4,80	0,319
gaussienne	$\sim 70$	3,01	2,22
		3,3	0,841
		3,48	0,86
gaussienne	$\sim 80$	3,29	0,158
		3,44	0,190

TABLE 3.2 – Tableau récapitulatif des résultats obtenus par ajustement des courbes expérimentales avec une courbe calculée avec l'équation 3.53. La forme du profil temporel joue un rôle non-négligeable. Les durées caractéristiques des profils temporels utilisés sont  $T_1 = 6,08$  ns et  $T_2 = 18,94$  ns (waist  $\sim 70 \mu\text{m}$ ) et  $T_1 = 6,19$  ns et  $T_2 = 18,91$  ns (waist  $\sim 80 \mu\text{m}$ ) pour la sécante hyperbolique (partie supérieure du tableau) et  $\tau = 17,4$  ns (waist  $\sim 70 \mu\text{m}$ ) et  $\tau = 17,1$  ns (waist  $80 \mu\text{m}$ ) pour la gaussienne (partie inférieure du tableau). On a imposé une valeur nulle pour le fond (paramètre  $P_1$  de l'équation 3.53).

l'amplificateur flash et un diaphragme ( $\varnothing = 4,15$  mm) à travers lequel passe le faisceau laser avant d'entrer dans la zone d'interaction (cf. sous-section 3.3.2.2).

Le jet traverse une fente de  $2 \times 0,2$  mm, située 15 cm en amont de la zone d'interaction (cf. sous-section 3.3.4).

On donne un exemple de courbe expérimentale sur la figure 3.23. Chaque point correspond à une moyenne du signal sur 200 impulsions (oscilloscope *Agilent Technologies* DSOX3024A, 200 MHz). L'énergie des impulsions est mesurée au moyen du joulemètre haute énergie (Ophir PE50BF-DIF-C, cf. chapitre 2, sous-section 2.5.2.2).

On observe que la production suit transitoirement l'expansion du volume de saturation dans le régime saturé. La courbe expérimentale s'écarte du comportement prévu lorsque l'énergie devient grande. On peut interpréter ce phénomène comme étant dû au fait que le volume de saturation s'étend dans les zones où la densité d'ions décroît (cf. figure 3.23).

Le modèle du volume de saturation peut *a priori* être appliqué dans cette configuration à condition que les zones saturées n'explorent que des régions (en particulier selon  $Oy$ ) où la densité d'ions reste uniforme. D'après la figure 3.23, les points situés entre 2 et 6 mJ pourraient servir à déterminer une section efficace, mais le profil spatial du faisceau laser est trop chaotique (interférences au passage du diaphragme, cf. figure 3.11) et mal connu pour que la valeur obtenue soit fiable.

On observe, malgré l'écart de la forme de l'impulsion temporelle au profil gaussien

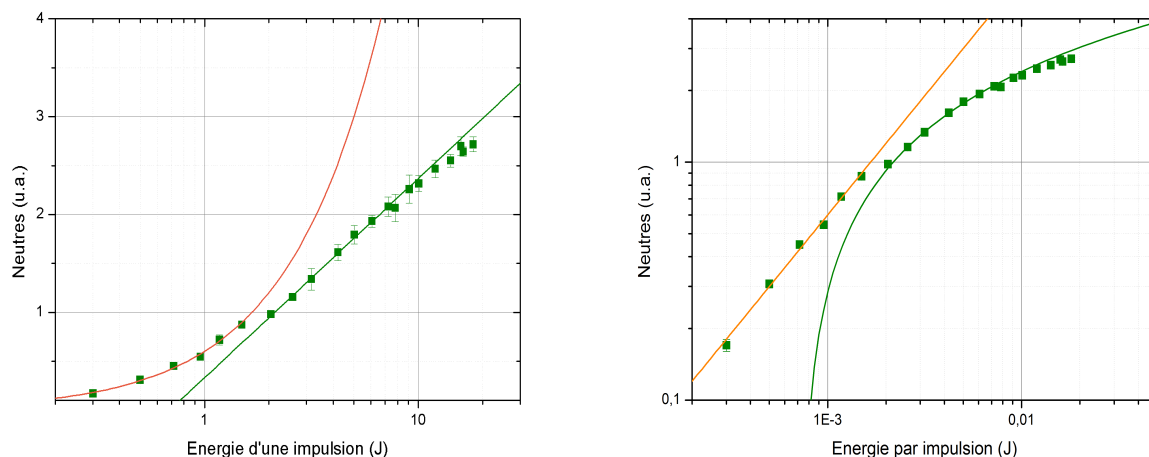


FIGURE 3.23 – À gauche, courbe de saturation, en représentation lin-log, acquise avec un jet étroit de dimension  $0,2 \times 2$  mm et un faisceau laser large (waists  $w_{0x} = 2,02$  mm et  $w_{0y} = 2,12$  mm). À haute énergie, les points expérimentaux s'écartent du comportement (droite affine en représentation lin-log) prédit par le modèle du volume de saturation. À droite, même courbe mais dans une représentation log-log. Le saut observé du régime non-saturé au régime saturé est fortuit.

(sécante hyperbolique au carré), que la quantité de neutres suit, dans le régime saturé, le comportement prévu (du moins qualitativement) par le modèle du volume de saturation (droite affine en lin-log).

De plus, on observe un retard du démarrage de la saturation par rapport aux mesures obtenues avec un laser focalisé (cf. sous-section 3.4.2.1). L'énergie de saturation observée est de  $0,732(141)$  mJ (cf. tableau général 3.3). On vérifie la loi d'échelle selon laquelle l'énergie de saturation varie quasi-proportionnellement au waist vertical (le rapport des énergies de saturation pour les waists de 2 mm et  $70$  ou  $80 \mu\text{m}$  est approximativement égal au rapport des waists).

**Géométrie grand jet, grand waist** Les conditions expérimentales sont identiques à celles du paragraphe précédent. Seul change le diaphragme au travers duquel passe le jet 15 cm en amont de la zone d'interaction (diaphragme de 2 mm au lieu de la fente de  $0,2 \times 2$  mm<sup>2</sup>, cf. figure 3.14).

Les données expérimentales associées sont représentées sur le graphe de la figure 3.24.

L'énergie de saturation mesurée, de  $0,596(68)$  mJ, est en accord avec celle mesurée avec un petit jet (cf. tableau 3.3)

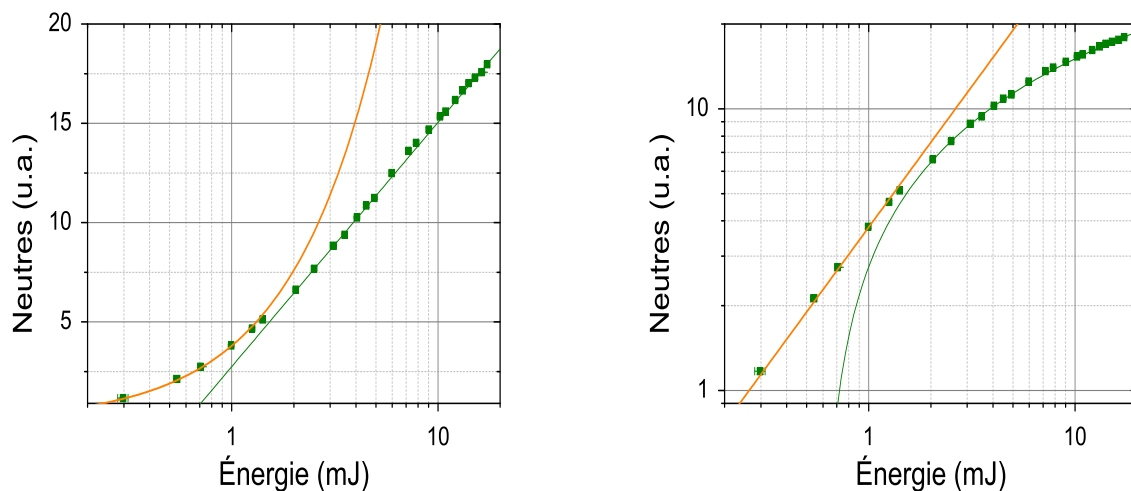


FIGURE 3.24 – Courbe de saturation acquise avec un waist de  $\sim 2$  mm et un jet de 2,2 mm de diamètre. À gauche, courbe expérimentale en représentation lin-log. La population de neutres suit le comportement sous forme d’une droite affine prévu par le modèle du volume de saturation malgré l’écart du profil temporel au profil gaussien. À droite, même courbe en représentation log-log.

**Impulsions monomode et multimode : mesures impulsion par impulsion** On réalise des mesures en tir-à-tir (intégrateur à porte "boxcar" plus numériseur USB 6008 de National Instruments<sup>TM</sup>, cf. sous-section 3.3.5.3), avec les deux modes de fonctionnement du laser (en monomode et en multimode). Le waist de l’impulsion ne dépend pas du mode de fonctionnement du laser. On mesure, au niveau de la zone d’interaction, un waist horizontal (selon  $Ox$ )  $w_{0x} = 2$  mm et un waist vertical (selon  $Oy$ )  $w_{0y} = 1,79$  mm. Les profils temporels des impulsions sont représentés sur la figure 3.8.

L’amplificateur flash en sortie de laser est installé mais le diaphragme est absent (cf. figure 3.19). On fait donc une erreur sur la mesure de l’énergie (joulemètre haute énergie Ophir PE50BF-DIF-C) qui éclaire effectivement les ions (cf. sous-section 3.3.2.2).

Le comportement exact de la courbe de saturation en multimode dépend du rapport entre le temps de transit des ions au sein du laser et la période de battements. Dans le cas présent, le temps de transit est approximativement de 8 ns (waist de  $\sim 2$  mm) et la période d’oscillations est  $\sim 3$  ns. Nous sommes donc dans une situation où le champ perçu par les ions est partiellement moyenné. Par conséquent, l’intensité intégrée subie par les ions se rapproche un peu de celle d’une impulsion monomode.

Les courbes expérimentales sont représentées sur la figure 3.25.

Pour chaque mesure, on observe que la distribution des points expérimentaux suit une

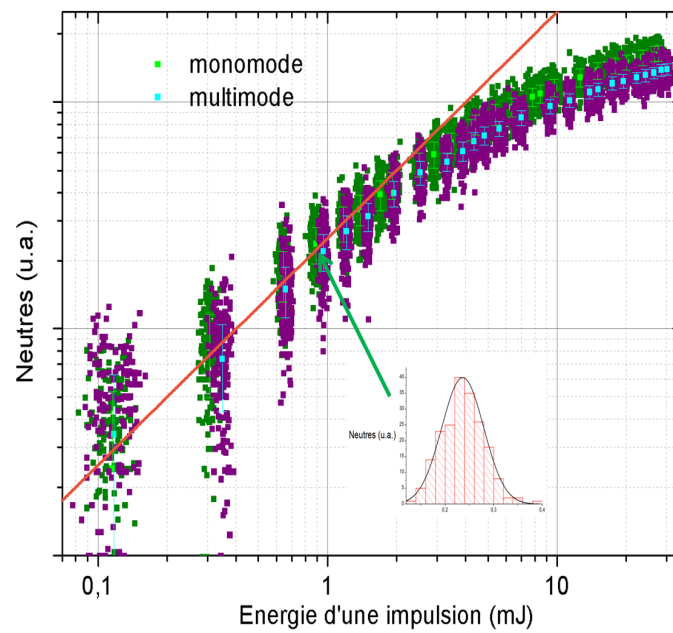


FIGURE 3.25 – Mesures tir-à-tir de la population de neutres en fonction de l'énergie des impulsions. En vert, courbe obtenue avec une impulsion monomode. On donne un exemple de distribution statistique (sur l'axe vertical de neutres) du groupe de points à  $\sim 1$  mJ, on observe une loi normale. En violet, même courbe mais avec une impulsion multimode. On vérifie le comportement linéaire (pente 1 en log-log) du régime non-saturé (droite orange). Les deux courbes ont été positionnées (translation verticale) de façon à ce que les droites de pente 1 associées aux deux jeux de mesures coïncident. On observe également les points moyens avec leurs barres d'erreurs associées (en vert et cyan).

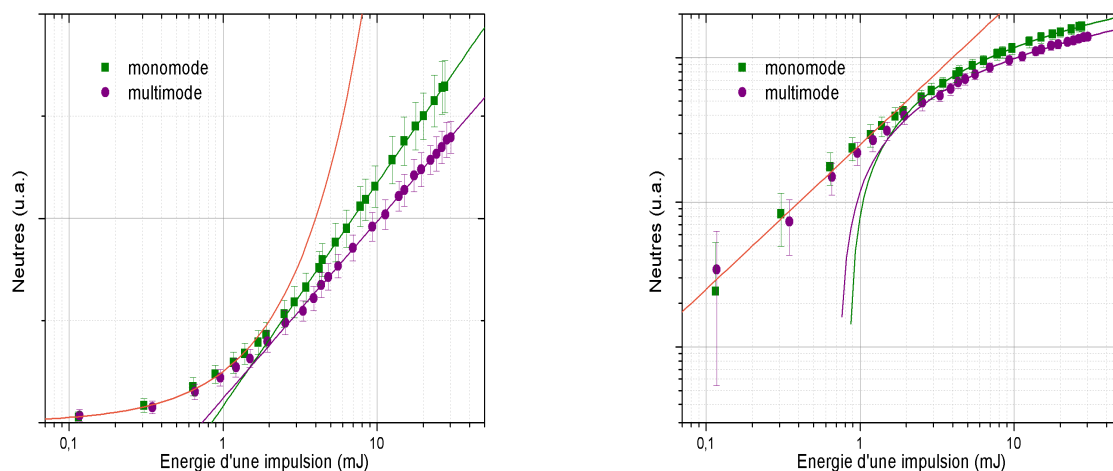


FIGURE 3.26 – Courbes expérimentales avec une impulsion monomode (courbe verte) et multimode (courbe violette) de waist  $\sim 2$  mm. À gauche, représentation lin-log des courbes expérimentales. Dans cette représentation, la droite (de pente 1 en log-log) est une exponentielle (courbe orange). Dans le régime saturé, la population de neutres suit asymptotiquement une droite affine dans les deux cas monomode et multimode. Elles suivent l'évolution du volume (représenté par les droites verte et violette). L'abscisse d'intersection de chacune des droites avec l'axe des énergies (en  $E_S$ , énergie de seuil de saturation) correspond à un volume nul. La courbe multimode sature la première ( $E_S$  plus faible). De plus, le volume de saturation (la population de neutres) croît nettement moins vite en multimode qu'en monomode. À droite, mêmes courbes en représentation log-log. On reconnaît le comportement linéaire du régime non-saturé (pente 1 en log-log, courbe orange). En trait plein (vert et violet), on observe l'accroissement du volume de saturation.

loi normale. On calcule les barres d'erreurs à partir de l'écart-type de ces distributions.

À haute énergie, la courbe violette (impulsion multimode) passe sous la courbe verte (impulsion monomode) et l'écart semble s'accroître alors que l'énergie de l'impulsion s'accroît. Cela conforte l'idée qu'en raison des creux d'intensité présents dans une impulsion multimode, le volume de saturation croît moins vite en multimode qu'en monomode.

On peut observer le démarrage de la saturation (énergie de saturation) en traçant les courbes dans une représentation lin-log (cf. figure 3.26). On mesure une énergie de saturation de 0,846(51) mJ en monomode et 0,752(72) mJ en multimode (cf. tableau 3.3). La saturation démarre donc plus vite en multimode qu'en monomode. De plus, on vérifie que le volume de saturation croît plus vite en monomode qu'en multimode (la courbe violette passe sous la verte à haute énergie).

Dans le régime saturé, on observe que la population de neutres suit asymptotiquement, quel que soit le mode de l'impulsion, une droite affine (en lin-log).

$w_0$ ( $\mu\text{m}$ )	Jet	Mode	$p_2$	$d$	$E_S$ ( $\mu\text{J}$ )
$\sim 70$	diaph. 2 mm	monomode	0,0320(4)	0,339(3)	25,1(57)
-	-	-	0,03290(16)	0,3500(13)	24,0(21)
-	-	-	0,0334(2)	0,3590(12)	21,5(22)
$\sim 80$	-	-	0,1940(26)	2,040(21)	27,1(68)
-	-	-	0,1990(45)	2,110(36)	24,8(105)
$\sim 2$ mm	fente $2 \times 0,2$ mm <sup>2</sup>	monomode	0,919(14)	6,63(8)	734(141)
-	diaph. 2 mm	-	5,37(5)	39,9(3)	596(68)
-	-	monomode	0,475(3)	3,357(12)	846(51)
-	-	multimode	0,287(3)	2,073(12)	732(77)

TABLE 3.3 – Tableau rassemblant les valeurs numériques des paramètres asymptotiques du régime saturé des courbes acquises avec un petit waist ( $\sim 70$  ou  $80 \mu\text{m}$ ) et un grand waist  $\sim 2$  mm. Les énergies de saturation associées sont donc surévaluées. On vérifie la loi d'échelle selon laquelle l'énergie de saturation évolue proportionnellement au waist. On vérifie également que la saturation démarre plus vite en multimode qu'en monomode. Les deux dernières mesures sont affectées d'une erreur sur l'énergie en raison de l'absence du diaphragme (cf. figure 3.7).

### 3.4.2.3 Mesure de la dimension longitudinale du volume de saturation

À hauts flux, dans le régime où les effets de volume dominant, le profil temporel du signal de neutres qui fait suite au passage d'une impulsion constitue une mesure (en oubliant la convolution due à la résolution temporelle finie du détecteur) de la dimension longitudinale  $a = \sqrt{\frac{\delta^2}{2} \ln\left(\frac{E}{E_S}\right)}$  du volume de saturation (cf. sous-section 3.2.2.2).

On a représenté sur la figure 3.27, un exemple du signal mesuré avec un waist de  $80,18 \mu\text{m}$  et pour une énergie par impulsion de  $0,54$  mJ (moyenne sur 16 impulsions).

La durée qui sépare le passage de l'impulsion laser (courbe noire) et l'arrivée des neutres sur le détecteur (courbe orange) correspond au temps de vol des atomes d'hydrogène entre la zone d'interaction et le détecteur ( $\sim 45,5$  cm). Le signal de neutres correspond à la projection temporelle du volume de saturation. Sa demi-largeur  $w$  (à  $\frac{1}{e^2}$ ) est liée, dans l'hypothèse d'un profil temporel gaussien, à la longueur  $a$  de la dimension selon  $Ox$  du volume de saturation. On peut alors écrire :

$$vw = a = \sqrt{\frac{\delta^2}{2} \ln\left(\frac{E}{E_S}\right)}. \quad (3.55)$$

Équation que l'on peut réécrire, après élévation au carré, sous la forme :

$$2v^2w^2 = 2a^2 = \delta^2 \ln\left(\frac{E}{E_S}\right). \quad (3.56)$$

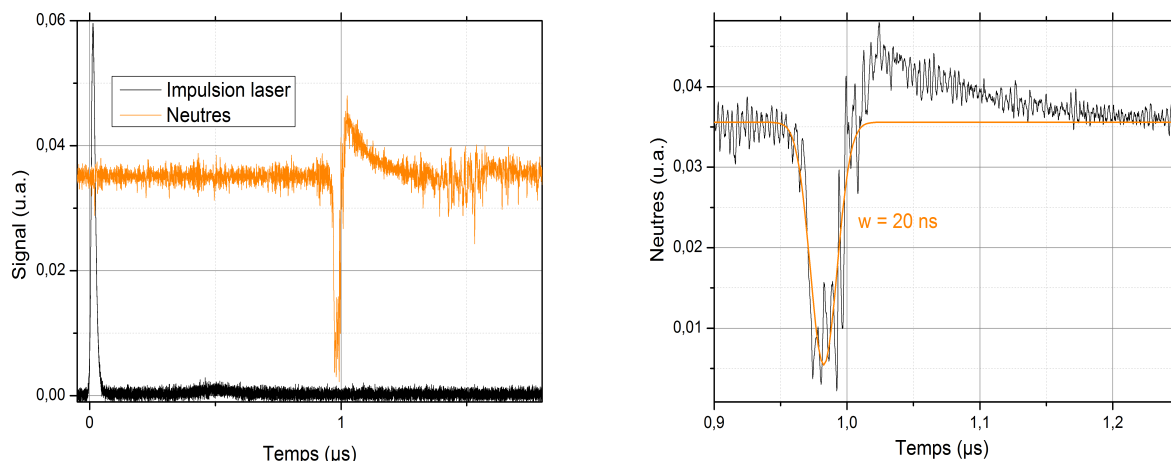


FIGURE 3.27 – À gauche, l’impulsion laser de 0,54 mJ d’énergie (courbe noire) éclaire le jet d’ions. 1  $\mu s$  plus tard les atomes d’hydrogènes produits arrivent sur le détecteur (courbe orange, moyenne sur 16 impulsions). Le signal de neutres contient les informations sur la longueur  $a$  (selon  $Ox$ ) du volume de saturation. Cette longueur est égale au produit de la vitesse des ions par la durée du signal de neutres (demi-largeur à  $\frac{1}{e^2}$ , profil supposé gaussien). On remarque la présence d’une autre impulsion laser autour de 0,5  $\mu s$  (cf. sous-section 3.3.2.1) donnant lieu à un autre signal de neutres plus étendu (vers 1,5  $\mu s$ ). À droite, ajustement du signal de neutres (créé par une impulsion de 0,54 mJ) avec une gaussienne. On trouve une largeur de 20 ns, ce qui correspond à une extension longitudinale du volume de saturation de 19,2 mm ( $2a$ ).

Il s’agit, en représentation lin-log, d’une droite de pente  $\delta^2 = w_0^2 + v^2\tau^2$ . L’impulsion temporelle n’étant pas une gaussienne, cette équation donne accès à la *durée effective* de l’impulsion, connaissant  $w_0$  et  $v$ .

On effectue une mesure avec un waist horizontal (selon  $Ox$ ) de 119,7  $\mu m$  (cf. figure 3.28). La régression du nuage de points avec une droite (en lin-log) donne  $\delta^2 = 88(17)$  mm<sup>2</sup>, on déduit une durée effective  $\tau = 19,6(20)$  ns. Le profil réel est une sécante hyperbolique de 6,19 ns de temps de montée et 18,91 ns de temps de descente. La mesure de  $w$  est d’autant plus précise que le nombre d’impulsions sur lequel on moyenne est grand (les autres paramètres expérimentaux doivent être constants durant l’acquisition).

L’application du modèle du volume de saturation avec un profil temporel gaussien de durée  $\tau$ , donne une section efficace de  $3,97(151) \cdot 10^{-21}$  m<sup>2</sup> et  $4,33(239) \cdot 10^{-21}$  m<sup>2</sup> pour les deux jeux de mesures acquis avec un waist de  $\sim 80$   $\mu m$ , soit une moyenne de  $4,07(128) \cdot 10^{-21}$  m<sup>2</sup>.

Ces valeurs sont un peu plus grandes que celles obtenues avec le modèle du volume de saturation utilisant un profil temporel scindé en deux gaussiennes de durée  $\tau_1$  et  $\tau_2$ . Elles sont en meilleur accord avec les résultats des ajustements des courbes expérimentales avec

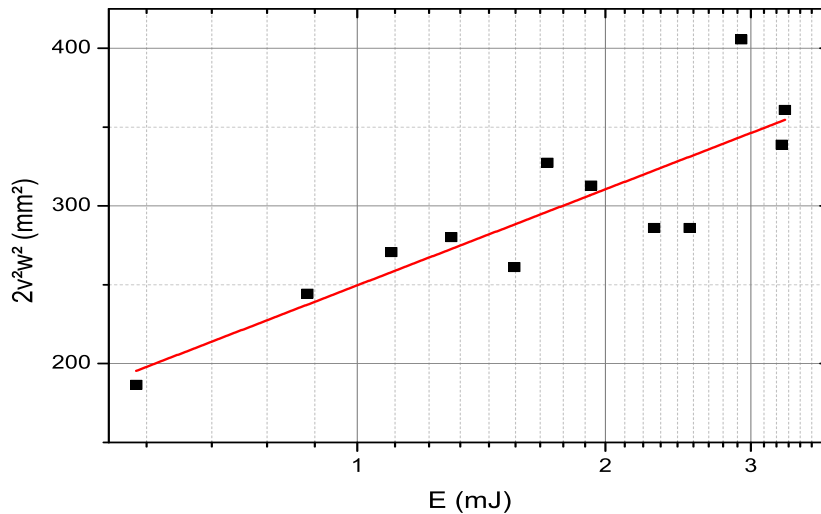


FIGURE 3.28 – Mesures expérimentales du produit  $2v^2 w^2$  obtenues avec un waist  $w_x = 119,7 \mu\text{m}$  en fonction de l'énergie des impulsions laser.

l'équation à trois paramètres ajustables 3.4.1 (cf. sous-section 3.4.2.1).

#### 3.4.2.4 Impulsion laser secondaire : décalage de l'échelle des énergies et conséquences sur la valeur de la section efficace

On remarque, sur la figure 3.27, la présence d'une autre impulsion laser générée une fraction de  $\mu\text{s}$  après l'impulsion principale.

Cette deuxième impulsion trouve probablement son origine dans un recouvrement imparfait entre les zones du milieu amplificateur éclairées par des diodes de pompes et les zones éclairées par le faisceau d'injection. Le pompage est moins efficace dans les zones éclairées par les seules diodes de pompe que dans les zones éclairées par les deux sources, d'où la génération tardive d'une seconde impulsion.

L'énergie que l'on mesure avec notre joulemètre correspond en réalité à la somme des énergies de ces deux impulsions. Or, on ne mesure que les neutres produits par la première impulsion. Il y a donc un décalage systématique entre l'énergie que l'on mesure et celle qui participe effectivement au photodétachement des neutres mesurés.

On estime que 10(2) % de l'énergie est contenue dans l'impulsion secondaire. Cette erreur se répercute sur la valeur mesurée de l'énergie de seuil de saturation et *a fortiori* sur la valeur de la section efficace.



On liste, dans le tableau 3.4, l'ensemble des résultats expérimentaux, pertinent pour la détermination de la section efficace de photodétachement de  $H^-$  à 1064 nm, corrigé de l'erreur systématique sur l'énergie.

$w_0$ ( $\mu\text{m}$ )	$E_S$ ( $\mu\text{J}$ )	$\sigma_2$ ( $10^{-21} \text{ m}^2$ )
$\sim 70$	22,6(57)	3,89(100)
	21,6(25)	4,07(49)
	19,3(24)	4,54(59)
$\sim 80$	24,4(66)	4,02(112)
	22,6(100)	4,39(197)

TABLE 3.4 – Tableau récapitulatif des mesures de l'énergie de saturation et de section efficace obtenues avec un laser focalisé (cf. tableau 3.1), corrigées de l'erreur systématique sur l'énergie due à l'existence d'une impulsion laser secondaire.

La moyenne pondérée des résultats du tableau donne une **section efficace de photodétachement de  $H^-$  à 1064 nm de  $4,20(34).10^{-21} \text{ m}^2$** .

**Section efficace et programme d'ajustement** On révisé également les valeurs obtenues avec le programme d'ajustement des courbes de saturation expérimentales avec l'équation à trois paramètres ajustables 3.53 (cf. tableau 3.5). Les incertitudes ne tiennent compte que de l'erreur sur le décalage en énergie due à l'existence d'une impulsion secondaire.

Profil temporel	$w_0$ ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma$ ( $10^{-21} \text{ m}^2$ )	$\chi^2$
sécante		4,40(11)	2,9
$T_1 = 6,08 \text{ ns}$	$\sim 70$	4,93(11)	1,43
$T_2 = 18,94 \text{ ns}$		5,29(12)	1,40
$T_1 = 6,19 \text{ ns}$	$\sim 80$	5,03(12)	0,227
$T_2 = 18,91 \text{ ns}$		5,33(12)	0,319

TABLE 3.5 – Tableau récapitulatif des résultats obtenus par ajustement des courbes expérimentales avec une courbe calculée avec l'équation 3.53, corrigées du décalage systématique en énergie due à l'existence d'une impulsion laser secondaire. On a imposé un fond nul, c'est-à-dire que l'on a considéré  $P_1 = 0$ .

Les valeurs obtenues avec le programme d'ajustement sont nettement plus élevées que celles déterminées avec le modèle du volume de saturation. La moyenne de l'ensemble des valeurs donne une section efficace de  $5.00(12).10^{-21} \text{ m}^2$  (la barre d'erreur ne tient compte que de l'incertitude sur le décalage des énergies).

## 3.5 Conclusion

Depuis son invention en 1965 par Hall *et al.* [HRB65], la méthode de la saturation, qui présente l'avantage de pouvoir s'affranchir de la connaissance de l'efficacité de détection, est devenue incontournable pour mesurer, par laser, une section efficace absolue d'un processus d'interaction lumière-matière. Pour déterminer une section efficace, la méthode nécessite d'observer les deux régimes non-saturé et saturé. Une courbe, calculée à l'aide d'un modèle décrivant l'interaction laser/ions, est ensuite ajustée sur la courbe expérimentale, l'un des paramètres ajustables étant la section efficace.

L'idée selon laquelle, dans le régime saturé, la quantité de neutres produite suit asymptotiquement l'évolution du volume de saturation, nous a permis de dégager une définition rigoureuse du concept de saturation. La saturation d'un processus d'interaction lumière-matière démarre lorsque le volume de saturation commence à exister, c'est-à-dire lorsque l'énergie d'une impulsion dépasse l'énergie de seuil de saturation. Suivant cette idée, on aboutit d'une part, à une expression simple de la section efficace en fonction des paramètres asymptotiques des régimes non-saturé et saturé et des paramètres géométriques du faisceau laser, et d'autre part, à l'expression du paramètre de saturation  $S$  en fonction des seuls paramètres asymptotiques de la courbe de saturation.

La résolution analytique de l'intégrale qui donne la quantité de neutres produite par photodétachement lors de l'éclairement d'un jet d'ions de densité uniforme par une impulsion laser gaussienne, nous a permis de démontrer l'existence d'une contrainte mathématique associée à la courbe de saturation. Cette contrainte s'exprime au travers de la constance du paramètre de saturation  $S = e^{-\gamma}$ , où  $\gamma$  est la constante d'Euler-Mascheroni. Nous interprétons  $S$  comme étant le nombre de photons (intégré dans le temps) traversant une surface d'aire  $\sigma$  à partir duquel il y a saturation (dans l'hypothèse d'un faisceau laser gaussien).

La constance de  $S$  permet de réexprimer la section efficace en fonction des paramètres asymptotiques du régime saturé seuls (de la vitesse des ions et des paramètres géométriques de l'impulsion laser). Ainsi, la simple observation des effets de volume du régime saturé suffit à déterminer la valeur de la section efficace absolue. L'application de cette nouvelle méthode n'est pas immédiate puisque, dans la réalité, les profils spatio-temporels de l'impulsion laser peuvent s'écarter du cas idéal gaussien.

Expérimentalement, la configuration qui s'approche le plus des conditions de notre

modèle correspond à un faisceau laser monomode (amélioration par rapport à nos prédécesseurs) focalisé qui intersecte un jet d'ions relativement large (pour que la densité d'ions puisse être considérée comme uniforme au niveau de la zone de recouvrement laser/jet). Dans ces conditions, nous mesurons une section efficace de photodétachement de  $H^-$  à 1064 nm de  $4,20(34) \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$ . Cette valeur est plus élevée que l'ensemble des résultats théoriques (cf. [Ste78, Wis79, DG83, Sah88, AS96, KJ99] par exemple) obtenus jusqu'à présent qui fixent la section efficace, à 1064 nm, à environ  $3,6 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$ . La mesure de la section efficace absolue de  $H^-$  de Branscomb et Smith [BS55] ( $\sigma = 3,94(40) \text{ m}^2$ , à  $\sim 990 \text{ nm}$ ) est compatible avec notre valeur et la valeur théorique. En revanche, la mesure de Popp et Kruse [PK76] (cf. figure 1.8), légèrement inférieure, ne s'accorde qu'avec la valeur théorique.

Ces désaccords suggèrent qu'il serait intéressant que la mesure de la section efficace de photodétachement de  $H^-$  dans la région 0,3 à 0,5 eV au-dessus du seuil soit reprise, si possible dans des expériences indépendantes.

## CHAPITRE 4

---

# Photodétachement en cavité Fabry-Perot

Nous avons vérifié dans le chapitre 3 qu'un éclairage d'environ  $4 \text{ MW/cm}^2$  est nécessaire pour saturer, à  $1064 \text{ nm}$ , le photodétachement d'un ion  $\text{H}^-$  traversant un faisceau de  $\sim 150 \mu\text{m}$  de waist à  $\sim 4,8 \cdot 10^5 \text{ m/s}$  ( $1,2 \text{ keV}$  d'énergie cinétique).

Pour DEMO, il s'agit de neutraliser en continu une nappe d'ions  $\text{D}^-$  (deutérium) de  $3 \text{ m}$  par  $\sim 3 \text{ cm}$  de  $30 \text{ A}$  accélérés à  $\sim 9,79 \cdot 10^6 \text{ m/s}$  ( $1 \text{ MeV}$ ). Le faisceau laser doit être suffisamment large pour éclairer complètement la nappe en un nombre de passages raisonnable (3 ou 4) [SCdE+11].

Aucun laser continu ne produit des faisceaux dont la puissance s'approche du MW sur une surface d'un  $\text{cm}^2$ . D'où l'idée de recycler la puissance lumineuse en la stockant au sein d'un résonateur Fabry-Perot.

Avant de réaliser le photodétachement quasi-total sur une nappe de la taille de celle prévue pour DEMO, le processus de développement industriel requiert que soit démontrée la faisabilité du concept par une expérience à échelle réduite, c'est-à-dire, sur un jet millimétrique de  $\text{H}^-$  de  $\sim 1 \text{ keV}$  d'énergie cinétique.

Dans ce chapitre, nous rappellerons les concepts de base des résonateurs de Fabry-Perot (intervalle spectral libre, finesse, surtension, etc., cf. section 4.1).

Ensuite, nous présenterons les résultats d'expériences de photodétachement d'ions  $\text{O}^-$ , en cavité linéaire concave-concave (cf. section 4.2). Ces expériences ont permis d'améliorer sensiblement le taux de neutralisation. Cette cavité, dont les qualités de stockage de la lumière sont intermédiaires à celles nécessaires pour le photodétachement quasi-total, ser-

vira également dans les expériences de photodétachement en champ magnétique qui visent à démontrer la possibilité d'augmenter l'efficacité de neutralisation en verrouillant le laser sur une résonance de Landau (cf. chapitre 5).

Enfin, nous dimensionnerons la cavité qui servira à démontrer la faisabilité du photodétachement quasi-total d'un jet d'hydrogène négatifs (cf. section 4.3).

## 4.1 Rappels : cavité Fabry-Perot linéaire à deux miroirs [Tre07]

### 4.1.1 Intensités en transmission et en réflexion

Le résonateur linéaire est constitué de deux miroirs plan se faisant face et séparés d'une distance  $L$ .

Le champ électrique incident  $\vec{E}_i(z) = E_i \vec{e}_i e^{i(\omega t - kz)}$  est celui d'une onde plane se propageant selon l'axe des  $z$  positifs. La polarisation peut être supposée rectiligne car ne joue aucun rôle ici.  $E_i$  est l'amplitude de l'onde incidente,  $k$  est le module du vecteur d'onde et  $t$  le temps.

Les surfaces intérieures des miroirs sont supposées avoir une très grande réflectivité, on néglige donc les réflexions sur les faces externes (traitées anti-reflet). On suppose dans un premier temps que les pertes sont nulles.

Les champs électriques complexes en transmission  $E_t$  et en réflexion  $E_r$  (au niveau du miroir d'entrée) d'une cavité Fabry-Perot de longueur  $L$  (un aller-retour) à deux miroirs sans perte peuvent s'écrire :

$$E_t = \frac{\sqrt{T_1 T_2} e^{-i\phi/2}}{1 - \sqrt{R_1 R_2} e^{-i\phi}} E_i, \quad (4.1)$$

$$E_r = E_i \left[ \sqrt{R_1} - \frac{T_1 \sqrt{R_2} e^{-i\phi}}{1 - \sqrt{R_1 R_2} e^{-i\phi}} \right], \quad (4.2)$$

Où  $E_i$  est le champ incident,  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  le vecteur d'onde,  $\phi = nkL$  la phase accumulée sur un aller-retour,  $n$  étant l'indice optique du milieu traversé par l'onde et  $T_1, R_1, T_2, R_2$  les coefficients de transmission en intensité des miroirs d'entrée (indice 1) et de sortie (indice 2).

On peut calculer les intensités correspondantes  $I_t$  et  $I_r$  en prenant le module au carré des relations précédentes :

$$I_t = I_i \frac{T_1 T_2}{(1 - \sqrt{R_1 R_2})^2} \frac{1}{1 + m \sin^2(\phi/2)}, \quad (4.3)$$

$$I_r = \frac{I_i}{(1 + \sqrt{R_1 R_2})^2} \frac{(\sqrt{R_1} - \sqrt{R_2})^2 + 4\sqrt{R_1 R_2} \sin^2(\phi/2)}{1 + m \sin^2(\phi/2)}. \quad (4.4)$$

Où  $I_i$  est l'intensité de l'onde incidente et  $m = \frac{4\sqrt{R_1 R_2}}{(1 - \sqrt{R_1 R_2})^2}$ . La conservation de l'énergie impose que  $R_j + T_j = 1$ ,  $j = 1, 2$  (pas d'absorption). La somme  $I_t + I_r$  est donc égale à l'intensité incidente  $I_i$ .

### 4.1.2 Intervalle spectral libre et finesse

Il y a résonance lorsque la phase accumulée  $\phi$  est un multiple de  $2\pi$ . Dans le domaine fréquentiel, les résonances se situent en  $\nu_q = q \frac{c}{nL}$ , où  $q$ , entier naturel, est l'ordre de la résonance et  $c$  la célérité des ondes lumineuses dans le vide.

La séparation fréquentielle entre deux résonances, aussi appelée intervalle spectral libre (ISL, cf. figure 4.1), vaut :

$$\text{ISL} = \nu_{q+1} - \nu_q = \frac{c}{nL}. \quad (4.5)$$

Autour d'une résonance la phase s'écrit  $\phi = 2\pi q + 2\pi \frac{\delta\nu}{\text{ISL}}$ , où  $\delta\nu$  correspond à un petit écart fréquentiel à la résonance. Dans ces conditions, l'intensité en transmission (par exemple) s'écrit ( $\delta\nu \ll 1$ ) :

$$I_t = \frac{T_1 T_2 I_i}{(1 - \sqrt{R_1 R_2})^2} \times \frac{1}{1 + \left(\frac{\delta\nu}{\Gamma}\right)^2}. \quad (4.6)$$

Un mode possède une forme lorentzienne de demi-largeur à mi-hauteur  $\Gamma = \frac{c}{\pi nL\sqrt{m}}$ .

On définit la finesse  $\mathcal{F}$  d'un interféromètre comme étant le rapport de l'ISL sur la largeur  $2\Gamma$  d'une résonance.

$$\mathcal{F} = \frac{\text{ISL}}{2\Gamma} = \frac{\pi(R_1 R_2)^{1/4}}{1 - \sqrt{R_1 R_2}} \quad (4.7)$$

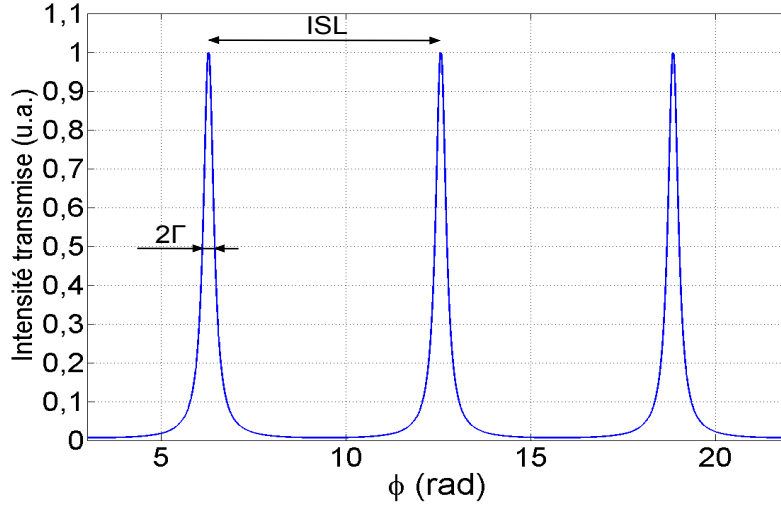


FIGURE 4.1 – Intensité transmise d’un Fabry-Perot en fonction de  $\phi$ . Elle est caractérisée par une série de résonances espacées d’un ISL et de largeur à mi-hauteur  $2\Gamma$ .

### 4.1.3 Intensité intracavité : coefficient de surtension

Le champ fait des aller-retours dans la cavité, il se forme donc une onde stationnaire avec des nœuds et des ventres d’intensité. L’intensité intracavité dépend donc fortement de la position sur l’axe  $z$  :

$$I_c(z) = \frac{I_i T_1}{(1 - \sqrt{R_1 R_2})^2} \frac{(1 - \sqrt{R_2})^2 + 4\sqrt{R_2} \sin^2(\phi/2 - knz)}{1 + m \sin^2(\phi/2)}. \quad (4.8)$$

Pour réaliser le photodétachement presque total, il faudra que l’ensemble des ions soit éclairé. L’idée sera donc d’utiliser une cavité en anneau de manière à avoir une onde progressive (pas d’interférences entre ondes de vecteurs d’onde différents dans la cavité).

**Intensité au niveau des miroirs** On peut calculer à partir de la relation 4.8, l’intensité intracavité au niveau des miroir 1 (miroir d’entrée du faisceau incident) et 2 (miroir de sortie du faisceau transmis) :

$$I_{c,1} = \frac{I_i T_1}{(1 - \sqrt{R_1 R_2})^2} \frac{(1 - \sqrt{R_2})^2 + 4\sqrt{R_2} \sin^2(\phi/2)}{1 + m \sin^2(\phi/2)}, \quad (4.9)$$

$$I_{c,2} = \frac{I_i T_1}{(1 - \sqrt{R_1 R_2})^2} \frac{(1 - \sqrt{R_2})^2}{1 + m \sin^2(\phi/2)}. \quad (4.10)$$

Où  $I_1$  est l'intensité intracavité au ras du miroir 1 et  $I_2$  l'intensité intracavité au ras du miroir 2.

**Coefficient de surtension** On quantifie la puissance stockée en calculant le coefficient de surtension  $A_S$  de la cavité définit comme le rapport de l'intensité maximale stockée  $I_{c,max}$  (à résonance) sur l'intensité incidente  $I_i$  :

$$\mathcal{A}_S = \frac{I_{c,max}}{I_i} = \frac{T_1(1 + \sqrt{R_2})^2}{(1 - \sqrt{R_1 R_2})^2} \quad (4.11)$$

On remarque que cette expression n'est pas invariante par permutation des miroirs (permutation des indices 1 et 2). Les miroirs d'entrée et de sortie ne jouent donc pas un rôle symétrique. Si l'injection se faisait au travers du miroir 2, le coefficient de surtension s'écrirait  $A_S = \frac{T_2(1 + \sqrt{R_1})^2}{(1 - \sqrt{R_1 R_2})^2}$ . Pour maximiser la puissance stockée, il est important d'injecter le faisceau laser au travers du miroir le moins réfléchissant.

Il existe une relation simple entre la finesse et le coefficient de surtension (puissance intracavité) dans le cas où  $R_1$  et  $R_2$  sont proches de 1. Dans ce cas, on peut écrire ( $\sqrt{R} \simeq 1$ ) :

$$\mathcal{A}_S \simeq 4 \frac{\mathcal{F}}{\pi}. \quad (4.12)$$

Le facteur 4 s'explique par le fait que l'intensité maximale est celle au niveau d'un ventre d'intensité. Dans une cavité en anneau, le facteur 4 disparaît car il n'y a pas d'onde stationnaire.

Dans le cas où les miroirs sont très réfléchissants, maximiser la finesse revient à maximiser la puissance stockée intracavité (à résonance).

#### 4.1.4 Pertes d'énergie

Les pertes peuvent avoir de nombreuses origines. Elles peuvent être dues à l'absorption ou la diffusion par les miroirs, par le passage au travers d'éléments optiques intracavité, par la diffraction etc.



#### 4.1.4.1 Pertes durant la propagation

L'onde peut subir des pertes durant sa propagation dans la cavité. En particulier, si la cavité n'est pas entièrement placée sous vide, l'onde peut être en partie absorbée lors de son passage au travers des hublots séparant la chambre d'interaction (sous vide) du reste de la salle d'expérience.<sup>1</sup>

On peut rassembler l'ensemble des pertes durant la propagation, sur un aller-simple, dans un coefficient de transmission en intensité  $T_3$ . Dans ces conditions, les expressions donnant l'intensité transmise et réfléchie s'écrivent :

$$I_t = I_i \frac{T_1 T_2 T_3}{(1 - Z)^2 + 4Z \sin^2(\phi/2)}, \quad (4.13)$$

$$I_r = I_i \frac{(\sqrt{R_1}(1 - Z) - T_1 T_3 \sqrt{R_2})^2 + 4Z(T_1 + R_1) \sin^2(\phi/2)}{(1 - Z)^2 + 4Z \sin^2(\phi/2)}. \quad (4.14)$$

On a posé  $Z = T_2 \sqrt{R_1 R_2}$ .

Le maximum d'intensité intracavité peut être estimé à partir du maximum d'intensité transmise :

$$I_{c,max} \simeq 4 \frac{I_{t,max}}{T_2} = 4I_i \frac{T_1 T_3}{(1 - Z)^2}. \quad (4.15)$$

On déduit l'expression du coefficient de surtension :

$$\mathcal{A}_S = 4 \frac{T_3(1 - R_1)}{(1 - T_3 \sqrt{R_1 R_2})^2}. \quad (4.16)$$

Le facteur 4 est dû à l'existence de maxima intracavité en raison des interférences. Ce facteur disparaît lorsqu'on considère une géométrie annulaire.

Il existe, pour  $R_2$  et  $T_3$  fixé, un optimum  $R_{1,opt}$  du coefficient de réflectivité du miroir d'entrée pour le stockage de puissance. Celui-ci est donné par  $R_{1,opt} = R_2 T_3^2$ .

Si les pertes intracavité sont faibles, on peut considérer que l'optimum correspond à des miroirs de réflectivités identiques.

---

1. Pour éviter la formation de résonateurs internes due à la rétro réflexion des ondes au passage des hublots, les hublots sont orientés à incidence de Brewster.

## 4.1.4.2 Pertes par diffraction [Del08]

La diffraction des ondes due à la taille finie des miroirs peut constituer une source de pertes non-négligeables.

Dans une cavité, il faut qu'un maximum de l'énergie de l'onde diffractée sur un miroir (par exemple le miroir 1) parvienne à faire un tour de cavité sans en sortir.

La figure de diffraction qui résulte du passage d'une onde au travers d'une ouverture circulaire, qui peut être un miroir, est une tache d'Airy. L'angle de diffraction  $\theta_d$  du premier minimum (vu depuis le centre de l'ouverture circulaire) est, dans l'approximation des petits angles, environ égal à  $\frac{\lambda}{2a_1}$ , où  $a_1$  est le rayon du miroir 1 (cf. figure 4.2).

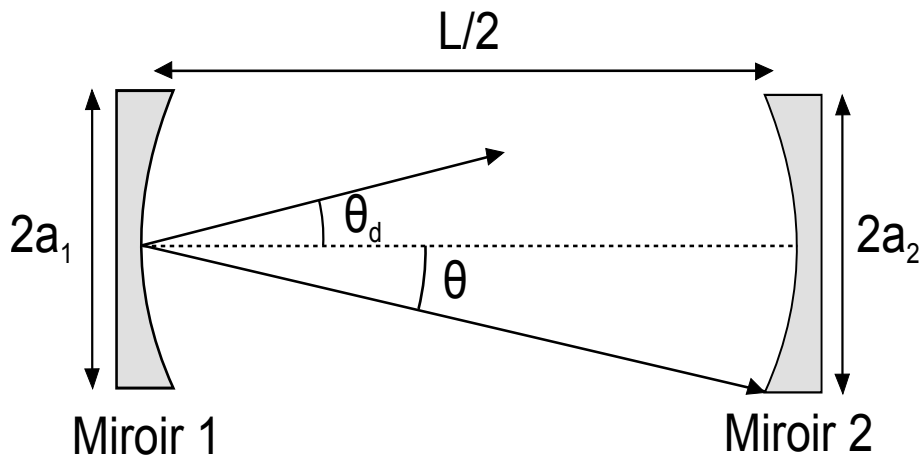


FIGURE 4.2 – Diffraction d'une onde en cavité linéaire. L'angle  $\theta_d$  correspond à l'angle qui repère le premier minimum de la figure de diffraction,  $\theta$  est l'angle sous lequel le miroir 2 est vu depuis le centre du miroir 1.

L'angle  $\theta$  sous lequel le miroir 2 est vu depuis le centre du miroir 1 (pas le centre de courbure) est, dans l'approximation des petits angles  $\theta = \frac{2a_2}{L}$ , où  $a_2$  est le rayon du miroir 2.

Le rapport de ces deux angles N :

$$N = \frac{4a_1a_2}{\lambda L}. \quad (4.17)$$

correspond approximativement au nombre de maxima restant confinés dans la cavité.

Si ce nombre est très supérieur à l'unité, alors les pertes par diffraction sont faibles devant les autres pertes. Il faut donc choisir la taille des miroirs de façon à se placer dans cette situation.

### 4.1.4.3 Pertes et finesse

En présence de pertes, la finesse, d'après sa définition (cf. sous-section 4.1.2) et l'équation 4.13, s'écrit :

$$\mathcal{F} = \frac{\pi\sqrt{Z}}{(1-Z)}, \quad (4.18)$$

où  $Z = T_3\sqrt{R_1R_2}$ .

### 4.1.5 Faisceau gaussien dans une cavité Fabry-Perot à deux miroirs [Sie86]

Le champ électrique  $E(x,y,z)$  d'une onde gaussienne et monomode (comme celle produite par notre laser Ti:Sa par exemple, cf. section 2.3.1, chapitre 2), solution de l'équation de propagation paraxiale (propagation transverse  $(x,y)$  faible devant la propagation selon  $z$ ) du champ électromagnétique, s'écrit sous la forme (approximation scalaire) :

$$E(x, y, z) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{E_0}{w(z)} e^{-\frac{x^2+y^2}{w(z)^2}} e^{-ikz+i\zeta(z)-ik\frac{x^2+y^2}{2R(z)}}. \quad (4.19)$$

Où  $E_0$  est une constante qui a la dimension d'un champ électrique,  $w_0$  est le waist du faisceau,  $w(z) = w_0\sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2}$  est le rayon (en  $z$ ) pour lequel le champ est réduit de  $1/e$  par rapport à sa valeur sur l'axe,  $R(z) = z + \frac{z_R^2}{z}$  est le rayon de courbure du faisceau en  $z$  et  $\zeta(z) = \text{atan}\left(\frac{z}{z_R}\right)$  est la phase de Gouy.  $z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$  correspond à la longueur de Rayleigh.

Cette solution particulière de l'équation paraxiale correspond au mode transverse fondamental gaussien  $\text{TEM}_{00}$ .

#### 4.1.5.1 Matching du faisceau dans la cavité

Un faisceau gaussien injecté dans une cavité Fabry-Perot n'est stable que si le faisceau revient sur lui-même après un aller-retour dans la cavité. Autrement dit, les plans de phase associés au faisceau laser au niveau des miroirs de la cavité doivent épouser la courbure des miroirs (ici sphériques). Ces deux miroirs sont caractérisés par leur rayon de courbure  $R_{c,1}$  et  $R_{c,2}$ . Ces considérations se traduisent par le système d'équations à trois inconnues :

$$-R_{c,1} = z_1 + \frac{z_R^2}{z_1}, \quad (4.20)$$

$$R_{c,2} = z_2 + \frac{z_R^2}{z_2}, \quad (4.21)$$

$$L = z_2 - z_1, \quad (4.22)$$

où  $z_1$  et  $z_2$  sont les positions des miroirs d'entrée et de sortie.

La résolution de ces équations donne accès à  $z_1$  et  $z_2$ , desquelles on déduit le waist  $w_0$ , et la taille du faisceau laser au niveau des miroirs  $w_1$  et  $w_2$  :

$$z_1 = \frac{g_2(1-g_1)}{g_1+g_2-2g_1g_2}L, \quad (4.23)$$

$$z_2 = \frac{g_1(1-g_2)}{g_1+g_2-2g_1g_2}L, \quad (4.24)$$

$$w_0^2 = \frac{L\lambda}{\pi} \sqrt{\frac{g_1g_2(1-g_1g_2)}{(g_1+g_2-2g_1g_2)}}, \quad (4.25)$$

$$w_1^2 = \frac{L\lambda}{\pi} \sqrt{\frac{g_2}{g_1(1-g_1g_2)}}, \quad (4.26)$$

$$w_2^2 = \frac{L\lambda}{\pi} \sqrt{\frac{g_1}{g_2(1-g_1g_2)}}. \quad (4.27)$$

Où  $g_1 = 1 - \frac{L}{R_{c,1}}$  et  $g_2 = 1 - \frac{L}{R_{c,2}}$  sont des paramètres caractéristiques de la cavité.

Les paramètres du faisceau sont réels et finis (cavité stable) si la condition :

$$0 < g_1g_2 < 1, \quad (4.28)$$

est respectée. En particulier,  $g_1$  et  $g_2$  doivent être de même signe.

#### 4.1.5.2 Les modes de la cavité

**Modes longitudinaux** L'onde résonne dans la cavité à condition que sa phase sur un aller simple soit un multiple de  $\pi$  :

$$\begin{aligned}\Delta\Phi &= -nk(z_2 - z_1) + \zeta(z_2) - \zeta(z_1) = -k(z_2 - z_1) + \text{atan}(z_2) - \text{atan}(z_1) \\ &= -k(z_2 - z_1) + \text{acos}(\pm\sqrt{g_1g_2}) = -q\pi \quad (4.29)\end{aligned}$$

La dernière relation s'obtient à partir des expressions 4.23 et 4.24 et d'un peu de trigonométrie. Le signe dans l'arccosinus est positif si  $g_1, g_2 > 0$  et négatif si  $g_1, g_2 < 0$ .

Les modes longitudinaux sont donnés par :

$$\nu_{00q} = \frac{c}{nL} \left[ q + \frac{\text{acos}(\pm\sqrt{g_1g_2})}{\pi} \right]. \quad (4.30)$$

La phase de Gouy a pour effet de décaler légèrement les modes vers les fréquences plus élevées par rapport à celles obtenues avec des ondes planes. L'ISL est inchangé et égal à  $\frac{c}{nL}$ .

**Modes transversaux** La relation de phase 4.29 n'est valable que pour le mode fondamental gaussien décrit par l'équation 4.19. Il existe une infinité de solutions de l'équation paraxiale dont le mode gaussien constitue l'ordre le plus bas. La base de fonctions propres d'un résonateur dépend de sa géométrie, les plus utilisées sont la base de Hermite-Gauss pour la géométrie rectangulaire et la base de Laguerre-Gauss pour la géométrie cylindrique (celle qui nous intéresse). La phase de ces modes d'ordres supérieurs diffère de celle du mode fondamental. La conséquence est une modification de la différence de phase :

$$\Delta\Phi = -nk(z_2 - z_1) + (2p + l + 1) \text{acos}(\pm\sqrt{g_1g_2}) \quad (\text{Laguerre-Gauss}). \quad (4.31)$$

Les fréquences des modes sont donc données par :

$$\nu_{plq} = \frac{c}{nL} \left[ q + (2p + l + 1) \frac{\text{acos}(\pm\sqrt{g_1g_2})}{\pi} \right]. \quad (4.32)$$

Où  $p$  et  $l$  (entiers naturels) correspondent aux ordres des modes transverses.

Chaque mode transverse a sa propre fréquence de résonance. Il existe toutefois des situations (valeurs particulières du couple  $g_1, g_2$ ) où il y a dégénérescence de certains de ces modes.

D'après cette relation, pour un mode longitudinal donné, il existe une infinité de fré-

quences de résonances correspondant à chaque mode transverse. Cependant, un mode est d'autant plus étendu spatialement dans le plan transverse que son ordre est élevé. Les miroirs étant d'extension finie, les pertes par diffraction croissent quand l'ordre augmente. La conséquence est que l'amplitude des résonances est d'autant plus petite que le mode considéré a un ordre transverse élevé.

**Couplage du mode de la cavité** Pour un couplage optimal, le faisceau laser incident doit avoir les mêmes caractéristiques géométriques  $w(z)$  et  $R(z)$  que le mode fondamental de la cavité. En général, le faisceau incident ne possède pas les bonnes propriétés, il faut donc l'adapter. Pour atteindre cet objectif, on peut s'aider d'une lentille ou d'un télescope (cf. figure 4.6).

#### 4.1.5.3 Sensibilité au désalignement et dégénérescence des modes

L'axe de la cavité est défini comme la droite passant par le centre de courbure des deux miroirs (pour une cavité sphérique). On cherche naturellement à aligner cet axe sur l'axe du montage passant par le centre des miroirs. La sensibilité au désalignement peut être estimée au moyen d'un nombre  $D$  dont l'expression a été déterminée par Hauck *et al.* [HKW80] :

$$D = \left[ \left( \frac{\pi n L}{\lambda} \right) \frac{1 + g_1 g_2}{(1 - g_1 g_2)^{3/2}} \frac{|g_1 + g_2|}{(g_1 g_2)^{1/2}} \right]^{1/2}. \quad (4.33)$$

L'inverse de  $D$  détermine la tolérance à respecter quant à l'alignement de la cavité sur l'axe général du montage, c'est-à-dire sur le faisceau d'entrée.

**Effet d'un désalignement sur les modes de la cavité** Un désalignement des miroirs provoque une modification de la géométrie de la cavité. Cette modification induit un changement des modes propres de la cavité. Ainsi, un faisceau fondamental gaussien qui entre dans une cavité désaxée, sera projeté intracavité sur des modes d'ordre supérieur en plus du mode fondamental d'une base de Laguerre-Gauss définie suivant un axe tilté (pour une cavité de géométrie cylindrique).

Un phénomène identique intervient si l'on considère une cavité parfaitement alignée dans laquelle un faisceau gaussien rentre désaxé (sauf que la base est définie suivant un axe non-tilté).

Un désalignement de la cavité peut lever une éventuelle dégénérescence entre plusieurs modes d'ordre supérieurs. Or, la levée de dégénérescence d'un mode peut gêner le fonctionnement de l'asservissement dont le signal d'erreur dépend de la position des résonances. Il est donc important de choisir un couple  $g_1$  et  $g_2$  de manière à lever d'emblée la dégénérescence entre les modes (cf. sous-section 4.1.5.2). De plus, l'observation des modes d'ordre supérieur aide à optimiser l'alignement de la cavité et à y injecter proprement le faisceau laser.

## 4.2 Cavité Fabry-Perot concave-concave pour le photodétachement de $O^-$

Le Ti:Sa que l'on possède est bien adapté au photodétachement de l'ion  $O^-$ , c'est donc cet ion qui a été choisi pour l'expérience.

### 4.2.1 Dimensionnement

La géométrie de la chambre d'interaction, la croix (cf. sous-section 2.4.1), impose la longueur de la cavité  $L \simeq 59$  cm.

#### 4.2.1.1 Choix des rayons de courbure

En passant au centre de la croix (cf. sous-section 2.6 du chapitre 2), le jet d'ions de 1 mm de diamètre est contraint de traverser le milieu de la cavité. Les rayons de courbure des deux miroirs doivent donc être de même valeur, ce qui se traduit par l'identité  $g_1 = g_2 = g$ . La condition de stabilité (cf. équation 4.28) devient  $-1 < g < 1$ .

Il faut, pour que le faisceau laser recouvre le jet d'ions, que le waist du faisceau laser au niveau du plan de focalisation, c'est-à-dire au niveau du jet, soit environ de  $500 \mu\text{m}$ . On trace sur la figure 4.3 à l'aide des équations 4.25 et 4.26, le waist du faisceau à  $1/e^2$  au niveau des miroirs et du plan de focalisation en fonction du paramètre  $g$ . On fixe, pour les calculs, une longueur d'onde de 850 nm qui correspond approximativement à la transition entre les deux niveaux fondamentaux de  $O^-$  et  $O$ .

Plus  $g$  s'approche de 0, c'est-à-dire plus  $g$  s'éloigne de la zone d'instabilité ( $g = 1$ , plan-plan), plus la cavité est stable.

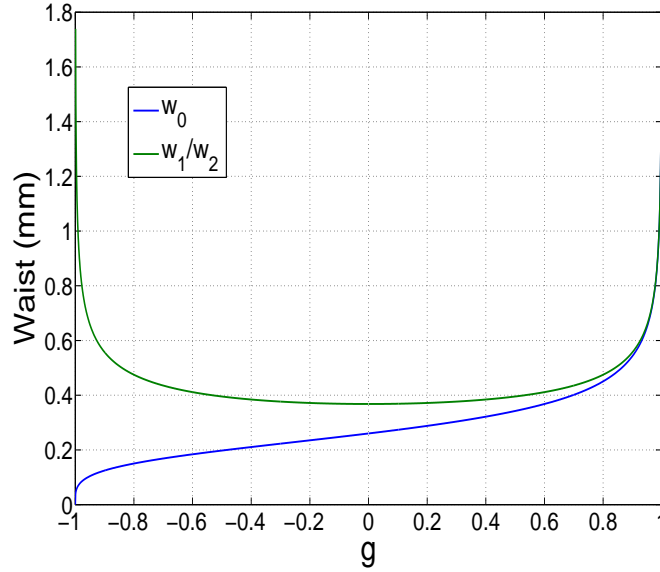


FIGURE 4.3 – En bleu, waist du faisceau au niveau du plan de focalisation en fonction du paramètre  $g$ . En vert, waist du faisceau au niveau des miroirs.

Pour qu'il y ait un bon recouvrement entre le faisceau laser et le jet d'ions,  $g$  doit être supérieur ou égal à 0,7, ce qui correspond à un rayon de courbure supérieur ou égal à 2 mètres.

En plus de satisfaire ces contraintes sur la taille du faisceau laser, on veut que la cavité soit le moins sensible possible au désalignement. On trace, en fonction de  $g$ , le coefficient  $D$  déterminé par Hauck *et al.* [HKW80] qui permet de quantifier la sensibilité au désalignement (cf. figure 4.33).

D'après le graphe, la cavité est d'autant moins sensible au désalignement que  $g$  est petit.

**Séparation entre les modes** Pour assurer un bon fonctionnement de l'asservissement, il faut lever les dégénérescences entre les modes et assurer une bonne séparation entre eux. En particulier, il faut bien séparer le mode fondamental  $TEM_{00q}$  des modes d'ordre 1  $TEM_{01q}$ ,  $TEM_{10q}$  et  $TEM_{11q}$ . Les modes d'ordre supérieurs ont une amplitude plus faible en raison de la diffraction qui est d'autant plus forte que l'ordre est élevé. La longueur de la cavité étant de 59 cm, l'ISL vaut  $\sim 252$  MHz. On a représenté sur la figure 4.5, la distance entre les modes susmentionnés en fonction de  $g$  (en unité d'ISL).

Finalement, une valeur de  $g$  de  $\sim 0,7$  (waist théorique de  $436 \mu\text{m}$ ) est un bon compromis (miroirs de rayon de courbure de  $\sim 2$  m). Dans ces conditions, la tolérance de notre cavité



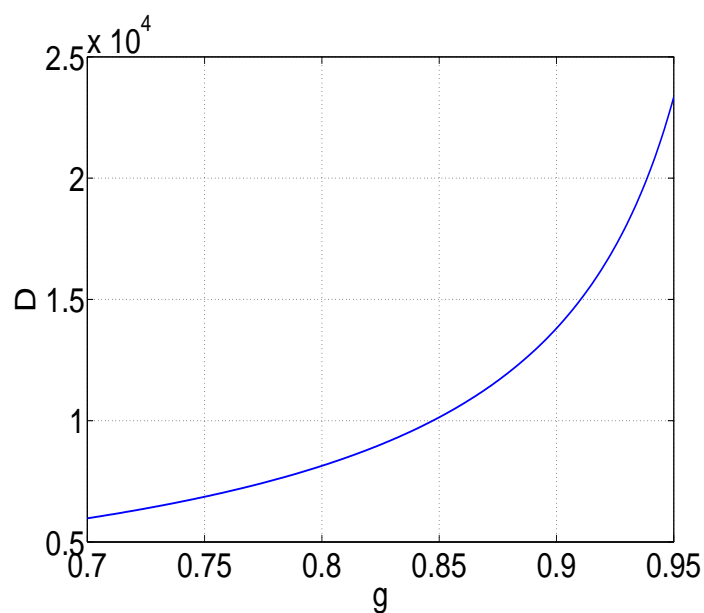


FIGURE 4.4 – Coefficient  $D$  qui quantifie la sensibilité d’une cavité au désalignement [HKW80] en fonction de  $g$ . On s’est limité à des valeurs de  $g$  pertinentes.

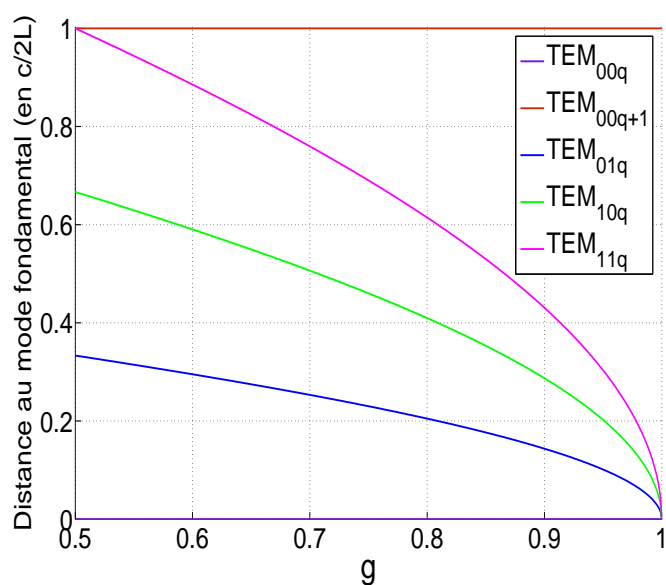


FIGURE 4.5 – Graphe représentant l’évolution de la position des modes d’ordre supérieurs TEM<sub>01q</sub> (courbe bleue) TEM<sub>10q</sub> (courbe verte) et TEM<sub>11q</sub> (courbe rose) en fonction de  $g$ . L’axe vertical est en unité d’ISL ( $\sim 252$  MHz). Les droites violettes et rouges représentent les modes longitudinaux TEM<sub>00q</sub> et TEM<sub>00q+1</sub>.

au désalignement est de  $1,7 \cdot 10^{-4}$  rad  $\simeq 34,5$  sec.

### 4.2.1.2 Réflectivité des miroirs

La longueur de notre cavité étant de 59 cm, l'ISL est de  $\sim 252$  MHz. La stabilité de notre laser Ti:Sa vaut environ 3 MHz sur dix minutes. Une finesse de l'ordre de 100 est suffisante, ce qui équivaut à un coefficient de réflectivité de 0,97.

### 4.2.1.3 Taille des miroirs : diffraction

On a vu que les pertes par diffraction pouvaient être négligées dans le cas où la taille des miroirs est suffisamment grande pour que le nombre  $N$ , correspondant au nombre de maxima de la figure de diffraction qui restent confinés après un aller-retour (cf. sous-section 4.1.4.2), soit très supérieur à 1 (cf. équation 4.17).

Dans notre cas, pour que  $N$  soit plus grand que 100 (cf. équation 4.17), il faut que le rayon des miroirs soit plus grand que 7,1 mm.

## 4.2.2 Montage expérimental

### 4.2.2.1 Miroirs et hublots

Pour éviter les (rétro)réflexions de l'onde au passage des hublots, on utilise des fenêtres à incidence de Brewster en suprasil1 (CVI BW-25.0-2.0-SS). En sortie du Ti:Sa, le faisceau a une polarisation rectiligne, une lame demi-onde a été placée en amont pour donner au plan de polarisation la bonne orientation.

Les deux miroirs (Altechna, ALMI 83097 01 27UV, plan-concave) de 12,7 mm de diamètre ( $N \simeq 80$ , pertes par diffraction faibles), ont un rayon de courbure de 2 m et un coefficient de réflectivité de 0,97. La bande spectrale de ces miroirs est large (730-930 nm).

Les caractéristiques de notre cavité sont résumées sur la figure 4.6.

### 4.2.2.2 L'asservissement de la cavité sur le laser

Avant d'entrer dans la cavité, l'onde laser, initialement polarisée rectilignement, passe par une lame demi-onde de manière à pouvoir changer l'orientation du plan de polarisation.

Pour asservir notre cavité, nous utilisons la méthode de Hänsch-Couillaud [[HC80](#), [Val07](#)] qui repose sur l'analyse ellipsométrique de la polarisation de l'onde en réflexion de la cavité

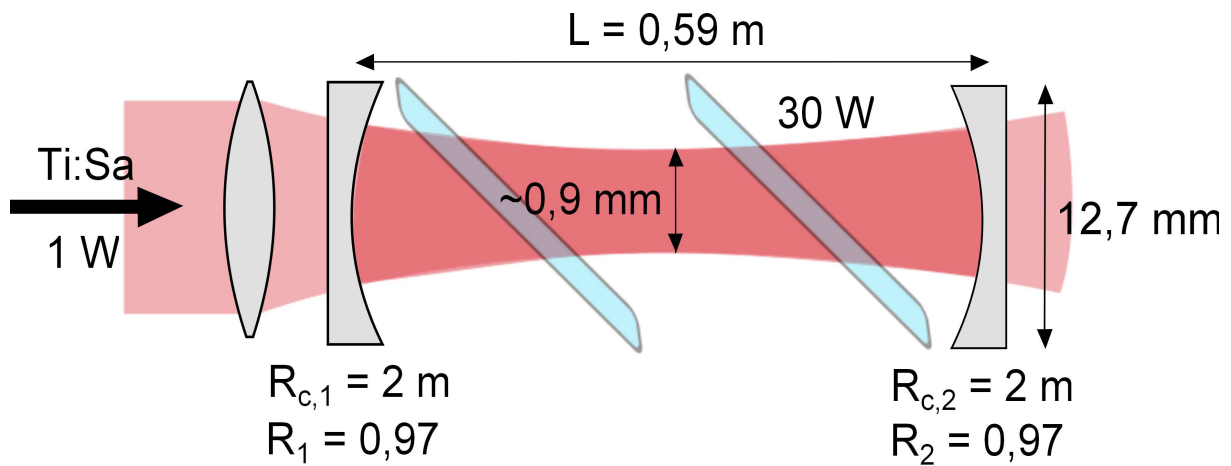


FIGURE 4.6 – Schéma de la cavité linéaire concave-concave. On a représenté la lentille de couplage indispensable pour adapter le mode du faisceau laser sur la cavité.

optique (cf. figure 4.7).

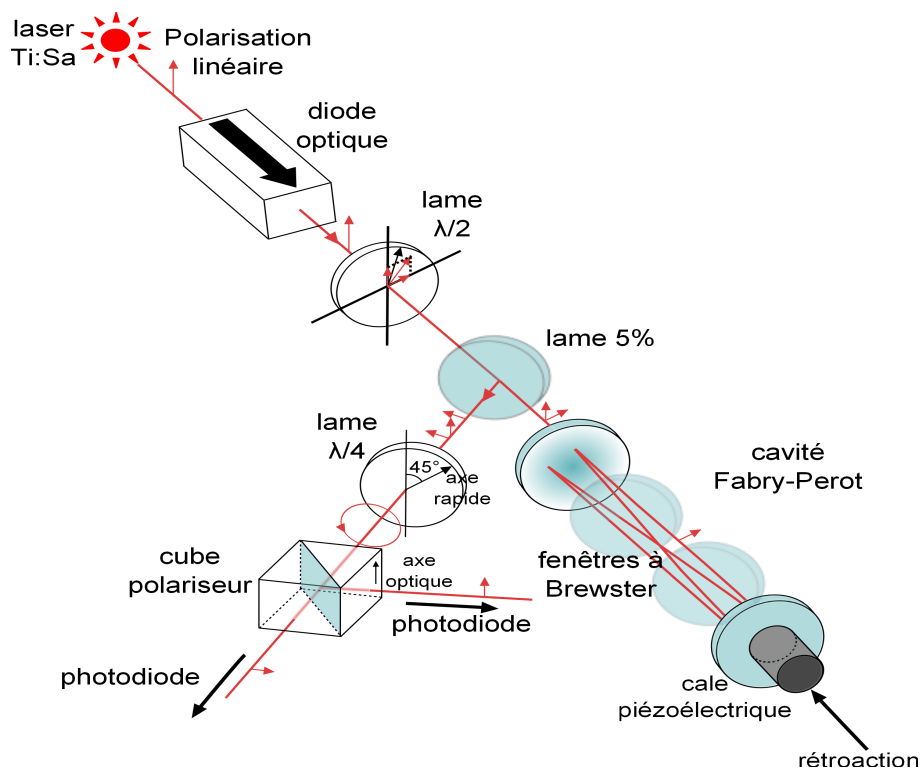


FIGURE 4.7 – Schéma de principe de l'asservissement Hänsch-Couillaud. Le laser émet une onde polarisée rectilignement dont l'orientation peut être modifiée avec la lame demi-onde. Dans la cavité, les fenêtres sont à incidence de Brewster, seule la polarisation horizontale ne subit pas de pertes. L'onde en réflexion du miroir d'entrée de la cavité Fabry-Perot est constituée d'une partie de l'onde incidente directement réfléchi sur le miroir d'entrée, et de l'onde en réflexion de la cavité optique. Cette onde est ensuite analysée par ellipsométrie (lame quart d'onde plus cube polariseur).

L'onde en réflexion de la cavité est constituée d'une partie de l'onde incidente immédiatement réfléchi sur le miroir d'entrée de la cavité et de l'onde en réflexion sortant de la cavité. Si le plan de polarisation de l'onde laser, après son passage au travers de la lame demi-onde, est différent du plan d'incidence de l'onde au niveau des hublots alors les deux ondes en réflexion ont une polarisation rectiligne différente.

À un instant donné, la différence de phase entre ces deux ondes est quelconque, l'onde en réflexion est donc elliptique. L'analyseur, qui génère le signal d'erreur est constitué d'une lame quart d'onde, d'un cube polariseur et de deux photodiodes (cf. figure 4.7). L'axe rapide de la lame quart d'onde possède une angle de  $45^\circ$  par rapport à l'axe optique du cube polariseur. Les deux ondes transmises par le cube possèdent *a priori* des intensités différentes. À résonance, l'onde en réflexion issue de la cavité est en phase avec l'onde incidente. Les intensités des deux ondes sont alors identiques, ce qui marque la résonance entre le laser et la cavité.

La différence des intensités des deux ondes permet de générer un signal d'erreur (cf. figure 4.8).

Ce signal est amplifié et envoyé sur une cale piézoélectrique (Piezomechanick GmbH, HPSt 150/14-10/12 VS 22, 150 V, fréquence de résonance à 20 kHz) maximum pour un déplacement de  $12 \mu\text{m}$  soit le balayage d'environ 28 ISL) pour rétroaction et asservissement de la cavité sur le laser.

### 4.2.3 Photodétachement d'ions $O^-$ en cavité Fabry-Perot linéaire concave-concave

L'alignement optimisé de la cavité permet d'atteindre une finesse de 80 avec une longueur d'onde de 830 nm. On peut voir la présence de modes de cavité d'ordre supérieur (cf. figure 4.8).

La présence de ces modes influe sur la puissance intracavité et donc sur la puissance transmise (qui est mesurable). À résonance, la puissance transmise devrait égaler la puissance incidente (en théorie avec un alignement parfait). On mesure que 60 % de la puissance est correctement couplée au résonateur.

**Accroissement du taux de neutres produits** On mesure le nombre de neutres produits avec ou sans la cavité optique. Le signal pour un aller-retour après soustraction du

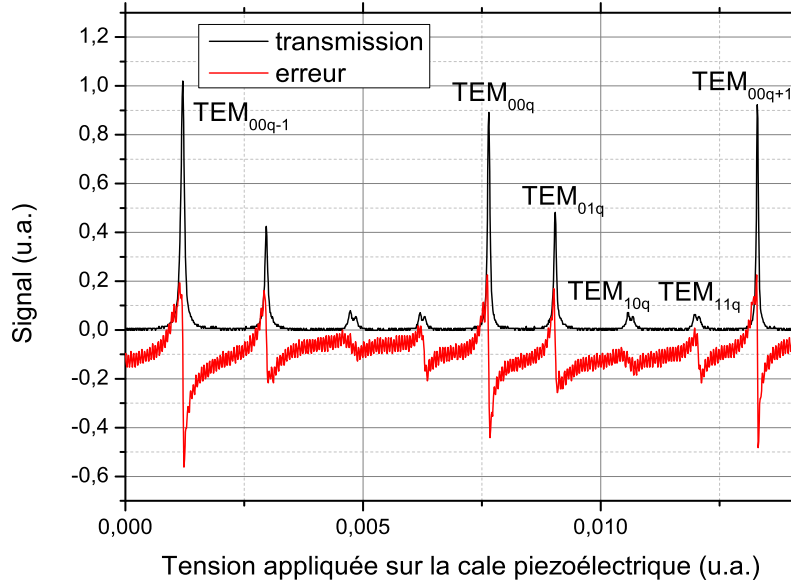


FIGURE 4.8 – Courbe expérimentale représentant l’intensité en transmission du Fabry-Perot (courbe noire) et le signal d’erreur Hänsch-Couillaud correspondant, en fonction de la position de la cale piézoélectrique (en u.a.). L’ISL entre les modes  $TEM_{00q-1}$  et  $TEM_{00q}$  et les modes  $TEM_{00q}$  et  $TEM_{00q+1}$  n’est pas le même en raison de la présence d’une légère non-linéarité du balayage de la longueur de la cavité. On remarque la présence de doublets au niveau des modes  $TEM_{10q}$  et  $TEM_{11q}$ . C’est la signature de modes transversaux d’ordre plus élevé. Ils sont, en effet, séparés d’un peu plus d’un tiers d’ISL ce qui mène à des quasi-dégénérescences accidentelles (cf. figure 4.5). Ici, le rapport de l’ISL (séparation entre deux modes longitudinaux) par la largeur à mi-hauteur des résonances donne une finesse de 103.

fond de neutres produits par collision s’élève à 800 en unités arbitraires pour une puissance laser de 1 W à 830 nm. En cavité, le signal grimpe à 14300, ce qui correspond à un gain de 18 (9 aller-retours) sur le signal. La présence d’interférences intracavité ne joue aucun rôle ici car on se situe en régime linéaire de production de neutres, loin de la saturation (cf. chapitre 3).

La surtension, d’après la relation 4.12, devrait être de 25 (à comparer à la valeur de 18 mesurée). Nous expliquons cela par la présence de modes d’ordre supérieur due à un alignement imparfait. La puissance couplée au résonateur qui participe au photodétachement est d’environ  $\frac{18}{25} \simeq 70\%$ .

## 4.3 Dimensionnement de la cavité en anneau pour le photodétachement quasi-total d'un jet de $H^-$

Pour réaliser le photodétachement quasi-total, il faut que l'ensemble des ions soient éclairés. Pour éviter la formation d'une onde stationnaire, on choisit la géométrie annulaire avec un nombre de trois miroirs (le minimum possible) pour minimiser les pertes (réflectivité finie des miroirs, diffusion, absorption, diffraction etc.).

L'onde doit être refocalisée à chaque tour pour assurer la stabilité de la cavité. Mais l'onde n'arrive pas à incidence normale sur les miroirs, ce qui peut générer de l'astigmatisme. Pour limiter ce phénomène, l'angle  $\theta$  entre l'axe de symétrie du miroir sphérique et l'axe passant par les centres géométriques des miroirs sphérique et plan doit être le plus petit possible (cf. figure 4.9). Pour réduire autant que faire se peut l'astigmatisme, il faut utiliser un miroir asphérique.

### 4.3.1 Choix de la longueur d'onde

Il s'agit, pour maximiser la probabilité de photodétachement, de choisir une longueur d'onde excitatrice qui maximise la section efficace. D'après les mesures de Smith et Burch [SB59], le maximum de la section efficace de photodétachement de  $H^-$  est relativement plat et se situe entre 700 et 1000 nm (cf. figure 1.6 du chapitre 1). On fixe, pour notre étude de faisabilité, la longueur d'onde à 1064 nm car il existe dans le commerce des lasers puissants (à commencer par les lasers Nd:YAG) à cette longueur d'onde (quelques dizaines de watts continu).

### 4.3.2 Taille du waist

Si l'on veut faire du photodétachement presque total, il faut que le faisceau laser recouvre complètement le jet d'ions négatifs. Ce dernier ayant un diamètre d'environ 1 mm, on peut fixer le waist du laser à 750  $\mu\text{m}$  qui est plus grand que 500  $\mu\text{m}$  pour limiter les problèmes expérimentaux de recouvrement entre le jet d'ions et le faisceau laser

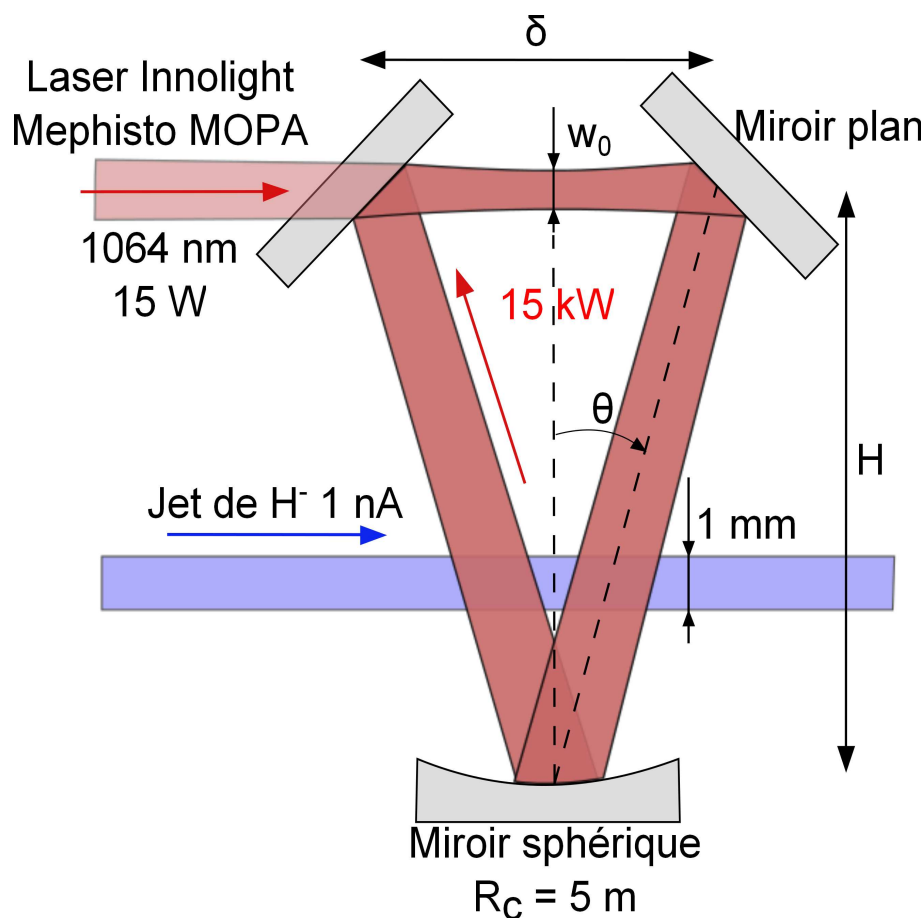


FIGURE 4.9 – Schéma cavité en anneau à trois miroirs pour le photodétachement presque-total. Le jet d'ions traverse, à proximité du miroir sphérique, le faisceau laser à deux reprises. Le waist  $w_0$  se situe dans le plan de symétrie de la cavité. Les échelles ne sont pas respectées.

### 4.3.3 Puissance nécessaire pour saturer le photodétachement

L'expression donnant la puissance de saturation du photodétachement (à 63 %) a été calculée par Chaibi *et al.* [CBC<sup>+</sup>09] :

$$P_S = \frac{hcvd}{\sigma\lambda}. \quad (4.34)$$

Où  $v$  est la vitesse des ions,  $d$  est la taille du faisceau laser supposé égal au diamètre du jet d'ions (modèle simplifié de faisceaux carrés).

Cette relation permet de calculer l'ordre de grandeur de la puissance nécessaire pour atteindre la saturation. Dans notre expérience, le faisceau laser a un diamètre de 1,5 mm et une vitesse de  $\sim 4,8 \cdot 10^5$  m/s (énergie cinétique de 1,2 keV). La section efficace est d'environ  $4 \cdot 10^{-21}$  m<sup>2</sup> à 1064 nm. On trouve que 34 kW de puissance lumineuse sont nécessaires pour

photodétacher les ions à proportion de 63 %.

Cependant, la géométrie de notre cavité a été choisie de telle sorte que le jet d'ions traverse deux fois le faisceau laser. La puissance nécessaire au photodétachement à 63 % est donc réduite d'un facteur 2, à une valeur de 17 kW.

**Calcul rigoureux** La définition (usuelle) de la saturation utilisée par Chaibi *et al.* est arbitraire. L'expression de la puissance de saturation déterminée est donc également arbitraire. L'application, en régime d'éclairement continu, du modèle développé dans le chapitre 3, sous-section 3.2.2.2 permet de remonter à l'expression naturelle de la puissance de saturation en faisceau gaussien. On trouve :

$$P_S = \sqrt{\frac{\pi}{2}} S \frac{hcvw_0}{\sigma\lambda} \quad (4.35)$$

où  $S = e^{-\gamma}$  est le paramètre de saturation avec  $\gamma$  la constante d'Euler-Mascheroni (cf. sous-section 3.2.2.3).

Les dimensions du volume de saturation  $V_{S,c}$  en régime continu peuvent être calculées suivant la même méthode qu'en régime impulsionnel. On obtient :

$$V_{S,c} = 2dv\tau y_S = \sqrt{2}dv\tau w_0 \sqrt{\ln\left(\frac{P}{P_S}\right)}, \quad (4.36)$$

où  $\tau$  est la durée de l'éclairement,  $y_S$  la demi-longueur selon la verticale (axe Oy, cf. figure 3.2) du volume de saturation et  $P$  la puissance du faisceau laser.

Comme on peut le voir sur la figure 4.10, la taille (selon Oy) du volume de saturation (deux fois  $y_S$ ) présente un maximum en fonction du waist  $w_0$  du faisceau. En faisant varier la puissance du laser, on trouve que 30 kW sont nécessaires et suffisants pour saturer le photodétachement sur l'ensemble de la zone occupée par le jet d'ions. Le photodétachement entre dans le régime de saturation lorsque la probabilité dépasse 0,43854... Autrement dit, avec 30 kW de puissance laser, le taux de neutralisation des ions est au minimum de 43,854... %. Les ions passant deux fois dans le faisceau, il suffit de stocker 15 kW intracavité pour atteindre cet objectif. Sur la figure, on a également représenté la hauteur du volume pour laquelle la probabilité de photodétachement dépasse 63 % (courbe rouge). Pour un waist de 750  $\mu\text{m}$ , cela correspond à  $2y_S \simeq 0,63 \text{ mm}$ .



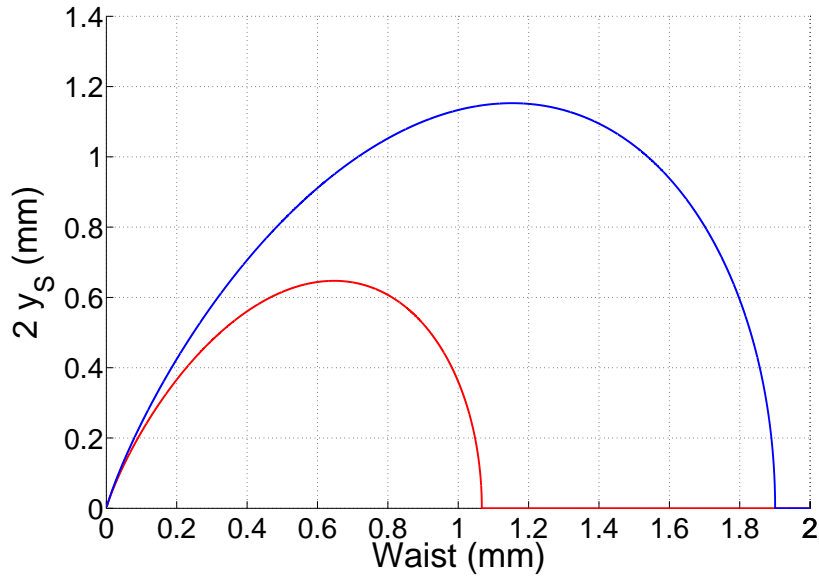


FIGURE 4.10 – Évolution, pour une puissance laser de 30 kW, de  $2y_s$ , dimension selon  $Oy$  du volume de saturation. En bleu, évolution du volume de saturation en fonction du waist du faisceau laser. En rouge, évolution de la proportion du volume de saturation pour laquelle la probabilité de photodétachement dépasse 63 % en fonction du waist du faisceau. Les deux courbes présentent un maximum (maximum à  $\sim 1,153$  mm de waist pour la courbe bleue). Pour le calcul, on a fixé la longueur d’onde à 1064 nm, la vitesse des ions  $H^-$  à 479820 m/s (1,2 keV d’énergie cinétique) et la section efficace à  $4.10^{-21}$  m<sup>2</sup>. Pour les petits waists, c’est-à-dire pour les faisceaux dont la longueur de Rayleigh devient petite devant la taille du jet d’ions, le modèle utilisé (*a fortiori*, les courbes) n’est plus valable. Pour un calcul rigoureux, il faudrait prendre en compte les variations de flux lumineux selon la direction de propagation du faisceau laser.

#### 4.3.4 Choix du laser

Le laser Mephisto MOPA (Coherent<sup>®</sup>, anciennement chez Innolight GmbH) présente une grande stabilité 1 kHz sur 100 ms. Il doit sa stabilité au fait que le milieu amplificateur et le résonateur sont constitués du seul cristal de Nd:YAG (monolithic Non-Planar Ring Oscillator, NPRO [KB85]).

De plus, ce système peut fournir, selon le modèle, jusqu’à 55 W de puissance à 1064 nm dans le mode fondamental gaussien ( $M^2 < 1,3$ ).

#### 4.3.5 Géométrie du faisceau intracavité

Par raison de symétrie, on devine que le waist  $w_0$  du faisceau laser (cf. figure 4.9) se situe à égales distances des deux miroirs plans. On peut modéliser la cavité optique comme une cavité à deux miroirs, le premier (miroir 1) étant le miroir sphérique et le second

(miroir 2), un miroir plan fictif situé au niveau du waist (le rayon de courbure du faisceau laser est infini au waist).

Les équations 4.25 et 4.26 permettent de calculer la taille du faisceau au niveau des miroirs (on a  $g_2 = 1$  et  $w_2 = w_0$  car le miroir 2 fictif est plan). On représente sur la figure 4.11 l'évolution de  $w_0$  et  $w_1$  en fonction de  $g_1 = g > 0$ . À  $g$  fixé, un changement de la longueur de la cavité se traduit par une translation verticale des courbes.

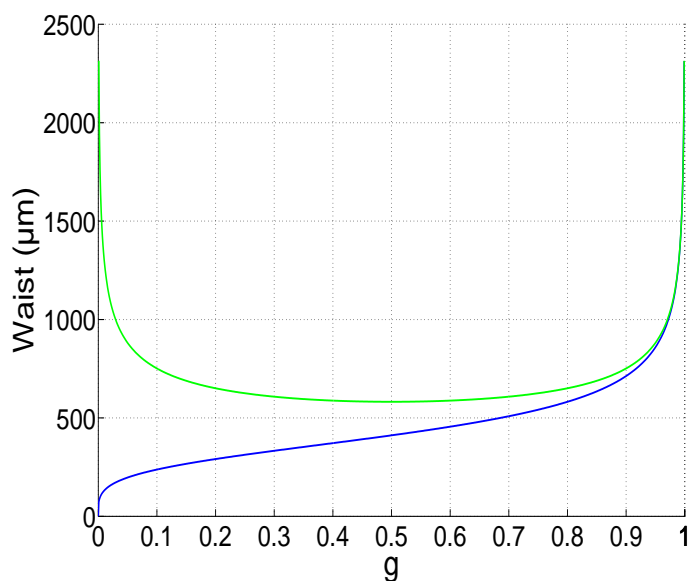


FIGURE 4.11 – Waist du faisceau en fonction du paramètre  $g$  (courbe bleue) qui correspond aussi à son rayon au niveau du miroir plan fictif. Rayon du faisceau au niveau du miroir sphérique (courbe verte). Ces courbes ont été tracées pour une demi-longueur de cavité de 0,5 m et à une longueur d'onde de 1064 nm.

Il faut choisir  $g$  pas trop proche de la zone d'instabilité (pas trop proche de 1) mais assez grand pour que la longueur de Rayleigh soit grande devant le diamètre du jet d'ions. Il est préférable d'éviter les refocalisations trop brusques pour limiter le flux de lumière au niveau des miroirs plans.

### 4.3.6 Longueur de la cavité

D'après la définition de l'ISL 4.5 et de la finesse 4.7, la demi-longueur de la cavité peut s'écrire :

$$L = \frac{c}{2\mathcal{F}\Gamma}. \quad (4.37)$$

Les pertes intracavité étant faibles, la finesse s'exprime simplement en fonction du facteur de surtension (cf. équation 4.12) :

$$L = \frac{c}{2\pi\mathcal{A}_S\Gamma}. \quad (4.38)$$

D'après cette équation, la longueur de la cavité est fixée par le facteur de surtension et par la largeur spectrale des modes de la cavité.

Si l'on injecte dans la cavité une puissance de 10 W, pour avoir la puissance intracavité de 15 kW souhaitée, il faut que le facteur de surtension soit de 1500.

La stabilité en fréquence du laser Mephisto MOPA (cf. sous-section 4.3.4) est de 1 kHz sur 100 ms. Il faut donc que le mode de la cavité soit au moins aussi large que 1 kHz.

En prenant  $\mathcal{A}_S = 1500$  et  $\Gamma = 1$  kHz, la demi-longueur de la cavité est de  $\sim 32$  m pour satisfaire ces deux critères. Cette longueur constitue, pour l'expérience envisagée, un majorant confortable. On choisit une demi-longueur de 0,5 m en fixant la largeur des modes à  $\sim 64$  kHz.

### 4.3.7 Taille du waist : rayon de courbure du miroir sphérique

Pour assurer un bon recouvrement entre le faisceau laser et le jet d'ions, on a fixé le waist du faisceau laser à  $750 \mu\text{m}$  (cf. sous-section 4.3.2).

D'après la figure 4.11, un  $g$  de 0,9, pas trop près de la zone d'instabilité, satisfait la contrainte sur la taille du waist. Ce choix correspond à un rayon de courbure  $R_c$  de 5 m.

L'évolution, sur un tour de cavité, du waist  $w(z)$  et de l'inverse du rayon de courbure  $1/R_c(z)$  du faisceau laser peut être représenté (cf. figure 4.12).  $z$  est la position (distance au plan de focalisation du faisceau laser où le waist est  $w_0$ ).

### 4.3.8 Tenue au flux des miroirs

Aux niveaux de puissance visés, les flux au niveau des miroirs peuvent devenir importants. Dans la sous-section 4.3.3, on a évalué à 15 kW la puissance nécessaire pour atteindre la saturation (à 63 %) avec un faisceau de  $750 \mu\text{m}$  de rayon au niveau du jet d'ions. Dans ces conditions le flux au niveau des miroirs plans s'élève à  $\sim 2,9 \text{ MW}/\text{cm}^2$ , et à  $\sim 2,7 \text{ MW}/\text{cm}^2$  au niveau du miroir sphérique.

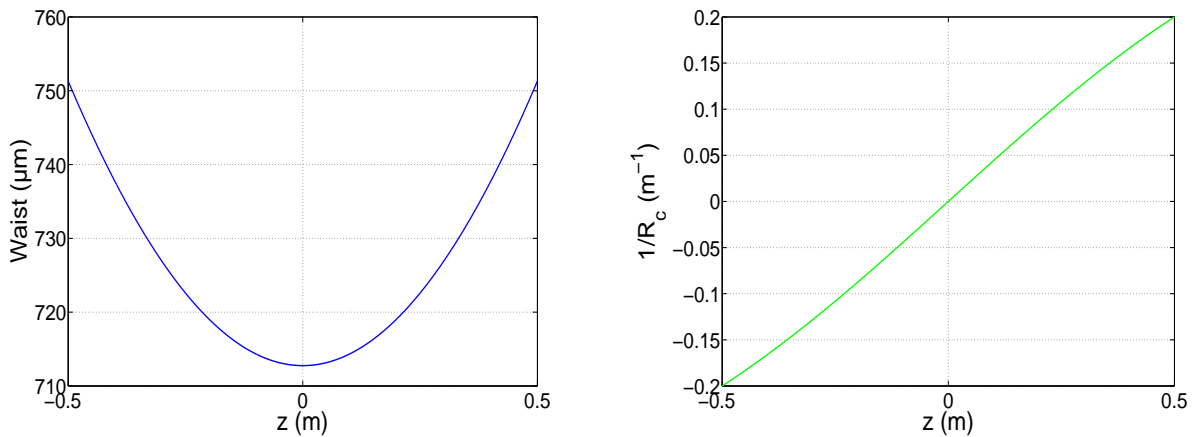


FIGURE 4.12 – À gauche, évolution du waist du faisceau laser durant sa propagation intracavité. À droite, évolution de l'inverse du rayon de courbure du faisceau. Le waist  $w_0$  se situe au niveau de la singularité ( $R_c \rightarrow +\infty$ ).

### 4.3.9 Taille des miroirs et diffraction

Outre la tenue au flux, il faut aussi soigneusement dimensionner les miroirs pour limiter les pertes par diffraction (cf. sous-section 4.1.4.2).

L'angle sous lequel un miroir se voit au travers de la cavité doit être très grand devant l'angle de diffraction  $\theta_d$ . Autrement dit, il faut que le nombre de Fresnel soit grand devant 1. Le rayon  $a$  des miroirs doit être plus grand que  $a = \sqrt{L\lambda} = 0,73 \text{ mm}$  ( $\sim 1,5 \text{ cm}$  de diamètre). Pour un miroir d'un pouce, le nombre de maxima qui restent confinés est de plus de 300, les pertes par diffraction sont complètement négligeables. On choisit ce diamètre pour les miroirs de la cavité.

### 4.3.10 Surtension et finesse : réflectivité des miroirs

Pour maximiser la puissance stockée, on se place dans le cas d'une cavité symétrique pour laquelle les miroirs ont tous le même coefficient de réflectivité (cf. équation 4.11).

La surtension est, par définition, le rapport de la puissance stockée sur la puissance incidente. Si le faisceau incident à une puissance de 10 W et que la puissance intracavité est de 15 kW alors la surtension est de 1500.

Dans le cas où les pertes sont faibles et que la réflectivité des miroirs est proche de l'unité, il existe une relation simple entre la surtension et la finesse (cf. équation 4.12). La finesse  $\mathcal{F}$  de la cavité doit être de  $\sim 4700$  pour un coefficient de surtension de 1500.

Cette valeur de la finesse permet de remonter au coefficient de réflectivité  $R$  des miroirs (cf. équation 4.7). On trouve  $\mathcal{F} = \frac{\pi\sqrt{R}}{1-R} \simeq 2850$  avec  $R = 0,99935$ .

**Finesse et surtension avec des pertes** Si maintenant on suppose que les pertes s'élèvent à 0,1 % (par exemple) que l'on traduit par un coefficient de transmission  $T = 0,999$ , on trouve  $\mathcal{F} = 2000$  (cf. équation 4.18). La finesse est limitée par les pertes, avec  $R = 1$  la finesse plafonne à environ 3100.

Les pertes utiles dues au photodétachement des ions, pour une puissance laser injectée de 10 W (soit  $\sim 5,4 \cdot 10^{19}$  photons/s) et un courant d'ions de 1 nA (soit  $\sim 6,3 \cdot 10^9$  ions/s), s'élèvent, même dans l'hypothèse du photodétachement presque total, à une fraction infime de  $\sim 10^{-8}$  % de photons absorbés.

Avec des pertes de 0,1 % et des coefficients de réflectivité de 0,9999, la surtension (cf. équation 4.16) n'est que de  $\sim 80$ . La puissance pouvant être stockée est extrêmement sensible aux pertes. Il faut donc s'appliquer à les réduire autant que possible.

## CHAPITRE 5

---

# Photodétachement en champ magnétique : résonances de Landau

L'obtention de faisceaux lasers puissants est nécessaire à la photoneutralisation quasi-totale de faisceaux d'ions négatifs. Cependant, la construction d'une grande cavité stable à l'échelle de DEMO est un grand défi technologique et scientifique. Il est donc légitime de s'interroger sur la possibilité de jouer sur un autre paramètre pour réduire les contraintes technologiques concernant la cavité Fabry-Perot ou le laser. Une piste existe et elle est à trouver dans le comportement, en fonction de l'énergie du photon, de la section efficace de photodétachement en champ magnétique. En effet, la théorie prédit l'existence d'une suite infinie de résonances divergentes dans le profil de section efficace. Résoudre ces résonances et s'asservir sur l'une d'entre elles permettrait d'augmenter considérablement la probabilité de photodétachement à un flux donné.

## 5.1 Trajectoire d'une particule chargée dans un champ magnétique

### 5.1.1 Trajectoire classique

On considère une particule chargée de charge  $q$  et de masse  $m$  se déplaçant dans un champ magnétique uniforme et stationnaire  $\mathbf{B} = B \mathbf{e}_z$ . On repère cette particule par les coordonnées en position  $\mathbf{r} = (x, y, z)$  et en vitesse  $\mathbf{v} = (\dot{x}, \dot{y}, \dot{z})$ . Les conditions initiales étant notées  $\mathbf{r}_0 = (x_0, y_0, z_0)$  et  $\mathbf{v}_0 = (\dot{x}_0, \dot{y}_0, \dot{z}_0)$ .

Cette particule peut être décrite par le lagrangien  $\mathcal{L}(\mathbf{x}, \mathbf{v})$ <sup>1</sup> :

$$\mathcal{L}(\mathbf{r}, \mathbf{v}) = \frac{1}{2}m\mathbf{v}^2 + q\mathbf{v}\cdot\mathbf{A}(\mathbf{r}) \quad (5.1)$$

$\mathbf{A}(\mathbf{r})$  représente le potentiel vecteur associé au champ magnétique  $\mathbf{B}$  :

$$\mathbf{B} = \overrightarrow{\text{rot}} \mathbf{A}(\mathbf{r}). \quad (5.2)$$

La fonction de Hamilton  $\mathcal{H}(\mathbf{r}, \mathbf{p})$  qui représente l'énergie totale de la particule est, par définition, la transformée de Legendre du lagrangien des vitesses généralisées vers les moments conjugués de la position  $\mathbf{p} = (\mathbf{p}_x, \mathbf{p}_y, \mathbf{p}_z)$ . Ces derniers sont définis par la relation  $\mathbf{p} = \nabla_{\mathbf{v}}\mathcal{L}(\mathbf{r}, \mathbf{v}) = m\mathbf{v} + q\mathbf{A}(\mathbf{r})$ . On trouve alors :

$$\mathcal{H}(\mathbf{r}, \mathbf{p}) = \frac{(\mathbf{p} - q\mathbf{A}(\mathbf{r}))^2}{2m}. \quad (5.3)$$

Le potentiel vecteur  $\mathbf{A}(\mathbf{r})$  n'est défini que par la contrainte qu'il produise le champ physique  $\mathbf{B}$  (cf. équation 5.2), ce qui laisse une certaine liberté dans le choix de  $\mathbf{A}$ , qu'on peut fixer via différentes jauges. Les résultats physiques doivent bien sûr conserver l'*invariance de jauge*.  $\mathbf{A}$  n'est défini qu'au gradient d'une fonction quelconque près. En effet, le rotationnel étant un opérateur linéaire on a, d'après l'équation 5.2, pour un potentiel vecteur  $\mathbf{A}'$  défini par  $\mathbf{A}'(\mathbf{r}) = \mathbf{A}(\mathbf{r}) + \overrightarrow{\text{grad}} f$  :

$$\mathbf{B} = \overrightarrow{\text{rot}} \mathbf{A}'(\mathbf{r}) = \overrightarrow{\text{rot}}(\mathbf{A}(\mathbf{r}) + \overrightarrow{\text{grad}} f) = \overrightarrow{\text{rot}} \mathbf{A}(\mathbf{r}) + \overrightarrow{\text{rot}}(\overrightarrow{\text{grad}} f) = \overrightarrow{\text{rot}} \mathbf{A}(\mathbf{r}). \quad (5.4)$$

Dans notre cas, la constance du champ magnétique impose certaines restrictions dans le choix de la jauge. Il est commode pour l'étude qui nous intéresse de choisir :

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}) = -\frac{1}{2}\mathbf{r} \times \mathbf{B}. \quad (5.5)$$

Dans cette jauge, le hamiltonien s'écrit :

---

1. Le choix du lagrangien n'est pas unique. Du fait de la structure des équations de Lagrange :  $\frac{d}{dt} \left( \frac{\partial \mathcal{L}(\mathbf{Q}, \dot{\mathbf{Q}})}{\partial \dot{\mathbf{Q}}} \right) = \frac{\partial \mathcal{L}(\mathbf{Q}, \dot{\mathbf{Q}})}{\partial \mathbf{Q}}$ , où  $Q$  et  $\dot{Q}$  sont les positions et vitesses généralisées, le lagrangien est défini à une constante additive  $c$  et multiplicative  $c'$  près ( $\mathcal{L}' = c' \mathcal{L} + c$ ). De plus, il existe un nombre infini de lagrangiens équivalents qui ne diffèrent les uns des autres que par la dérivée temporelle d'une fonction  $f(\mathbf{Q}, t)$ . Ainsi, le lagrangien  $\mathcal{L}' = \mathcal{L} + \frac{df(\mathbf{Q}, t)}{dt}$  est équivalent au lagrangien  $\mathcal{L}$ .

$$\mathcal{H}(x, p_x, y, p_y, z, p_z) = \frac{(p_x + \frac{qB}{2}y)^2}{2m} + \frac{(p_y - \frac{qB}{2}x)^2}{2m} + \frac{p_z^2}{2m}. \quad (5.6)$$

On remarque immédiatement que la coordonnée  $z$  est cyclique (c'est-à-dire que  $\mathcal{H}$  ne dépend pas de  $z$ ), ce qui impose d'après les équations de Hamilton :

$$\dot{q}_i = \frac{\partial \mathcal{H}}{\partial p_i} = \{q_i, \mathcal{H}\}, \quad (5.7)$$

$$\dot{p}_i = -\frac{\partial \mathcal{H}}{\partial q_i} = \{p_i, \mathcal{H}\}, \quad (5.8)$$

$$\frac{\partial \mathcal{H}}{\partial t} = -\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial t} = 0. \quad (5.9)$$

que  $p_z$  est une constante du mouvement (équation 5.7).

On a posé  $q_i = \{x, y, z\}$  et  $p_i = \{p_x, p_y, p_z\}$ , la troisième équation est, dans le cas présent, identiquement nulle car le hamiltonien ne dépend pas explicitement du temps.

De manière générale, si le crochet de Poisson  $\{f, \mathcal{H}\}^2$  entre une fonction  $f(\mathbf{r}, \mathbf{v})$  qui ne dépend pas explicitement du temps, et le hamiltonien  $\mathcal{H}$  est identiquement nul, alors la fonction  $f(\mathbf{r}, \mathbf{v})$  est une constante du mouvement.

Le hamiltonien 5.6 peut être écrit comme la somme de deux hamiltoniens découplés :

$$\mathcal{H}(x, p_x, y, p_y, z, p_z) = \mathcal{H}_\perp(x, p_x, y, p_y) + \mathcal{H}_\parallel(p_z), \quad (5.10)$$

où  $\mathcal{H}_\perp(x, p_x, y, p_y) = \frac{(p_x + \frac{qB}{2}y)^2}{2m} + \frac{(p_y - \frac{qB}{2}x)^2}{2m}$  et  $\mathcal{H}_\parallel(p_z) = \frac{p_z^2}{2m}$ .

Le fait que le hamiltonien (somme de deux hamiltoniens  $\mathcal{H}_\perp$  et  $\mathcal{H}_\parallel$ ) impose que les échanges d'énergie entre le mouvement longitudinal et le mouvement transverse de la particule sont interdits. La trajectoire parallèle au champ est donc complètement découplée du reste de la dynamique. Le système étant isolé, les fonctions  $\mathcal{H}_\perp$  et  $\mathcal{H}_\parallel$  constituent des constantes du mouvement<sup>3</sup>.

En particulier, le crochet de Poisson faisant intervenir la fonction moment cinétique  $L_z$  selon l'axe  $z$  révèle que celui-ci est une constante du mouvement<sup>4</sup>.

2.  $\{f, \mathcal{H}\} = \sum_i \frac{\partial f}{\partial q_i} \frac{\partial \mathcal{H}}{\partial p_i} - \frac{\partial f}{\partial p_i} \frac{\partial \mathcal{H}}{\partial q_i}$ , où  $q_i$  et  $p_i$  sont les position et impulsion généralisées du degré de liberté  $i$ .

3. On peut montrer que l'on a  $\{\mathcal{H}_\parallel, \mathcal{H}\} = 0$  et donc que  $\{\mathcal{H}_\perp, \mathcal{H}\} = \{\mathcal{H} - \mathcal{H}_\parallel, \mathcal{H}\} = \{\mathcal{H}, \mathcal{H}\} - \{\mathcal{H}_\parallel, \mathcal{H}\} = 0$  (le crochet de Poisson est antisymétrique)

4. L'interprétation physique de la constance de  $L_z$  n'est pas évidente puisque la valeur du crochet de



Les équations de Hamilton donnent accès aux équations du mouvement de la particule :

$$\dot{\tilde{V}} = i\omega_c \tilde{V}, \quad (5.11)$$

$$\dot{\tilde{z}} = 0. \quad (5.12)$$

On a posé  $\tilde{V} = \dot{x} + iy$  et  $\omega_c = \frac{-qB}{m}$  la pulsation cyclotron.

On trouve après intégration et retour dans l'espace réel :

$$\begin{aligned} x(t) &= x_0 + \frac{v_{\perp 0}}{\omega_c} \cos(\omega_c t + \alpha), \\ y(t) &= y_0 + \frac{v_{\perp 0}}{\omega_c} \sin(\omega_c t + \alpha), \\ z(t) &= z_0 + \dot{z}_0 t. \end{aligned}$$

où  $x_0, y_0, z_0, \dot{z}_0, \alpha$  et  $v_{\perp 0} = \sqrt{\dot{x}_0^2 + \dot{y}_0^2}$  où on a posé  $\dot{x}_0 = -v_{\perp 0} \sin \alpha$  et  $\dot{y}_0 = v_{\perp 0} \cos \alpha$ , sont des paramètres qui dépendent des conditions initiales. Les coordonnées  $(x(t), y(t), z(t))$  sont celles de la particule à l'instant  $t$ .

La solution selon l'axe  $z$  est une trajectoire de vitesse uniforme  $\dot{z}_0$  et est complètement découplée du reste de la dynamique. Transversalement au champ, la particule suit un mouvement circulaire de rayon  $R = \frac{v_{\perp 0}}{\omega_c}$  dont le centre se situe sur l'axe  $O'z$  (cf. figure 5.1). La trajectoire complète est une hélice s'enroulant autour des lignes de champ magnétique (voir figure 5.1).

On peut réexprimer les coordonnées  $(x_0, y_0)$  :

---

Poisson dépend de la jauge choisie au départ. Si l'on avait imposé  $\mathbf{A} = xB\mathbf{e}_y$  (jauge de Landau), on trouverait que  $\{L_z, \mathcal{H}\} = \frac{qB}{m}(xp_x - yp_y) + \frac{q^2 B^2}{m}xy \neq 0$ . La symétrie cylindrique autour de  $Oz$ , inscrite dans le hamiltonien 5.6, n'est pas conservée par changement de jauge (le hamiltonien n'est pas invariant de jauge). En revanche, on montrerait que  $p_y$  est une constante du mouvement. Le problème deviendrait alors invariant par translation selon  $Oy$ . Le nombre de symétries est naturellement conservé par changement de jauge.

$$x_0 = x(t) - \frac{\dot{y}(t)}{\omega_c}, \quad (5.13)$$

$$y_0 = y(t) + \frac{\dot{x}(t)}{\omega_c}. \quad (5.14)$$

$$(5.15)$$

On en déduit l'équation cartésienne associée aux coordonnées  $(x(t), y(t))$  correspondant à la projection de la position de la particule sur le plan  $Oxy$  :

$$(x(t) - x_0)^2 + (y(t) - y_0)^2 = \frac{v_{0\perp}^2}{\omega_c^2} = \frac{v_\perp^2}{\omega_c^2} = \frac{2\mathcal{H}_\perp}{m\omega_c^2} = R^2. \quad (5.16)$$

où  $\mathcal{H}_\perp = \frac{1}{2}mv_\perp^2$  et  $v_\perp = \sqrt{\dot{x}^2 + \dot{y}^2}$  sont respectivement l'énergie cinétique et la vitesse transverses de la particule. Le carré du rayon de la trajectoire  $R^2 = \frac{2m\mathcal{H}_\perp}{q^2B^2}$  est donc *proportionnel à l'énergie*  $\mathcal{H}_\perp$  de la particule. On a montré que  $\mathcal{H}_\perp$ , en raison des caractéristiques du problème, est une constante du mouvement.  $R$  est donc constant et peut prendre toutes les valeurs réelles positives.<sup>5</sup>

Il est intéressant de remarquer que la partie transverse du hamiltonien 5.6 peut se réécrire de manière à faire apparaître l'énergie associée à une particule chargée qui se meut dans un potentiel harmonique à deux dimensions en présence d'un champ magnétique (à l'ordre 1) :<sup>6</sup>

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_\perp &= \frac{p_x^2 + p_y^2}{2m} + \frac{1}{2}m\omega_L^2(x^2 + y^2) - \mu B, \\ &= \frac{p_x^2 + p_y^2}{2m} + \frac{1}{2}m\omega_L^2(x^2 + y^2) + \omega_L L_z, \end{aligned}$$

où l'on a posé  $\omega_L = \frac{-qB}{2m} = \frac{\omega_c}{2}$  la pulsation de Larmor et  $\mu = \frac{q}{2m}L_z$  le moment magnétique orbital de la particule,  $L_z$  étant une constante du mouvement.

5. L'aire  $S = \pi R^2$  est aussi proportionnelle à l'énergie. On peut donc relier le flux du champ magnétique à travers cette surface  $\Phi = B\pi R^2$  à l'énergie transverse  $\mathcal{H}_\perp$  de la particule :  $\Phi = \frac{2\pi}{q\omega_c}\mathcal{H}_\perp$ .

6. La forme du hamiltonien transverse dépend de la jauge choisie. Ainsi, en jauge de Landau  $\mathbf{A} = xB\mathbf{e}_y$ , le hamiltonien s'écrit :  $\mathcal{H}_\perp = \frac{p_x^2}{2m} + \frac{1}{2}m\omega_c^2x^2 - q\mathcal{E}x + \frac{p_y^2}{2m}$ , où l'on a posé  $\mathcal{E} = \frac{p_y B}{m}$ . Ici,  $p_y$  est une constante du mouvement ( $y$  est cyclique). Dans cette jauge, tout se passe comme si l'on avait un oscillateur harmonique chargé à une dimension oscillant au sein d'un champ électrique homogène et stationnaire d'intensité  $\mathcal{E}$  orienté selon l'axe  $x$ , et libre selon l'axe  $y$ . Les deux décompositions du hamiltonien ne sont pas contradictoires et conduisent aux mêmes conclusions physiques.

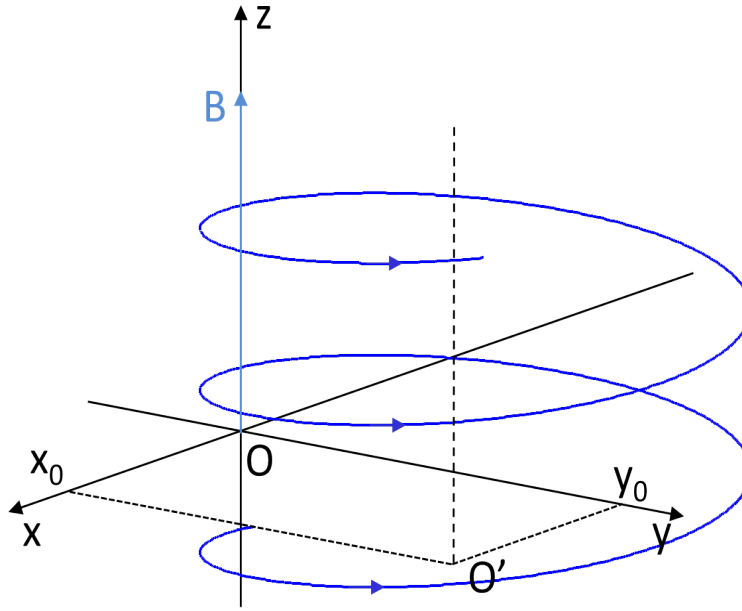


FIGURE 5.1 – Trajectoire hélicoïdale que suit un électron en mouvement dans un champ magnétique. Les coordonnées  $(x_0, y_0)$  correspondent à celles du centre  $O'$  de la trajectoire à l'instant initial.

### 5.1.2 Point de vue quantique

En mécanique quantique, les opérateurs  $\mathbf{R} = (X, Y, Z)$  et  $\mathbf{P} = (P_x, P_y, P_z)$  associés aux variables canoniquement conjuguées de la position  $\mathbf{r} = (x, y, z)$  et de l'impulsion  $\mathbf{p} = (p_x, p_y, p_z)$  de la particule en mécanique classique suivent les règles de commutation canoniques :

$$[R_i, R_j] = 0, \quad (5.17)$$

$$[P_i, P_j] = 0, \quad (5.18)$$

$$[R_i, P_j] = i\hbar\delta_{ij}, \quad (5.19)$$

avec  $i, j = x, y, z$ .

La quantification du hamiltonien classique de la particule chargée s'opère en remplaçant les variables par leurs opérateurs associés (qui obéissent aux relations 5.17) et en conservant la symétrie de chacun des termes. L'application de ces règles au hamiltonien 5.10 donne

simplement :<sup>7</sup>

$$H = \frac{P_x^2 + P_y^2}{2m} + \frac{1}{2}m\omega_L^2(X^2 + Y^2) + \omega_L L_z + \frac{P_z^2}{2m} \quad (5.20)$$

$$= H_{\perp}(X, P_x, Y, P_y) + H_{\parallel}(Z, P_z). \quad (5.21)$$

L'électron possède en mécanique quantique un moment cinétique intrinsèque de spin auquel on associe l'opérateur  $\mathbf{S}$ . Celui-ci est soumis aux règles de commutation des moments cinétiques. Lui est associé un moment magnétique  $\mu_s = g_e \frac{q}{2m} \mathbf{S}$  ( $g_e \simeq 2$ ) qui, en interagissant avec le champ magnétique est à l'origine d'un terme supplémentaire dans le hamiltonien :

$$H = \frac{P_x^2 + P_y^2}{2m} + \frac{1}{2}m\omega_L^2(X^2 + Y^2) + \omega_L L_z + \frac{P_z^2}{2m} + g_e \omega_L S_z. \quad (5.22)$$

$S_z$  est la projection de l'opérateur  $\mathbf{S}$  sur l'axe  $Oz$  et  $g_e \simeq 2$  le facteur de Landé de l'électron.

Le terme de spin a pour effet de modifier les échelles d'énergie.

L'expression du hamiltonien parallèle implique que la particule est *libre* selon  $Oz$ . Les valeurs propres de  $H_{\parallel}$  (constantes ; par symétrie, deux fois dégénérées) sont donc de la forme :

$$E_{\parallel} = \frac{P_z^2}{2m} \quad (5.23)$$

Le hamiltonien  $H_{\perp}$  a la forme du hamiltonien bien connue d'un oscillateur harmonique à deux dimensions. Le modèle de Bohr-Sommerfeld avait déjà mis en lumière qu'une particule contrainte à suivre une trajectoire périodique doit la boucler en un nombre entier de sa longueur d'onde (onde stationnaire, conditions aux limites périodiques).<sup>8</sup> Cette hypothèse entraîne la quantification des trajectoires possibles suivies par la particule et par suite la quantification de l'énergie associée à ce mouvement (niveaux de Landau). On s'attend à

---

7. En jauge de Landau  $\mathbf{A} = xB\mathbf{e}_y$ , le hamiltonien transverse quantifié prend la forme  $H_{\perp} = \frac{P_x^2}{2m} + \frac{1}{2}m\omega_c^2 X^2 - q\mathcal{E}X + \frac{P_y^2}{2m}$  avec  $\mathcal{E} = \frac{P_y B}{m}$ . Il peut aussi s'écrire sous la forme d'un potentiel d'oscillateur harmonique décentré  $H_{\perp} = \frac{P_x^2}{2m} + \frac{1}{2}m\omega_c(X - \frac{P_y}{qB})^2$ . Ici aussi  $P_y$  est une constante du mouvement puisque  $Y$  est absent. Le décentrage est donc constant.

8. La quantification se produit pour toutes particules dont le mouvement est confiné (lié). Plus exactement, selon ce modèle c'est l'action réduite  $\oint \vec{p} \cdot d\vec{l}$  qui est quantifiée et égale à un nombre entier de quanta  $h$ .

retrouver, dans la solution du problème aux valeurs propres de  $H_{\perp}$ , cette quantification de la trajectoire de la particule, en particulier son énergie et son moment cinétique et donc son rayon.

### 5.1.2.1 Niveaux de Landau

La résolution de l'équation aux valeurs propres du hamiltonien a déjà été maintes fois décrite dans la littérature (cf., par exemple, compléments D<sub>VI</sub> et E<sub>VI</sub> du Livre [CTDL73b]).

La résolution classique du problème de l'oscillateur harmonique fait intervenir les opérateurs de création et d'annihilation  $a^{\dagger} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{X} - i\hat{P})$  et  $a = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{X} + i\hat{P})$  d'un quantum d'énergie avec  $\hat{X} = \sqrt{\frac{m\omega}{\hbar}}X$  et  $\hat{P} = \frac{1}{\sqrt{m\hbar\omega}}P$  adimensionnés, et le nombre de particules  $N = a^{\dagger}a$ , de valeurs propres  $n \in \mathbb{N}$ . Dans le problème particulier de l'oscillateur harmonique à deux dimensions (dont le hamiltonien apparaît dans l'expression de  $H_{\perp}$ ), on peut définir les opérateurs création et annihilation d'un quantum circulaire :

$$a_d = \frac{1}{\sqrt{2}}(a_x - ia_y), \quad (5.24)$$

$$a_g = \frac{1}{\sqrt{2}}(a_x + ia_y). \quad (5.25)$$

Les indices "d" et "g" signifient droit (direct) et gauche. On définit aussi les opérateurs nombres de quanta circulaires droits  $N_d = a_d^{\dagger}a_d$  et circulaires gauches  $N_g = a_g^{\dagger}a_g$ , de valeurs propres  $n_d$  et  $n_g \in \mathbb{N}$ .

Ceci nous permet de réécrire les opérateurs  $L_z$  moment cinétique selon  $Oz$ <sup>9</sup>, et le hamiltonien de l'oscillateur harmonique à deux dimensions  $H_{xy}$  :<sup>10</sup>

$$H_{xy} = \hbar\omega(N_d + N_g + 1), \quad (5.26)$$

$$L_z = \hbar(N_d - N_g). \quad (5.27)$$

9. Notre problème est à symétrie cylindrique autour de  $Oz$ ,  $L_z$  commute donc avec  $H$  (l'opérateur rotation autour de  $Oz$  est seulement fonction de  $L_z$ ).  $L_z$  commute avec  $H_{\parallel}$  car il n'agit que dans le plan  $Oxy$ , par suite,  $[L_z, H_{\perp}] = 0$ .  $L_z$  est donc conservé comme en mécanique classique (en jauge symétrique, cf. note 4).

10. Valables dans le cas d'une particule de charge négative. Si la particule est positive, il faut remplacer dans les expressions  $N_d$  par  $N_g$  et *vice versa*.

Ces relations montrent que l'addition ou le retranchement d'un quantum circulaire droit (ou gauche) mène, pour l'oscillateur harmonique à deux dimensions, à l'accroissement ou la diminution de l'énergie de la particule d'un quantum d'énergie. De plus, l'ajout d'un quantum circulaire droit (respectivement gauche) apporte (enlève) un quantum  $\hbar$  de moment cinétique à la particule en rotation autour de  $Oz$  dans le sens direct (rétrograde). Une particule de charge négative orbite autour des lignes de champ dans le sens direct. Les valeurs propres de  $L_z$  et  $H_{xy}$  sont positives ou nulles.

À partir de ces relations, on peut réécrire le hamiltonien  $H_{\perp}(X, P_x, Y, P_y)$  de notre particule (chargée négativement), et son moment cinétique selon  $Oz$  :

$$H_{\perp}(X, P_x, Y, P_y) = \hbar\omega_c(N_d + \frac{1}{2}) + g_e\omega_L S_z. \quad (5.28)$$

$$L_z = \hbar(N_d - N_g). \quad (5.29)$$

L'opérateur de spin  $S_z$  n'agit pas dans le même espace que  $H_{xy}$  et  $L_z$ <sup>11</sup>. Les valeurs propres de ce hamiltonien ont la forme de celles d'un oscillateur harmonique à *une dimension* avec un terme de spin indépendant en plus :

$$E_{\perp} = \hbar\omega_c(n_d + \frac{1}{2}) + \frac{\hbar\omega_c}{2}g_e m_e. \quad (5.30)$$

Où  $\hbar m_e = \pm \frac{\hbar}{2}$  sont les valeurs propres de l'opérateur  $S_z$ .

Les niveaux correspondants aux énergies  $E = \hbar\omega_c(n_d + \frac{1}{2}) + \frac{\hbar\omega_c}{2}g_e m_e + \frac{p_z^2}{2m}$  sont les *niveaux de Landau*. On remarque immédiatement que tous les niveaux sont infiniment dégénérés du fait de l'indépendance de  $E_{\perp}$  par rapport à  $n_g$  contrairement au cas de l'oscillateur harmonique. L'origine de cette différence provient du fait que la particule explore un espace à deux dimensions et est soumise à l'action d'un potentiel vecteur et non un potentiel scalaire harmonique.<sup>12</sup>

L'effet du spin est de décomposer la série de résonances en deux séries dont les seuils

11. Les commutateurs  $[S_z, H_{xy}]$  et  $[S_z, L_z]$  sont nuls.

12. En jauge de Landau,  $P_y$  est une constante du mouvement et le hamiltonien prend la forme de celui d'un oscillateur harmonique à une dimension chargé et plongé dans un champ électrique uniforme. L'effet du champ électrique n'est que de décaler le potentiel d'une valeur constante sans le déformer. En conséquence, les énergies propres étant indépendantes de la valeur du décalage, elles sont égales à  $E_{\perp} = \hbar\omega_c(n + \frac{1}{2}) + \frac{\hbar\omega_c}{2}g_e m_e$ .  $p_y$  n'intervenant pas dans l'expression de l'énergie, on en déduit que les niveaux sont infiniment dégénérés. On constate donc bien que les conclusions physiques sont les mêmes quelle que soit la jauge considérée.

( $n_d = 0$ ) sont séparés d'une énergie égale à  $\frac{\hbar\omega_c}{2}g_e \simeq \hbar\omega_c$  (cf. figure 5.2).

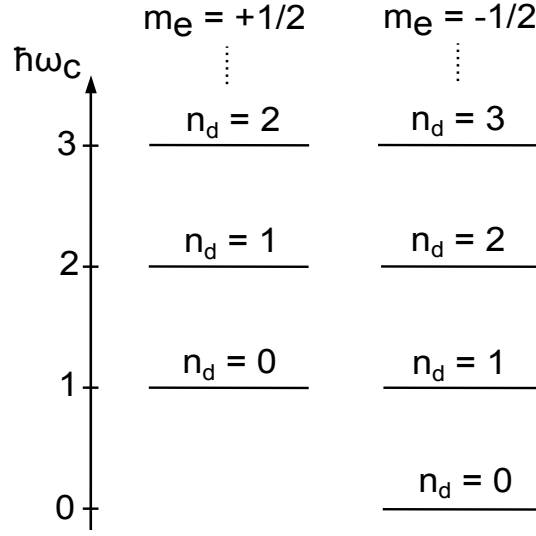


FIGURE 5.2 – Schéma d'énergie des deux séries de résonances de Landau. Chaque série est associée à une valeur propre du terme de spin du hamiltonien 5.28. On a considéré, pour simplifier, que  $g_e = 2$ .

Les résonances d'une même série étant elles-mêmes espacées d'un facteur  $\hbar\omega_c$ , les deux séries se trouvent être quasi-dégénérées. On remarque, en particulier, que le niveau  $n_d = 0$  pour  $m_e = -\frac{1}{2}$  possède une énergie négative ( $g_e > 2$ ), il est donc interdit.

On verra que, pour un seuil donné (de l'ion vers l'atome neutre, tous les nombres quantiques étant les mêmes à l'exception de  $m_e$  qui peut prendre les valeurs  $\pm\frac{1}{2}$ ), la possibilité de transition vers l'une ou l'autre des deux séries de résonances dépend de la polarisation de la lumière excitatrice.

### 5.1.2.2 Quantification du flux magnétique

L'opérateur quantique associé au rayon carré moyen peut être obtenu par quantification de l'expression classique (cf. équation 5.16) :

$$\bar{R}^2 = \frac{2}{m\omega_c^2} H_{\perp}. \quad (5.31)$$

Les états propres de  $\bar{R}^2$  sont donc ceux de  $H_{\perp}$ , les valeurs propres s'écrivent alors :

$$r^2 = 2\rho_{c0}\left(n_d + \frac{1}{2} + \frac{g_e m_e}{2}\right), \quad (5.32)$$

avec  $\rho_{c0} = \frac{\hbar}{m\omega_c}$ .

Comme en mécanique classique, le rayon carré moyen est proportionnel à l'énergie transverse et est conservé car  $[H_\perp, H] = 0$ . La différence essentielle vient du fait qu'il ne peut prendre que certaines valeurs discrètes correspondant à l'ensemble infini des niveaux de Landau. On retrouve le fait que le niveau associé aux valeurs propres  $n_d = 0$  et  $m_e = -\frac{1}{2}$  est interdit car possède un rayon carré moyen négatif.

En multipliant l'équation 5.32 par le produit  $\pi B$ , on fait apparaître le flux magnétique  $\Phi = \pi r^2 B = \frac{\hbar}{2e}(2n_d + g_e m_e + 1)$  qui traverse la surface engendrée par l'orbite cyclotronique (vision classique) projetée sur le plan perpendiculaire au champ magnétique. On interprète cette équation comme étant la *quantification du flux magnétique*, la quantité  $\frac{\hbar}{2e}$  correspond au quantum de flux,  $e$  est la charge élémentaire.

On vérifie que les opérateurs  $X_0$  et  $Y_0$  associés aux coordonnées  $(x_0, y_0)$  sont aussi des constantes du mouvement car commutent avec  $H$ . En revanche, ils forment un couple d'opérateurs incompatibles, dont le commutateur est imaginaire pur, définissant une relation d'incertitude. Cela signifie que la connaissance exacte de la position du centre de la trajectoire est inatteignable.

On peut définir l'opérateur  $D^2$  qui représente la distance carrée moyenne de la projection du mouvement de la particule dans le plan  $Oxy$  (transverse au champ magnétique), par rapport à l'axe  $Oz$ , par la relation  $D^2 = X_0^2 + Y_0^2 = \frac{2\hbar}{m\omega_c}(N_g + \frac{1}{2})$  (quantification des deux paramètres classiques  $x_0$  et  $y_0$ , cf. équations 5.13 et 5.14). Les valeurs propres  $d^2$  associées s'écrivent :

$$d^2 = 2\rho_{c0}(n_g + \frac{1}{2}). \quad (5.33)$$

On remarque, d'après les équations 5.32 et 5.33, que les valeurs propres  $n_g$  et  $n_d$  peuvent s'interpréter en termes de rayon carré moyen et de distance carrée moyenne de la particule à l'axe  $Oz$  (axe qui intersecte la position initiale) respectivement.

L'absence de  $n_g$  dans l'expression de l'énergie des niveaux de Landau (cf. équation 5.30) traduit le fait que l'énergie ne dépend pas de la position de la particule dans le plan  $Oxy$ .



## 5.2 Section efficace de photodétachement en champ magnétique : résonances de Landau

Le confinement du mouvement transverse d'une particule plongée dans un champ magnétique (ici homogène orienté selon  $Oz$ ) est à l'origine de la quantification de son énergie cinétique transverse, et *a fortiori* du rayon cyclotronique de sa trajectoire (cf. section précédent). Lors du photodétachement d'un ion négatif, l'électron est envoyé dans le continuum avec un surplus d'énergie cinétique qui lui est fourni par le photon incident.

Dans notre analyse, il faudra tenir compte du fait que l'électron est éjecté dans le continuum avec des caractéristiques qui dépendent de l'état dans lequel il était confiné au sein de l'ion négatif (par exemple, son moment cinétique). Par ailleurs, en raison de la très courte portée du potentiel d'interaction entre l'électron détaché et l'atome résiduel (en  $\frac{1}{r^4}$ ), on négligera l'interaction de l'électron avec l'atome résiduel.

### 5.2.1 Comportement de $\sigma$ au niveau d'une résonance

Blumberg, Jopson et Larson [BJL78] furent les premiers à observer expérimentalement des oscillations dans le profil de section efficace de photodétachement en présence d'un champ magnétique extérieur. Ils étudièrent le comportement de la section efficace près du seuil de la transition  ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^3P_2$  de l'ion  $S^-$ . Leur expérience consistait à éclairer, avec un laser accordable, des ions préalablement produits et confinés dans un piège de Penning dans lequel régnait un champ magnétique d'intensité modulable entre 0,6 et 1,57 T. La mesure du nombre total d'ions présents dans le piège avant et après le passage du laser leur permit de remonter à la section efficace relative en fonction de l'énergie des photons jusqu'à  $4 \text{ cm}^{-1}$  au-dessus du seuil. En outre, ils observèrent quelques différences qualitatives dans les profils suivant la polarisation de l'onde employée ( $\pi$  ou  $\sigma$ ). Ces différences s'expliquent simplement par une modification du spectre des transitions Zeeman permises selon la polarisation utilisée. Ils supposèrent que la quantification du mouvement transverse des électrons détachés qui donne naissance à l'ensemble infini des niveaux de Landau est à l'origine des résonances observées.

Quelques mois plus tard, Blumberg *et al.* [BIL79] publièrent un article dans lequel ils présentèrent une théorie du photodétachement en champ magnétique dont une version un peu simplifiée (ils ne prenaient pas en compte l'effet Stark motionnel dû au mouvement des

ions au sein du champ magnétique) avait été utilisée dans l'article [BJL78] pour l'interprétation des résultats. Dans la suite, nous détaillerons le raisonnement suivi par Blumberg *et al.* pour aboutir à l'expression de la section efficace de photodétachement en champ magnétique près d'un seuil.

La probabilité de photodétachement par unité de temps  $P_{i \rightarrow f}$  entre un état lié de l'ion négatif  $|\phi_i\rangle$  et un état du *continuum*  $|\phi_f\rangle$  est donnée par la *règle d'or de Fermi* (à l'ordre 1 de la perturbation) :

$$P_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \phi_f | W | \phi_i \rangle|^2 \rho_f(E_f = E_i + \hbar\omega) \quad (5.34)$$

où  $W$  est l'opérateur associé à la perturbation (ici on considère une perturbation sinusoïdale impliquant une énergie d'interaction entre le photon et l'ion :  $W = -\mathcal{E}_0 \cdot \mathbf{D} \cos \omega t$  avec  $\mathbf{D}$  l'opérateur moment dipolaire électrique et  $\mathcal{E}_0$  l'amplitude du champ électrique de l'onde excitatrice) et  $\rho_f(E_f)$  est la densité d'états finals par unité d'énergie. La condition de conservation de l'énergie  $E_f = E_i + \hbar\omega$  doit être respectée.

Cette probabilité par unité de temps est reliée à la section efficace qui, par définition, est le quotient de  $P_{i \rightarrow f}$  par le flux de photons incidents  $\Phi = \frac{\epsilon_0}{2} \frac{\mathcal{E}_0^2}{\hbar\omega} c$  (cf. section 1.2) :

$$\sigma_{i \rightarrow f}(\epsilon) = \frac{2}{\epsilon_0 c} \frac{\hbar\omega}{\mathcal{E}_0^2} P_{i \rightarrow f}. \quad (5.35)$$

$\epsilon$  est égal à l'énergie cinétique de l'électron éjecté.

On a vu dans la sous-section 1.2.1.3 qu'en l'absence de champ magnétique, la partie radiale de la fonction d'onde du continuum  $\phi_f(\mathbf{r}, \epsilon)$  est proportionnelle à la fonction de Bessel sphérique d'ordre  $l$ ,  $j_l(\frac{\sqrt{2m\epsilon}}{\hbar} r)$  qui admet au premier ordre en  $\epsilon$ , le développement asymptotique :

$$j_l(xr) \propto (xr)^l \propto \epsilon^{\frac{l}{2}}. \quad (5.36)$$

Où l'on a posé  $x = \frac{\sqrt{2m\epsilon}}{\hbar}$  et  $l$  le moment cinétique orbital de l'électron éjecté.

L'élément de transition  $\langle \phi_i | W | \phi_f(\epsilon) \rangle$  est donc également proportionnel à  $\epsilon^{\frac{l}{2}}$  près du seuil (à l'ordre le plus bas en  $\epsilon$ ) :

$$\begin{aligned} \langle \phi_i | W | \phi_f(\epsilon) \rangle &\propto \int j_l\left(\frac{\sqrt{2m\epsilon}}{\hbar} r\right) Y_{lm}(\theta, \phi) q \mathbf{r} \phi_i(\mathbf{r}) d^3 \mathbf{r} \\ &\propto q \epsilon^{\frac{l}{2}} \int Y_{lm}(\theta, \phi) r^l \mathbf{r} \phi_i(\mathbf{r}) d^3 \mathbf{r} \propto \epsilon^{\frac{l}{2}} = (\omega - \omega_0)^{\frac{l}{2}}, \end{aligned} \quad (5.37)$$

où  $Y_{lm}(\theta, \phi)$  sont les harmoniques sphériques et  $\hbar\omega_0$  correspond à l'énergie du seuil de détachement.

En présence d'un champ magnétique dont l'intensité est suffisamment faible (rayon cyclotronique grand devant le rayon de Bohr), on peut considérer que l'état final n'est pas modifié dans la région de l'espace proche du noyau. Selon cette hypothèse, le recouvrement des fonctions d'ondes initiale et finale est inchangé et on peut considérer que l'élément de matrice de transition (cf. équation 5.37) est le même avec et sans champ magnétique.

**Photodétachement vers un espace unidimensionnel** Lors du photodétachement d'un ion négatif en l'absence de champ extérieur, l'électron est éjecté dans un espace à trois dimensions. On montre que dans ce cas la densité d'états finals  $\rho_f(\epsilon) = \frac{1}{V} \frac{dN}{d\epsilon}$  est proportionnelle à la racine carrée de l'énergie cinétique de l'électron (cf. section 1.2.1.4).

En présence d'un champ magnétique, l'électron voit la partie transverse de son mouvement confiné. Cette réduction des dimensions accessibles a pour conséquence la modification, en fonction de l'énergie cinétique de l'électron, de la densité du continuum d'états finals. La densité d'états se comporte comme si l'électron explorait un espace unidimensionnel. On peut montrer que dans ce cas elle est inversement proportionnelle à la racine carrée de l'énergie cinétique de l'électron (énergie qui est accumulée dans le degré de liberté longitudinal) :

$$\rho_f(\epsilon) \propto \frac{1}{\sqrt{\epsilon_z}}. \quad (5.38)$$

Où l'on a posé  $\epsilon_z$  l'énergie cinétique longitudinale au champ.

L'amplitude de transition de l'électron vers le continuum est la somme des amplitudes de transition vers des états de Landau différents  $n_d$  dont l'énergie est inférieure à celle du photon incident.

Si l'on procède au balayage de l'énergie des photons, à chaque fois que celle-ci coïncide avec l'énergie d'un niveau de Landau, il s'ouvre une nouvelle voie dans laquelle l'énergie longitudinale de l'électron part de zéro. L'énergie cinétique qui doit être placée dans le degré de liberté longitudinal pour assurer la conservation de l'énergie, est d'autant plus grande que la voie ouverte par laquelle transite l'électron a une énergie éloignée du photon incident. La densité d'états associée à une voie nouvellement ouverte est donc infinie puis décroît avec l'énergie longitudinale en accord avec l'équation 5.38.

**Divergence théorique de la section efficace** L'expression de la section efficace 5.35 et les considérations précédentes concernant les éléments de matrice  $\langle \phi_i | W | \phi_f(\epsilon) \rangle$  et de la densité d'états nous permettent d'écrire la section efficace de photodétachement partielle pour une voie  $n_d$  (niveau de Landau  $n_d$ ) particulière :

$$\sigma_{n_d}(\epsilon) \propto \overbrace{\omega}^{\Phi \propto} \underbrace{|\langle \phi_i | W | \phi_f(\epsilon) \rangle|^2}_{(\omega - \omega_0)^l} \underbrace{\rho_f(\epsilon)}_{(\omega - \omega_{n_d})^{-\frac{1}{2}}}. \quad (5.39)$$

On a remplacé l'énergie cinétique longitudinale  $\epsilon_z$  de l'équation 5.38 par  $(\omega - \omega_{n_d})$ , où  $\omega_{n_d}$  correspond à la pulsation associée au seuil du niveau de Landau  $n_d$ ,  $\omega_0$  est la pulsation liée au seuil de détachement (niveau de Landau d'énergie la plus basse).

On remarque que la position d'une résonance de Landau dépend de l'intensité du champ magnétique. En revanche, sa largeur n'en dépend pas (en pratique, la largeur est définie arbitrairement).

La section efficace partielle  $\sigma_{n_d}$  de transition pour la voie  $n$  est donc d'autant plus petite que l'énergie du photon incident est éloigné de son seuil (cf. figure 5.3).

Cette relation n'est valable (du moins le terme représentant l'élément de matrice de  $W$ ) que près du seuil de détachement (seuil du niveau de Landau  $n_d = 0$ ), c'est-à-dire dans l'intervalle d'énergie où la loi de Wigner (cf. sous-section 1.2.1.3) est respectée (en l'absence de champ magnétique).

La section efficace totale  $\sigma_{i \rightarrow f}(\epsilon)$  est la somme des sections efficaces partielles des niveaux de Landau accessibles (ceux dont l'énergie est inférieure à l'énergie du photon) :

$$\sigma_{i \rightarrow f}(\epsilon) \propto \omega(\omega - \omega_0)^l \sum_{n_d=0}^{n_{d,max}} (\omega - \omega_{n_d})^{-\frac{1}{2}} \text{ [BIL79]}. \quad (5.40)$$

Où  $n_{d,max}$  correspond à la voie, accessible avec un photon d'énergie  $\hbar\omega$ , d'énergie la plus élevée.

À l'ouverture de chaque voie (niveau de Landau), la densité d'états, représentée par le terme situé dans la sommation, diverge. Ainsi, la section efficace qui lui est proportionnelle diverge également aux énergies correspondant à l'ouverture de chaque nouvelle voie.

Le profil de la section efficace se présente donc sous la forme d'une série infinie de résonances dont la période est exactement l'écart entre deux niveaux de Landau consécutifs (cf. figure 5.3).

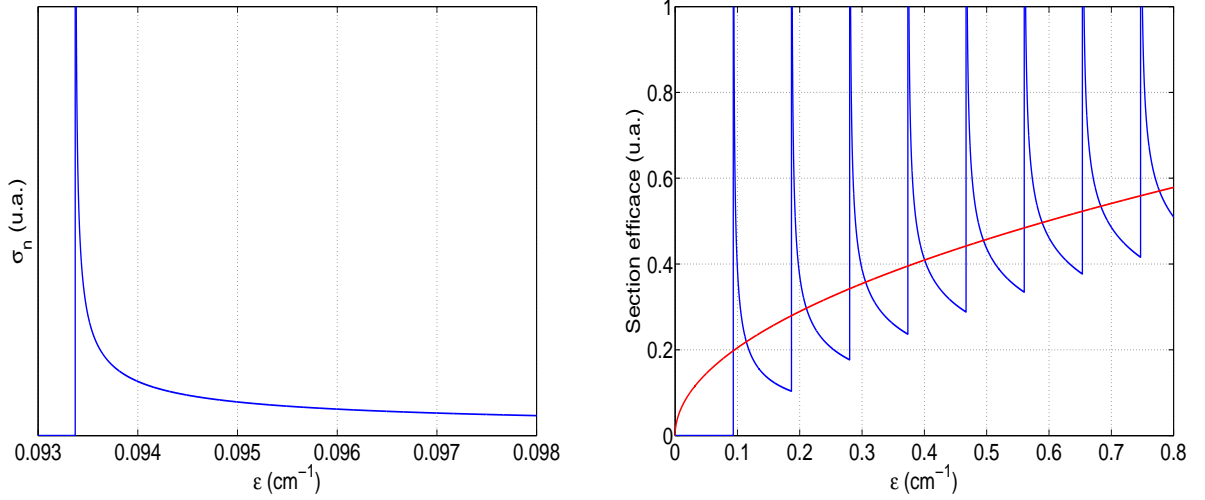


FIGURE 5.3 – À gauche : section efficace partielle de photodétachement en champ magnétique d’un électron vers un niveau de Landau  $n_d$  particulier. À droite : en rouge, section efficace totale de photodétachement sans champ magnétique en fonction de l’énergie des photons pour un moment cinétique  $l$  nul. En bleu, même courbe mais en présence d’un champ magnétique de 0,1 T. On observe une série de résonances régulièrement espacées. La contribution de chacune d’entre elle s’additionne entraînant une augmentation globale de la section efficace avec l’énergie du photon. On observe un déplacement du seuil d’une énergie égale à l’énergie séparant deux résonances consécutives. Ce déplacement est visible pour les deux valeurs de spin de l’électron puisque la transition vers le niveau  $n_d = 0$  avec  $m_e = -\frac{1}{2}$  est interdite.

Si l’on diminue l’intensité du champ magnétique,  $n_{d,max}$  devient très grand, on peut approximer la somme comme une intégrale (limite continue) :

$$\sigma_{i \rightarrow f}(\epsilon) \propto \omega(\omega - \omega_0)^l \int_{\omega_0}^{\omega} (\omega - \omega')^{-\frac{1}{2}} d\omega' \propto \omega(\omega - \omega_0)^{l+\frac{1}{2}} \quad [\text{BIL79}]. \quad (5.41)$$

On retrouve la loi de Wigner (cf. sous-section 1.2.1.3).

**Interaction atome-électron : modification de la loi de seuil** En l’absence de champ magnétique, la section efficace est décrite par la loi de Wigner [Wig48] (cf. sous-section 1.2.1.3, chapitre 1). La section efficace suit le comportement de la loi de Wigner aussi longtemps qu’il n’existe pas de potentiel d’interaction qui décroît moins vite à grande distance que le potentiel centrifuge (en  $\frac{1}{r^2}$ ). L’interaction de l’électron avec l’atome résiduel peut donc être négligée.

D’après Larson et Stoneman [LS85], contrairement à ce qui se passe à trois dimensions, dans un espace uni(bi)dimensionnel, un puits de potentiel aussi peu attractif que l’on veut, possède un état lié. La présence de cet état lié a des conséquences sur la loi de seuil qui

décrit la section efficace.

Considérant un potentiel ponctuel pour décrire l'interaction atome-électron, Larson et Stoneman ont pu déduire la nouvelle loi de seuil pour une onde  $s$  :

$$\sigma(k) \propto \frac{4k}{\kappa^2 + 4k^2}. \quad (5.42)$$

Où  $k$  correspond à la norme du vecteur d'onde de l'électron,  $\kappa$  est un paramètre qui est lié à l'énergie  $\epsilon_b = -\frac{\hbar^2 \kappa^2}{8m}$  de l'état lié.

Ce résultat est à comparer au comportement obtenu dans les sections précédentes en  $\frac{1}{k} \propto \frac{1}{\sqrt{\epsilon}}$ . La profondeur du puits, estimée par Larson et Stoneman, de 1 MHz est largement inférieure à la résolution expérimentale des expériences actuelles. La théorie de Blumberg *et al.* [BIL79] constitue donc une excellente approximation.

### 5.2.2 Section efficace pour l'onde $s$

Le photodétachement d'un électron qui se trouve initialement dans un état de symétrie  $p$  est envoyé vers un état de superposition  $s$  et  $d$  (transition dipolaire électrique). Au voisinage du seuil, la promotion vers l'état  $d$  est très improbable en raison de la présence de la barrière centrifuge (faible recouvrement entre la fonction d'onde initiale et finale).

Un électron détaché en une onde  $s$  possède un moment cinétique orbital nul. D'après les résultats de la section 5.1.2, cela signifie que les nombres quantiques  $n_d$  et  $n_g$  sont égaux (les valeurs propres de  $L_z$  sont telles que  $\hbar m = \hbar(n_d - n_g)$ ). Or, on a vu que  $n_d$  et  $n_g$  sont respectivement reliés au rayon carré moyen et à la distance carrée moyenne de la particule à l'axe  $Oz$ . Dans une vision classique, ces états particuliers peuvent être interprétés comme des orbites cyclotroniques intersectant l'origine.

Blumberg *et al.* [BJL78] se placèrent dans cette situation en choisissant de travailler avec l'ion  $S^-$ . Pour un moment cinétique  $l$  nul, l'équation 5.41 donne l'expression de la section efficace de photodétachement en onde  $s$  en présence d'un champ magnétique extérieur (dans l'intervalle d'énergie où la loi de Wigner est valide) :

$$\sigma_{i \rightarrow f}(\epsilon) \propto \omega \sum_{n_d=0}^{n_{d,max}} (\omega - \omega_{n_d})^{-\frac{1}{2}}. \quad (5.43)$$

### 5.2.3 Théorie des orbites fermées

Du et Delos [DD87, DD88a] s'intéressèrent à une famille de trajectoires particulières qui reviennent au point source appelées, de ce fait, "orbites fermées".

Ils démontrèrent que ces trajectoires sont à l'origine de termes oscillants dans l'expression de la densité d'états finals  $\rho(E)$  :

$$\rho(E) = \rho_0(E) + a_k(E) \sin\left(\frac{W_k(E)}{\hbar} + \eta_k\right) \quad [\text{DD88a}]. \quad (5.44)$$

$\rho_0(E)$  est un terme lentement variable avec l'énergie,  $W_k(E)$  est l'action réduite associée à la trajectoire  $k$  et  $\eta_k$  est un terme de phase supplémentaire qui est non-nul lorsqu'il existe des points singuliers (focalisation) le long de la trajectoire.

La section efficace, qui est proportionnelle à  $\rho(E)$  (cf. équations 5.34 et 5.35) oscille en conséquence.

Dans le cas particulier du photodétachement en champ magnétique, l'électron éjecté orbite sur une trajectoire hélicoïdale. Près d'un nouveau seuil de détachement, il y a ouverture d'une nouvelle voie dans laquelle l'énergie cinétique longitudinale part de zéro. Dans le cas du photodétachement en onde  $s$  (cf. sous-section précédente), l'orbite de l'électron détaché revient au point source. La densité d'états est donc maximale à l'ouverture d'un nouveau seuil.

De plus, l'orbite est infiniment dégénérée puisque son centre se situe avec une distribution de probabilité uniforme sur un cercle dont le rayon est égal au rayon cyclotronique. Le nombre de trajectoires qui intersectent le point source est infini et la densité d'états diverge (la section efficace aussi puisqu'elle est proportionnelle à la densité d'états).

Lorsque l'énergie du photon excitateur augmente, l'énergie cinétique qui est distribuée dans le degré de liberté longitudinal s'accroît. Les orbites ne croisent alors plus le point source et la densité d'états décroît en conséquence (jusqu'à l'ouverture d'une nouvelle voie).

## 5.3 Levée de dégénérescence Zeeman

Jusqu'à présent, on considérait la structure énergétique comme composée d'un niveau de départ (de l'ion négatif) et d'un niveau d'arrivée (de l'atome). En réalité, il y a une structure Zeeman sous-jacente due à la présence du champ magnétique qu'il convient de

prendre en compte.

### 5.3.1 Choix de l'ion $O^-$

Les caractéristiques fondamentales des résonances de Landau ne dépendent *a priori* pas de l'ion étudié.

Pour notre étude sur les résonances de Landau, il est commode d'utiliser des ions plus lourds que  $H^-$  (ou  $D^-$  et  $T^-$ ). Ceci limite l'explosion du faisceau d'ions lors de son passage au sein du champ magnétique et permet plus facilement à l'ensemble des neutres produits d'atteindre le détecteur.

Notre regard s'est arrêté sur l'ion  $O^-$  pour plusieurs raisons. Premièrement, cet ion est facilement produit par notre source SNICS II (cf. chapitre 2, section 2.1). Deuxièmement, cet ion et l'ion  $S^-$ , dont la structure des niveaux est très similaire, ont déjà été étudiés auparavant théoriquement et expérimentalement (surtout  $S^-$ ). Cela facilitera l'analyse des résultats expérimentaux. Un ion plus lourd, donc plus lent, permet aussi de limiter les pertes de résolution de l'expérience dues à l'effet Doppler (cf. sous-section 2.4.2) et à l'effet Stark motionnel (cf. section 5.4).

### 5.3.2 Structure Zeeman

En l'absence de champ magnétique, le spectre de photodétachement de l'ion  $O^-$  n'est constitué que de peu de transitions (transitions entre les deux termes spectraux fondamentaux (cf. figure 5.4).

La transition la plus probable ( $^2P_{3/2} \rightarrow ^3P_2$ ), notée 3, fait intervenir les niveaux fondamentaux de l'ion  $O^-$  et de l'atome O. Cette supériorité s'explique *en partie* (il y a aussi les poids des transitions qui interviennent) par le fait que, parmi l'ensemble des niveaux du doublet  $^2P$  de  $O^-$  et du triplet  $^3P$  de O, les niveaux  $^2P_{3/2}$  et  $^3P_2$  possèdent la dégénérescence la plus élevée. De plus, à l'équilibre thermodynamique, le niveau fondamental est toujours plus peuplé que les niveaux excités. Ceci influe sur le poids relatif du signal expérimental.

Un inconvénient est que les neutres produits lors de la transition  $^2P_{3/2} \rightarrow ^3P_2$  sont accompagnés des neutres produits au travers des deux autres transitions 1 et 2 (réduction du rapport signal sur bruit).



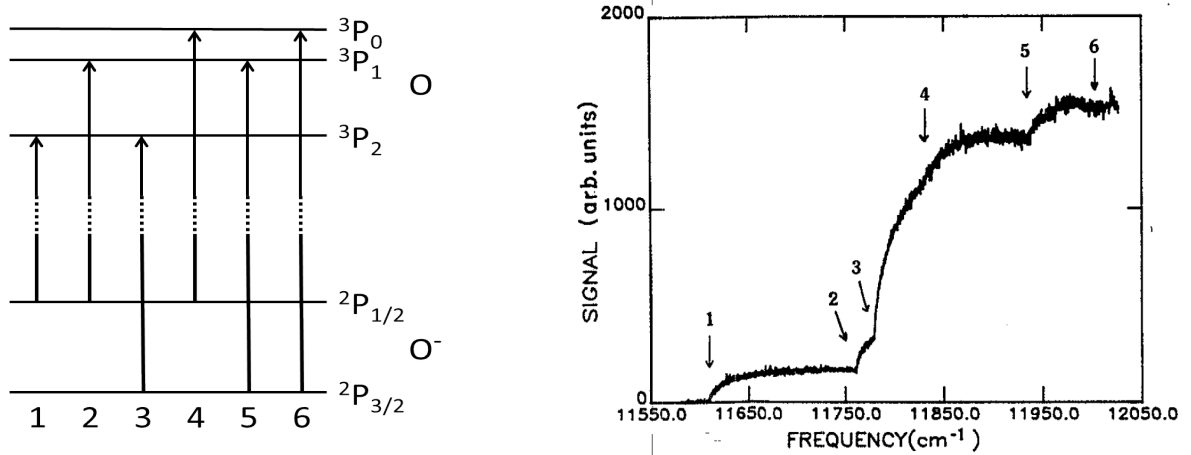


FIGURE 5.4 – À gauche, schéma des niveaux de O<sup>-</sup> et O (états fondamentaux avec leurs structures fines). Chacune des flèches représente une transition permise (numérotées par énergies croissantes, cf. figure de droite). À droite, courbe expérimentale représentant l'évolution du signal de photodétachement de l'ion O<sup>-</sup> en fonction de l'énergie des photons excitateurs. On observe un ressaut de la section efficace au passage de chaque nouveau seuil (figure extraite de la référence [NLAL85]).

En présence d'un champ magnétique, la dégénérescence de l'ensemble des niveaux de structure fine est entièrement levée (effet Zeeman). La supériorité, en terme de peuplement, du niveau fondamental  $^2P_{3/2}$  le rend plus attractif pour étudier les résonances de Landau. Du fait de la présence des transitions de plus basse énergie  $^2P_{1/2} \rightarrow ^3P_2$  et  $^2P_{1/2} \rightarrow ^3P_1$ , la structure de la section efficace est très complexe (superposition des multiples séries de résonances de Landau associées à chacune des transitions Zeeman accessibles)<sup>13</sup>.

**Levée de dégénérescence Zeeman** En champ magnétique faible, l'effet Zeeman est linéaire en  $\mu_B B$  ( $\mu_B = \frac{e\hbar}{2m_e} \sim 467 \text{ mk/T}$  est le magnéton de Bohr). Le hamiltonien s'écrit, à l'ordre 1 de la perturbation :

$$H_Z = g_J m_J \mu_B B. \quad (5.45)$$

$m_J$  est le nombre quantique magnétique du niveau d'énergie,  $g_J$  est le facteur de Landé associé.

On obtient, pour l'oxygène, la structure énergétique donnée sur la figure 5.5.

13. On verra (cf. section 5.4.2) que la perte de résolution expérimentale, due aux inhomogénéités spatiales du champ magnétique, est d'autant plus élevée que l'ordre  $n_d$  de la résonance est grand. Au seuil de la transition  $^2P_{3/2} \rightarrow ^3P_2$ , les séries de résonances liées aux transitions de plus basse énergie sont partiellement moyennées.

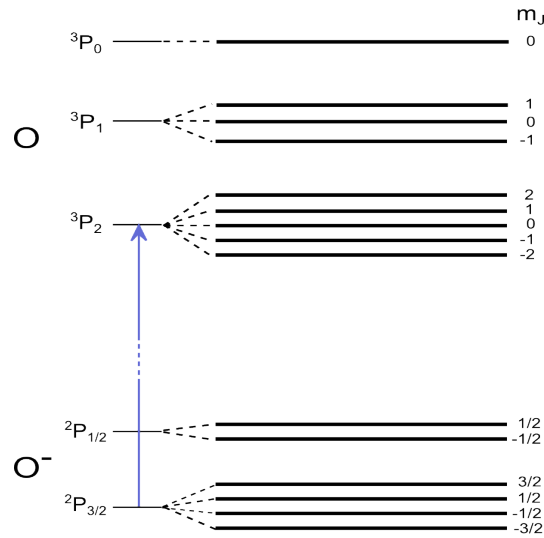


FIGURE 5.5 – Schéma des niveaux de O<sup>-</sup> et O en présence d'un champ magnétique. Chaque niveau se scinde en un nombre de composantes Zeeman égal à sa dégénérescence.

Cette levée de dégénérescence est à l'origine d'une multiplication des transitions possibles. La probabilité de transition dépend fortement de la structure angulaire des niveaux d'énergie de départ de l'ion O<sup>-</sup> et d'arrivée de O (recouvrement angulaire des fonctions d'onde). Il s'agit de choisir la transition la plus probable pour résoudre au mieux les résonances de Landau.

**Poids statistiques des transitions et choix de la polarisation du laser** Pour un état donné, la structure angulaire des fonctions d'onde de O (respectivement O<sup>-</sup>) et S (respectivement S<sup>-</sup>) est la même (ils appartiennent à la même colonne du tableau périodique). Or, les poids *relatifs* des transitions entre les états de deux multiplets sont déterminés par la structure angulaire des fonctions d'onde des états initial et final.

L'élément de matrice de transition dipolaire électrique entre l'état  $|i\rangle = |p^5(^2P)JM\rangle$  de l'ion S<sup>-</sup> et l'état  $|f\rangle = |p^4(^3P)jm;(^2S)\frac{1}{2}m_eJM'\rangle$  du système atome S + électron libre, fait intervenir les nombres quantiques suivants :

- $J$ , associé au moment cinétique total de l'ion S<sup>-</sup>
- $M$ , la composante selon l'axe Oz (à un facteur  $\hbar$  près), parallèle à  $B$ , du moment cinétique total  $J$
- $j$ , associé au moment cinétique total de l'atome S,
- $m$ , la composante selon Oz (à un facteur  $\hbar$  près), du moment cinétique total  $j$
- $m_e$ , la composante selon Oz du spin de l'électron
- $J'$ , lié au moment cinétique total du système atome + électron,

- $M'$ , la composante selon  $Oz$  (à un facteur  $\hbar$  près), du moment cinétique total  $J'$
- $q$ , la polarisation de la lumière excitatrice,  $q = 0$  pour la polarisation  $\pi$  et  $q = \pm 1$  pour la polarisation  $\sigma_{\pm}$ .

L'élément de matrice s'écrit :

$$\begin{aligned} \langle f|P_q^{(1)}|i\rangle &= (-1)^{j+J-\frac{1}{2}}[2(2j+1)(2J+1)]^{\frac{1}{2}}\langle f||P^{(1)}||i\rangle \\ &\times \sum_{J'M'} (2J'+1) \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ -M' & q & M \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j & \frac{1}{2} & J' \\ m & m_e & -M' \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ J & \frac{1}{2} & J' \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & j \\ \frac{1}{2} & J' & \frac{1}{2} \end{Bmatrix}, \quad [\text{BIL79}] \end{aligned} \quad (5.46)$$

où  $\langle f||P^{(1)}||i\rangle$  est l'élément de matrice réduit qui est constant vis-à-vis des nombres quantiques angulaires. Les matrices entre parenthèses et entre accolades correspondent respectivement aux symboles 3j et 6j.

Cette formule permet de calculer les poids relatifs des transitions entre chaque composante Zeeman.

Elle se simplifie, dans notre cas, pour les seuils 1, 3, 4, 6 car le moment cinétique  $J'$  ne prend qu'une valeur. On peut alors sortir les symboles 6j de la somme. On trouve, en valeur absolue :

$$\begin{aligned} |\langle f|P_q^{(1)}|i\rangle| &\propto (2J'+1)[2(2j+1)(2J+1)]^{\frac{1}{2}} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ J & \frac{1}{2} & J' \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & j \\ \frac{1}{2} & J' & \frac{1}{2} \end{Bmatrix} \\ &\times \left| \sum_{M'} \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ -M' & q & M \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j & \frac{1}{2} & J' \\ m & m_e & -M' \end{pmatrix} \right|. \end{aligned} \quad (5.47)$$

Blumberg *et al.* ont appliqué la relation au cas particulier de la transition 3 ( ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^3P_2$ ) ( $J = \frac{3}{2}$  et  $j = 2$ ) qui est aussi celle qui nous intéresse. On trouve, dans ce cas particulier que  $J' = \frac{3}{2}$  (la valeur  $J' = \frac{5}{2}$  étant exclue par application des règles triangulaires), on trouve alors :

$$|\langle f|P_q^{(1)}|i\rangle| \propto \left| \sum_{M'=M+q} \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -M' & q & M \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 2 & \frac{1}{2} & \frac{3}{2} \\ m & m_e & -M' \end{pmatrix} \right|. \quad (5.48)$$

Il s'agit de la somme sur toutes les transitions possibles entre les niveaux  ${}^2P_{3/2}$  et le niveau  ${}^3P_2$ . On peut donc associer un poids relatif  $W$  pour chaque transition Zeeman ( $M$  et  $q$  fixés) :

$$|\langle f|P_q^{(1)}|i\rangle|^2 \propto \left| \begin{pmatrix} \frac{3}{2} & 1 & \frac{3}{2} \\ -M' & q & M \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 2 & \frac{1}{2} & \frac{3}{2} \\ m & m_e & -M' \end{pmatrix} \right|^2 = W. \quad [\text{BIL79}] \quad (5.49)$$

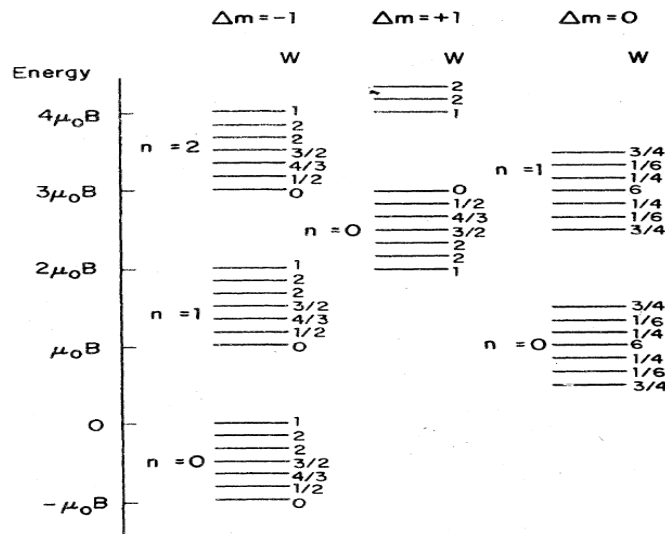


FIGURE 5.6 – Énergie des seuils pour chaque composante Zeeman de la transition  ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^3P_2$ . L'origine de l'axe des énergies correspond à la position du seuil en champ magnétique nul. La structure des transitions a été découpée en trois parties dont chacune est associée à une polarisation,  $\Delta m = \pm 1$  (polarisations  $\sigma_{\pm}$ ) et  $\Delta m = 0$  (polarisation  $\pi$ , cf. texte). Pour chaque niveau, les poids relatifs  $W$  sont représentés (cf. texte). Le nombre quantique radial  $n$  (onde  $s$  donc  $n = n_d = n_g$ ) donnant l'ordre de la résonance de Landau est également indiqué. Cette figure a été extraite de la référence [BIL79].

Les poids  $W$  sont donnés sur la figure 5.6. La possibilité de transition dépend de l'état de polarisation de la lumière excitatrice vis-à-vis du champ magnétique. Pour que la transition soit permise, on doit avoir  $M' = m + m_e$  ( $\Delta m = M' - M = q$ ,  $M'$  est fixe car  $M$  et  $q$  le sont).

Sur la figure, on remarque que la transition la plus probable a lieu avec une *polarisation*  $\pi$  ( $\Delta m = 0$ ,  $W = 6$ , deux fois dégénérée). En outre, les transitions satellites qui l'entourent sont relativement improbables. Elles sont donc largement dominées par la transition principale. Dans la suite, on considérera que le profil de la section efficace en champ magnétique est déterminé par la série de résonances associée à cette transition.

## 5.4 Écarts à la théorie : limites de résolution de l'expérience

Pour observer individuellement les résonances de Landau, il faut que la séparation énergétique entre deux résonances soit au moins égale à la limite de résolution expérimentale. L'intensité du champ magnétique doit être suffisant pour permettre cette séparation. Il est donc nécessaire de bien évaluer l'effet d'un élargissement spectral sur les résonances et la valeur l'élargissement attendu dans notre expérience.

### 5.4.1 Effets des flous sur le profil de $\sigma$

On peut considérer que l'effet d'un élargissement spectral sur la section efficace correspond à la convolution d'une gaussienne (dont la largeur est celle du flou énergétique) par le profil de la section efficace sans élargissement.

Sur la figure 5.7, on peut voir l'effet d'un élargissement spectral sur le profil de section efficace en champ magnétique (courbe bleue). On observe que le maximum de section efficace, à résonance, est d'autant plus petit que le flou énergétique devient important. Pour un élargissement de 20 mk (celui de notre dispositif expérimental), les résonances ressemblent à des oscillations de section efficace autour de la valeur en champ magnétique nul.

### 5.4.2 Sources d'élargissement expérimental

Le calcul des élargissements a déjà été abordé au chapitre 2, sous-section 2.4.2. Nous nous intéressons ici aux sources d'élargissement spécifiques au problème du photodétachement en champ magnétique.

**Effet Stark motionnel** L'ion négatif et l'électron éjecté par photodétachement au sein du champ magnétique perçoivent, outre un champ magnétique, un champ électrique motionnel. Le hamiltonien attaché à l'ion (son cortège électronique est déformé) et à l'électron détaché gagne un terme de perturbation par rapport au cas considéré jusqu'à présent (cf. équation 5.20) :

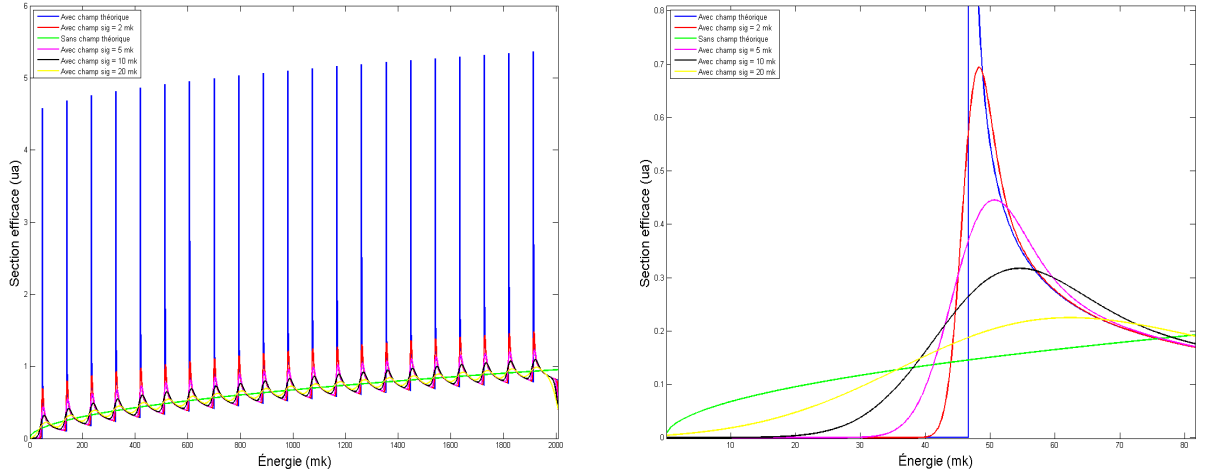


FIGURE 5.7 – À gauche, on a représenté la section efficace de photodétachement (onde s, transition  ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^3P_2$  de l'oxygène par exemple), en présence d'un champ magnétique de 0,1 T, en fonction de l'énergie du photon excitateur (courbe bleue). On a choisi de placer l'origine des énergies au niveau du seuil de photodétachement. Les courbes rouge, magenta, noire et jaune sont le résultat d'une perte de résolution due à la présence de sources d'élargissement énergétiques (gaussienne d'écart-type 2, 5, 10 et 20 mk respectivement). Pour comparaison, on a tracé la section efficace en l'absence de champ magnétique (courbe verte). À droite : zoom sur la première résonance de la courbe de gauche.

$$H = \frac{P_x^2 + P_y^2}{2m} + \frac{1}{2}m\omega^2(X^2 + Y^2) + \omega L_z + \frac{P_z^2}{2m} + q\mathcal{E}Y \quad (5.50)$$

$H$  est le hamiltonien associé au photoélectron <sup>14</sup>.

Dans le cas où l'on choisit un référentiel dans lequel on a  $\mathbf{v} = (v_{x,ions}, 0, v_{z,ions})$ , où  $\mathbf{v}$  est le vecteur vitesse de l'ion dans (R), on a  $\mathcal{E} = \gamma_v v_{x,ions} B$ , qui est égale à la norme du champ électrique motionnel.

Pour calculer l'élément de matrice de transition dipolaire électrique (dont dépend la section efficace), il faut déterminer l'expression de la fonction d'onde de l'état final en résolvant l'équation de Schrödinger associée au hamiltonien 5.50. Une fois que celui-ci est connu, la règle d'or de Fermi permet de calculer le taux et donc la section efficace de transition dans ce cas particulier. Les autres aspects, notamment l'effet Doppler, peuvent être pris en compte en moyennant cette section efficace sur les distributions idoines (pour les détails des calculs cf. Blumberg *et al.* [BIL79]).

Dans l'expérience de Blumberg *et al.*, l'énergie cinétique de l'électron transverse au

14. En jauge de Landau, le hamiltonien s'écrit  $H = \frac{P_x^2}{2m} + \frac{1}{2}m\omega_c^2 X^2 - q\mathcal{E}'X + \frac{P_y^2}{2m} + q\mathcal{E}Y + \frac{P_z^2}{2m}$  avec  $\mathcal{E}' = \frac{P_y B}{m}$ .

champ magnétique est typiquement de 0,3 GHz (soit  $\sim 0,01 \text{ cm}^{-1}$ ). L'importance du champ électrique motionnel dépend du rapport entre cette énergie et la distance entre deux niveaux de Landau consécutifs. Pour Blumberg *et al.*, ce rapport vaut  $\frac{0,3}{30} \sim 0,01$  (l'intensité de leur champ magnétique était de 1,07 T).

Dans notre expérience, les ions oxygène se meuvent à 120 km/s. Par conséquent, pour une divergence de l'ordre du milliradian, la vitesse transverse atteint  $\sim 120 \text{ m/s}$ . Soit une énergie cinétique transverse pour le photoélectron de 0,01 GHz (soit  $4,1 \cdot 10^{-8} \text{ eV}$ ). Si l'intensité du champ magnétique est de 0,1 T, les niveaux de Landau seront séparés de  $0,1 \text{ cm}^{-1}$  (3 GHz). Soit un rapport de  $\frac{0,01}{3} \sim 0,0034$ .

On s'attend donc à ce que l'effet du champ motionnel sur la résolution des niveaux de Landau soit trois fois moins prononcé que dans l'expérience de Blumberg *et al.*. Dans leur cas, l'élargissement énergétique dû à cet effet était de 1 GHz. Pour nous, il devrait être d'environ 350 MHz (soit 11,7 mk) ce qui est encore élevé.

**Inhomogénéités de B** Le recouvrement laser/jet n'est pas ponctuel. En outre, il est impossible d'obtenir expérimentalement un champ magnétique parfaitement uniforme. En conséquence, le champ perçu par l'électron éjecté dépend de la position de l'ion au moment du photodétachement. Comme, la position des niveaux de Landau est fonction de l'intensité du champ, l'inhomogénéité du champ  $\Delta B$  va générer un flou dans le profil de la section efficace.

Le flou énergétique  $\Delta E_n$  lié à ces inhomogénéités et à la non-ponctualité de la zone d'interaction est donné par la relation :

$$\Delta E_n = \frac{\hbar e \Delta B}{m_e} \left( n + \frac{1}{2} \right). \quad (5.51)$$

On déduit de cette expression que le flou produit est d'autant plus prononcé que le niveau de Landau considéré a un ordre  $n$  élevé.

Si l'on considère des inhomogénéités de l'ordre de  $\Delta B = 1 \cdot 10^{-4} \text{ T}$ , qui est une hypothèse raisonnable vis-à-vis des valeurs idéales extraites des simulations numériques (cf. sous-section 5.5.1 ci-dessous), on trouve un flou  $\Delta E_0 = 4,7 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$  (soit 0,047 mk) pour le niveau de Landau d'ordre le plus bas. Il s'agit d'une incertitude relativement faible. En revanche, si l'on considère des niveaux d'ordres plus élevés, cela se complique rapidement. Pour  $n = 10$ , l'erreur grimpe à  $\sim 0,5 \text{ mk}$ . Il est donc important de réaliser un champ magnétique très uniforme.

Dans notre expérience, ce sont l'effet Stark motionnel et les inhomogénéités du champ magnétique (du moins pour les résonances d'ordre élevé) qui sont les plus grandes sources d'élargissement. Il convient donc de limiter au maximum la divergence du faisceau d'ions.

L'addition des erreurs expérimentales donne un ordre de grandeur de l'élargissement spectral attendu d'un peu plus de 19 mk. On devrait observer des oscillations de la section efficace (cf. figure 5.7).

Ce calcul n'est cependant qu'une ébauche. Le champ électrique motionnel, à l'origine d'un terme supplémentaire dans le hamiltonien, fait de la diagonalisation complète de celui-ci un problème complexe, que nous n'aborderons pas dans ce chapitre.

## 5.5 Les bobines de champ magnétique : dimensionnement et montage

On a vu, dans la sous-section 5.2.1, que la largeur pratique (définition arbitraire) d'une résonance de Landau est indépendante de l'intensité du champ magnétique appliqué. En revanche, la séparation entre deux résonances est proportionnelle à ce champ. À cela s'ajoute la structure Zeeman de l'ion de départ qui est à l'origine d'une structure plus complexe du profil de la section efficace du fait de la multiplication des transitions permises (cf. sous-section 5.3.2).

Dans le cas du passage du niveau  ${}^2P_{3/2}$  à  ${}^3P_2$  en polarisation  $\pi$  (choix), l'écart énergétique entre deux transitions consécutives (entre un niveau Zeeman de  ${}^2P_{3/2}$  et un niveau de  ${}^3P_2$ , pour un  $n$  donné) est égal à  $\frac{\mu_B B}{3}$  (cf. figure 5.6). Dans l'hypothèse d'un élargissement de 19 mk, comme estimé dans la section 5.4.2, un champ au moins égal à 0,125 T ( $\frac{\mu_B B}{3} = 19,5$  mk) est nécessaire. Mais on a vu que le poids de la transition la plus probable ( $W = 6$ , en polarisation  $\pi$ ) est 24 fois plus grand que le poids des transitions adjacentes ( $W = \frac{1}{4}$ ), une intensité de 0,1 T ( $\frac{\mu_B B}{3} = 15,6$  mk) est suffisant pour assurer un bon contraste (cf. figure 5.6).

Les variations d'intensité du champ magnétique sont à l'origine d'une partie des pertes de résolution énergétique. De plus, ces pertes sont d'autant plus élevées que l'ordre  $n$  de la résonance considérée est grand (cf. équation 5.51). Il est donc indispensable de produire le champ le plus uniforme possible.

On a intérêt à minimiser l'intensité du champ magnétique pour limiter l'explosion



transverse du faisceau de neutres produits par photodétachement en son sein.

### 5.5.1 Simulations du champ magnétique produit par les bobines

La géométrie des bobines doit être choisie de manière à satisfaire les contraintes imposées sur le champ magnétique pour la résolution des résonances de Landau. Il faut, d'une part, que le champ soit suffisamment intense (supérieur ou égal à 0,1 T) pour assurer une bonne séparation énergétique des résonances et d'autre part, uniforme ( $\Delta B < 1.10^{-4}$  T) pour minimiser les pertes de résolution. La géométrie expérimentale impose également quelques contraintes qu'il convient de considérer.

La géométrie retenue pour le système de bobines (cf. sous-section 5.5.2.3 pour les détails) permet de remplir ces conditions. On a représenté, sur la figure 5.8, les profils simulés des composantes axiale (selon  $Oz$ ) et radiale (coupe du plan  $Oxy$ , le système étant à symétrie cylindrique) du champ magnétique, au niveau de la zone d'interaction laser/jet.

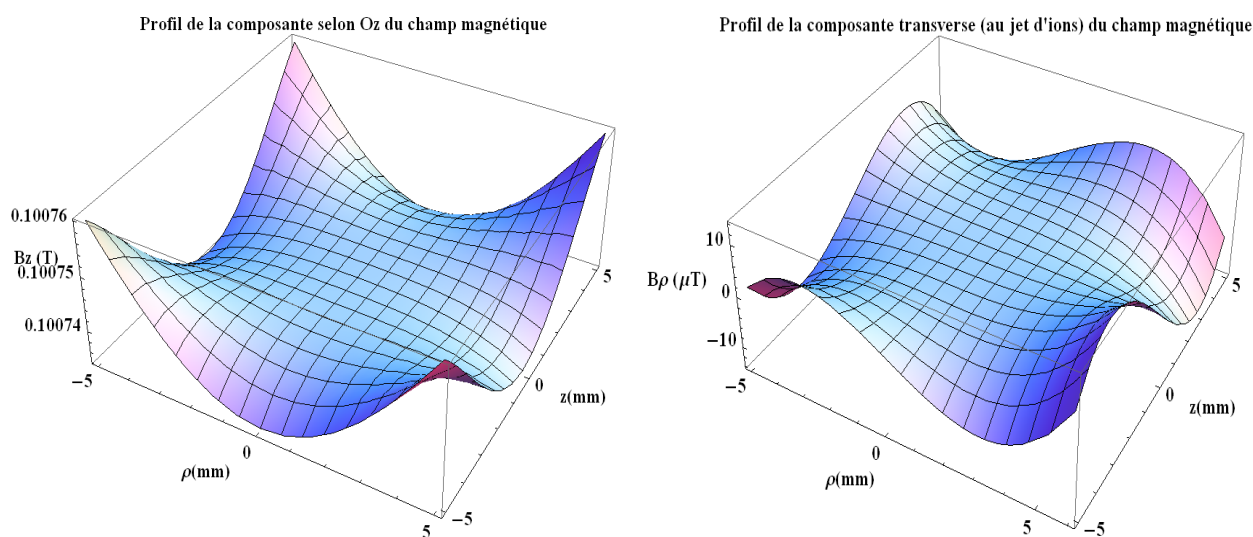


FIGURE 5.8 – À gauche, profil bidimensionnel (selon  $O\rho z$ ,  $\rho$  étant la dimension radiale) de la composante selon  $Oz$  du champ magnétique au niveau de la zone d'interaction laser/jet. On observe que l'intensité du champ culmine à 0,1 T. Le profil a une bonne uniformité avec des variations de quelques dizaines de  $\mu\text{T}$  sur 10 mm. À droite, profil bidimensionnel de la composante selon  $\rho$  (coupe du plan  $Oxy$ ) du champ magnétique. Le profil présente une très bonne uniformité avec des variations de quelques  $\mu\text{T}$  sur l'ensemble de la zone d'interaction.

On observe, sur la figure, que l'intensité du champ culmine à 0,1 T et présente peu de variations d'intensité (variations de quelques dizaines de  $\mu\text{T}$  sur l'ensemble de la zone d'interaction).

## 5.5.2 Réalisation expérimentale du champ magnétique

Les simulations nous ont permis de déterminer la géométrie des bobines (cf. infra) satisfaisant les contraintes sur l'intensité (0,1 T) et l'homogénéité du champ magnétique.

Pour générer un tel champ, il est nécessaire de faire passer un fort courant dans les bobines. Une partie importante de la puissance transportée par ce courant se dissipe par effet Joule. Pour éviter la fusion des bobines, il est nécessaire d'intégrer un système de refroidissement à l'eau qu'il convient de bien dimensionner.

### 5.5.2.1 Géométrie des bobines de champ magnétique

Notre système, constitué de deux bobines de cuivre montées en série, est centré sur la zone d'interaction. La distance entre les deux faces intérieures des bobines (celles orientées vers la zone d'interaction) est de 20 mm. Chacune d'entre-elles est formée de 72 spires dans une configuration 8 (largeur) par 9 (épaisseur) qui nécessite 22,7 m de longueur de câble. Leurs rayons intérieur (sans les spires) et extérieur (avec les spires) mesurent respectivement 35 et 71 mm. Le diamètre du câble gainé (gaine résistante jusqu'à une température de 135 °C) étant de 4 mm, l'épaisseur d'une bobine atteint 36 mm (cf. figure 5.9).

On utilise un câble de cuivre creux ( $\varnothing = 3$  mm) nécessaire pour faire circuler l'eau pour le refroidissement. La conduite d'eau qui passe au cœur du câble possède un diamètre de 2 mm. Dans ces conditions, la section totale de cuivre atteint 3,93 mm<sup>2</sup> (cf. figure 5.9).

Le système doit être dimensionné pour que l'échauffement de l'eau n'atteigne pas l'ébullition, ce qui serait catastrophique du point de vue du refroidissement.

### 5.5.2.2 Étude des échanges thermiques : refroidissement actif des bobines

Le but de cette section est de déterminer le débit massique d'eau  $Q_M$ , et donc la différence de pression  $\Delta p = p_{pompe} - p_{atm}$  à appliquer pour refroidir notre bobine lorsqu'un courant ( $I = 85$  A) la traverse. Une astuce, pour réduire la pression de pompe nécessaire est de brancher les bobines en parallèle dans le circuit de refroidissement (le débit étant contrôlé avec un robinet, la pression du bâtiment est à 6,3 bar). Mais cela oblige à bien égaliser les impédances hydrauliques des bobines.

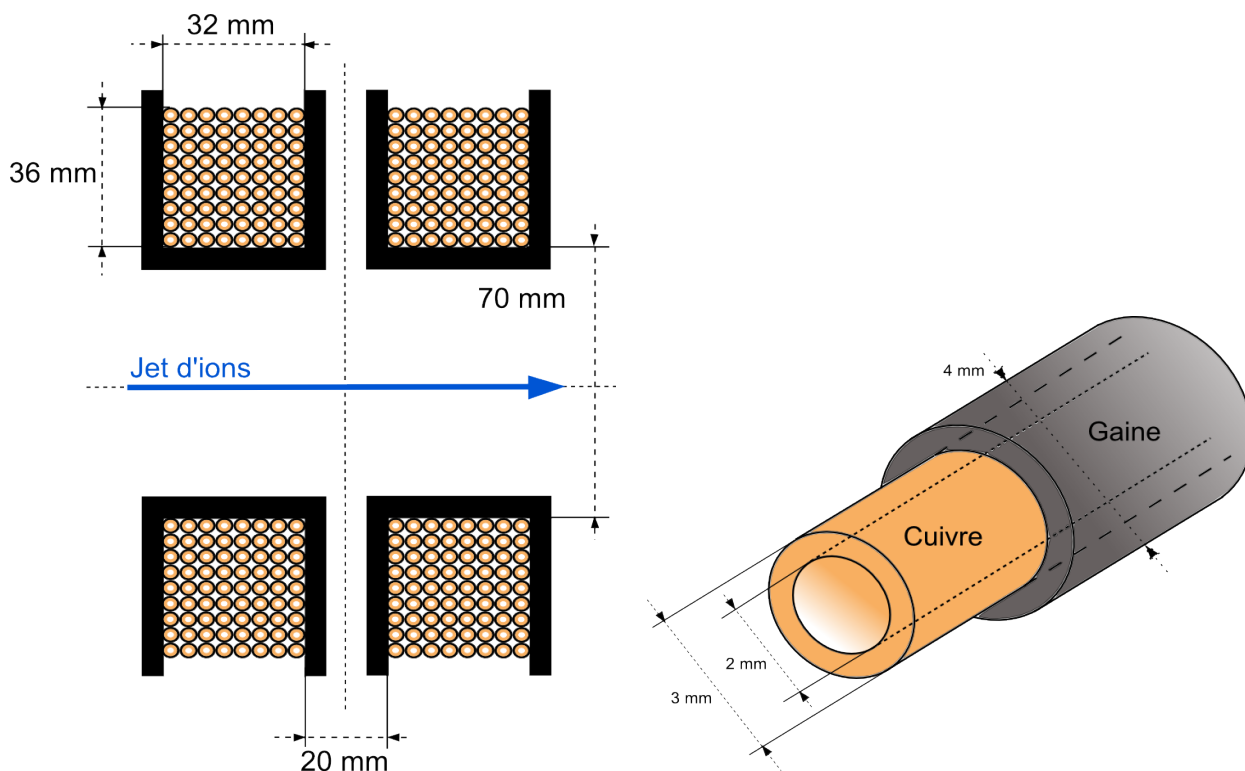


FIGURE 5.9 – À gauche, vue en coupe des bobines de champ magnétique. À droite, vue en coupe du câble en cuivre utilisé pour les bobines.

**Résistance électrique des bobines et puissance dissipée par effet Joule** La résistivité du cuivre (en  $\frac{\Omega \text{mm}^2}{\text{m}}$ ) est un paramètre qui dépend de la température. À  $20^\circ\text{C}$ , la résistivité du cuivre  $\rho_{\text{Cu},20^\circ\text{C}}$  est égale à  $0,0171 \frac{\Omega \text{mm}^2}{\text{m}}$ . On déduit la résistance  $R_{\text{bobine},20^\circ\text{C}} = 0,0171 \Omega$ , à  $20^\circ\text{C}$ , d'une de nos bobines connaissant la section de cuivre ( $3,93 \text{mm}^2$ ) et la longueur du câble ( $22,7 \text{m}$ ) qui la compose.

Une formule empirique permet d'en connaître l'évolution avec la température  $T$  :

$$R_{\text{bobine},T} = R_{\text{bobine},20^\circ\text{C}}[1 + \alpha(T - 20^\circ\text{C})]. \quad (5.52)$$

$\alpha$  est le coefficient thermique de la résistance qui dépend de la pureté du cuivre, on prendra  $\alpha = 3,9 \cdot 10^{-3} \text{K}^{-1}$ .

On considérera dans la suite, que la résistance est constante et égale à  $0,115 \Omega$  (résistance à  $60^\circ\text{C}$ ). Cette valeur nous permet de calculer la puissance  $P$  dissipée par le câble lorsqu'un courant de  $85 \text{A}$  circule à l'intérieur, le calcul donne  $830 \text{W}$ .

**Relation entre le débit massique et la température de l'eau en sortie des bobines**

Nous voulons déterminer la relation entre le débit massique  $Q_M$  (kg/s) de l'eau injectée dans le conduit et l'augmentation de température  $\Delta T$  de l'eau après son passage dans les bobines. Pour cela, on a besoin de l'équation de la chaleur :

$$\frac{\partial T(x, t)}{\partial t} = \frac{P_V}{\rho C_p}. \quad (5.53)$$

Où  $P_V$  la source volumique de chaleur ( $W/m^3$ ),  $\rho$  la masse volumique de l'eau et  $C_p$  la capacité calorifique de l'eau à pression constante ( $4185 J.kg^{-1}.K^{-1}$ ).

Ici, en raison des épaisseurs mises en jeu et des constantes de temps, on considère que la répartition de la chaleur est uniforme. C'est pourquoi le terme diffusif (négligeable) est absent de l'équation 5.53.

Nous cherchons à obtenir un ordre de grandeur, nous pouvons écrire :

$$\frac{\Delta T}{\Delta t} = \frac{P}{MC_p}, \quad (5.54)$$

où  $M$  est la masse totale d'eau qui se trouve dans le conduit à tout instant,  $\Delta T$  la différence de température de l'eau entre l'entrée et la sortie des bobines et  $P$  la puissance dissipée par effet Joule.

Le débit massique s'exprime en fonction de  $\Delta T$  :

$$Q_M = \rho Q_V = \frac{P}{C_p \Delta T}, \quad (5.55)$$

où  $Q_V$  ( $m^3/s$ ) est le débit volumique.

**Régime de l'écoulement** Il est important de connaître la nature de l'écoulement, laminaire ou turbulent, de l'eau. Dans notre cas, il est préférable de se placer dans le régime turbulent de manière à ce que la température de l'eau soit uniforme (dans le plan transverse au conduit). Le nombre de Reynolds  $R_e$ , qui est le rapport des forces d'inertie sur les forces visqueuses, permet de calculer le régime d'écoulement (turbulent si  $R_e > 3000$ ) :

$$R_e = \frac{\rho V (2R)}{\eta}, \quad (5.56)$$

où  $V$  est la vitesse de l'eau,  $R$  le rayon du conduit et  $\eta$  la viscosité de l'eau (décroissante avec la température,  $3,55 \cdot 10^{-4}$  Pa.s à  $80^\circ\text{C}$ ).

D'après l'équation 5.55, on peut exprimer la vitesse de l'eau en fonction de  $\Delta T$  ( $Q_V = VS$  avec  $S$  la section du conduit) :  $V = \frac{P}{C_p \rho S \Delta T}$ . On peut alors réexprimer le nombre de Reynolds :

$$Re = \frac{2P}{\pi R \eta C_p \Delta T}. \quad (5.57)$$

Le calcul montre que, pour un courant de 85 A ( $P = 830$  W), le régime est turbulent quelle que soit la valeur de  $\Delta T$  ( $\Delta T < 80^\circ\text{C}$ ).

**Relation entre la pression de pompe et la variation de température  $\Delta T$**  L'objectif est de déterminer la pression de pompage  $P_{pompe}$  à exercer pour assurer le débit suffisant d'eau à travers la conduite et ainsi dissiper complètement la chaleur dégagée par le système. Le régime étant turbulent, la formule de Poiseuille ne s'applique pas. On peut à la place utiliser une formule empirique donnant la différence de pression  $\Delta p = p_{pompe} - p_{atm}$  et qui est basée sur la connaissance du coefficient de pertes de charge linéaire  $\lambda$  :

$$\Delta p = \lambda \frac{\rho V^2}{2} \frac{l}{R} = \lambda \frac{\rho l}{2R} \left( \frac{P}{C_p \Delta T \rho \pi R^2} \right)^2. \quad (5.58)$$

Dans le cas d'un conduit lisse et avec un nombre de Reynolds  $3000 < Re < 10^5$  (régime turbulent modéré), nous pouvons utiliser la formule empirique de Blasius :

$$\lambda = 0,316 Re^{-1/4} = 0,316 \left( \frac{\pi R \eta C_p \Delta T}{2P} \right)^{1/4}. \quad (5.59)$$

La combinaison des équations 5.58 et 5.59 permettent d'écrire  $P_{pompe}$  en fonction des paramètres du problème et de  $\Delta T$  :

$$P_{pompe} = P_{atm} + 0,316 \frac{l}{2\rho} \left( \frac{\eta}{2R^{19}} \right)^{1/4} \left[ \frac{P}{\pi C_p \Delta T} \right]^{7/4}. \quad (5.60)$$

On représente, sur la figure 5.10, pour différentes valeurs de courant électrique, la pression de pompe en fonction de  $\Delta T$ . On observe qu'à 85 A de courant, pour une variation de température  $\Delta T = 60^\circ\text{C}$  (température en sortie de  $80^\circ\text{C}$ ), que la pression de pompe

doit être supérieure à 10,35 bar (150 psi).

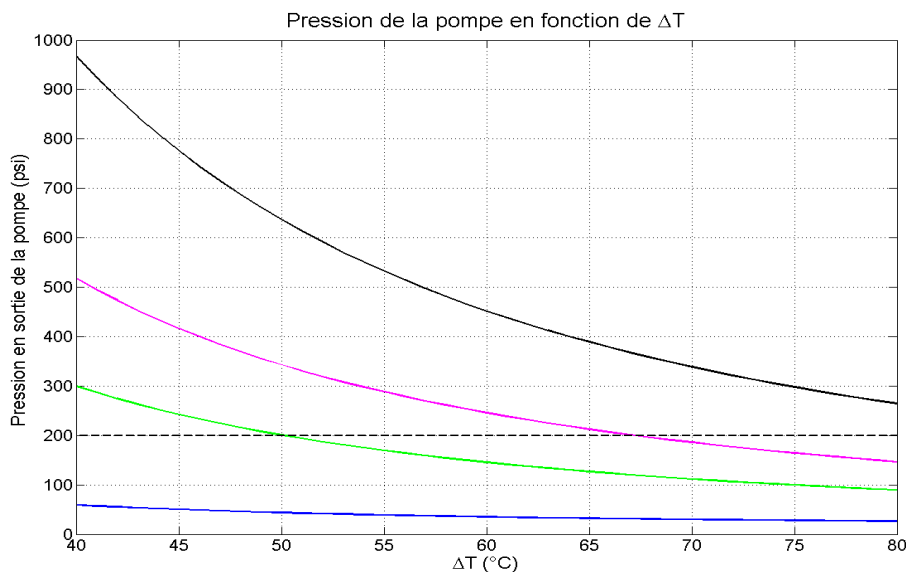


FIGURE 5.10 – On a représenté l'évolution de la pression de pompe  $P_{pompe}$  (1 bar = 14,5 psi) en fonction de la différence de température de l'eau  $\Delta T$  pour plusieurs courant électrique (cf. équation 5.60) : 50 A (bleue), 85 A (verte), 100 A (magenta) et 120 A (noire). Le trait tireté horizontal représente la limite haute de pompage de notre système.

### 5.5.2.3 Construction et mise en place des bobines

**Refroidissement à l'eau : le pompage** L'eau s'écoule à travers les bobines en circuit ouvert (montage en dérivation qui permet de diviser par deux le débit nécessaire). En entrée, l'eau est pressurisée à  $P_{bât} = 6,3$  bar. Ce n'est cependant pas suffisant pour assurer le refroidissement.

Pour atteindre les 10,4 bar requis, nous avons remis en service une pompe à colorant (Spectra-Physics, modèle 3760). Elle permet de mettre l'eau sous une pression maximale de 13,8 bar (200 psi). Une dérivation avec robinet a été placée en amont des bobines de manière à pouvoir régler la pression d'entrée (cf. figure 5.11).

Autour des bobines, les conduits d'eau doivent être suffisamment long pour empêcher le courant électrique de remonter le circuit de refroidissement. Cette précaution permet de limiter les risques d'électrocution de l'expérimentateur et d'endommagement de la pompe.

La conductivité de l'eau potable à 25 °C est de l'ordre de 500  $\mu\text{S}/\text{cm}$  (soit 0,05 S/m), ce qui équivaut à une résistivité de 20  $\Omega\cdot\text{m}$ . La résistance du système de bobine s'élève à  $\sim 0,230 \Omega$ . Un mètre de conduit d'eau (20  $\Omega$ ) suffit largement à éliminer tout risque

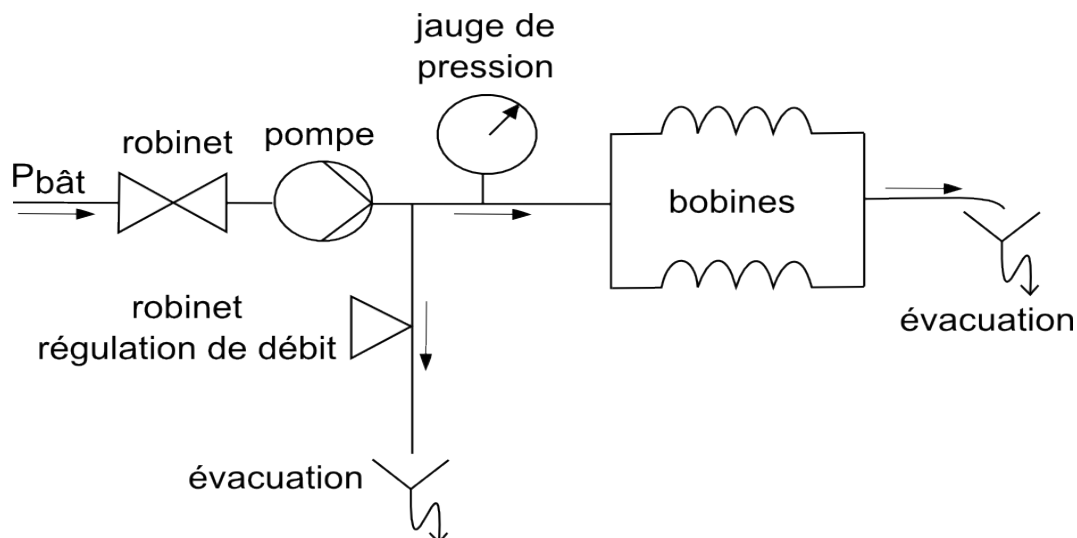


FIGURE 5.11 – Schéma hydraulique du circuit de refroidissement des bobines. L'eau est distribuée depuis le circuit du bâtiment sous une pression  $P_{\text{bât}} = 6,3$  bar. Elle traverse, immédiatement après, la pompe à colorant (Spectra-Physics, modèle 3760) de manière à atteindre la pression (donc le débit) nécessaire au refroidissement (environ 10,5 bar). La pression peut être visualisée et réglée au moyen d'une jauge de pression et d'un robinet placé en dérivation. L'eau est ensuite envoyée dans les bobines avant d'être évacuée.

électrique de cette nature.

**L'alimentation de courant** L'alimentation de courant (HP-Agilent 6683A) qui alimente les bobines, est capable de fournir jusqu'à 5000 W de puissance électrique. La consigne de courant peut être fixée dans une large gamme allant de 0 à 160 A (0-32 V).

Les bobines sont connectées en série (résistance pour le circuit un peu supérieure à  $0,230 \Omega$ ). Avec un courant de 100 A (le système de refroidissement a été dimensionné pour ce niveau de courant), la tension aux bornes du circuit atteint 23 V, ce qui est bien dans le domaine de fonctionnement de l'alimentation.

## 5.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous étudions le photodétachement des ions négatifs en champ magnétique. Le calcul fait apparaître une quantification des énergies accessibles par le photoélectron lors de son détachement dans le continuum. Une des principales conséquences de cette quantification, est l'apparition, dans la section efficace de photodétachement, de résonances (de Landau), qui, dans une situation idéale, divergent [BJL78, BIL79]. Ce phénomène s'in-

terprète semi-classiquement [DD87, DD88a, DD88b] comme étant dû à l'interférence entre l'état initial (l'ion négatif) et l'infinité des trajectoires cyclotroniques accessibles, à l'état final, par le photoélectron lors du détachement.

L'utilisation de ces résonances permettrait d'augmenter significativement la probabilité de photodétachement et permettrait ainsi de réduire les contraintes technologiques sur la cavité Fabry-Perot et le laser pour le photodétachement presque total de faisceaux de  $H^-$ . La principale limitation à cette idée est l'existence d'élargissements énergétiques qui entraînent un lissage de la section efficace et réduisent ainsi les possibilités de son accroissement.

Pour réaliser nos premières mesures de photodétachement de  $O^-$  en champ magnétique, nous nous sommes placés loin au-dessus du seuil associé à la transition  ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^3P_2$  (cf. figure 5.12). En présence d'un champ magnétique, on observe une variation d'amplitude d'un facteur deux sur le signal. Celui-ci étant normalisé par la puissance du laser, le courant d'ions étant stable par ailleurs, ce gain pourrait provenir d'un accroissement de la section efficace. Reste à vérifier la répétabilité de l'expérience. Cette expérience s'inspire de celle déjà réalisée par Krause en 1990 [Kra90], où il observa la présence des résonances de Landau bien au-delà du seuil  ${}^2P_{3/2} \rightarrow {}^3P_0$  de  $O^-$ . Pour améliorer le rapport signal sur bruit, nos prochaines mesures seront effectuées en cavité optique de finesse intermédiaire, telle que celle présentée dans la section 4.2 du chapitre 4.

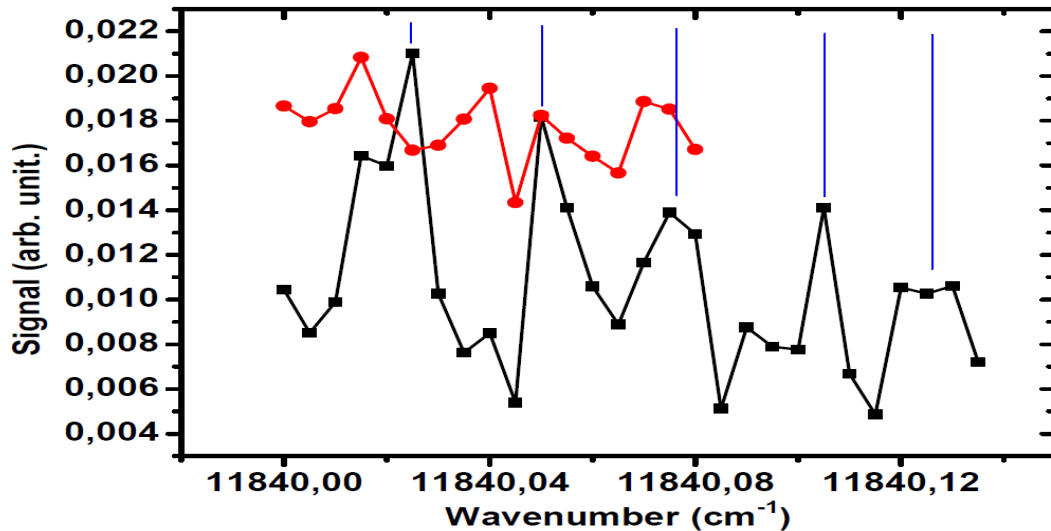


FIGURE 5.12 – Signal de photodétachement de l'ion  $O^-$  en présence (courbe noire en bas) ou pas (courbe rouge en haut) d'un champ magnétique. On observe des oscillations grossièrement périodique (maxima espacés de  $\sim 0,02 \text{ cm}^{-1}$ ) du signal de détachement en présence d'un champ magnétique. L'amplitude de ces oscillations est cinq fois plus grande que le bruit observé en l'absence de champ magnétique.



L'interprétation des mesures nécessite que l'évolution de la section efficace en fonction de l'énergie du photon excitateur soit simulée, en considérant l'ensemble des transitions permises, les élargissements énergétiques et l'existence d'un effet Stark motionnel.

Du côté expérimental, il serait intéressant d'étudier le comportement de la section efficace au voisinage d'un seuil, ceux associés aux transitions  $^2P_{3/2} \rightarrow ^3P_2$  et  $^2P_{1/2} \rightarrow ^3P_2$  semblent être de bons candidats. De plus, la théorie prévoit un décalage des seuils en fonction de la polarisation utilisée pour le photodétachement, il pourrait être intéressant d'étudier ce phénomène.

## Deuxième partie

# La microscopie de photodétachement



## CHAPITRE 6

---

# Les principes de la microscopie de photodétachement

Le microscope de photodétachement [BDD96] est un interféromètre électronique mis en service en 1996 suivant une idée originale de Demkov, Kondratovitch et Ostrovskii [DKO81]. Le dispositif expérimental, la description théorique classique, semi-classique et quantique ainsi que les techniques d'analyses des données ont été décrites par les doctorants du groupe [Dul96, Val99, Gol03, Cha06] et par Cyril Drag dans son mémoire d'habilitation à diriger des recherches [Dra10].

Les premières images de systèmes d'interférences électroniques ont été obtenus avec des photoélectrons issus de l'ion bromure ( $^{81}\text{Br}^-$ ) [BDD96], puis avec les ions  $^{16}\text{O}^-$  et  $^{18}\text{O}^-$  [VBD99, BDDV99] dans deux configurations expérimentales différentes (cf. figure 6.1) à partir desquelles des mesures d'affinités électroniques ont pu être réalisées. Dans la figure d'interférences, on peut lire la valeur de l'énergie cinétique de l'électron au moment de son détachement de l'ion négatif. Le retranchement de cette énergie à l'énergie du photon exciteur permet de remonter à l'énergie de transition entre le niveau de départ de l'ion et le niveau d'arrivée de l'atome, c'est-à-dire à l'affinité électronique.

En 2002, sont publiées les premières mesures d'affinités électroniques par microscopie de photodétachement moléculaire ( $\text{OH}^-$ ) [DGB02]. La figure d'interférences est complexifiée par l'emboîtement des images correspondant aux nombreux seuils de rotation de la molécule.

L'idée de Demkov *et al.* s'étendait aussi au cas de la photoionisation d'atomes en champ électrique uniforme (microscopie de photoionisation). Le premier interférogramme associé

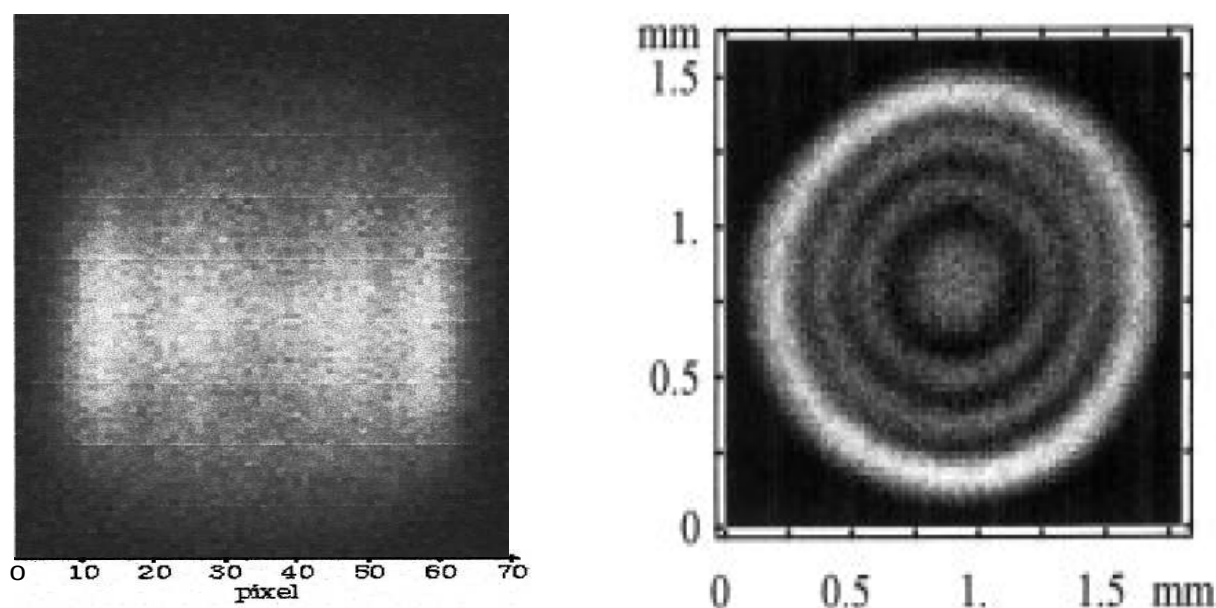


FIGURE 6.1 – Exemples d’interférogrammes électroniques obtenues par microscopie de photodétachement de l’ion  $O^-$ . À gauche, l’image a été obtenue dans une géométrie où le laser intersectait le jet d’ions dans un plan parallèle au détecteur. La grande extension de la source dans la direction du faisceau laser est à l’origine d’une superposition incohérente d’interférogrammes élémentaires qui résulte en un système de franges parallèles à cette direction. Le pixel a une taille de  $26 \mu\text{m}$  (70 pixels mesurent environ 1,8 mm). À droite, système d’anneaux d’interférences obtenu dans le cas où le faisceau laser intersectait le jet d’ions dans la direction de l’axe de symétrie du détecteur. L’énergie cinétique des électrons était fixée à  $\epsilon = 0,951 \text{ cm}^{-1}$ . Les figures ont été respectivement extraites des articles [VBD99] et [BDDV99].

à la fonction d’onde d’un électron du continuum d’ionisation a été obtenue par Nicole *et al.* en 2002 [NOV<sup>+</sup>02]. Très récemment, les premières images de fonction d’onde d’états quasi-liés ont été mesurées [CHO<sup>+</sup>13].

## 6.1 Interférométrie d’électrons en chute libre

Un électron photodétaché au sein d’un champ électrique subit une accélération uniforme qui rend son mouvement similaire, en raison de la courte portée de l’interaction avec l’atome résiduel, à celui d’un corps en chute libre.

Dans ces conditions, à une énergie donnée et pour un angle d’émission quelconque, l’enveloppe des trajectoires accessibles à l’électron forme un parabolöide de révolution. Chaque point situé à l’intérieur de ce parabolöide est en réalité atteignable par l’électron via deux trajectoires (cf. figure 6.2).

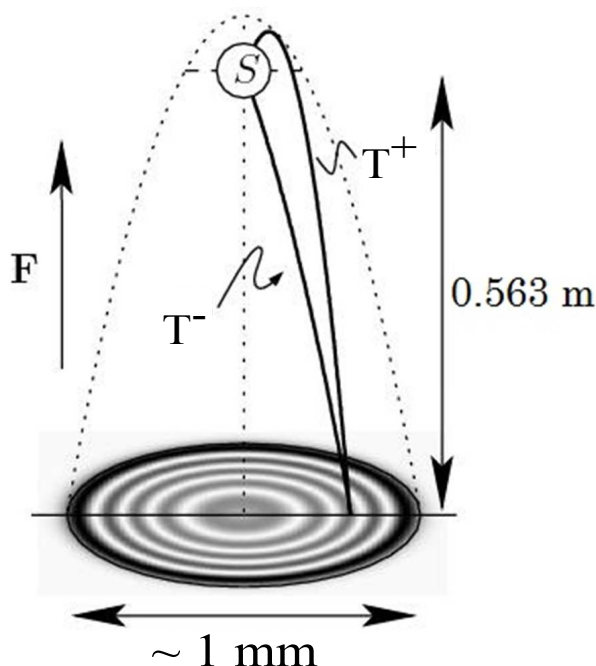


FIGURE 6.2 – Schéma des trajectoires suivies par un électron détaché en champ électrique uniforme  $F$ . L'enveloppe parabolique correspond aux limites classiques accessibles par l'électron. Chaque point de l'espace situé à l'intérieur de cette enveloppe peut être atteint par deux trajectoires différentes. Le système d'anneaux d'interférences, situé au niveau du détecteur, est le résultat, d'un point de vue semi-classique, de l'interférence des deux trajectoires.

L'onde de probabilité électronique (sphérique, dans le cas du photodétachement en onde  $s$ ) nourrit simultanément l'ensemble des trajectoires classiques. En champ électrique, l'onde se subdivise en une onde directe et une onde réfléchiée par le champ qui, en se rejoignant, forment, en raison de la symétrie cylindrique du problème, un système d'anneaux d'interférences. Lors de la détection de l'électron, le paquet d'onde se réduit et il en résulte un point sur le détecteur (une tache en réalité, due à la résolution finie du détecteur). C'est l'accumulation des événements de position, par répétition de l'expérience, qui va donner naissance à l'interférogramme.

La difficulté est de parvenir à reproduire à l'identique des centaines de milliers de fois l'expérience qui consiste à extraire l'électron de son ion négatif. La dispersion de l'énergie des électrons et les variations de la position de la source d'électrons (l'ion négatif) sont à l'origine d'une superposition incohérente d'anneaux d'interférences qui peut entraîner un brouillage suffisant de l'interférogramme pour le rendre indiscernable. De ce point de vue, le photodétachement d'ions négatifs par laser permet de s'approcher de l'idéal d'une source quasi-punctuelle et quasi-monoénergétique d'électrons.

## 6.2 Propagation d'ondes électroniques en champ électrique uniforme : description semi-classique

### 6.2.1 Mouvement classique [BBG<sup>+</sup>98]

On considère un électron plongé dans un champ électrique uniforme et stationnaire  $\mathbf{F}$ . On repère cet électron par ses coordonnées en position  $\mathbf{r} = (x, y, z)$  et en vitesse  $\dot{\mathbf{r}} = (\dot{x}, \dot{y}, \dot{z})$ . En raison de la présence du champ électrique, il possède une énergie potentielle d'interaction  $V(\mathbf{r}) = -q\mathbf{r}\cdot\mathbf{F}$  où  $F$  est le champ électrique appliqué et  $q$  la charge de l'électron. On décrit cette particule par le lagrangien (cf. note 1 du chapitre 5) :

$$\mathcal{L}(\mathbf{r}, \dot{\mathbf{r}}) = \frac{1}{2}m\mathbf{v}^2 + q\mathbf{r}\cdot\mathbf{F}. \quad (6.1)$$

L'intégration des équations de Lagrange donne immédiatement l'équation de la trajectoire :

$$\mathbf{r}(t) = \mathbf{r}_i + \dot{\mathbf{r}}_i(t - t_i) + \frac{q\mathbf{F}(t - t_i)^2}{2m}. \quad (6.2)$$

On retrouve la trajectoire parabolique habituelle.  $\mathbf{r}_i$  et  $\dot{\mathbf{r}}_i$  correspondent aux positions et vitesses de l'électron à l'instant initial  $t_i$ .

La connaissance du lagrangien et de l'équation du mouvement permet de calculer l'action classique. Le principe de moindre action stipule que cette fonctionnelle est minimale, les temps de départ et d'arrivée étant fixés, sur les trajectoires classiques :

$$S_{cl}(\mathbf{r}_i, t_i; \mathbf{r}_f, t_f) = \int_{t_i}^{t_f} \mathcal{L}(\mathbf{r}, \dot{\mathbf{r}}, t) dt = \frac{m}{2T}|\mathbf{r}_f - \mathbf{r}_i|^2 + \frac{q}{2}\mathbf{F}\cdot(\mathbf{r}_f + \mathbf{r}_i)T - \frac{1}{24m}q^2F^2T^3 = \min. \quad (6.3)$$

$\mathbf{r}_f$  correspond aux coordonnées de l'électron à l'instant final  $t_f$ .

L'action  $S_{cl}$  ne dépend que du temps de vol  $T = t_f - t_i$  de l'électron et constitue par conséquent un invariant par translation dans le temps. En revanche, l'apparition d'une dépendance en  $\mathbf{r}_f + \mathbf{r}_i$  brise la symétrie de translation spatiale qu'aurait laissé prévoir une vision intuitive de la question<sup>1</sup>.

1. Il est possible de faire apparaître cette symétrie par un changement de jauge approprié. Bracher *et al.* en font la démonstration dans l'annexe A de leur article [BBG<sup>+</sup>98]. Cependant, ce changement

L'action classique est intimement liée à l'énergie du système au travers de l'équation de Hamilton-Jacobi<sup>2</sup> :

$$\frac{\partial S_{cl}}{\partial t} = -\mathcal{H}\left(\mathbf{r}, \frac{\partial S_{cl}}{\partial \mathbf{r}}, t\right). \quad (6.4)$$

L'impulsion  $\mathbf{p}$  est égale à  $\frac{\partial S_{cl}}{\partial \mathbf{r}} = \nabla S_{cl}$  dans ce formalisme. L'impulsion est perpendiculaire aux surfaces d'action constante.

Ici, le hamiltonien  $\mathcal{H}$  (qui représente l'énergie du système) est conservé puisque l'action classique est un invariant par translation dans le temps<sup>3</sup>.

L'énergie  $\varepsilon(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_f, T)$  ne dépend plus que du temps de vol  $T$  et des positions initiales et finales (l'énergie potentielle est une fonction de  $\mathbf{r}$ ). L'équation de Hamilton-Jacobi permet de calculer cette énergie connaissant  $S_{cl}$  :

$$\varepsilon(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_f, T) = -\frac{\partial S_{cl}}{\partial t} = \frac{m}{2T^2}|\mathbf{r}_f - \mathbf{r}_i|^2 - \frac{q}{2}\mathbf{F} \cdot (\mathbf{r}_f + \mathbf{r}_i) + \frac{1}{8m}q^2 F^2 T^2. \quad (6.5)$$

À partir de maintenant, pour simplifier les expressions, on va considérer que l'électron est émis à l'instant initial en  $\mathbf{r}_i = 0$ . De plus, on placera le système d'axes de façon à orienter le champ électrique constant  $\mathbf{F}$  selon la direction  $Oz$  et dans le sens des  $z$  positifs.  $r_f$  peut prendre toutes les valeurs accessibles par l'électron qui part du point  $r_i$  avec une énergie  $\varepsilon$ .

La résolution de l'équation 6.5 (équation bicarrée en  $T$ ) montre que l'électron peut atteindre chaque point  $\mathbf{r}_f$  en empruntant deux trajectoires différentes :

$$T^\pm = \sqrt{\frac{m}{F}} \left( \sqrt{2a + r_f - z} \pm \sqrt{2a - r_f - z} \right) = \sqrt{\frac{m}{qF}} \left( \sqrt{2a + \eta} \pm \sqrt{2a - \xi} \right). \quad (6.6)$$

On a posé  $a = \frac{\varepsilon}{qF}$  qui correspond à la distance maximale selon  $z$  ( $z > 0$ ) que peut atteindre l'électron en descendant le potentiel (l'électron est chargé négativement) avant

---

de jauge brise la symétrie temporelle avec l'apparition d'un terme en  $t_f + t_i$  (le nombre d'invariants est nécessairement conservé par changement de jauge, le nombre de symétries qui leur est intimement lié est donc également conservé). Nous avons déjà constaté cette propriété dans le chapitre 5, note 4, dans lequel on décrit le mouvement d'une particule chargée plongée dans un champ magnétique.

2. L'équation de Hamilton-Jacobi représente la contrainte appliquée à la fonction génératrice (qui est en réalité l'action classique  $S_{cl}$ ) lors d'une transformation canonique qui cherche à rendre le hamiltonien identiquement nul.

3. On arrive à la même conclusion en constatant que l'énergie potentielle  $V(\mathbf{r})$  est indépendante du temps.



d'être réfléchi par le champ  $F$  (l'énergie cinétique  $\varepsilon$  s'est entièrement transformée en énergie potentielle  $zqF = aqF = \varepsilon$ ). Les coordonnées paraboliques  $\eta = r_f - z$  et  $\xi = r_f + z$  apparaissent naturellement.

On doit avoir  $\xi \leq 2a$  pour que les racines soient réelles. La borne supérieure ( $\xi_{max}$ ) définit, à une altitude  $-z_0$  ( $z_0 > 0$ ) du paraboloïde, le rayon classique  $\rho_{cl} = 2\sqrt{a(a+z_0)}$  du système d'anneaux d'interférences (cf. section 6.1). Dans l'approximation du détecteur éloigné, il se réduit à  $\rho_{cl} = 2\sqrt{az_0} = 2\sqrt{\frac{z_0\varepsilon}{qF}}$ .

Le différence de temps de vol  $\Delta T$  entre les deux trajectoires est égale à  $2\sqrt{\frac{m}{qF}}\sqrt{2a-\xi}$ . Or, le phénomène de localisation du paquet d'onde lors de la détection, oblige les deux ondes (de probabilité), directe ( $T^-$ ) et réfléchi ( $T^+$ ), à atteindre simultanément le détecteur pour qu'il y ait interférence. D'un point de vue semi-classique, l'électron doit commencer à emprunter chacun des deux chemins à des temps différents [BBD01].

L'action classique peut s'exprimer en fonction du hamiltonien du système  $S = \int_{t_i}^{t_f} (\mathbf{p} \cdot \dot{\mathbf{r}} - \mathcal{H}) dt$ . Or, dans le cas de ce système conservatif, le hamiltonien est une constante du mouvement égale à  $\varepsilon$ , on peut donc écrire :

$$S_{cl}(\mathbf{r}_f, T^\pm) = \int_{t_i}^{t_f} \mathbf{p} \cdot d\mathbf{r} - \varepsilon T^\pm = W^\pm(\mathbf{r}_f, \varepsilon) - \varepsilon T^\pm. \quad (6.7)$$

$W^\pm(\mathbf{r}_f, \varepsilon)$  correspond à l'action réduite pour les deux trajectoires. Elle peut être calculée en injectant dans 6.7, les expressions 6.3 et 6.6 :

$$W^\pm = \frac{1}{3}\sqrt{mqF} \left( (2a + \eta)^{\frac{3}{2}} \pm (2a - \xi)^{\frac{3}{2}} \right) \quad (6.8)$$

## 6.2.2 Intégrales de chemin et phase de l'interférogramme [BBD01]

La probabilité qu'une particule se meuve d'un point  $(\mathbf{r}_i, t_i)$  jusqu'à un point  $(\mathbf{r}_f, t_f)$  de l'espace temps est donnée par son amplitude de transition  $\langle \mathbf{r}_f, t_f | \mathbf{r}_i, t_i \rangle$ .

Cette particule est décrite à l'instant initial  $(\mathbf{r}_i, t_i)$  par sa fonction d'onde  $\psi(\mathbf{r}_i, t_i) = \langle \mathbf{r}_i, t_i | \psi \rangle$ . L'amplitude de transition permet de calculer la fonction d'onde à un instant ultérieur  $t_f$ .

Feynman postula que pour calculer cette amplitude de transition il fallait considérer l'ensemble des chemins reliant les points  $(\mathbf{r}_i(t_i), t_i)$  et  $(\mathbf{r}_f(t_f), t_f)$ . Chaque chemin étant pon-

déré par un poids proportionnel à  $\exp\left(\frac{iS_{cl}(\mathbf{r}(t))}{\hbar}\right)$  où  $S_{cl}(\mathbf{r}(t))$  est l'action classique calculée sur ce chemin. La somme de ces contributions permet d'obtenir l'amplitude de transition :

$$\langle \mathbf{r}_f, t_f | \mathbf{r}_i, t_i \rangle = K(t_f, \mathbf{r}_f | t_i, \mathbf{r}_i) = \int \exp\left(\frac{iS_{cl}(\mathbf{r}(t))}{\hbar}\right) D\mathbf{r}(t), \quad (6.9)$$

qui est nommée "intégrale de chemin" par son découvreur.  $K(t_f, \mathbf{r}_f | t_i, \mathbf{r}_i)$  est le propagateur de Feynman.

Cette expression se simplifie dans le cas où la particule est soumise à l'action d'un potentiel linéaire en  $\mathbf{r}$  comme c'est le cas pour notre électron dans un champ électrique uniforme [BZ94] :

$$K(t_f, \mathbf{r}_f | t_i, \mathbf{r}_i) = \sqrt{\frac{m}{2\pi i \hbar T}} \exp\left(\frac{i}{\hbar} S_{cl}\right). \quad (6.10)$$

Connaissant la fonction d'onde d'une particule à un instant  $t_i$ , on peut calculer sa fonction d'onde à un instant ultérieur  $t_f$  en utilisant son propagateur.

L'électron éjecté possède une énergie  $\varepsilon$  fixée par l'énergie des photons.  $t_i$  peut prendre toutes les valeurs possibles entre  $-\infty$  et  $t_f$  car l'électron est photodétaché avant d'atteindre le détecteur. La fonction d'onde initiale est proportionnelle à  $\exp\left(-\frac{i}{\hbar}\varepsilon t_i\right)$ , ce qui donne pour la fonction d'onde finale ( $\mathbf{r}_i = 0$ ) :

$$\psi(\mathbf{r}_f, t_f) \propto \int_{-\infty}^{t_f} \exp\left(-\frac{i}{\hbar}\varepsilon t_i\right) \exp\left(\frac{i}{\hbar} S_{cl}(\mathbf{r}_f, t_i, t_f)\right) dt_i \quad (6.11)$$

On a vu que l'action classique était fonction du temps uniquement à travers le temps de vol  $T$  (cf. équation 6.3). On peut réécrire l'équation précédente en choisissant  $T$  comme variable d'intégration :

$$\psi(\mathbf{r}_f, t_f) \propto \exp\left(-\frac{i}{\hbar}\varepsilon t_f\right) \int_0^{+\infty} \exp\left(\frac{i}{\hbar}(\varepsilon T + S_{cl}(\mathbf{r}_f, T))\right) dT \quad (6.12)$$

L'ensemble des trajectoires est pris en compte dans l'intégrale mais seules celles qui laissent le terme de phase stationnaire y contribuent de manière significative. Cette condition de phase :

$$\frac{\partial S_{cl}}{\partial t} = -\varepsilon, \quad (6.13)$$

correspond à l'équation de Hamilton-Jacobi dont les trajectoires classiques sont les solutions

(cf. équation 6.5).

On remarque que ce facteur de phase est égal, à  $\frac{1}{\hbar}$  près, à l'action réduite  $W = S_{cl} + \varepsilon T$ .

Dans la section précédente, on avait calculé l'action réduite pour les deux trajectoires contributives à l'intégrale 6.12 donnant la fonction d'onde de l'électron à l'instant final, c'est-à-dire, sur le détecteur.

La différence de phase entre les deux trajectoires s'écrit donc :

$$\Delta\Phi = \frac{W^+ - W^-}{\hbar} = \frac{2}{3} \frac{\sqrt{mqF}}{\hbar} (2a - \xi)^{\frac{3}{2}}. \quad (6.14)$$

La différence de phase est maximale au centre de l'image ( $\xi = 0$ ) :

$$\Delta\Phi_{max} = \frac{4\sqrt{2}}{3} \frac{\sqrt{mqF}}{\hbar} a^{\frac{3}{2}} = \frac{4\sqrt{2}}{3} \frac{\sqrt{m}}{\hbar q F} \varepsilon^{\frac{3}{2}}, \quad (6.15)$$

et se réduit jusqu'à s'annuler au niveau du rayon classique  $\rho_{cl}$  (trajectoires dégénérées).

Le nombre d'anneaux brillants moins un (ventres du système d'interférences) :

$$N = \frac{\Delta\Phi_{max}}{2\pi}, \quad (6.16)$$

évolue avec la puissance  $\frac{3}{2}$  de l'énergie de l'électron détaché.

On déduit aussi la valeur de l'interfrange :

$$i = \frac{\rho_{cl}}{N} \propto \frac{1}{\varepsilon}, \quad (6.17)$$

qui est inversement proportionnelle à  $\varepsilon$ .

Compter le nombre d'anneaux, ou plus précisément ajuster la phase de l'interférogramme, est donc une méthode beaucoup plus sensible pour mesurer  $\varepsilon$  que de déterminer le rayon classique. Cette particularité fait du microscope de photodétachement l'appareil de mesure le plus précis au monde pour mesurer des affinités électroniques.

**Effets du mouvement de la source sur  $\Delta\Phi$**  Dans l'expérience de microscopie de photodétachement, la source est constituée par l'ensemble des ions éclairés à l'intersection d'un faisceau laser et d'un jet d'ions, qui forment en conséquence une source en mouvement. Blondel *et al.* [BBD01] démontrèrent que cela n'a pas d'incidence sur la phase de l'interfé-

rogramme mais se traduit en une simple translation dans le référentiel du laboratoire (due à la vitesse d'entraînement). Cela s'explique simplement par l'invariance du module au carré de la fonction d'onde électronique (densité de probabilité de présence) par changement de référentiel galiléen.

En revanche, l'accélération subie par les ions due à la présence d'un champ électrique modifie la phase de l'interférogramme (le référentiel des ions n'est plus galiléen). Dans ce cas, Blondel *et al.* démontrèrent, dans l'approximation non-relativiste, que la taille du système d'anneaux ( $\xi_{max}$ ) et la phase n'étaient affectés que par une correction relative en  $\frac{\mu}{m}$  avec  $\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m} - \frac{1}{M}$ ,  $M$  étant la masse de l'ion.

### 6.2.3 L'orbite fermée comme clef de voûte de l'interférogramme

Du et Delos [DD87, DD88a] (cf. sous-section 5.2.3 du chapitre 5), démontrèrent que la famille de trajectoires qui reviennent au point source, appelées "orbites fermées", sont à l'origine de termes oscillants dans l'expression de la densité d'états finals  $\rho(\varepsilon)$  (cf. équation 5.44)

La section efficace étant directement proportionnelle à la densité d'états  $\rho(\varepsilon)$ , l'existence de chaque orbite fermée se traduit par des oscillations sur l'évolution de la section efficace avec l'énergie.

Plus précisément, la phase de ces termes oscillants est égale à l'action réduite divisée par  $\hbar$ . La densité d'états et donc la section efficace oscille en fonction de l'énergie de la particule avec une période  $\frac{2\pi\hbar}{T_k}$ , où  $T_k$  est le temps de parcours pour revenir au point source.<sup>4</sup>

D'après l'équation 6.7, la dérivée partielle de  $W(\varepsilon)$  par rapport à l'énergie, est égale au temps de vol  $T$ .  $W(\varepsilon)$  est donc liée à l'intégrale du temps de vol  $T$  sur l'énergie :

$$\Phi = \frac{W(\varepsilon)}{\hbar} = \frac{1}{\hbar} \int_0^\varepsilon T_k(\varepsilon') d\varepsilon'. \quad (6.18)$$

Dans le cas d'un électron photodétaché en présence d'un champ électrique uniforme, il n'existe qu'une orbite fermée (celle qui remonte le champ avant d'être réfléchi).

La différence de phase entre cette trajectoire et l'autre trajectoire classiquement accessible peut être aisément calculée moyennant les équations 6.18 et 6.6 (temps de vol) :

---

4. Les oscillations de section efficace ne sont observables que si la pulsation  $\frac{2\pi}{T_k}$  associée à l'orbite fermée reste supérieure à  $\frac{\Delta\varepsilon}{\hbar}$  avec  $\Delta\varepsilon$  la résolution expérimentale. Les trajectoires de  $T_k$  trop grands produisent des termes qui oscillent tellement vite qu'ils sont moyennés.

$$\Delta\phi_{max} = \frac{1}{\hbar} \int_0^\varepsilon \Delta T_{max}(\varepsilon') d\varepsilon' = 2\sqrt{2} \frac{\sqrt{m}}{\hbar q F} \int_0^\varepsilon \sqrt{\varepsilon'} d\varepsilon' = \frac{4\sqrt{2}}{3} \frac{\sqrt{m}}{\hbar q F} \varepsilon^{\frac{3}{2}} \quad (6.19)$$

On retrouve évidemment le résultat de l'équation 6.15.

Le déphasage maximum et, par extension, tout l'interférogramme que l'on observe se construit le long de l'orbite fermée. Il découle de cette remarque que la connaissance que l'on doit avoir du champ électrique (dont dépend  $\Delta\Phi_{max}$ ) pour déterminer l'énergie  $\varepsilon$  de l'électron éjecté, doit l'être dans la zone de l'espace qui contient l'orbite fermée (départ puis retour à la source). Or, celle-ci se déploie sur quelques micromètres seulement. Les inhomogénéités de champ électrique en dehors de cette zone microscopique n'ont d'effets que de déformer le système d'anneaux d'interférences sans en altérer la phase.

Expérimentalement, la source d'électrons n'est pas ponctuelle mais s'étend sur la zone de recouvrement entre le faisceau laser (focalisé) et le jet d'ions. Le champ électrique doit donc essentiellement être homogène dans toute cette zone.

### 6.3 Densité de courant de probabilité de l'électron

Si la source d'électrons est suffisamment bien localisée et définie énergétiquement, on peut considérer que la fonction de Green, solution de l'équation de Schrödinger en champ électrique uniforme, fournit directement la solution du problème. Cette fonction a notamment été calculée par Bracher et al. avec le formalisme des sources quantiques [BBG+98].

Il est possible de calculer, à partir de l'équation de continuité (avec un terme de source ponctuelle en plus) et de la fonction de Green, le courant de probabilité de présence d'un électron en présence d'un champ électrique. Ici, on considérera l'éjection d'un électron de moment cinétique nul (onde  $s$ ).

Dans l'approximation du détecteur éloigné, qui consiste à dire que la distance entre la source et le détecteur  $z_0$  est très supérieure à  $a$ , la densité de courant s'écrit (cf. thèse de Christophe Valli [Val99]) :

$$j_{z_0} \propto \text{Ai}^2\left(-\frac{2a - \xi}{2\lambda_0}\right) = \text{Ai}^2\left(\frac{1}{\lambda_0} \left(\frac{\rho^2}{4z_0} - a\right)\right). \quad (6.20)$$

Où  $\text{Ai}$  correspond à la fonction d'Airy de première espèce,  $\lambda_0$  est une quantité homogène à une longueur (d'onde) et égale à  $\left(\frac{\hbar^2}{2mqF}\right)^{\frac{1}{3}}$  et  $\rho$  la distance à l'axe de symétrie  $Oz$ .

La présence de la coordonnée  $\xi$  montre que l'on visualise une partie de la fonction d'onde radiale de l'électron. Sur la figure 6.3, on a représenté la densité de courant, au niveau du détecteur ( $z_0 = 0,563$  m), d'un électron d'énergie  $\varepsilon = 0,5285$  cm<sup>-1</sup>.

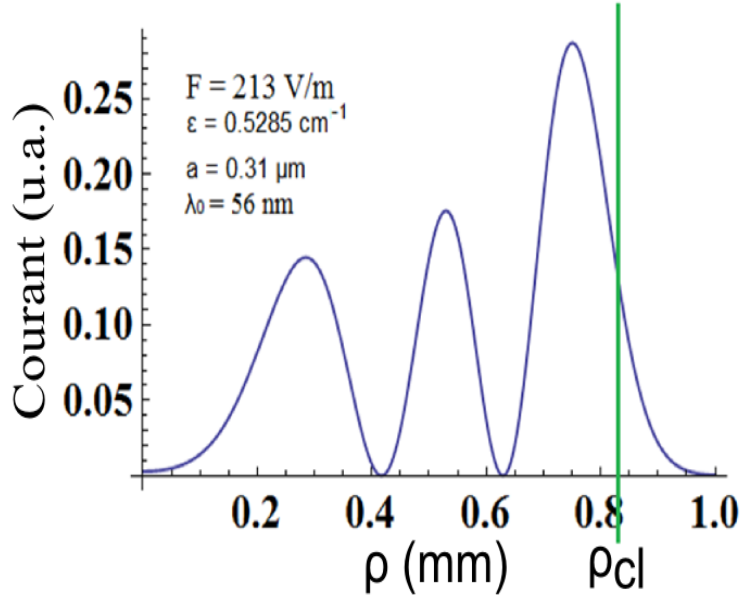


FIGURE 6.3 – Densité de courant d'un électron de 0,5285 cm<sup>-1</sup> d'énergie en fonction du rayon (distance à l'axe Oz selon lequel est orienté le champ électrique). On observe des nœuds et des ventres qui correspondent respectivement aux anneaux sombres et clairs. On remarque que la densité de probabilité ne s'annule pas au niveau du rayon classique  $\rho_{cl}$  mais traverse la barrière de potentiel sous forme d'une onde évanescence (effet tunnel, voir article de Bracher *et al.* [BBG<sup>+</sup>98]). La densité s'annule (presque) au centre (minimum de la dérivée de la section efficace avec l'énergie).

On observe, sur la figure, que la densité de courant est non-nulle pour des rayons supérieurs au rayon classique  $\rho_{cl}$ . Bracher *et al.* interprètent ce phénomène comme étant un effet tunnel [BBG<sup>+</sup>98].

**Liens avec la section efficace de photodétachement** Toutes les trajectoires étant, en onde  $s$ , alimentées de la même façon, les modulations de la section efficace de photodétachement en fonction de l'énergie peut se déduire en intégrant la distribution spatiale de courant :

$$\sigma \propto \int_0^{+\infty} \text{Ai}^2 \left[ -\frac{1}{\lambda_0} \left( \frac{\rho^2}{4z_0} + a \right) \right] 2\pi\rho d\rho. \quad (6.21)$$

De plus, d'après Du et Delos [DD88a], l'amplitude des oscillations présentes dans le

profil de section efficace de photodétachement en champ électrique (par exemple), dépend de la proportion de la fonction d'onde de l'électron qui revient à la source suite à sa réflexion par le champ électrique. La présence d'un ventre de densité de courant en  $\rho = 0$ , correspond à un maximum de la dérivée de la section efficace avec l'énergie, et la présence d'un nœud correspond à un minimum. Demkov *et al.* donnent une illustration de ce qui vient d'être dit dans leur article [DKO81] (cf. figure 6.3).

On peut déterminer l'expression de la densité de courant dans l'approximation semi-classique (le quantum d'action  $\hbar$  tend vers 0) à partir de l'équation de la densité de courant 6.20. L'argument de la fonction d'Airy devient grand dans ce cas ( $\lambda_0 \rightarrow 0$ ), on peut donc considérer son développement asymptotique et écrire :

$$j_{z_0} \propto \sqrt{\varepsilon} \frac{1 + \cos \left[ \frac{4\sqrt{2}}{3} \frac{\sqrt{m}}{\hbar q F} \varepsilon^{\frac{3}{2}} \left( 1 - \frac{\rho^2}{\rho_{cl}^2} \right)^{\frac{3}{2}} - \frac{\pi}{2} \right]}{2\pi \rho_{cl}^2 \sqrt{1 - \frac{\rho^2}{\rho_{cl}^2}}} = \sqrt{\varepsilon} \frac{1 + \cos \left[ \Delta\Phi_{max} \left( 1 - \frac{\rho^2}{\rho_{cl}^2} \right)^{\frac{3}{2}} - \frac{\pi}{2} \right]}{2\pi \rho_{cl}^2 \sqrt{1 - \frac{\rho^2}{\rho_{cl}^2}}}. \quad (6.22)$$

Le terme oscillant est équivalent à la densité de courant semi-classique avec le déphasage de  $-\frac{\pi}{2}$  en plus. Celui-ci correspond à la réflexion de l'électron au niveau du point tournant  $\xi = 2a$  (onde évanescente). Le facteur  $\sqrt{\varepsilon}$  devant l'expression est la signature de la loi de Wigner à laquelle se superposent les oscillations caractéristiques du photodétachement en champ électrique [DD88b].

## CHAPITRE 7

---

# Spectroscopie de photodétachement des ions $P^-$ , $Se^-$ et $Sn^-$

## 7.1 Le microscope de photodétachement

### 7.1.1 Diagramme de faisabilité : dimensionnement

En théorie, il est possible d'observer un système d'anneaux d'interférences dans n'importe quelle condition de champ électrique et d'énergie électronique. Cependant, la réalité expérimentale réduit fortement le domaine d'observation des interférogrammes.

Pour que l'image d'un système d'anneaux d'interférences soit exploitable du point de vue d'un spectroscopiste de précision, il faut que :

- le nombre d'anneaux sombres  $N$  (cf. équation 6.16) soit au moins égal à un (c'est-à-dire que le premier anneau clair, excepté l'anneau classique, commence à apparaître),
- l'interfrange (cf. équation 6.17) soit plus grand que la limite imposée par la résolution finie du détecteur,
- l'élargissement énergétique de la source d'électrons soit suffisamment petit pour que la superposition incohérente d'interférogrammes (un interférogramme par énergie électronique) ne mène pas à un brouillage trop important de l'image.

Ces conditions se traduisent par des relations entre l'énergie cinétique des électrons  $\varepsilon$  et le champ électrique appliqué  $F$  dont la représentation graphique correspond au diagramme de faisabilité (cf. thèse de Valli [Val99]). Ces contraintes réduisent à un domaine très limité, les valeurs que peuvent prendre les paramètres expérimentaux pour rendre l'observation



d'un système d'anneaux d'interférences possible. Les valeurs usuelles de ces paramètres sont données dans le tableau 7.1.

### 7.1.2 La colonne de champ électrique

La colonne de champ électrique uniforme est constituée de 28 ou 29 plaques polarisées et reliées entre-elles par un pont diviseur de tensions. Entre deux plaques, à  $\sim 0,5$  m du détecteur, dans une zone où le jet d'ions et le laser s'intersectent, les électrons sont photodétachés. Chaque plaque est percée d'un trou de manière à laisser libre accès aux photoélectrons qui remontent le champ vers le détecteur. Les simulations du champ généré au niveau de la zone d'interaction (notamment) montrent qu'il existe des variations sur l'axe d'environ 1 % en raison d'une part, de la présence des orifices au centre des plaques, d'autre part, de la mise à la masse du conducteur extérieur à la colonne [Dra10].

Cependant, on sait que les contraintes sur le champ ont été surévaluées. Dans la sous-section 6.2.3 du chapitre 6, on a vu que la phase de l'interférogramme se construit le long de l'orbite fermée dans un volume de taille micrométrique autour du point source (de l'ordre de  $a^3$ , cf. tableau 7.1). À des distances macroscopiques, les inhomogénéités de champ ont pour effet de déformer globalement l'interférogramme sans en altérer la phase. Le champ n'a besoin d'être uniforme et connu qu'au niveau de la zone entourant la source d'électrons (zone d'intersection jet/laser qui est en réalité de quelques  $mm^3$ ).

Nom	Paramètre	Expression	Ordre de grandeur
Hauteur de chute de l'électron	$z_0$		0,563 m
Champ électrique	$F$		150 - 450 V/m
Énergie cinétique de l'électron	$\varepsilon$		0,4 - 2 eV
Vitesse de l'électron	$V_0$	$\sqrt{\frac{2\varepsilon}{m}}$	4,2 - 9,4 km/s
Hauteur de remontée	$a$	$\frac{\varepsilon}{qF}$	0,3 - 1,65 $\mu m$
Rayon classique	$\rho_{cl}$	$2 \sqrt{az_0}$	0,4 - 1,8 mm
Temps de chute moyen	$\bar{T}$	$\sqrt{\frac{2mz_0}{qF}}$	100 - 200 ns
Différence extrême de temps de vol	$\Delta T$	$\frac{2\sqrt{2m\varepsilon}}{qF}$	100 - 700 ps
Longueur d'onde caractéristique	$\lambda_0$	$\left(\frac{\hbar^2}{2mqF}\right)^{1/3}$	45 - 60 nm
Nombre d'anneaux sombres	$N$	$\frac{2}{3\pi} \sqrt{\frac{2m\varepsilon^3}{\hbar qF}}$	1 - 3
Interfrange moyen	$i$	$3\pi \frac{\hbar}{\varepsilon} \sqrt{\frac{qFz_0}{2m}}$	60 - 215 $\mu m$

TABLE 7.1 – Liste des paramètres fondamentaux de la microscopie de photodétachement avec les ordres de grandeurs associés. Les paramètres secondaires sont exprimés en fonction de la masse  $m$  et la charge  $q$  de l'électron, et des paramètres primaires  $z_0$  (positif ici),  $F$  et  $\varepsilon$ . Ce tableau a en partie été extrait du mémoire de HDR de Cyril Drag [Dra10].

Le microscope était aussi équipé d'une double chemise en  $\mu$ -métal pour minimiser la pénétration de champs magnétiques dans la chambre d'interaction (champ magnétique terrestre par exemple). Là encore, les contraintes ont été surévaluées puisque il a été démontré que la phase de l'interférogramme est très peu modifiée par la présence d'un champ magnétique [CPB<sup>+</sup>10].

### 7.1.3 Correction de l'effet Doppler

Le fait de réaliser des expériences de spectroscopie d'électrons avec une source en mouvement nécessite que soit corrigé l'effet Doppler. Une méthode classique pour prendre en compte ce phénomène est de réaliser deux sources d'électrons (et donc deux interférogrammes) par double passage, avec des angles d'intersection différents, du faisceau laser au sein du jet d'ions.

Un calcul rigoureux, qui tient compte de la cinématique du jet d'ions, permet d'exprimer l'énergie du seuil de détachement en fonction des paramètres du problème et de l'énergie cinétique moyenne  $\bar{\varepsilon}$  des électrons des deux interférogrammes [Val99] :

$$E_d = \gamma h\nu \left[ 1 + \eta\beta \frac{D}{2} \left( \frac{1}{L} - \frac{F}{2U} \right) \right] - \bar{\varepsilon}, \quad (7.1)$$

où  $\nu$  est la fréquence du laser,  $D$  la distance entre les deux sources d'électrons,  $L$  la distance entre le jet d'ions et le miroir sphérique qui permet le renvoi du faisceau laser sur le jet,  $U$  la tension d'accélération du jet d'ions,  $\beta$  et  $\gamma$  les paramètres relativistes habituels et  $\eta = \pm 1$  un paramètre dont la valeur dépend de l'effet Doppler relatif des deux taches (+1 si l'effet Doppler moyen est positif, c'est-à-dire si la différence, du point de vue du jet, entre l'énergie du photon pour l'interférogramme d'aller et celui pour l'interférogramme de retour est positif, -1 dans le cas contraire).

### 7.1.4 Dégradation du contraste des interférogrammes

Les sources de dégradation du contraste des interférogrammes ont, outre le signal perturbateur généré par des électrons parasites issus des collisions qui ont lieu au sein du jet, deux origines : spatiale et énergétique.

**Sources spatiales de dégradation** La zone de recouvrement du faisceau laser et du jet d'ions n'est pas ponctuelle. La principale conséquence est la production incohérente de

systèmes d'anneaux d'interférences entraînant un brouillage de l'interférogramme. La perte de contraste est rédhibitoire pour la spectroscopie de précision si la dimension du volume d'interaction jet/laser, transverse au plan de détection, dépasse la taille de l'interfrange le plus petit (qui se trouve en périphérie du système d'anneaux, cf. tableau 7.1). Pour réduire au maximum cette dimension, le faisceau laser est focalisé et intersecte le jet d'ions dans la direction transverse au détecteur. Des interférences ont cependant déjà été produites dans une configuration où l'intersection du faisceau laser avec le jet s'opérait dans un plan parallèle au détecteur. Le système d'interférences résultant est un système de franges (cf. figure 6.1).

Outre la taille du volume d'interaction, intervient la résolution nécessairement limitée du détecteur d'électrons (la taille d'un pixel du détecteur actuel est  $20 \times 20 \mu m$ ).

**Sources énergétique de dégradation** La largeur spectrale du laser (continu) de quelques MHz est ici négligeable.

La principale cause d'élargissement spectral provient à la fois de la diffraction du faisceau laser (qui peut être interprétée comme une limitation en termes de temps de transit) au niveau de jet et de la dispersion en vitesse des ions (cf. sous-section 2.4.2). Ces phénomènes, couplés à l'effet Doppler, entraînent un brouillage conséquent de l'interférogramme. Par chance, ce type d'élargissement a de fortes répercussions principalement localisées au centre des interférogrammes, contrairement à ce qui se passe pour les pertes directes de résolution spatiale. En effet, l'anneau classique (périphérie du système d'interférences) voit sa taille augmenter comme la racine carrée de l'énergie cinétique des électrons  $\sqrt{\varepsilon}$ , tandis que le nombre d'anneaux augmente beaucoup plus vite, en  $\varepsilon^{3/2}$ . En outre, lorsque le déphasage augmente, les nouveaux anneaux sont générés au centre de la figure. Une dispersion en énergie entraîne donc un brouillage de phase bien plus grand au centre qu'au bord.

L'ensemble des sources contributives au brouillage de l'interférogramme est intégré dans le modèle théorique par convolution de la densité de courant idéale donnée par l'équation 6.20 (cf. thèse de Valli pour le détail des calculs [Val99]).

## 7.2 Spectroscopie de $P^-$ et $P$ : photodétachement vers un terme spectral excité [PBV<sup>+</sup>11]

Le phosphore est le premier élément étudié depuis la mise en place de la nouvelle source à spallation de césium SNICS II (cf. section 2.1 du chapitre 2). La source produit un jet d'ions  $P^-$  très stable de 100 pA (au sein de la zone d'interaction) et de 1,2 keV d'énergie cinétique. Avant de pénétrer la zone d'interaction, les ions sont décélérés à 300 eV de manière à réduire l'effet Doppler.

Les expériences de microscopie de photodétachement ne concernaient, jusqu'à présent, que les transitions mettant en jeu les termes fondamentaux des deux édifices étudiés (l'ion négatif et son atome). Le premier terme spectral excité de  $P$ , un  $^2D^o$ , situé à  $\sim 17000 \text{ cm}^{-1}$  du terme fondamental de  $P^-$ , est bien adapté pour une étude spectroscopique avec notre laser à colorant (Spectra-Physics 380, colorant Rhodamine 590) continu visible pompé par la raie à 514 nm d'un laser à argon ionisé (nombre d'onde mesuré avec un lambdamètre HighFinesse<sup>TM</sup> WS-8, cf. chapitre 2, sous-section 2.3.3.1).

Laisser l'atome de phosphore dans son état excité augmente nos chances d'observer l'effet, sur la phase de l'interférogramme, de la rediffusion du photoélectron sur le cœur neutre (la partie de l'onde qui est réfléchiée par le champ électrique) [Fab82].

### 7.2.1 Données spectroscopiques de $P^-$ et $P$

**Affinités électroniques et structures fines** L'affinité électronique du phosphore ainsi que la structure fine du terme spectral fondamental  $^3P$  de  $P^-$  ont déjà été plusieurs fois mesurées à l'aide de la méthode LPT (Laser Photodetachment Threshold) [Fel76, SL77, ALA<sup>+</sup>07]. Cette technique consiste à observer l'évolution de la section efficace de photodétachement (relative) en fonction de la longueur d'onde du photon. Au passage de chaque nouveau seuil de détachement, s'ajoute à la section efficace totale la contribution partielle associée à la nouvelle voie qui s'ouvre, avec une variation déterminée par la loi de Wigner [Wig48] (cf. sous-section 1.2.1.3 du chapitre 1). L'ajustement de cette loi sur les données expérimentales permet de déterminer l'énergie de chaque seuil de détachement observé.

L'expérience réalisée par Slater et Linberger [SL77] consistait à détacher l'électron en laissant l'atome neutre dans son état excité  $^2D$ . Ils déterminèrent l'affinité électronique en

retranchant à l'énergie mesurée l'énergie de ce doublet D par rapport au niveau fondamental du neutre. La sensibilité de leur expérience n'était cependant pas suffisante pour observer un seuil qui mette en jeu le niveau  ${}^2D_{3/2}^o$ . La probabilité relative de détachement depuis le niveau fondamental de  $P^-$  (niveau thermiquement le plus peuplé) jusqu'au niveau  ${}^2D_{3/2}^o$  est en effet neuf fois plus faible que vers le niveau  ${}^2D_{5/2}^o$  (cf. figure 7.1).

La mesure la plus récente [ALA<sup>+</sup>07] donne une valeur de 0,74668(6) eV (soit 6022,38(49)  $cm^{-1}$ ) pour l'affinité électronique et 0,03273(7) ( ${}^3P_2-{}^3P_0$ ), 0,02248(7) ( ${}^3P_2-{}^3P_1$ ) et 0,01025(3) eV ( ${}^3P_1-{}^3P_0$ ) pour les intervalles de structure fine de  $P^-$  (cf. tableau 7.3).

Notre connaissance du spectre du phosphore vient essentiellement des travaux de Sven denius en 1979 [Sve80]. Parmi les centaines de niveaux qu'il observa, il y a le doublet  ${}^2D$  (issu de la configuration électronique fondamentale  $1s^22s^22p^63s^23p^3$ ) qui nous intéresse. Il détermina des énergies d'excitation (par rapport au niveau fondamental du phosphore neutre) de 11361,02 et 11376,63  $cm^{-1}$  pour les niveaux  ${}^2D_{3/2}^o$  et  ${}^2D_{5/2}^o$  respectivement avec une erreur estimée à 0,05  $cm^{-1}$  (supposée être égale à une fois l'écart-type, cf. tableau 7.3).

**Structures hyperfines** Le phosphore a la particularité de ne posséder qu'un seul isotope stable ( ${}^{31}P$ ). Sa configuration électronique à l'état fondamental présente trois électrons de valence non-appariés  $1s^22s^22p^63s^23p^3$ . Le nombre de masse de cet isotope étant impair, il possède un moment de spin nucléaire  $I$  non-nul égal à 1/2. Sa présence donne naissance à un doublet hyperfin pour chaque terme spectral de moment cinétique total  $J$  non-nul.

Dans la littérature, on ne trouve aucune étude expérimentale ou théorique qui concerne la structure hyperfine des niveaux  ${}^3P$  de l'ion  $P^-$  et  ${}^2D$  de P qui nous intéressent.

On peut néanmoins penser qu'en raison de la symétrie spatiale du noyau (liée à son moment angulaire  $I = 1/2$ ), la structure hyperfine du phosphore ne possède pas de composante quadrupolaire électrique.

Pour estimer les paramètres de structure hyperfine du phosphore on utilise une méthode d'extrapolation le long d'une série isoélectronique inventée par Trainham *et al.* [TJL89] et utilisée pour estimer la structure hyperfine de  ${}^{33}S^-$  moyennant la connaissance de la structure hyperfine du chlore, et plus récemment par Blondel *et al.* [BDV<sup>+</sup>01] pour estimer la structure hyperfine de  ${}^{17}O^-$  à partir de celle du fluor  ${}^{19}F$ .

La méthode requiert l'application de deux facteurs correctifs. Il faut, d'une part, tenir compte du rapport des facteurs de Landé nucléaires. D'autre part, il faut considérer la contribution électronique moyenne  $\langle r^{-3} \rangle$ , qui peut être estimée à partir des structures

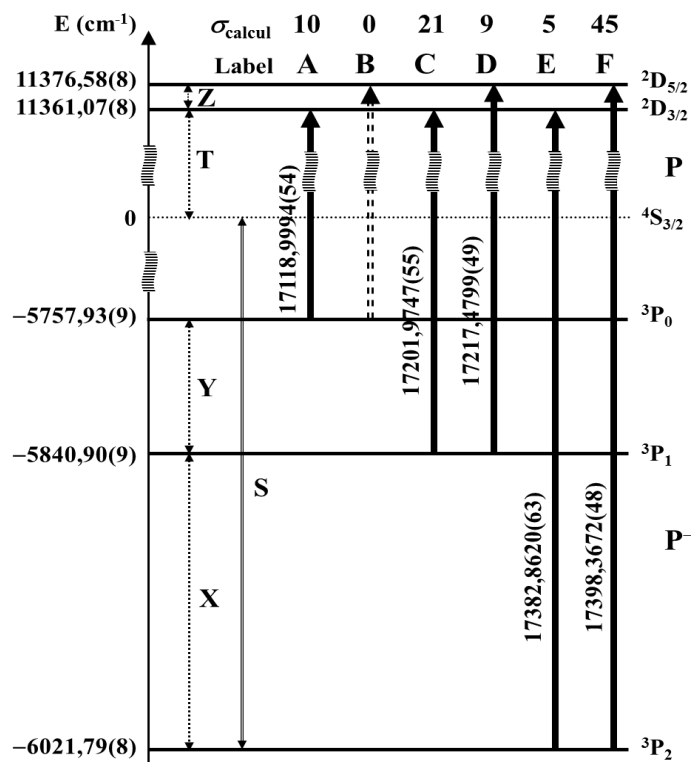


FIGURE 7.1 – Schéma des niveaux du phosphore. Les valeurs numériques sont celles reconstruites après mélange de nos mesures de seuils avec les mesures d'énergie d'excitation de Svendenius. On donne les intervalles fondamentaux (le vecteur des  $X$  utiles pour l'application du principe de Ritz (cf. texte). On donne également les poids relatifs des transitions. La transition B est interdite par les règles de sélection.

finies, car c'est la même intégrale radiale qui intervient dans les écarts fins et hyperfins. La remise à l'échelle se fait donc en multipliant le paramètre de structure hyperfine du  $^{33}\text{S}$  par le rapport des écarts de structure fine observés pour les termes spectraux considérés (le  $^3P$  et le  $^2D$ ) et par le rapport des facteurs de Landé.

L'application de cette méthode sur  $P^-$  en utilisant les paramètres de structure hyperfine de  $^{33}\text{S}$  calculés récemment par Thomas Carette et Michel R Godefroid [CG11] donne un paramètre de structure hyperfine dipolaire magnétique de 313 MHz pour le niveau  $^3P_2$  et de -11 MHz pour le niveau  $^3P_1$ . Le niveau  $^3P_0$  ne possède pas de structure hyperfine. L'hypothèse d'une structure hyperfine dominée par le terme dipolaire magnétique permet d'estimer l'écart des niveaux de chaque doublet de structure hyperfine du terme fondamental de l'ion  $P^-$  ( $E_{shf}(I,J,F) - E_{shf}(I,J,F-1) = A_J F$ , où  $F$  est le moment cinétique total, cf.

figure 7.4).

On ne connaît de la structure hyperfine des niveaux d'énergie du phosphore neutre que celle du terme fondamental  $^4S_{3/2}^o$  et de quelques niveaux excités pairs [Sve80].

### Particularités de l'histoire de la mesure du paramètre de structure hyperfine du terme fondamental du phosphore neutre

L'histoire de la détermination du paramètre de structure hyperfine associé à la perturbation dipolaire magnétique est intéressante. H. G. Dehmelt est le premier à l'avoir mesuré expérimentalement sans en déduire le signe [Deh55]. En 1962, Lambert et Pipkin mesurèrent une nouvelle fois très soigneusement ce paramètre et démontrèrent qu'il était positif [LP62, LP63] ( $A = +55,055691(7)$  MHz).

Les calculs théoriques de l'époque menaient, au contraire, à une valeur négative du paramètre de structure hyperfine (cf. article [BLBM<sup>+</sup>64], par exemple).

Les résultats d'une autre expérience due à Pendlebury et Smith [PS64] soutinrent les résultats de Lambert et Pipkin. En 1967, les théoriciens Dutta *et al.* [DMPD67] mirent fin au débat en considérant mieux les corrélations électroniques. Leur résultat était en accord avec la mesure expérimentale, que ce soit pour le signe ou la valeur numérique.

## 7.2.2 Mesures des seuils de détachement du phosphore et analyse des données

Les seuils mesurés sont représentés sur la figure 7.1. La transition B est interdite par les règles de sélection.

Comme on l'a vu dans la sous-section 7.1.3, pour éliminer l'effet Doppler dû au mouvement des ions, il est nécessaire d'enregistrer, par double passage du faisceau laser à travers le jet d'ions négatifs, une paire d'interférogrammes (cf. thèse de Valli [Val99]). On donne un exemple d'une telle paire sur la figure 7.2 (cf. thèse de Valli pour les détails [Val99]). Cette paire est accompagnée de la paire simulée associée issue d'un programme d'ajustement qui, utilisant la densité de courant théorique (équation 6.20), permet d'extraire l'énergie cinétique  $\varepsilon$  qu'avait l'électron juste après le photodétachement.

Le retranchement de cette énergie  $\varepsilon$  à celle du photon exciteur (après prise en compte de l'effet Doppler) devrait donner l'énergie de transition entre le niveau de départ de l'ion négatif et le niveau d'arrivée de l'atome. Mais la mesure repose sur la différence de phase maximale de l'interférogramme (cf. équation 6.19). Cette différence de phase est

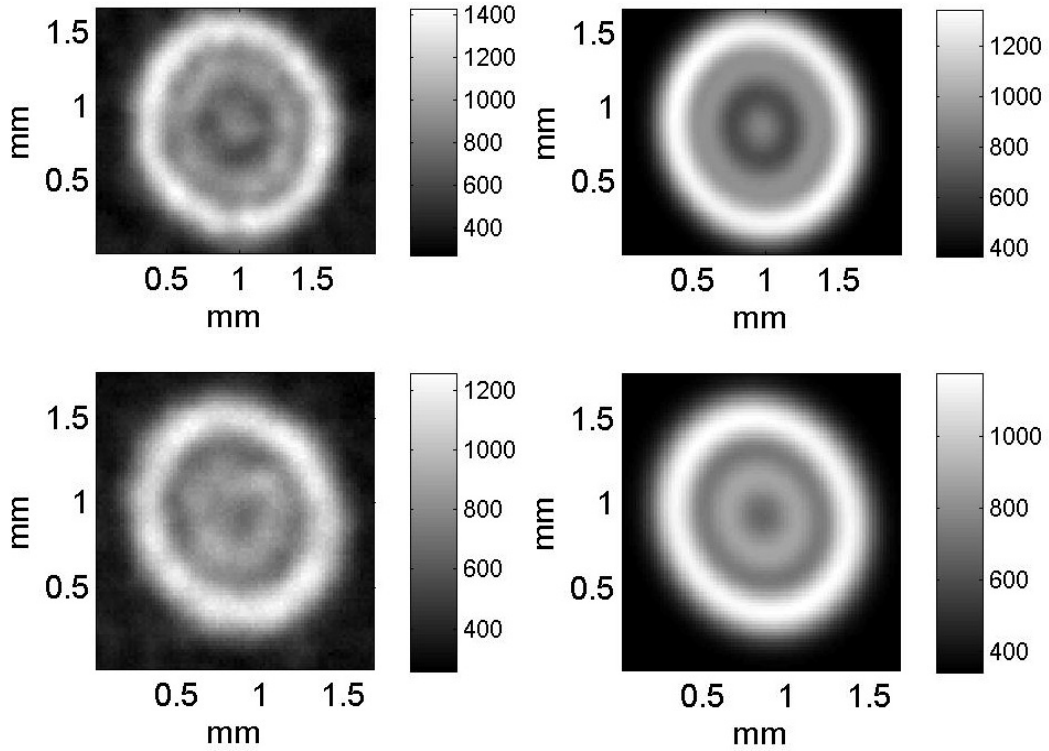


FIGURE 7.2 – À gauche, paire d’interférogrammes électroniques expérimentale (seuil F) produite dans un champ électrique de 364,1 V/m. À droite, résultat du meilleur ajustement. L’énergie cinétique des électrons de 0,643(2)  $\text{cm}^{-1}$  à l’origine de l’interférogramme du haut qui compte deux anneaux (excepté l’anneau classique) est supérieure à l’énergie cinétique de 0,532(2)  $\text{cm}^{-1}$  des électrons à l’origine de la tache du bas.

inversement proportionnelle au champ électrique présent au niveau de la zone d’interaction (zone d’intersection entre le faisceau laser et le jet d’ions). On ne mesure donc réellement que le rapport  $\frac{\varepsilon^{\frac{3}{2}}}{F}$

Or, le champ électrique expérimental  $F_m$  (celui utilisé dans le programme d’ajustement) n’est déterminé qu’approximativement. L’incertitude sur ce champ introduit donc, en plus de l’incertitude naturelle de la mesure de la phase, une incertitude supplémentaire. La phase  $\Delta\Phi_{max}$  fixe le rapport  $\frac{\varepsilon^{\frac{3}{2}}}{F}$ , que l’on peut écrire aussi bien pour les valeurs mesurées  $\varepsilon_m$  et  $F_m$  que pour les valeurs réelles  $\varepsilon_r$  et  $F_r$  :

$$\Delta\Phi_{max} \propto \frac{\varepsilon_r^{\frac{3}{2}}}{F_r} = \frac{\varepsilon_m^{\frac{3}{2}}}{F_m}. \quad (7.2)$$

On en déduit une relation de proportionnalité entre l’énergie cinétique réelle et l’énergie mesurée :



$$\varepsilon_r = k\varepsilon_m, \quad (7.3)$$

où  $k = \left(\frac{F_r}{F_m}\right)^{\frac{2}{3}}$ .

L'énergie de la transition étudiée (l'affinité électronique par exemple) est liée à l'énergie cinétique par la relation :

$$E = h\nu - \varepsilon, \quad (7.4)$$

où  $h\nu$  est l'énergie du photon exciteur.

L'énergie de transition réelle  $E_r$  est donc fonction affine de l'énergie cinétique électronique  $\varepsilon_m$  mesurée :

$$E_r = h\nu - \varepsilon_r = h\nu - k\varepsilon_m = h\nu - \varepsilon_m + \varepsilon_m - k\varepsilon_m = E_m + (1 - k)\varepsilon_m, \quad (7.5)$$

où  $E_m$  est l'énergie de transition mesurée (en considérant un champ électrique  $F_m$ )

On obtient finalement :

$$E_m = E_r + (k - 1)\varepsilon_m. \quad (7.6)$$

Si l'erreur sur le champ électrique est nulle, la pente est nulle et l'énergie de transition mesurée est égale à l'énergie de transition réelle.

On peut s'affranchir de la connaissance exacte du champ électrique réel  $F_r$  en mesurant une série d'interférogrammes à des énergies d'excitation différentes. L'énergie de transition réelle  $E_r$  est alors donnée par l'ordonnée à l'origine de la droite qui ajuste au mieux le nuage de points expérimentaux représentés dans l'espace  $(E_m, \varepsilon_m)$ , (cf. figure 7.3). La méthode statistique utilisée qui minimise le  $\chi^2$  est décrite dans la section C.3 de l'annexe C de la thèse de Walid Chaibi [Cha06].

Le champ électrique mesuré étant vraisemblablement proche de la valeur réelle (erreur relative  $\frac{\delta F_m}{F_m}$  de moins de 1 %, cf. section 6.3 du mémoire d'HDR de Cyril Drag [Dra10]), on peut contraindre la pente à avoir une valeur proche de la valeur nulle (erreur relative de l'ordre du pourcent)<sup>1</sup>.

---

1. Concrètement, cela consiste à ajouter un terme  $\frac{a^2}{\sigma_a^2}$  au  $\chi^2$  (cf. thèse Chaibi, annexe C.3 [Cha06]), où  $a$  le paramètre d'ajustement du nuage de points qui représente la pente, et  $\sigma_a$  correspond à la contrainte (écart-type) appliquée sur la pente.

En outre, la valeur du champ électrique réellement perçu par les électrons (et les ions) au moment du photodétachement dépend du lieu d'intersection entre le faisceau laser et le jet d'ions. Cependant, la variation de la position de la zone d'interaction est fortement limitée par la géométrie de l'expérience. On tient compte de ceci en ajoutant une contrainte supplémentaire de corrélation des pentes de tous les jeux de mesures.

### 7.2.2.1 Analyse des données brutes

Pour chaque seuil A, C, D, E et F, nous avons mesuré une série de paires d'interférogrammes. Le programme d'ajustement s'appuyant sur l'équation de la densité de courant de l'électron 6.20 (convoluée) nous a permis de déduire, pour chaque seuil, une série de couples  $(E_m, \varepsilon_m)$ . On donne l'exemple du seuil C sur la figure 7.3. Les valeurs des énergies de transitions réelles  $E_r$  déduites à partir des nuages de points par ajustement linéaire (cf. sous-section précédente), sont données dans le tableau 7.2.

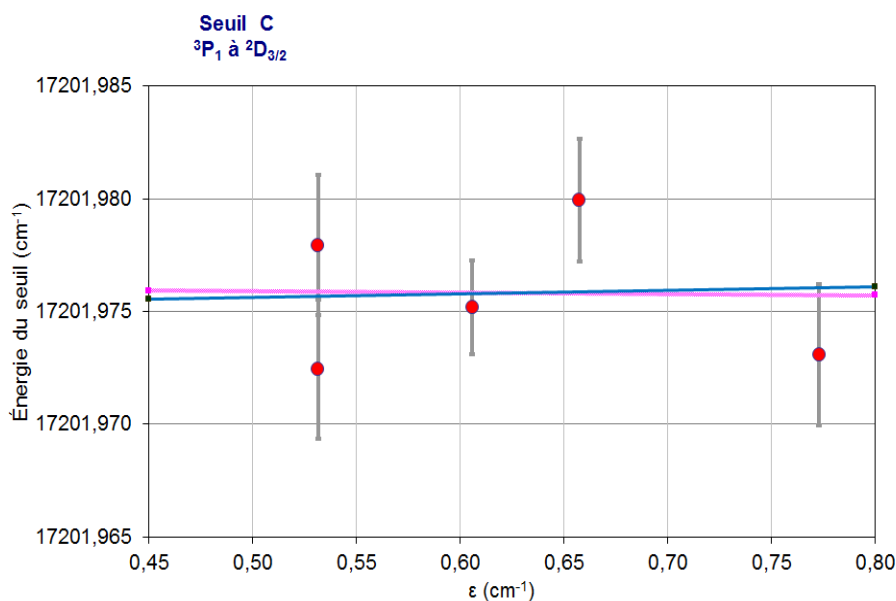


FIGURE 7.3 – Énergie apparente du seuil C en fonction de l'énergie cinétique moyenne des photoélectrons. L'extrapolation à une énergie cinétique nulle donne une mesure de l'énergie du seuil réel de 17201,976(11) cm<sup>-1</sup> si la régression ne tient compte que du jeu de mesures pour ce seuil (courbe rose) ou 17201,975(6) cm<sup>-1</sup> si la régression est globale et tient compte de la nécessaire similitude des pentes d'un jeu de mesures à l'autre (courbe bleue).

Les courbes roses représentent les droites optimales associées aux nuages de points des seuils individuels. Les courbes bleues ont été déterminées en considérant des corrélations de chaque série de mesures au travers d'un terme qui fait intervenir la contrainte sur l'écart des pentes individuelles.

Transition	Mesures $E_r$ ( $cm^{-1}$ )	Mesures reconstituées ( $cm^{-1}$ )
A	17118,9994(54)	17118,9994(54)
C	17201,9749(56)	17201,9747(55)
D	17217,4797(53)	17217,4799(49)
E	17382,8616(78)	17382,8620(63)
F	17398,3672(49)	17398,3672(48)

TABLE 7.2 – Tableau récapitulatif des énergies de transitions, mesurées par microscopie de photodétachement, depuis le terme fondamental  $^3P$  du  $P^-$  vers le premier terme excité  $^2D$  du phosphore neutre (configuration électronique fondamentale). Dans la deuxième colonne, on donne les mesures telles qu’elles ressortent des données brutes avec leurs barres d’erreurs à  $2\sigma$ . Dans la troisième colonne, on donne les seuils reconstitués, à l’aide du principe de Ritz, suite à la prise en compte des mesures de Svendenius [Sve80].

### 7.2.2.2 Affinité électronique du phosphore et structures fines

Pour déduire de nos mesures l’affinité électronique du phosphore (cf. figure 7.1), il est nécessaire de les combiner avec les résultats de Svendenius [Sve80] concernant l’énergie de transition entre le niveau fondamental de l’atome  $^4S_{3/2}^o$  et le doublet excité  $^2D_{3/2,5/2}^o$ .

#### Application globale du principe de combinaison de Ritz aux mesures de seuils de détachement et aux données spectroscopiques sur les niveaux $^2D$ du neutre

Les seuils mesurés ainsi que les énergies d’excitation de Svendenius sont combinaisons linéaires des intervalles d’énergies  $X, Y, Z, S, T$  (cf. figure 7.1). Le vecteur  $\mathbf{M}$  des seuils expérimentaux étudiés s’écrit en fonction du vecteur des intervalles d’énergies  $\mathbf{X} = {}^t(X, Y, Z, S, T)$  :

$$\mathbf{M} = \begin{pmatrix} X & Y & Z & S & T \\ -1 & -1 & 0 & 1 & 1 \\ -1 & 0 & 0 & 1 & 1 \\ -1 & 0 & 1 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{matrix} A \\ C \\ D \\ E \\ F \\ P \\ Q \end{matrix} \cdot \mathbf{X} = \mathbf{I} \cdot \mathbf{X} \quad (7.7)$$

où  $P$  et  $Q$  représentent respectivement les niveaux  $^4S_{3/2}^o \rightarrow ^2D_{3/2}^o$  et  $^4S_{3/2}^o \rightarrow ^2D_{5/2}^o$  mesurés par Svendenius.

Déterminer la valeur la plus probable du vecteur des  $\mathbf{X}$  revient, en supposant des dis-

tributions statistiques gaussiennes, à minimiser un  $\chi^2$  (méthode des moindres carrés). Plus précisément, on cherche à minimiser les contraintes internes qui existent au sein du vecteur des mesures expérimentales  $\mathbf{M}_{\text{exp}}$  suite à l'ajout des énergies d'excitation de Svendenius, en calculant un vecteur  $\mathbf{M}$  optimal.

Le  $\chi^2$  s'exprime en l'occurrence comme le produit de trois matrices,  ${}^t(\mathbf{M}_{\text{exp}} - \mathbf{M})\mathbf{S}(\mathbf{M}_{\text{exp}} - \mathbf{M})$  qui fait intervenir la différence entre le vecteur des mesures expérimentales  $\mathbf{M}_{\text{exp}}$  et le vecteur  $\mathbf{M} = \mathbf{IX}$  où  $\mathbf{X}$  est le vecteur d'essai. La matrice  $\mathbf{S}$  est l'inverse de la matrice de variance-covariance  $\Sigma$  des mesures expérimentales :

$$\Sigma = \begin{pmatrix} A & C & D & E & F & P & Q \\ 7,4 \cdot 10^{-6} & 4,33 \cdot 10^{-6} & 3,88 \cdot 10^{-6} & 5,15 \cdot 10^{-6} & 3,92 \cdot 10^{-6} & 0 & 0 \\ 4,33 \cdot 10^{-6} & 7,9 \cdot 10^{-6} & 4,14 \cdot 10^{-6} & 5,5 \cdot 10^{-6} & 4,19 \cdot 10^{-6} & 0 & 0 \\ 3,88 \cdot 10^{-6} & 4,14 \cdot 10^{-6} & 6,93 \cdot 10^{-6} & 4,93 \cdot 10^{-6} & 3,75 \cdot 10^{-6} & 0 & 0 \\ 5,15 \cdot 10^{-6} & 5,5 \cdot 10^{-6} & 4,93 \cdot 10^{-6} & 1,53 \cdot 10^{-6} & 4,98 \cdot 10^{-6} & 0 & 0 \\ 3,92 \cdot 10^{-6} & 4,19 \cdot 10^{-6} & 3,75 \cdot 10^{-6} & 4,98 \cdot 10^{-6} & 5,92 \cdot 10^{-6} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 2,5 \cdot 10^{-3} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 2,5 \cdot 10^{-3} \end{pmatrix}. \quad (7.8)$$

Les éléments de matrice sont donnés en  $\text{cm}^{-2}$ .

Nos mesures qui sont toutes corrélées entre elles, ne le sont pas avec celles de Svendenius comme on peut le voir dans l'expression de  $\Sigma$ . En revanche, il peut exister une corrélation entre les deux énergies mesurées par Svendenius mais elle n'est pas évoquée dans son article.

Minimiser le  $\chi^2$  revient à annuler la différentielle :

$$\begin{aligned} d\chi^2 &= {}^t(\mathbf{IdX})\mathbf{S}(\mathbf{IX} - \mathbf{M}_{\text{exp}}) + {}^t(\mathbf{IX} - \mathbf{M}_{\text{exp}})\mathbf{S}(\mathbf{IdX}) \\ &= {}^t(\mathbf{IdX})\mathbf{S}(\mathbf{IX} - \mathbf{M}_{\text{exp}}) + {}^t[{}^t(\mathbf{IdX})\mathbf{S}(\mathbf{IX} - \mathbf{M}_{\text{exp}})] = 0. \end{aligned} \quad (7.9)$$

Le produit  ${}^t(\mathbf{IdX})\mathbf{S}(\mathbf{IX} - \mathbf{M}_{\text{exp}})$  est un scalaire, le  $\chi^2$  est donc égal à deux fois ce scalaire (la transposée d'un scalaire est égale à lui-même). La condition 7.9 s'écrit alors :

$${}^t d\mathbf{X} [({}^t \mathbf{ISI})\mathbf{X} - {}^t \mathbf{ISM}_{\text{exp}}] = 0. \quad (7.10)$$

Pour que cette forme différentielle soit nulle, il faut et il suffit que :

$$\mathbf{X}_{\text{opt}} = ({}^t\mathbf{ISI})^{-1}{}^t\mathbf{ISM}_{\text{exp}}. \quad (7.11)$$

La matrice de variance-covariance  $({}^t\mathbf{ISI})^{-1}$  de  $\mathbf{X}_{\text{opt}}$  (en cm<sup>-2</sup>) :

$$({}^t\mathbf{ISI})^{-1} = \begin{pmatrix} X & Y & Z & S & T \\ 3,72 \cdot 10^{-6} & -9,75 \cdot 10^{-7} & -1,28 \cdot 10^{-6} & 2,39 \cdot 10^{-6} & 6,39 \cdot 10^{-7} \\ -9,75 \cdot 10^{-7} & 6,06 \cdot 10^{-6} & -2,13 \cdot 10^{-6} & 1,08 \cdot 10^{-6} & 1,06 \cdot 10^{-6} \\ -1,28 \cdot 10^{-6} & -2,13 \cdot 10^{-6} & 4,2 \cdot 10^{-6} & -2,04 \cdot 10^{-6} & 2,1 \cdot 10^{-6} \\ 2,39 \cdot 10^{-6} & 1,08 \cdot 10^{-6} & -2,04 \cdot 10^{-6} & 1,26 \cdot 10^{-3} & -1,25 \cdot 10^{-3} \\ 6,39 \cdot 10^{-6} & 1,06 \cdot 10^{-6} & -2,1 \cdot 10^{-6} & -1,25 \cdot 10^{-3} & 1,25 \cdot 10^{-3} \end{pmatrix}, \quad (7.12)$$

permet de calculer les écarts-types sur les valeurs des  $\mathbf{X}_{\text{opt}}$  (racine carrée des variances). Les valeurs numériques sont données dans le tableau 7.3. On y lit l'affinité électronique du phosphore  ${}^eA = 6021,79(8)$  cm<sup>-1</sup> (à  $2\sigma$ ) et les structures fines des niveaux  ${}^3P$  (de P<sup>-</sup>) et  ${}^2D^o$  (de P). La précision (de quelques mk) est nettement meilleure pour les écarts de structures fines du fait qu'ils sont complètement indépendants des mesures de Svendenius. Nos valeurs sont en accord avec les valeurs antérieures à l'intérieur d'un intervalle de confiance de  $2\sigma$ .

La matrice de corrélation  $\mathbf{C}$  qui est liée à la matrice de variance-covariance par la relation  $\mathbf{C} = \Sigma_{\mathbf{d}}^{-\frac{1}{2}} \cdot \Sigma \cdot \Sigma_{\mathbf{d}}^{-\frac{1}{2}}$ , où  $\Sigma_{\mathbf{d}}$  correspond à la matrice  $\Sigma$  réduite à ses seuls éléments diagonaux :

$$\mathbf{C} = \begin{pmatrix} X & Y & Z & S & T \\ 1 & -0,205 & -0,323 & 0,0349 & 0,00936 \\ -0,205 & 1 & -0,422 & 0,0124 & 0,0122 \\ -0,323 & -0,422 & 1 & -0,0281 & -0,029 \\ 0,0349 & 0,0124 & -0,0281 & 1 & -0,996 \\ 0,00936 & 0,0122 & -0,029 & -0,996 & 1 \end{pmatrix} \quad (7.13)$$

L'écart du vecteur des  $\mathbf{X}_{\text{opt}}$  réajusté par rapport aux mesures expérimentales est caractérisé par un  $\chi^2 = 1,12$ .

La corrélation de presque -100 % entre S et T vient du fait que dans le schéma des

niveaux 7.1 la position du fondamental est relativement peu contrainte et que S et T peuvent varier presque librement. Par conséquent, un accroissement (respectivement une diminution) de la valeur de T se répercutera sur S par une diminution (respectivement un accroissement) quasi-identique de sa valeur.

Intervalle	Énergie (cm <sup>-1</sup> )	Écart-type $\sigma$ (cm <sup>-1</sup> )	Valeurs antérieures
X = <sup>3</sup> P <sub>2</sub> - <sup>3</sup> P <sub>1</sub>	180,8873	0,0019	181,35 [ALA <sup>+</sup> 07]
Y = <sup>3</sup> P <sub>1</sub> - <sup>3</sup> P <sub>0</sub>	82,9752	0,0025	82,65 [ALA <sup>+</sup> 07]
Z = <sup>2</sup> D <sub>3/2</sub> <sup>o</sup> - <sup>2</sup> D <sub>5/2</sub> <sup>o</sup>	15,5052	0,002	15,61 [Sve80]
S = <sup>o</sup> A	6021,7896	0,0355	6022,35 [ALA <sup>+</sup> 07]
T = <sup>4</sup> S <sub>3/2</sub> <sup>o</sup> - <sup>2</sup> D <sub>3/2</sub> <sup>o</sup>	11361,0724	0,0354	11361,02 [Sve80]
X+Y = <sup>3</sup> P <sub>2</sub> - <sup>3</sup> P <sub>0</sub>	263,8625	0,0028	264,00 [ALA <sup>+</sup> 07]
T+Z = <sup>4</sup> S <sub>3/2</sub> <sup>o</sup> - <sup>2</sup> D <sub>5/2</sub> <sup>o</sup>	11376,5776	0,0354	11376,63 [Sve80]

TABLE 7.3 – Intervalles d'énergie optimisés. On donne en quatrième colonne les valeurs antérieures avec une barre d'erreur à  $1\sigma$ . On observe que l'accord entre nos valeurs et les anciennes n'est pas toujours parfait sauf en considérant un intervalle de confiance de  $2\sigma$ .

Le vecteur des mesures expérimentales reconstitué  $\mathbf{M}_{\text{rec}}$  se déduit de l'équation 7.11 :

$$\mathbf{M}_{\text{rec}} = \mathbf{I} \cdot \mathbf{X} = \mathbf{I}(\mathbf{I}^t \mathbf{I} \mathbf{I})^{-1} \mathbf{I}^t \mathbf{I} \mathbf{M}_{\text{exp}} \quad (7.14)$$

La matrice de variance-covariance associée est  $\mathbf{I}(\mathbf{I}^t \mathbf{I} \mathbf{I})^{-1} \mathbf{I}^t \mathbf{I}$  et permet de calculer les barres d'erreurs (cf. tableau 7.2)).

On peut aller plus loin en intégrant en plus les valeurs d'Andersson *et al.* [ALA<sup>+</sup>07] (cf. article [PBV<sup>+</sup>11] pour les détails). Le calcul aboutit à une valeur légèrement améliorée de l'affinité électronique <sup>o</sup>A = 6021,81(8) cm<sup>-1</sup> (0,746609(11)eV), et de la structure fine du terme fondamental <sup>3</sup>P de l'ion P<sup>-</sup>, 82,975(6) cm<sup>-1</sup> (pour <sup>3</sup>P<sub>1</sub>-<sup>3</sup>P<sub>0</sub>), 180,887(5) cm<sup>-1</sup> (pour <sup>3</sup>P<sub>2</sub>-<sup>3</sup>P<sub>1</sub>) et 263,863(7) cm<sup>-1</sup> (pour <sup>3</sup>P<sub>2</sub>-<sup>3</sup>P<sub>0</sub>).

### 7.2.2.3 Structures hyperfines

La structure hyperfine des niveaux d'énergie est à l'origine d'une augmentation du nombre de seuils accessibles. Cela donne naissance à une superposition incohérente de systèmes d'anneaux d'interférences. Le microscope de photodétachement ne permet pas de résoudre séparément chacun de ces interférogrammes. La meilleure manière de tenir compte de la présence de la structure hyperfine est d'ajuster les images expérimentales avec une somme d'interférogrammes, calculés par le programme d'ajustement, chacun correspondant à un seuil hyperfin accessible. Cette méthode a déjà été appliquée avec succès sur l'ion

$^{17}O^-$  [BDV<sup>+</sup>01] et plus récemment sur l'ion  $^{127}I^-$  [PBDD09].

Cependant, on a vu dans la sous-section 7.2.1 que les informations dont on dispose sur la structure hyperfine du système  $P-P^-$  se limitent au terme fondamental du phosphore neutre (cf. sous-section 7.2.1). Nous n'avons aucune information sur la structure hyperfine des niveaux excités  $^2D_{3/2,5/2}$  (cf. figure 7.4).

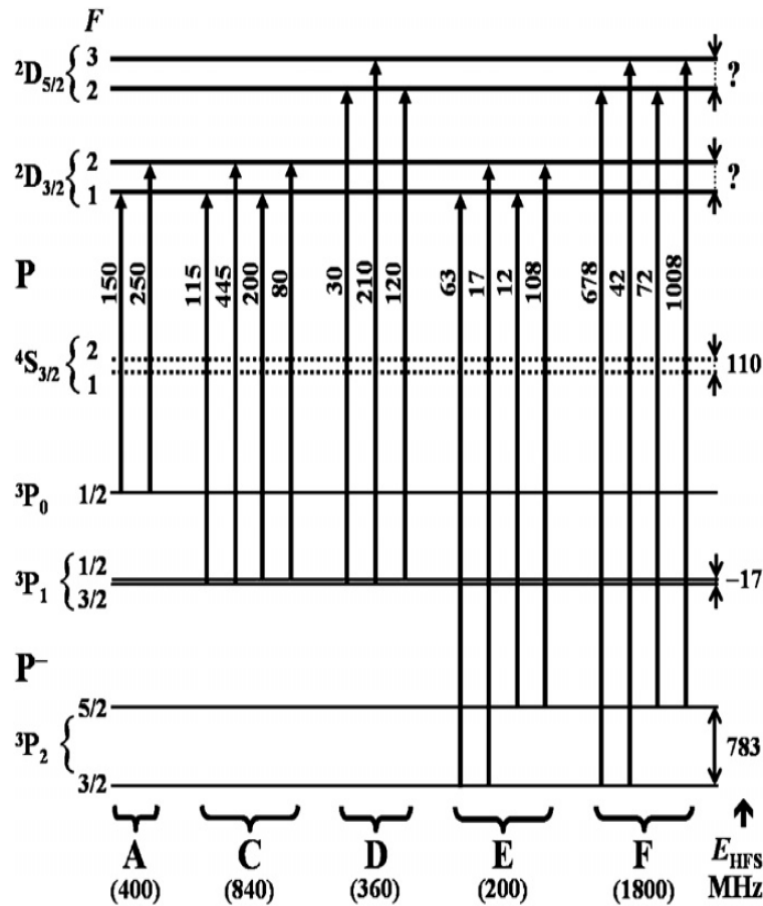


FIGURE 7.4 – Schéma des niveaux de structure fine et hyperfine des niveaux d'intérêt du système  $P-P^-$  avec leurs intensités relatives. Les intervalles de structure hyperfine des termes  $^3P_2$  et  $^3P_1$  de l'ion  $P^-$  sont des extrapolations de la structure hyperfine calculée du système isoélectronique  $^{33}S$ .

Pour traiter les données expérimentales, le programme d'ajustement convolue une image d'un interférogramme parfaitement contrasté avec des fonctions qui décrivent les flous spatiaux et énergétiques de l'expérience. L'origine de la plus grande partie des élargissements énergétiques s'explique par l'effet Doppler correspondant aux distributions angulaires des vecteurs d'onde du faisceau laser et de la vitesse des ions. La structure hyperfine est convoluée par cet élargissement.

On peut se demander si l'élargissement spectral observé contient de l'information

concernant les écarts de structure hyperfine (cf. tableau 7.4).

A	C	D	E	F
0,9(4)	0,8(3)	1,7(4)	1,1(4)	1,2(4)

TABLE 7.4 – Demi-largeur des flocs énergétiques (en GHz) observés pour chaque seuil étudiés. L’incertitude est donnée à  $1 \sigma$ .

Les incertitudes sont tellement grandes que nos essais d’optimisations à trois et quatre paramètres d’ajustement (les écarts hyperfins de chaque doublet avec ou sans considération de la levée de dégénérescence du niveau  $^3P_1$ , principe de Ritz) des seuils mesurés n’ont pas aboutit à des résultats concluants.

La similitude des largeurs observées pour les seuils A et C va dans le sens d’un faible écart hyperfin du niveau  $^3P_1$ . La plus grande largeur pour les seuils E et F peut se comprendre du fait que l’intervalle hyperfin du niveau  $^3P_2$  attendu est grand. En revanche, la plus grande valeur de la largeur pour le niveau D ne peut pas se comprendre par des arguments simples d’écarts hyperfins étant donné les valeurs observées pour les seuils précédents.

### 7.3 Affinité électronique du sélénium [VDB12]

Le sélénium est l’élément numéro 34 du tableau périodique et constitue avec O, S, Te, Po et Lv la famille des chalcogènes (colonne 16 du tableau périodique). Il forme un ion négatif relativement stable avec une énergie de liaison (affinité électronique du neutre) de l’ordre de 2 eV.

La première étude spectroscopique de l’ion  $Se^-$  a été menée par Hotop *et al.* en 1973 [HPL73]. Leur expérience consistait à photodétacher un jet d’ions  $Se^-$  avec un faisceau laser à colorant pulsé accordable visible (520-700 nm, cinq colorants successivement) pompé par une lampe à xénon. L’ajustement, près de chaque seuil observable, de la variation de la section efficace relative expérimentale en fonction de l’énergie par une loi de Wigner leur permit de mesurer l’affinité électronique du sélénium  $16297(2) \text{ cm}^{-1}$  (transition  $^2P_{3/2}-^3P_2$ ) et la structure fine du doublet fondamental  $^2P_{3/2,1/2}$ ,  $2279(2) \text{ cm}^{-1}$  de l’ion négatif.

En 1985, Mansour *et al.* [EML85, MEL88] mesurent à nouveau l’affinité électronique en photodétachant les ions  $Se^-$  dans un piège de Penning. Ils affichent une valeur à  $16297,8(2) \text{ cm}^{-1}$  qui est plus précise et en accord avec celle mesurée par Hotop *et al.*.



En 1996, Thøgersen *et al.* [TSS<sup>+</sup>96], utilisant un schéma Raman, mesurent une affinité électronique de 16297,7(4) cm<sup>-1</sup> similaire aux valeurs précédentes, et un écart de structure fine du doublet <sup>2</sup>P<sub>3/2,1/2</sub>.

### 7.3.1 Dispositif expérimental

La source SNICS II (cf. chapitre 2, section 2.1) produit un jet de Se<sup>-</sup> de 1,2 keV d'énergie cinétique de courant relativement faible (60 pA, jet de 1 mm de diamètre). Le jet est envoyé vers la zone d'interaction (après décélération des ions à une énergie cinétique de 300 eV) où il intersecte par deux fois (pour corriger, au premier ordre, l'effet Doppler [Val99]) le faisceau produit par un laser à colorant en anneau continu (Spectra 380A, colorant Rhodamine 640) dont le nombre d'onde est mesuré avec un lambdamètre HighFinesse<sup>TM</sup> WS-U et dont la précision est meilleure que 2.10<sup>-3</sup> cm<sup>-1</sup> (cf. chapitre 2, sous-section 2.3.3.1). La calibration du lambdamètre est vérifiée régulièrement par comparaison avec la longueur d'onde de la lumière d'une diode laser positionnée, à l'aide de la technique d'absorption saturée, sur une composante hyperfine de la raie D2 du césium atomique.

La résolution de notre filtre de masse était trop faible et la masse du sélénium trop grande (80 pour le plus abondant) pour parvenir à ne sélectionner qu'un isotope. Malgré cela, les interférogrammes mesurés avaient un très bon contraste.

### 7.3.2 Structure hyperfine et décalage isotopique

Le rôle de la structure hyperfine comme source de flou est fortement réduit par le fait que moins de 8 % de la masse d'un échantillon naturel présente un nombre de masse impair (le seul isotope impair est <sup>77</sup>Se).

La dépendance isotopique de l'affinité électronique devrait être, ici, la source d'élargissement la plus grande. Le soufre, qui appartient à la même colonne du tableau périodique que le sélénium, présente un décalage isotopique très faible (+0,0023(70) cm<sup>-1</sup> de <sup>32</sup>S à <sup>34</sup>S) [CDS<sup>+</sup>10]. L'oxygène, qui est aussi dans la même colonne que le sélénium, montre un décalage isotopique anomal de -0,074(18) cm<sup>-1</sup> (de <sup>16</sup>O à <sup>18</sup>O) qui est loin d'être négligeable par rapport à la précision de notre expérience. Le sélénium étant lourd, le décalage isotopique normal, qui est inversement proportionnel au carré du nombre de masse du noyau [Bre58], est beaucoup plus petit que pour l'oxygène ou le soufre (+0,0169 cm<sup>-1</sup> de <sup>32</sup>S à <sup>34</sup>S). Gillett *et al.* [GDB94] ont mesuré l'intervalle de structure fine <sup>3</sup>P<sub>2</sub>-<sup>3</sup>P<sub>1</sub> des deux

isotopes les plus abondants  $^{78}\text{Se}$  et  $^{80}\text{Se}$  (qui constituent 73,4 % du total), et pour le  $^{77}\text{Se}$ . Ces mesures donnent un décalage isotopique  $^{78}\text{Se}$ - $^{80}\text{Se}$  de  $0,00034(12) \text{ cm}^{-1}$  (barre d'erreur à  $2\sigma$ ) qui est complètement négligeable au regard de la précision de notre expérience.

### 7.3.3 Analyse des données : affinité électronique du sélénium

Pour réduire les possibilités d'erreurs systématiques, nous avons réalisé des séries de mesures avec des champs électriques différents (254,1 V/m et 364,5 V/m). On a représenté, sur la figure 7.5, l'ensemble des couples  $(\varepsilon_m, E_m)$  mesurés pour ces deux champs (cf. sous-section 7.2.2 pour les détails de l'analyse de données).

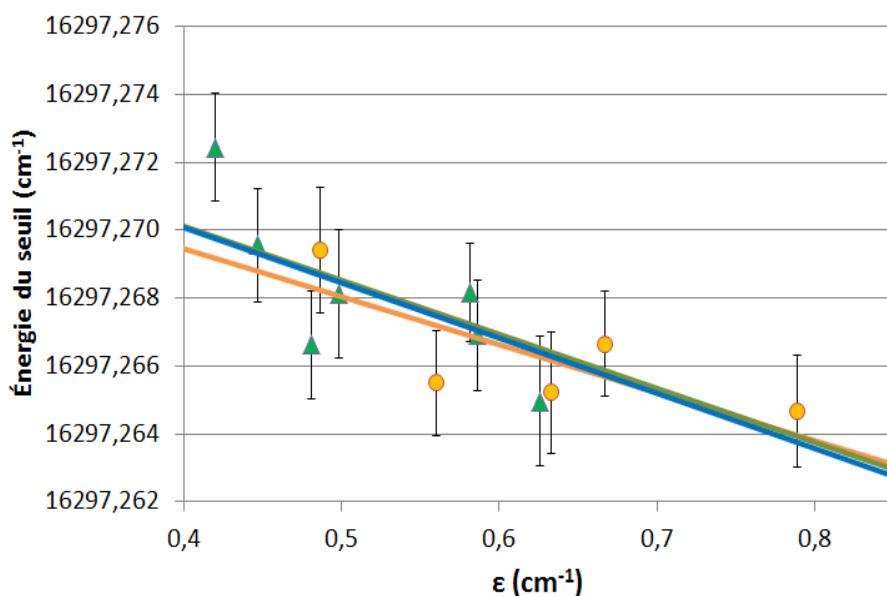


FIGURE 7.5 – Régression linéaire des énergies de seuil mesurées en fonction de l'énergie cinétique électronique moyenne. Les points verts (respectivement jaunes) correspondent à des mesures réalisées avec un champ électrique de 254,1 V/m (respectivement 364,5 V/m). Les régressions linéaires sont représentées avec les mêmes couleurs. En bleu, on a tracé la régression linéaire générale (toutes les données sont prises en compte) dont l'extrapolation à énergie cinétique nulle donne l'affinité électronique.

Les points des deux séries de mesures sont remarquablement bien alignés. La régression linéaire au travers de la série de points mesurée avec un champ de 254,1 V/m (droite verte) présente une pente légèrement différente de celle ajustée sur la série de points acquise avec un champ de 364,5 V/m (la contrainte sur l'écart entre les pentes a été prise en considération, cf. sous-section 7.2.2). L'erreur relative sur le champ électrique mesuré devrait être la même quelque soit sa valeur, la régression peut être appliquée sur l'ensemble des données (droite bleue sur la figure 7.5). L'extrapolation à énergie cinétique nulle per-

met de mesurer l'affinité électronique du sélénium. On trouve une affinité électronique de **16297,276(9)  $cm^{-1}$**  (ou 2,0206022(12) eV, barre d'erreur donnée à  $2\sigma$ ) qui améliore d'un facteur 60 la précision de la valeur antérieure.

Les valeurs de 16297(2)  $cm^{-1}$  et 16297,7(4)  $cm^{-1}$  mesurées respectivement par Hotop *et al.* [HPL73] et par Thøgersen *et al.* [TSS+96] sont en accord avec la nôtre. En revanche, on observe un désaccord entre notre valeur et celle mesurée en 1985 par Mansour *et al.* avec un piège de Penning, de 16297,8(2)  $cm^{-1}$  [MEL88].

## 7.4 Affinité électronique de l'étain [VDB13]

L'étain, élément de numéro atomique 50, fait partie de la famille des cristallogènes (colonne 14 du tableau périodique dont fait partie le carbone). Sa configuration électronique [Kr]  $4d^{10}5s^25p^2$  donne notamment naissance à un triplet fondamental  $^3P_{0,1,2}$  (cf. figure 7.6).

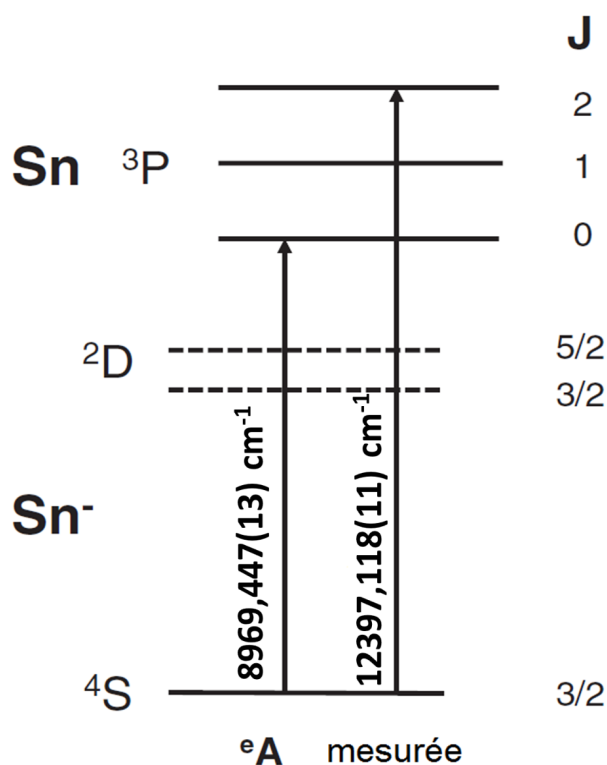


FIGURE 7.6 – Schéma des niveaux de l'étain.  ${}^eA$  est la transition mettant en jeu les états fondamentaux du système  $Sn^-$ -Sn qui définit l'affinité électronique. Les valeurs numériques sont celles issues de l'analyse de nos données expérimentales. Le doublet  ${}^2D$  est une particularité de l'ion  $Sn^-$  (et des cristallogènes de numéro atomique inférieur à 50), il a été observé par Scheer *et al.* [SBBH98].

L'étain, et les autres éléments de la famille des cristallogènes de numéro atomique plus

petit que 50 (l'ion négatif du plomb est très peu lié), forment des ions négatifs ayant des niveaux stables distribués sur plusieurs termes spectraux. En particulier, l'ion  $\text{Sn}^-$  présente une structure énergétique stable composée d'un singulet fondamental  $^4\text{S}_{3/2}$  (l'énergie de transition  $^4\text{S}_{3/2} \rightarrow ^2\text{P}_0$  définit l'affinité électronique) et d'un doublet excité  $^2\text{D}_{3/2,5/2}$  (cf. figure 7.6).

### 7.4.1 Dispositif expérimental

Notre source SNICS II (cf. chapitre 2, section 2.1), équipée d'une cathode d'étain pur, produit un jet d'ions  $\text{Sn}^-$  stable de 1-3 nA, contenant tous les isotopes d'un échantillon naturel. Notre filtre de masse n'a pas la résolution suffisante pour sélectionner un isotope particulier. Avant de pénétrer la zone d'interaction, le jet, de 2 keV, est ralenti de 900 eV de manière à diminuer l'élargissement Doppler et à améliorer le contraste des anneaux d'interférences. Le photodétachement des ions s'opérait par la transition  $^4\text{S}_{3/2} \rightarrow ^3\text{P}_2$  à l'aide d'un laser Ti:Sa continu de 1 W (Coherent<sup>®</sup> MBR-110) pompé par un laser Nd:YVO<sub>4</sub> doublé en fréquence. La longueur d'onde du laser, autour de 806,6 nm ( $12397,70 \text{ cm}^{-1}$ ) est mesurée avec un lambdamètre HighFinesse<sup>™</sup> WS-8 et calibrée au moyen d'une diode calée, par absorption saturée, sur une composante hyperfine de la raie D2 du césium.

### 7.4.2 Données spectroscopiques du système $\text{Sn}^-$ -Sn

#### 7.4.2.1 Spectroscopie de $\text{Sn}^-$ dans la littérature

En 1986, Miller *et al.* [MML86] étudièrent cet élément par spectrométrie d'électrons photodétachés par laser (LPES, Laser Photodetachment Electron Spectrometry). Ils mesurèrent une valeur de l'affinité électronique avec une précision de quelques meV (précision typique de cette méthode), de  $1,112(4) \text{ eV}$  (soit  $8969(33) \text{ cm}^{-1}$ ). En 1996, Thøgersen *et al.* [TSSH96], par la méthode LPT (Laser Photodetachment Threshold) améliorèrent la connaissance de l'affinité électronique à  $8969,6(5) \text{ cm}^{-1}$ . Deux ans plus tard, Scheer *et al.* réitérèrent la mesure en améliorant sa précision d'un facteur trois,  $1,112067(15) \text{ eV}$  (soit  $8969,43(13)$ ) [SBBH98]. En outre, ils utilisèrent un schéma Raman (leur système laser pulsé était accordable sur une gamme de longueurs d'onde extrêmement large 1-5  $\mu\text{m}$ ) pour mesurer l'énergie de liaison  $0,397617(15) \text{ eV}$  et  $0,304635(15) \text{ eV}$  des termes spectraux respectifs  $^2\text{D}_{3/2}$  et  $^2\text{D}_{5/2}$ . Ils déduisirent de ces valeurs l'intervalle de structure fine  $749,95(15) \text{ cm}^{-1}$  (soit  $92,982(19) \text{ meV}$ ) du terme excité  $^2\text{D}_{3/2,5/2}$ .

### 7.4.2.2 Spectre de l'étain neutre

Le spectre de l'étain est essentiellement connu au travers des travaux de thèse de Brill [Bri64] (1964). Parmi les dizaines de niveaux référencés, il mesura, relativement au fondamental  $^3P_2$ , l'énergie  $1691,806(11) \text{ cm}^{-1}$  du premier niveau de structure fine  $^3P_1$  et l'énergie  $3427,673(11) \text{ cm}^{-1}$  du niveau  $^3P_0$ .

Trente ans plus tard, Gillett *et al.* [GDB94] mesurèrent avec une très grande précision, la structure fine du terme fondamental  $^3P$ . Pour les paires d'isotopes 118/120 et 117/119, ils mesurèrent respectivement, un intervalle moyen de  $1691,80710(36) \text{ cm}^{-1}$  et  $1691,80765(75) \text{ cm}^{-1}$  pour  $^3P_1$ - $^3P_0$  et  $1735,86405(75) \text{ cm}^{-1}$  pour  $^3P_2$ - $^3P_1$  (uniquement pour le couple 118/120). On trouve finalement pour l'intervalle  $^3P_2$ - $^3P_0$  une énergie de  $3427,6714(26) \text{ cm}^{-1}$  (la barre d'erreurs est faite pour englober tous les isotopes). Cette valeur est plus précise que celle mesurée par Brill [Bri64]. Nous utiliserons cette valeur pour déterminer l'affinité électronique de l'étain en la retranchant à notre mesure du seuil  $^4S_{3/2} \rightarrow ^3P_2$ .

### 7.4.2.3 Décalages isotopiques

L'étain est l'élément qui forme le nombre d'isotopes stables, égal à 10, le plus grand du tableau périodique avec un nombre de masse allant de 112 à 124. 83,4 % d'entre-eux sont des isotopes de numéro atomique pair. 16,6 % de la masse totale d'un échantillon naturel est composé des isotopes impairs 115 (0,34 % seulement), 117 et 119.

Le décalage isotopique total est composé de trois termes, le décalage de masse normal (normal mass shift, NMS), le décalage de masse spécifique (specific mass shift, SMS) et le décalage de champ (field shift, FS).

Le décalage de masse normal trouve son origine dans la finitude de la masse du noyau. Il correspond à la différence entre la partie énergie cinétique et sans corrélation du hamiltonien relatif du système avec noyau de masse finie, et cette même énergie mais avec noyau de masse infinie. À partir de cette définition, on montre que le décalage isotopique relatif par unité de masse  $A$  est proportionnel à  $\frac{m}{m_a} \frac{1}{A^2}$  [Bre58], où  $m$  est la masse d'un électron et  $m_a$  est l'unité de masse atomique. Ce terme est donc d'autant plus faible que le noyau considéré est lourd. La variation relative, pour le nombre de masse moyen 119 de l'étain est de  $\sim 3,8 \cdot 10^{-8}$ . Cela correspond à un décalage de masse normal (NMS) de l'affinité électronique d'environ  $+0,00064 \text{ cm}^{-1}$  entre les deux isotopes les plus abondants  $^{118}\text{Sn}$  et  $^{120}\text{Sn}$  (56,8 % du total). Pour comparaison, le soufre, dont le nombre de masse moyen est

32, présente un décalage relatif par unité de masse de  $5,2 \cdot 10^{-7}$ , ce qui correspond à un décalage de l'affinité électronique de  $+0,0169 \text{ cm}^{-1}$  (14 fois plus grand que pour l'étain) entre les deux isotopes  $^{32}\text{S}$  et  $^{34}\text{S}$  [CDS+10]. Le décalage isotopique de masse normal est toujours positif.

Le décalage isotopique de masse spécifique (SMS) implique deux électrons simultanément (somme sur l'ensemble des paires) et décrit les corrélations entre leurs impulsions dues au mouvement du noyau (masse finie). Aucune considération générale ne peut être faite ni sur le signe ni sur l'amplitude de ce terme. Son calcul nécessite une description précise du système et, en particulier, des corrélations électroniques.

Le décalage de champ (FS) est d'autant plus important que le noyau considéré est lourd. L'origine de ce décalage vient de l'écart au champ coulombien dû à la taille finie du noyau. À nombre de protons donné, le champ du noyau est d'autant moins attractif que le nombre de neutrons augmente [Bre58] (dans le cas d'un noyau sphérique, sa taille augmente approximativement en  $A^{\frac{1}{3}}$ ). On s'attend donc à ce que l'énergie de liaison d'un électron soit d'autant plus petite que le nombre de neutrons augmente. Le décalage isotopique résultant doit donc être en général négatif (électrons moins liés), en opposition avec le décalage de masse normal (NMS). L'effet est normalement plus faible pour les ions négatifs du fait du caractère diffus des fonctions d'onde électronique au regard de celles pour les atomes neutres. Ce caractère plus diffus des fonctions d'onde électronique se traduit, par ailleurs, par des écarts de structure fine (contenant une dépendance en  $\langle r^{-3} \rangle$ ) systématiquement plus petits pour un ion négatif que pour son système isoélectronique.

Le photodétachement est une situation particulière qui s'accompagne d'un accroissement de la densité électronique près du cœur, si et seulement si l'électron détaché n'occupe pas initialement une orbitale s. Le décalage isotopique dû à la taille finie du noyau est donc plus grand à l'état final (où la densité près du noyau s'accroît) qu'à l'état initial (où la fonction d'onde de l'électron est diffuse). On s'attend donc à ce que le décalage isotopique de champ soit de même signe, pour le cas particulier de l'affinité électronique, que le décalage de masse normale.

On connaît le décalage isotopique de l'étain au travers de quelques transitions discrètes. L'étude de la raie d'émission à 326 nm  $5s^25p^2 \ ^1D_2 \leftarrow 5s^25p6s \ ^1P_1^o$  a permis de mesurer un décalage isotopique de  $\sim 0,008 \text{ cm}^{-1}$  entre deux isotopes pairs successifs. C'est équivalent à un décalage relatif de  $1,3 \cdot 10^{-7}$  par unité de masse, trois fois le décalage relatif de masse normale.

La raie  $5s^25p^2 \ ^3P_0 \rightarrow 5s^25p6s \ ^3P_1^o$  de résonance à 286 nm a été étudiée par spectroscopie

laser à deux reprises [BBB<sup>+</sup>83, ABH<sup>+</sup>86]. Ces études aboutissent à la même conclusion, c'est-à-dire un décalage isotopique de  $0,055 \text{ cm}^{-1}$  entre les isotopes  $^{112}\text{Sn}$  et  $^{124}\text{Sn}$ . Cette tendance est confirmée par Le Blanc *et al.* avec les isotopes instables très riches en neutrons avec un nombre de masses allant jusqu'à 132 [BCC<sup>+</sup>02]. On trouve à nouveau un décalage relatif de  $1,3 \cdot 10^{-7}$  par unité de masse.

En supposant que cet ordre de grandeur puisse être utilisé pour évaluer le décalage isotopique des seuils de détachement, par exemple l'affinité électronique (environ  $8969,45 \text{ cm}^{-1}$ ), on trouve, avec un écart-type sur la distribution des masses de 2,2 uma, que l'affinité électronique pour l'ensemble des isotopes de l'étain doit se situer dans un intervalle spectral de  $2 \times 2,2 \times 1,3 \cdot 10^{-7} \times 8969,45 \text{ cm}^{-1} \simeq 0,005 \text{ cm}^{-1}$  de large.

Cette estimation montre que donner l'affinité électronique de l'étain, sans précision de nombre de masse, à une précision de  $0,005 \text{ cm}^{-1}$  a encore un sens, mais que pour prétendre la mesurer à une précision supérieure, il faudra sélectionner en masse.

#### 7.4.2.4 Structures hyperfines

Seule une petite minorité de la masse d'un échantillon naturel (16 %) est constituée d'isotopes impairs possédant une structure hyperfine. C'est une chance car le paramètre de structure hyperfine dipolaire magnétique associé au niveau  $^3P_2$  des trois isotopes 115, 117 et 119 est plus grand que  $-1,1 \text{ GHz}$  [Chi71]. Les trois noyaux possèdent chacun un moment de spin  $I = 1/2$  (moment quadropolaire électrique nul) qui est à l'origine d'un doublet hyperfin pour chaque terme de moment cinétique  $J$  non-nul. L'hypothèse d'un paramètre de structure hyperfine dominé par le terme dipolaire magnétique (à noter que le couplage de Russell-Saunders n'est pas complètement respecté [Chi71]) permet d'estimer un écart de l'ordre de  $3 \text{ GHz}$  pour le niveau  $^3P_2$ . À cela s'ajoute nécessairement la structure hyperfine du niveau fondamental  $^4S_{3/2}$  de l'ion  $Sn^-$ .

La présence de cette structure hyperfine pour les isotopes impairs résulte en une superposition incohérente d'interférogrammes électroniques non-résolus. Cela se traduit par un élargissement spectral apparent du système d'anneaux. La structure hyperfine du niveau fondamental de l'ion  $Sn^-$  n'étant pas connue, les anneaux expérimentaux doivent être ajustés comme s'il n'y avait qu'un seuil.

### 7.4.3 Analyse des données : affinité électronique de l'étain

À l'instar du sélénium, nous avons réalisé, pour éliminer toutes possibilités d'erreurs systématiques, plusieurs séries de mesures à des champs électriques différents (183,4, 267,1 et 364,1 V/m). Chaque point de mesures ( $E_m$ ,  $\varepsilon_m$ ) correspond à une paire d'interférogrammes. L'erreur relative sur le champ électrique devrait être la même pour les trois champs utilisés, on peut donc ajuster l'ensemble des points expérimentaux avec une droite unique. Comme on estime que l'erreur relative sur la mesure du champ électrique ne dépasse pas  $\pm 1,5$  %, la pente de la régression linéaire peut être contrainte, autour d'une valeur nulle, avec une erreur (écart-type) de 1 %. L'extrapolation de la droite à énergie cinétique nulle est une mesure de l'énergie du seuil de détachement  ${}^4\text{S}_{3/2} \rightarrow {}^3\text{P}_2$ .

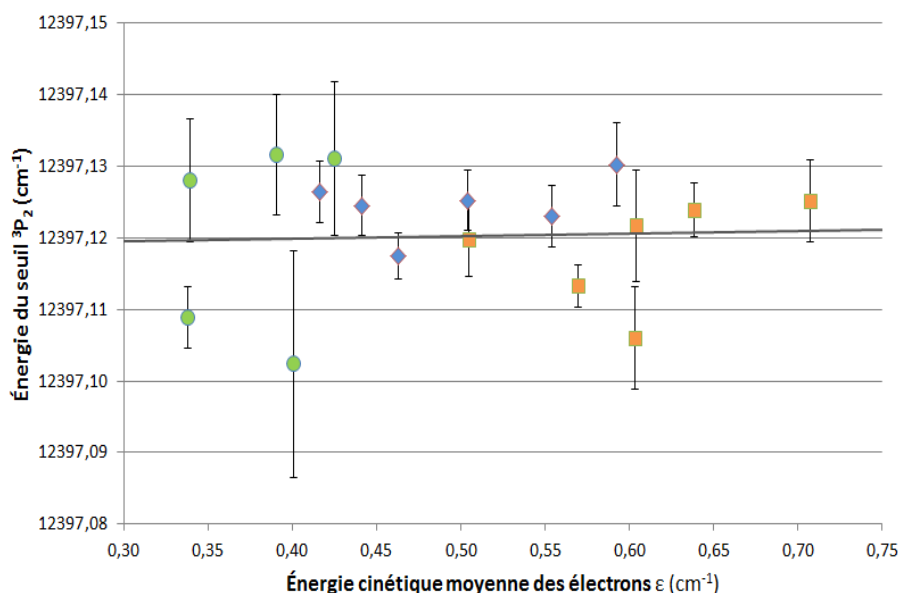


FIGURE 7.7 – Régression linéaire des énergies de seuil mesurées en fonction de l'énergie cinétique électronique moyenne. Les points verts, bleus et jaunes correspondent respectivement à des mesures réalisées avec un champ électrique de 183, 267 et 364 V/m. En noir, on a tracé la régression linéaire générale dont l'extrapolation à énergie nulle donne l'affinité électronique.

En retranchant l'énergie du niveau  ${}^3\text{P}_2$  déduite des mesures de Gillett *et al.* [GDB94] de  $3427,6714(28)$  cm<sup>-1</sup>, à la valeur du seuil mesurée  $12397,118(11)$  cm<sup>-1</sup> (incertitude à  $2\sigma$  comprenant l'erreur systématique due à la mesure de la longueur d'onde), on obtient une affinité électronique de  $8969,447(13)$  cm<sup>-1</sup> (barre d'erreur à  $2\sigma$ ). Ce résultat améliore d'un ordre de grandeur la valeur de l'affinité précédente mesurée par Scheer *et al.* [SBBH98].

On a estimé que l'affinité de électronique de l'ensemble des isotopes se situait dans un intervalle spectral de  $0,005$  cm<sup>-1</sup> de large. Notre expérience n'ayant permis ni de sélec-



tionner les isotopes ni de résoudre les structures hyperfines, la nouvelle valeur de l'affinité électronique doit être considérée comme la moyenne de tous ces seuils non-résolus. Pour atteindre une meilleure précision, il sera nécessaire de sélectionner en masse.

---

# Conclusion

Cette thèse avait pour objectif d’initier la démonstration, à échelle réduite, du photodétachement presque total d’un jet d’ions négatifs. Pour cela, nous avons ajouté une nouvelle chambre d’interaction avec son système de détection (neutres, ions négatifs) sur un montage expérimental préexistant. De plus, nous y avons greffé une cavité linéaire stable Fabry-Perot et un système de bobines de champ magnétique dans le but d’étudier les résonances de Landau.

Pour déterminer la section efficace de photodétachement de  $H^-$  à 1064 nm, nous avons mesuré la quantité de neutres produits par photodétachement en fonction de l’énergie des impulsions d’un laser. La méthode de la saturation permet, en observant les deux régimes de photodétachement saturé et non-saturé, de s’affranchir de la calibration du détecteur. En ajustant, sur la courbe expérimentale, une courbe calculée sur la base d’un modèle décrivant l’interaction laser/jet d’ions, nous déduisons une section efficace de  $5,0 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$ , élevée en comparaison de la valeur de  $3,6 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$  prévue par la théorie (cf. [AS96, KJ99] par exemple).

L’élaboration d’un modèle basé sur le concept de volume de saturation nous a permis de dégager une définition rigoureuse de la saturation : la saturation du photodétachement démarre lorsque le volume de saturation commence à exister. Sous l’hypothèse d’une impulsion de profil spatio-temporel gaussien, ce modèle permet d’exprimer la section efficace de photodétachement en fonction des paramètres asymptotiques des régimes saturé et non-saturé, de la vitesse du jet d’ions et des paramètres caractéristiques de l’impulsion.

À haute énergie, la production de neutres est déterminée, asymptotiquement, par les effets de volume. En représentation lin-log, l’asymptote, que l’on interprète comme décrivant l’évolution du volume de saturation, prend la forme d’une droite. L’abscisse du point d’intersection de cette droite avec l’axe signal nul correspond à l’énergie de saturation (volume de saturation nul). Sa valeur dépend de la manière dont évolue le volume de saturation, et *a fortiori*, la manière dont évolue asymptotiquement la quantité de neutres.

Le calcul analytique de l'intégrale qui donne la quantité de neutres produite par photodétachement lors de l'éclairement d'un jet d'ions de densité uniforme par une impulsion laser nous a permis de démontrer l'existence d'une contrainte mathématique, caractéristique de la transition vers la saturation, pour toutes les expériences réalisées en faisceaux gaussiens et pour tous les processus d'interaction lumière-matière linéaires. Cette contrainte, qui s'exprime au travers de la constance du paramètre de saturation  $S = e^{-\gamma}$ , où  $\gamma$  est la constante d'Euler-Mascheroni, apparaît dans l'expression de l'énergie de saturation. La section efficace, qui est intimement liée à l'énergie de saturation, s'exprime donc en fonction des paramètres asymptotiques du régime saturé, de la vitesse des ions et des paramètres de l'impulsion. Il est ainsi possible de mesurer une section efficace de photodétachement par simple observation du régime saturé. Avec cette nouvelle méthode nous mesurons, après prise en compte des écarts du profil expérimental de l'impulsion au cas idéal gaussien, une section efficace de photodétachement de  $H^-$  à 1064 nm de  $4,20(34) \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$ . Cette valeur est plus petite que celle déterminée par ajustement d'une courbe calculée sur la courbe expérimentale mais plus grande que la valeur théorique.

Outre l'originalité de la méthode employée pour la déterminer, notre valeur est la seule mesure de section efficace de photodétachement par laser de  $H^-$ . Le désaccord entre la théorie et l'expérience justifierait d'autres mesures, préférentiellement indépendantes, de la même section efficace.

Par ailleurs, nous avons mesuré, par microscopie de photodétachement, l'affinité électronique du phosphore, du sélénium et de l'étain :

$${}^eA(P) = 6021,81(8) \text{ cm}^{-1}, {}^eA(Se) = 16297,276(9) \text{ cm}^{-1}, {}^eA(Sn) = 8969,447(13) \text{ cm}^{-1}.$$

Par la suite, il serait intéressant de réaliser des expériences de microscopie de photodétachement en onde  $p$ . Dans cette situation, la loi de Wigner prévoit une lente augmentation de la section efficace près du seuil de détachement et les essais de microscopie de photodétachement correspondant se sont soldés par des échecs. L'utilisation de la cavité linéaire de moyenne finesse pourrait servir, par stockage de la lumière, à compenser la faiblesse de la section efficace de photodétachement en onde  $p$ .

---

# Bibliographie

- [Aas70] K. Aashamar. Evaluation of relativistic and radiative corrections to the energy of two-electron atomic states. *Nucl. Instrum. Methods*, **90** :263–268, 1970.
- [ABH<sup>+</sup>86] M. Anselment, K. Bekk, A. Hanser, H. Hoeffgen, G. Meisel, S. Göring, H. Rebel, and G. Schatz. Charge radii and moments of tin nuclei by laser spectroscopy. *Phys. Rev. C*, **34** :1052–1059, 1986.
- [AC75] Meena P. Ajmera and Kwong T. Chung. Photodetachment of negative hydrogen ions. *Phys. Rev.*, **12** :475–479, 1975.
- [Ack95] Jörg Ackermann. Finite-element-method expectation values for correlated two-electron wave functions. *Phys. Rev. A*, **52** :1968–1976, 1995.
- [AFLP76] R. V. Ambartzumian, N. P. Furzikov, V. S. Letokhov, and A. A. Puretsky. Measuring Photoionization Cross-Sections of Excited Atomic States. *Applied Physics*, **9** :335–337, 1976.
- [AG03] Jason M. Amini and Harvey Gould. High Precision Measurement of the Static Dipole Polarizability of Cesium. *Phys. Rev. Lett.*, **91** :153001, 2003.
- [AHH99] T. Andersen, H. K. Haugen, and H. Hotop. Binding Energies in Atomic Negative Ions : III. *J. Phys. Chem.*, **28** :1511–1533, 1999.
- [ALA<sup>+</sup>07] P Andersson, A O Lindahl, C Alfredsson, L Rogström, C Diehl, D J Pegg, and D Hanstorp. The electron affinity of phosphorus. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **40** :4097–4107, 2007.
- [Alt94] G. D. Alton. High-intensity, heavy negative ion sources based on the sputter principle (invited). *Rev. Sci. Instrum.*, **65** :1141–1147, 1994.
- [And09] Pontus Andersson. *Laser Photodetachment of Negative Ions*. PhD thesis, University of Gothenburg, 2009.
- [Arm63] Baxter H. Armstrong. Empirical Analysis of the H<sup>-</sup> Photodetachment Cross Section. *Phys. Rev.*, **131** :1132–1137, 1963.

- [AS72] Milton Abramowitz and Irene A. Stegun. *Handbook of Mathematical Functions*. U.S. Government Printing Office, 1972.
- [AS96] Alexander G. Abrashkevich and Moshe Shapiro. Photoionization of two-electron atoms via the hyperspherical artificial-channel method : Application to  $H^-$  and He. *Phys. Rev. A*, **50** :1205–1216, 1996.
- [Bac00] M. Bacal. Photodetachment diagnostics techniques for measuring negative ion densities and temperatures in plasmas. *Review of Scientific Instruments*, **71** :3981–4006, 2000.
- [Bat78] D. R. Bates. Other men’s flowers. *Physics Reports*, **35** :305–372, 1978.
- [BBAH92] P Balling, C Brink, T Andersen, and H K Haugen. Absolute photodetachment cross sections of  $Cu^-$ . *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **25** :L565–L571, 1992.
- [BBB<sup>+</sup>83] P E G Baird, S A Blundell, G Burrows, C J Foot, G Meise, D N Stacey, and G K Woodgate. Laser spectroscopy of the tin isotopes. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **16** :2485–2497, 1983.
- [BBC<sup>+</sup>81] H. C. Bryant, K. B. Butterfield, D. A. Clark, C. A. Frost, J. B. Donahue, P. A. M. Gram, M. E. Hamm, R. W. Hamm, and W. W. Smith. Atomic physics with relativistic beams. In Daniel Kleppner and Francis M. Pipkin, editors, *Proceedings of the Seventh International Conference on Atomic Physics*, pages 29–63. Plenum press, 1981.
- [BBD01] C. Blondel, S. Berge, and C. Delsart. Physical and unphysical phases of uniformly accelerated particules. *Am. J. Phys.*, **69** :810–816, 2001.
- [BBG<sup>+</sup>98] C. Bracher, W. Becker, S. A. Gurvitz, M. Kleber, and M. S. Marinov. Three-dimensional tunneling in quantum ballistic motion. *Am. J. Phys.*, **66** :38–48, 1998.
- [BC94] Stephen J. Buckman and Charles W. Clark. Atomic negative-ion resonances. *Rev. Mod. Phys.*, **66** :539–655, 1994.
- [BCC<sup>+</sup>89] C. Blondel, R.-J. Champeau, M. Crance, A. Crubellier, C. Delsart, and D. Marinescu. Measurement of the three-photon detachment cross sections of the negative ions of iodine, bromine and fluorine at the wavelength 1.0642  $\mu m$ . *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **22** :1335–1351, 1989.
- [BCC<sup>+</sup>02] F. Le Blanc, L. Cabaret, J.E. Crawford, S. Essabaa, and *et al.* Charge radius change in the heavy tin isotopes until  $A = 132$  from laser spectroscopy. *Eur. Phys. J. A*, **15** :49–51, 2002.

- [BDD<sup>+</sup>77] H. C. Bryant, B. D. Dieterle, J. Donahue, H. Sharifian, H. Tootoonchi, D. M. Wolfe, P. A. M. Gram, and M. A. Yates-Williams. Observation of Resonances near 11 eV in the Photodetachment Cross Section of the H<sup>-</sup> Ion. *Phys. Rev. Lett.*, **38** :228–230, 1977.
- [BDD96] Christophe Blondel, Christian Delsart, and François Dulieu. The Photodetachment Microscope. *Phys. Rev. Lett.*, **77** :3755–3758, 1996.
- [BDDV99] C. Blondel, C. Delsart, F. Dulieu, and C. Valli. Photodetachment microscopy of O<sup>-</sup>. *Eur. Phys. J. D*, **5** :207–216, 1999.
- [BDG01] Christophe Blondel, Christian Delsart, and Fabienne Goldfarb. Electron spectrometry at the  $\mu\text{eV}$  level and the electron affinities of Si and F. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **34** :L281–L288, 2001.
- [BDJS58] B. H. Bransden, A. Dalgarno, T. L. John, and M. J. Seaton. The elastic Scattering of Slow Electrons by Hydrogen Atoms. *Proc. Phys. Soc.*, **71** :877–892, 1958.
- [BDV<sup>+</sup>01] C. Blondel, C. Delsart, C. Valli, S. Yiou, M. R. Godefroid, and S. Van Eck. Electron affinities of <sup>16</sup>O, <sup>17</sup>O, <sup>18</sup>O, the fine structure of <sup>16</sup>O<sup>-</sup>, and the hyperfine structure of <sup>17</sup>O<sup>-</sup>. *Phys. Rev. A*, **64** :052504, 2001.
- [Ber69] R. Stephen Berry. Small free negative ions. *Chem. Rev.*, **69** :533–542, 1969.
- [Bet29] Hans Bethe. Berechnung der Elektronenaffinität des Wasserstoffs. *Z. Phys*, **57** :815–821, 1929.
- [BGH67] B. Brehm, M. A. Gusinow, and J. L. Hall. Electron affinity of helium via laser photodetachment of its negative ion. *Phys. Rev. Lett.*, **19** :737–741, 1967.
- [BH79] M. Bacal and G. W. Hamilton. H<sup>-</sup> and D<sup>-</sup> Production in Plasmas. *Physical Review Letters*, **42** :1538–1540, 1979.
- [BH00] René C. Bilodeau and Harold K. Haugen. Experimental Studies of Os<sup>-</sup> : Observation of a Bound-Bound Electric Dipole Transition in an Atomic Negative Ion. *Phys. Rev. Lett.*, **85** :534–537, 2000.
- [BIL79] W. A. M. Blumberg, Wayne M. Itano, and D. J. Larson. Theory of the photodetachment of negative ions in a magnetic field. *Phys. Rev. A*, **19** :139–148, 1979.
- [BJL78] W. A. M. Blumberg, R. M. Jopson, and D. J. Larson. Precision Laser Photodetachment Spectroscopy in Magnetic Fields. *Phys. Rev. Lett.*, **40** :1320–1323, 1978.

- [BK67a] K. L. Bell and A. E. Kingston. The bound-free absorption coefficient of the negative hydrogen ion. *Proc. Phys. Soc.*, **90** :895–899, 1967.
- [BK67b] K. L. Bell and A. E. Kingston. Photoionization of the helium atom. *Proc. Phys. Soc.*, **90** :31–37, 1967.
- [BLBM<sup>+</sup>64] N. Bessis, H. Lefebvre-Brion, C. M. Moser, A. J. Freeman, R. K. Nesbet, and R. E. Watson. Calculation of Magnetic Hyperfine Constant of P<sup>31</sup>. *Phys. Rev.*, **135** :A588–A590, 1964.
- [BLXL88] C. E. Burkhardt, J.L. Libbert, Jian Xu, and J. J. Leventhal. Absolute measurement of photoionization cross sections of excited atoms : Application to determination of atomic densities. *Physical review A*, **38** :5949–5952, 1988.
- [BMC76] P D Burrow, J A Michejda, and J Comer. Low-energy electron scattering from Mg, Zn, Cd and Hg shape resonances and electron affinities. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **9** :3225–3236, 1976.
- [BMS<sup>+</sup>87] H. C. Bryant, A. Mohagheghi, J. E. Stewart, J. B. Donahue, C. R. Quick, R. A. Reeder, V. Yuan, C. R. Hummer, W. W. Smith, Stanley Cohen, William P. Reinhardt, and Lillian Overman. Observation of Motional-Field-Induced Ripples in the Photodetachment Cross Section of H<sup>-</sup>. *Phys. Rev. Lett.*, **58** :2412–2415, 1987.
- [Bou76] J. C. Boulassier. Étude de la production d'ions par ionisation multiphotonique dans la région focale d'une onde gaussienne. *Nouv. Rev. Optique*, **7** :329–340, 1976.
- [BP84] Y. K. Bae and J. R. Peterson. Observation of the metastable beryllium ion, Be<sup>-</sup> (4p<sup>e</sup>). *Phys. Rev. A*, **30** :2145–2147, 1984.
- [BR76] John T. Broad and William P. Reinhardt. One- and two-electron photoejection from H<sup>-</sup> : A multichannel *J*-matrix calculation. *Phys. Rev. A*, **14** :2159–2173, 1976.
- [Bre58] G. Breit. Theory of Isotope Shift. *Rev. Mod. Phys.*, **30** :507–517, 1958.
- [Bri64] Wilfred Grenfell Brill. *The arc spectrum of tin*. PhD thesis, Purdue University, 1964.
- [Bry01] H. C. Bryant. An Experimentalist's View of the H<sup>-</sup> Ion. *J. Chin. Chem. Soc-Taiip*, **48** :333–341, 2001.
- [BS55] Lewis M. Branscomb and Stephen J. Smith. Experimental Cross Section for Photodetachment of Electrons from H<sup>-</sup> and D<sup>-</sup>. *Phys. Rev.*, **98** :1028–1034, 1955.

- [BT66] P. G. Burke and A. Joanna Taylor. Correlation in the elastic and inelastic S-wave scattering of electrons by H and He. *Proc. Phys. Soc.*, **88** :549–562, 1966.
- [BZ94] Lowell S. Brown and Yan Zhang. Path integral for the motion of a particle in a linear potential. *Am. J. Phys.*, **62** :806–808, 1994.
- [CBC<sup>+</sup>09] W. Chaibi, C. Blondel, L. Cabaret, C. Delsart, C. Drag, and A. Simonin. Photo-neutralization of negative ion beam for future fusion reactor. In *Proceedings of the 1<sup>st</sup> International Symposium of Negative Ions, Beams and Sources*, volume **1097**, pages 385–394. American Institute of Physics, 2009.
- [CCM<sup>+</sup>98] R J Champeau, A Crubellier, D Marescaux, D Pavolini, and J Pinard. Photodetachment of trapped negative ions : I. Experimental methods and near-threshold cross sections. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **31** :249–259, 1998.
- [CD07] L. Cabaret and C. Drag. Single mode injection seeded Nd :YAG oscillator with an adjustable pulse length between 20 and 50 ns. *Eur. Phys. J. Appl. Phys.*, **37** :65–72, 2007.
- [CDS<sup>+</sup>10] Thomas Carette, Cyril Drag, Olivier Scharf, Christophe Blondel, Christian Delsart, Charlotte Froese Fischer, and Michel Godefroid. Isotope shift in the sulfur electron affinity : Observation and theory. *Phys. Rev. A*, **81** :042522, 2010.
- [CE58] S. Chandrasekhar and Donna D. Elbert. On the continuous absorption coefficient of the negative hydrogen ion. V. *Astrophysical Journal*, **128** :633–635, 1958.
- [CG11] T Carette and M R Godefroid. *Ab initio* calculations of the  $^{33}\text{S } 3p^4 \ ^3P_j$  and  $^{33}\text{S}^- / ^{37,35}\text{Cl } 3p^5 \ ^2P_j^o$  hyperfine structures. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **44** :105001, 2011.
- [Cha44] S. Chandrasekhar. Some remarks on the negative hydrogen ion and its absorption coefficient. *Astrophysical Journal*, **100** :176–180, 1944.
- [Cha45a] S. Chandrasekhar. On the continuous absorption coefficient of the negative ion. *Astrophysical Journal*, **102** :223–231, 1945.
- [Cha45b] S. Chandrasekhar. On the continuous absorption coefficient of the negative ion. II. *Astrophysical Journal*, **102** :395–401, 1945.
- [Cha58] S. Chandrasekhar. On the continuous absorption coefficient of the negative hydrogen ion. IV. *Astrophysical Journal*, **128** :114–123, 1958.



- [Cha06] Walid Chaibi. *Microscopie de photodétachement : rôle du gradient de champ électrique et effet du champ magnétique*. PhD thesis, Université de Paris-sud XI, 2006.
- [Chi71] W. J. Childs. Relativistic Effects in the Hyperfine Structure of  $\text{Sn}^{117,119}$ . *Phys. Rev. A*, **4** :439–453, 1971.
- [CHO<sup>+</sup>13] S. Cohen, M. M. Harb, A. Ollagnier, F. Robicheaux, M. J. J. Vrakking, T. Barillot, F. Lépine, and C. Bordas. Wave Function Microscopy of Quasibound Atomic States. *Phys. Rev. Lett.*, **110** :183001, 2013.
- [CI75] M.R. Cervenán and N.R. Isenor. Multiphoton ionization yield curves for gaussian laser beams. *Optics Communications*, **13** :175–178, 1975.
- [CK43] S. Chandrasekhar and Margaret Kiess Kroghdahl. On the negative hydrogen ion and its absorption coefficient. *Astrophysical Journal*, **98** :205–208, 1943.
- [CPB<sup>+</sup>10] W. Chaibi, R. J. Peláez, C. Blondel, C. Drag, and C. Delsart. Effect of a magnetic field in photodetachment microscopy. *Eur. Phys. J. D*, **58** :29–37, 2010.
- [CTDL73a] Claude Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, and Franck Laloë. *Mécanique quantique*, volume II. Hermann, 1973.
- [CTDL73b] Claude Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, and Franck Laloë. *Mécanique quantique*, volume I. Hermann, 1973.
- [DAB<sup>+</sup>89] P. Devynck, J. Auvray, M. Bacal, P. Berlemont, J. Bruneteau, R. Leroy, and R. A. Stern. Photodetachment technique for measuring  $\text{H}^-$  velocities in a hydrogen plasma. *Review of Scientific Instruments*, **60** :2873, 1989.
- [DCN02] G. W. F. Drake, Mark M. Cassar, and Razvan A. Nistor. Ground-state energies for helium,  $\text{H}^-$ , and  $\text{Ps}^-$ . *Phys. Rev. A*, **65** :054501, 2002.
- [DD87] M. L. Du and J. B. Delos. Effect of Closed Orbits on Quantum Spectra : Ionization of Atoms in a Magnetic Field. *Phys. Rev. Lett.*, **58** :1731–1733, 1987.
- [DD88a] M. L. Du and J. B. Delos. Effect of closed classical orbits on quantum spectra : Ionization of atoms in a magnetic field. I. Physical picture and calculations. *Phys. Rev. A*, **38** :1896–1913, 1988.
- [DD88b] M. L. Du and J. B. Delos. Photodetachment of  $\text{H}^-$  in an electric field. *Phys. Rev. A*, **38** :5609–5616, 1988.

- [DD89] M. L. Du and J. B. Delos. Effects of an electric field on the photodetachment of  $H^-$ . *Phys. Lett. A*, **134** :476–479, 1989.
- [DDA90] D. A. Dahl, J. E. Delmore, and A. D. Appelhans. SIMION PC/PS2 electrostatic lens design program. *Rev. Sci. Instr.*, **61** :607, 1990.
- [Deb12] Pascal Debu. GBAR gravitational behavior of antihydrogen at rest. *Hyperfine Interact*, **212** :51–59, 2012.
- [Deh55] H. G. Dehmelt. Atomic Phosphorus Paramagnetic Resonance Experiment Employing Universal Dissociator. *Phys. Rev.*, **99** :527–531, 1955.
- [Del08] Christian Delsart. *Lasers et optique non linéaire*. 2008.
- [DFM66] N. A. Doughty, P. A. Fraser, and R. P. McEachan. *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.*, **132** :255, 1966.
- [DG83] M. Dashkan and A. S. Ghosh. Photodetachment cross section of the negative hydrogen ion. *Phys. Rev. A*, **28** :2767–2769, 1983.
- [DGB02] Christian Delsart, Fabienne Goldfarb, and Christophe Blondel. Molecular Photodetachment Microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, **89** :183002, 2002.
- [DKO81] Yu. N. Demkov, V.D. Kondratovich, and V. N. Ostrovskii. Interference of electrons resulting from the photoionization of an atom in an electric field. *JETP Lett.*, **34** :403–405, 1981.
- [DLT<sup>+</sup>92] J. Dellwo, Y. Liu, C. Y. Tang, D. J. Pegg, and G. D. Alton. Photodetachment cross sections for  $Li^-$ . *Physical Review A*, **46** :3924–3928, 1992.
- [DMPD67] N. C. Dutta, C. Matsubara, R. T. Pu, and T. P. Das. Bruekner-Golstone many-body theory for the hyperfine structure of phosphorus. *Phys. Rev. Lett.*, **21** :1139–1143, 1967.
- [Dra88] G. W. F. Drake. High precision variational calculations for the  $1s^2\ ^1S$  state of  $H^-$  and the  $1s^2\ ^1S$ ,  $1s2s\ ^1S$  and  $1s2s\ ^3S$  states of helium. *Nucl. Instrum. Meth. B*, **31** :7–13, 1988.
- [Dra10] Cyril Drag. Sources optiques cohérentes pour la spectroscopie. Développements de la microscopie de photodétachement, *mémoire d’HDR*, 2010.
- [Dul96] François Dulieu. *Photodétachement d’ions négatifs d’halogènes : distributions angulaires multiphotoniques en polarisation elliptique ; microscopie au seuil dans un champ électrique uniforme*. PhD thesis, Université de Paris-sud XI, 1996.

- [EML85] C. J. Edge, N. B. Mansour, and D. J. Larson. *Bull. Am. Phys. Soc.*, **30** :612, 1985.
- [Fab80] I. I. Fabrikant. Interference effects in photodetachment and photoionization of atoms in a homogeneous electric field. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, **78** :1045–1049, 1980.
- [Fab82] I. I. Fabrikant. Scattering of electrons by atoms and photodetachment of negative ions in a homogeneous electric field. *Sov. Phys. JETP*, **56** :967–972, 1982.
- [Fel75] D. Feldmann. Photodetachment measurements of  $H^-$  near threshold. *Phys. Lett. A*, **53** :82, 1975.
- [Fel76] D. Feldmann. Infra Red Photodetachment Threshold Measurements :  $Li^-$  and  $P^-$ . *Z. Phys. A*, **277** :19–25, 1976.
- [Fit53] Wade L. Fite. Production of Negative Ions and Noise in Negative Ion Beams. *Phys. Rev.*, **89** :411–415, 1953.
- [FP66] K. Frankowski and C. L. Pekeris. Logarithmic Terms in the Wave Functions of the Ground State of Two-Electron Atoms. *Phys. Rev.*, **146** :46–49, 1966.
- [Fro81] Charles Alan Frost. *Measurements of threshold Behavior for One- and Two-Electron Photodetachment from the  $H^-$  Ion*. PhD thesis, Los Alamos National Laboratory, 1981.
- [Fro98] Alexei M. Frolov. Bound-state properties of negatively charged hydrogenlike ions. *Phys. Rev. A*, **58** :4479–4483, 1998.
- [Fro05] Alexei M. Frolov. Lowest order QED corrections for the  $H^-$  and  $Mo^-$  ions. *Phys. Lett. A*, **345** :173–183, 2005.
- [FS03] Alexei M. Frolov and Vedene H. Smith. Bound state properties and astrophysical applications of negatively charged hydrogen ions. *J. Chem. Phys.*, **119** :3130–3137, 2003.
- [FZ85] Michael G. J. Fink and Peter Zoller. One- and two-photon detachment of negative ions : a hyperspherical adiabatic approach. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **28** :L373–L377, 1985.
- [GDB94] David A Gillett, Stephen J Diggines, and John M Brown. Measurement of the fine structure splittings of atomic Se and Sn in their ground  $^3P$  states. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **27** :5175–5184, 1994.

- [Gel56] Sydney Geltman. Continuous Absorption Coefficient of the Hydrogen and Lithium Negative Ions. *Phys. Rev.*, **104** :346–350, 1956.
- [Gel62] S. Geltman. The Bound-Free Absorption Coefficient of the Hydrogen Negative Ion. *Astrophysical J.*, **136** :935–945, 1962.
- [Gol03] Fabienne Goldfarb. *Microscopie de photodétachement de  $Si^-$  et  $OH^-$  Spectroscopie  $\mu eV$  par imagerie de fonction d'onde pour un test de validité du modèle de l'électron libre*. PhD thesis, Université de Paris-sud XI, 2003.
- [Gre80] Chris H. Greene. Interpretation of Feshbach resonances in  $H^-$  photodetachment. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **13** :L39–L44, 1980.
- [HBCL91] L. W. He, C. E. Burkhardt, M. Ciocca, and J. J. Leventhal. Absolute Cross Sections for the Photoionization of the  $6s6p\ ^1P$  Excited State of Barium. *Physical review Letters*, **67** :2131–2134, 1991.
- [HBM+90] P. G. Harris, H. C. Bryant, A. H. Mohagheghi, R. A. Reeder, H. Sharifian, C. Y. Tang, H. Tootoonchi, J. B. Donahue, C. R. Quick, D. C. Rislove, W. W. Smith, and J. E. Stewart. Observation High-Lying Resonances in the  $H^-$  Ion. *Phys. Rev. Lett.*, **65** :309–312, 1990.
- [HC80] T. W. Hänsch and B. Couillaud. Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity. *Opt. Commun.*, **35** :441–444, 1980.
- [HC85] Y. K. Ho and J. Callaway. Resonances in  $H^-$  with the  $N = 4, 5,$  and  $6$  hydrogen thresholds. *Phys. Rev. A*, **34** :130–137, 1985.
- [Hen44] Louis R. Henrich. The continuous absorption coefficient of the hydrogen ion. *Astrophysical Journal*, **99** :59–69, 1944.
- [HH57] J. F. Hart and G. Herzberg. Twenty-Parameter Eigenfunctions and Energy Values of the Ground States of He and He-Like Ions. *Phys. Rev.*, **106** :79–82, 1957.
- [HHD+79] M. E. Hamm, R. W. Hamm, J. Donahue, P. A. M. Gram, J. C. Pratt, M. A. Yates, R. D. Bolton, D. A. Clark, H. C. Bryant, C. A. Frost, and W. W. Smith. Observation of Narrow Resonances in the  $H^-$  Photodetachment Cross Section near the  $n = 3$  Threshold. *Phys. Rev. Lett.*, **43** :1715–1718, 1979.
- [Hil77a] Robert Nyden Hill. Proof that the  $H^-$  ion has only one bound state. *Phys. Rev. Lett.*, **38** :643–646, 1977.
- [Hil77b] Robert Nyden Hill. Proof that the  $H^-$  ion has only one bound state. details and extension to finite nuclear mass. *J. Math. Phys.*, **18** :2316–2330, 1977.

- [HKW80] R. Hauck, H. P. Kortz, and H. Weber. Misalignment sensitivity of optical resonators. *Appl. Optics*, **19** :598–601, 1980.
- [HL73] H. Hotop and W. C. Lineberger. Dye-laser photodetachment studies of  $\text{Au}^-$ ,  $\text{Pt}^-$ ,  $\text{PtN}^-$ , and  $\text{Ag}^-$ . *J. Chem. Phys.*, **58** :2379–2387, 1973.
- [HM56] Egil A. Hylleraas and John Midtdal. Continuous Absorption Coefficient of the Hydrogen and Lithium Negative Ions. *Phys. Rev.*, **104** :346–350, 1956.
- [HPL73] H. Hotop, T. A. Patterson, and W. C. Lineberger. High-Resolution Photodetachment Study of  $\text{Se}^-$  Ions. *Phys. Rev. A*, **8** :762–774, 1973.
- [HRB65] J. L. Hall, E. J. Robinson, and L. M. Branscomb. Laser Double-Quantum Photodetachment of  $\text{I}^-$ . *Physical Review Letters*, **14** :1013–1017, 1965.
- [HSZ77] U. Heinzmann, D. Schinkowski, and H. D. Zeman. Comment on Measuring Photoionization Cross Sections of Excited Atomic States. *Applied Physics*, **12** :113, 1977.
- [Hyl28] E. A. Hylleraas. Über den Grundzustand des Heliumatoms. *Z. Phys*, **48** :469–494, 1928.
- [Hyl30] E. A. Hylleraas. Die Elektronenaffinität des Wasserstoffatoms nach der Wellenmechanik. *Z. Phys*, **60** :624–630, 1930.
- [HZGM97] Oliver Harms, Michael Zehnpfennig, Victor Gomer, and Dieter Meschede. Photodetachment spectroscopy of stored  $\text{H}^-$  ions. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **30** :3781–3787, 1997.
- [Jen33] C. K. Jen. The continuous Electron Affinity Spectrum of Hydrogen. *Phys. Rev.*, **43** :540–547, 1933.
- [Joh60a] T. L. John. *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.*, **121** :41, 1960.
- [Joh60b] T. L. John. Exchange effects on the photodetachment cross-section of  $\text{H}^-$ . *Astrophysical Journal*, **131** :743, 1960.
- [KA97] Donald B. Kinghorn and Ludwik Adamowicz. Electron affinity of hydrogen, deuterium, and tritium : A nonadiabatic variational calculation using explicitly correlated Gaussian basis functions. *J. Chem. Phys.*, **106** :4588–4595, 1997.
- [KAO<sup>+</sup>89] N. Kwon, P. S. Armstrong, T. Olsson, R. Trainham, and D.J. Larson. Single- and multiphoton detachment from stored  $\text{F}^-$  ions. *Physical Review A*, **40** :676–682, 1989.

- [KB85] Thomas J. Kane and Robert L. Byer. Monolithic, unidirectional single-mode Nd :YAG ring laser. *Opt. Lett.*, **10** :65–67, 1985.
- [KBTH10] Wim Klopper, Rafal A Bachorz, David P. Tew, and Christof Hättig. Sub-meV accuracy in first-principles computations of the ionization potentials and electron affinities of the atoms H to Ne. *Phys. Rev. A*, **81** :022503, 2010.
- [KD60] V. I. Khvostenko and V. M. Dukel'skii. *Soviet Physics-JETP*, **10** :465, 1960.
- [KF12] Alban Kellerbauer and Stephan Fritzsche. High-resolution optical spectroscopy of  $\text{Os}^-$  with a view to laser cooling of atomic anions. *J. Phys. : Conf. Ser.*, **388** :012023, 2012.
- [KJ99] W. H. Kuan and T. F. Jiang. Photodetachment of  $\text{H}^-$ . *Phys. Rev. A*, **60** :364–369, 1999.
- [Kra90] H. F. Krause. Observation of Landau Resonances Well Above Threshold in a High-Resolution ( $\delta f = 70$  mhz) Laser Photodetachment Study of  $\text{O}^-$ . *Phys. Rev. Lett.*, **64** :1725–1728, 1990.
- [Kra10] A. E. Kramida. A critical compilation of experimental data on spectral lines and energy levels of hydrogen, deuterium, and tritium. *Atom. Data Nucl. Data*, **96** :586–644, 2010.
- [Kro62] V. E. Krohn. Emission of Negative Ions from Metal Surfaces Bombarded by Positive Cesium Ions. *J. Appl. Phys.*, **33** :3523–3525, 1962.
- [LBPH97] D. H. Lee, W. D. Brandon, D. J. Pegg, and D. Hanstorp. Cross section for photodetachment of the excited  $\text{C}^-$  ( $^2\text{D}$ ) ion using fast ion-laser-beam electron spectroscopy. *Physical Review A*, **56** :1346–1350, 1997.
- [Lin75] C. D. Lin. Feshbach and Shape Resonances in the e-H  $^1\text{P}$  System. *Phys. Rev. Lett.*, **35** :1150–1153, 1975.
- [LML91] K. R. Lykke, K. K. Murray, and W. C. Lineberger. Threshold photodetachment of  $\text{H}^-$ . *Phys. Rev. A*, **43** :6104–6107, 1991.
- [LP62] R. H. Lambert and F. M. Pipkin. Hyperfine structure of atomic phosphorus. *Phys. Rev.*, **128** :198–201, 1962.
- [LP63] R. H. Lambert and F. M. Pipkin. Erratum : Hyperfine structure of atomic phosphorus. *Phys. Rev.*, **129** :2836, 1963.
- [LPH98] D. H. Lee, D. J. Pegg, and D. Hanstorp. Fast ion-beam photoelectron spectroscopy of  $\text{Ca}^-$  : Cross sections and asymmetry parameters. *Physical Review A*, **58** :2121–2127, 1998.

- [LS85] D. J. Larson and R. Stoneman. Photodetachment of atomic negative ions near threshold a magnetic field. *Phys. Rev. A*, **31** :2210–2214, 1985.
- [LSH<sup>+</sup>09] Jinjun Liu, Adcel J. Salumbides, Urs Hollenstein, Jeroen C. J. Koelemeij, Kjeld S. E. Eikema, Wim Ubachs, and Frédéric Merkt. Determination of the ionization and dissociation energies of the hydrogen molecule. *J. Chem. Phys.*, **130** :174306, 2009.
- [MA74] R. Middleton and Charles T. Adams. A close to universal negative ion source. *Nucl. Instrum. Methods*, **118** :329–336, 1974.
- [Mac67] J. Macek. Low-energy electron scattering by atomic hydrogen V. Photoionization of  $H^-$  in the vacuum ultra-violet. *Proc. Phys. Soc.*, **92** :365–369, 1967.
- [MB40] H. S. W. Massey and D. R. Bates. The continuous absorption of light by negative hydrogen ions. *Astrophysical Journal*, **91** :202–214, 1940.
- [MBC<sup>+</sup>85] D. W. MacArthur, K. B. Butterfield, D. A. Clark, J. B. Donahue, P. A. M. Gram, H. C. Bryant, C. J. Harvey, W. W. Smith, and G. Comtet. Energy measurement of the lowest  $^1P^o$  resonance in  $H^-$ . *Phys. Rev. A*, **32** :1921–1923, 1985.
- [MEL88] N. B. Mansour, C. J. Edge, and D. J. Larson. Laser photodetachment spectroscopy of  $Se^-$  and  $S^-$ . *Nucl. Instrum. Methods*, **B31** :313–316, 1988.
- [MH69] M. Mueller and G. Hortig. An ion source for negative heavy ions. In *Proceedings Particle Accelerator Conference*, volume NS-16, pages 38–40. IEEE Trans. Nucl. Sci., 1969.
- [Mid83] R. Middleton. A versatile high intensity negative ion source. *Nucl. Instrum. Methods*, **214** :139–150, 1983.
- [Mid89] Roy Middleton. *A Negative-Ion Cookbook*. University of Pennsylvania, 1989.
- [MML86] Thomas M. Miller, Amy E. Stevens Miller, and W. C. Lineberger. Electron affinities of Ge and Sn. *Phys. Rev. A*, **33** :3558–3559, 1986.
- [MS36] H. S. W. Massey and R. A. Smith. Negative Atomic Ions. *Proc. R. Soc. Lond. A*, **155** :472–489, 1936.
- [MTN12] Peter J. Mohr, Barry N. Taylor, and David B. Newell. CODATA Recommended Values of the Fundamental Physical Constants : 2010. *Rev. Mod. Phys.*, **84** :1527–1605, 2012.

- [MW74] K.E. McCulloh and James A. Walker. Photodissociative formation of ion pairs from molecular hydrogen and the electron affinity of the hydrogen atom. *Chem. Phys. Lett.*, **25** :439–442, 1974.
- [NLAL85] D. M. Neumark, K. R. Lykke, T. Andersen, and W. C. Lineberger. Laser photodetachment measurement of the electron affinity of atomic oxygen. *Phys. Rev. A*, **32** :1890–1892, 1985.
- [NOV<sup>+</sup>02] C. Nicole, H.L. Offerhaus, M. J. J. Vrakking, F. Lépine, and Ch. Bordas. Photoionization Microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, **88** :133001, 2002.
- [OB10] Steven M. O'Malley and Donald R. Beck. Lifetimes and branching ratios of excited states in  $\text{La}^-$ ,  $\text{Os}^-$ ,  $\text{Lu}^-$ ,  $\text{Lr}^-$ , and  $\text{Pr}^-$ . *Phys. Rev. A*, **81** :032303, 2010.
- [OO60] Takashi Ohmura and Haruko Ohmura. Electron-Hydrogen Scattering at Low Energies. *Phys. Rev.*, **118** :154–157, 1960.
- [PBDD09] R J Peláez, C Blondel, C Delsart, and C Drag. Pulsed photodetachment microscopy and the electron affinity of iodine. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **42** :125001, 2009.
- [PBV<sup>+</sup>11] R J Peláez, C Blondel, M Vandevraye, C Drag, and C Delsart. Photodetachment microscopy to an excited spectral term and the electron affinity of phosphorus. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **44** :195009, 2011.
- [Pek58] C. L. Pekeris. Ground State of Two-Electron Atoms. *Phys. Rev.*, **112** :1649–1658, 1958.
- [Pek62] C. L. Pekeris.  $1\ ^1\text{S}$ ,  $2\ ^1\text{S}$  and  $2\ ^3\text{S}$  States of  $\text{H}^-$  and of He. *Phys. Rev.*, **126** :1470–1476, 1962.
- [PK76] H.-P. Popp and S. Kruse. Negative hydrogen ion detachment cross section from radiation measurements on a PLTE-arc. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **16** :683–688, 1976.
- [PS64] J.M. Pendlebury and K. F. Smith. Hyperfine structure measurements in  $^{35}\text{As}$ ,  $^{31}\text{P}$  and  $^{53}\text{Cr}$ . *Proc. Phys. Soc.*, **84** :849–856, 1964.
- [PSTL86] Chang-Hwan Park, Anthony F. Starace, Jiang Tan, and Chii-Dong Lin. Electric-dipole matrix-element formulas in hyperspherical coordinates with applications to  $\text{H}^-$  and He. *Phys. Rev. A*, **33** :1000–1007, 1986.
- [PVB<sup>+</sup>95] V. V. Petrunin, J. D. Voldstad, P. Balling, P. Kristensen, and T. Andersen. Resonant Ionization Spectroscopy of  $\text{Ba}^-$  : Metastable and Stable Ions. *Phys. Rev. Lett.*, **75** :1911–1914, 1995.



- [Rau96] A. R. P. Rau. The negative ion of hydrogen. *J. Astrophys. Astr.*, **17** :113–145, 1996.
- [RS69] Manuel Rotenberg and Josef Stein. Use of Asymptotically Correct Wave Function for Three-Body Rayleigh-Ritz Calculations. *Phys. Rev.*, **182** :1–7, 1969.
- [Sah88] H. P. Saha. Multiconfiguration Hartree-Fock calculations for the bound-free photodetachment cross section  $H^-$ . *Phys. Rev. A*, **38** :4546–4551, 1988.
- [SB59] Stephen J. Smith and David S. Burch. Relative Measurement of the Photo-detachment Cross Section for  $H^-$ . *Phys. Rev.*, **116** :1125–1131, 1959.
- [SBBH98] Michael Scheer, René Bilodeau, Cicely A. Brodie, and Harold K. Haugen. Systematic study of the stable states of  $C^-$ ,  $Si^-$ ,  $Ge^-$ , and  $Sn^-$  via infrared laser spectroscopy. *Phys. Rev. A*, **58** :2844–2856, 1998.
- [SBH<sup>+</sup>88] J. E. Stewart, H. C. Bryant, P. G. Harris, A. H. Mohagheghi, J. B. Donahue, C. R. Quick, R. A. Reeder, V. Yuan, C. R. Hummer, W. W. Smith, and Stanley Cohen. Effects of electric fields of the photodetachment cross section of the  $H^-$  ion near threshold. *Phys. Rev. A*, **38** :5628–5638, 1988.
- [SCdE<sup>+</sup>11] A. Simonin, L. Christin, H. de Esch, P. Garibaldi, C. Grand, F. Villecroze, C. Blondel, C. Delsart, C. Drag, M. Vandevraye, A. Brillet, and W. Chaibi. SIPHORE : Conceptual Study of a High Efficiency Neutral Beam Injector Based on Photo-detachment for Future Fusion Reactors. In *Proceedings of the 2<sup>nd</sup> International Symposium of Negative Ions, Beams and Sources*, volume **1097**, pages 385–394. American Institute of Physics, 2011.
- [Sch62] Charles Schwartz. Importance of Angular Correlations between Atomic Electrons. *Phys. Rev.*, **126** :1015–1019, 1962.
- [Sch64] G. J. Schulz. Experiment of the resonance in the elastic scattering of electrons by atomic hydrogen. *Phys. Rev. Lett.*, **13** :583–585, 1964.
- [SGNS80] A. V. Smith, J. E. M. Goldsmith, D. E. Nitz, and S. J. Smith. Absolute photoionization cross-section measurements of the excited  $^4D$  and  $^5S$  states of sodium. *Physical review A*, **22** :577–581, 1980.
- [SHHH99] Ralph. C. Shiell, Xiaokun Hu, Qichi. J. Hu, and John W. Hepburn. Threshold ion-pair production spectroscopy (TIPPS) of  $H_2$  and  $D_2$ . *Faraday Discuss.*, **115** :331–343, 1999.
- [Sie86] Anthony E. Siegman. *Lasers*. University Science Books, 1986.

- [Sim13] Alain Simonin. Towards an efficient Neutral Beam Injection system for the future thermonuclear Fusion reactors, *mémoire d'HDR*, 2013.
- [SIS<sup>+</sup>12] Shaista Shahzada, Palvasha Ijaz, Mehmood Shah, Sami-Ul-Haq, Mushtaq Ahmed, and Ali Nadeem. Photoionization studies from the  $3p\ ^2P$  excited state of neutral lithium. *Journal of Optical Society of America*, **29** :3386–3392, 2012.
- [SL77] J. Slater and W. C. Lineberger. High-resolution photodetachment studies of  $P^-$  and  $Te^-$ . *Phys. Rev. A*, **15** :2277–2282, 1977.
- [Ste78] A. L. Stewart. A perturbation-variation study of photodetachment from  $H^-$ . *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **11** :3851–3860, 1978.
- [Sve80] N Svendenius. The Spectrum and Term Analysis of Neutral Phosphorus, P I. *Physica Scripta*, **22** :240, 1980.
- [Tai69] Joseph Taillet. Détermination des concentrations en ions négatifs par photodétachement-éclair. *C. R. Acad. Sci. (Paris)*, **269** :52–54, 1969.
- [TJL89] R. Trainham, R. M. Jopson, and D. J. Larson. Measurement of the hyperfine structure of  $^{33}S^-$ . *Phys. Rev. A*, **39** :3223–3227, 1989.
- [TK94] Ajit J. Thakkar and Toshikatsu Koga. Ground-state energies for the helium isoelectronic series. *Phys. Rev. A*, **50** :854–856, 1994.
- [Tre07] Andreas Trenkwalder. *Design of a Resonator Enhanced Optical Dipole Trap for Fermionic Mixtures*. PhD thesis, University of Innsbruck, 2007.
- [TSS<sup>+</sup>96] J. Thøgersen, L. D. Steele, M. Scheer, H. K. Haugen, P. Kristensen, P. Balling, H. Stapelfeldt, and T. Andersen. Fine-structure measurements for negative ions : Studies of  $Se^-$  and  $Te^-$ . *Phys. Rev. A*, **53** :3023–3028, 1996.
- [TSSH96] J. Thøgersen, L. D. Steele, M. Scheer, and H. K. Haugen. Electron affinities of Si, Ge, Sn and Pt by tunable laser photodetachment studies. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **29** :1323–1330, 1996.
- [Val99] Christophe Valli. *Microscopie de photodétachement de  $O^-$  et  $F^-$  : mesure des affinités électroniques et des déphasages par imagerie de fonction d'onde*. PhD thesis, Université de Paris-sud XI, 1999.
- [Val07] Raphaël Vallon. *Fluorescence Laser Intracavité et Spectrométrie de Fourier : Développements expérimentaux et application au radical NiH*. PhD thesis, University Claude Bernard - Lyon I, 2007.
- [VBD99] Christophe Valli, Christophe Blondel, and Christian Delsart. Measuring electron affinities with the photodetachment microscope. *Phys. Rev. A*, **59** :3809–3815, 1999.

- 
- [VDB12] Mickaël Vandevraye, Cyril Drag, and Christophe Blondel. Electron affinity of selenium measured by photodetachment microscopy. *Phys. Rev. A*, **85** :015401, 2012.
- [VDB13] M Vandevraye, C Drag, and C Blondel. Electron affinity of tin measured by photodetachment microscopy. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **46** :125002, 2013.
- [WA64] J. D. Weisner and B. H. Armstrong. Binding energy of  $H^-$ . *Proc. Phys. Soc.*, **83** :31–33, 1964.
- [Wan53] Gregory H. Wannier. The Threshold Law for Single Ionization of Atom or Ions by. *Phys. Rev.*, **90** :817–825, 1953.
- [WGL<sup>+</sup>11] C. W. Walter, N. D. Gibson, Y.-G. Li, D. J. Matyas, R. M. Alton, S. E. Lou, R. L. Field III, D. Hanstorp, Lin Pan, and Donald R. Beck. Experimental and theoretical study of bound and quasibound states of  $Ce^-$ . *Phys. Rev. A*, **84** :032514, 2011.
- [Wig48] Eugene P. Wigner. On the Behavior of Cross sections Near Thresholds. *Phys. Rev.*, **73** :1002–1009, 1948.
- [Wil39] Rupert Wildt. Negative ions of hydrogen and the opacity of stellar atmospheres. *Astrophysical Journal*, **90** :611–620, 1939.
- [Wil41] Rupert Wildt. The continuous spectrum of stellar atmospheres consisting only of atoms and negative ions of hydrogen. *Astrophysical Journal*, **93** :47–51, 1941.
- [Wil42] Ralph E. Williamson. The negative hydrogen ion and its absorption coefficient. *Astrophysical Journal*, **96** :438–450, 1942.
- [Wil43] Ralph E. Williamson. The continuous spectrum of model stellar atmospheres. *Astrophysical Journal*, **97** :51–64, 1943.
- [Wis79] A. W. Wishart. The bound-free photodetachment cross-section of  $H^-$ . *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **12** :3511–3519, 1979.







## Résumé

*Microscopie et spectroscopie de photodétachement ; mesure de la section efficace de photodétachement de  $H^-$  à 1064 nm par observation du comportement asymptotique du régime saturé*

Dans cette thèse, nous initions la démonstration, à échelle réduite, de la faisabilité du photodétachement presque total, par laser, d'un jet d'ions négatifs d'hydrogène en cavité optique Fabry-Perot pour les futurs injecteurs de neutres destinés au chauffage des plasmas des réacteurs de fusion nucléaire.

Nous élaborons une nouvelle méthode de mesure d'une section efficace de photodétachement, dont la connaissance à la longueur d'onde d'excitation est requise pour le dimensionnement de la cavité Fabry-Perot, basée sur l'observation de la saturation en régime d'éclairement impulsif. Le calcul analytique de l'accroissement du signal de détachement produit lors de l'éclairement d'un jet d'ions par une impulsion laser supposée gaussienne, fait apparaître une contrainte mathématique sur le flux requis pour transiter vers le régime saturé. Cette contrainte est une caractéristique de la transition vers la saturation pour toutes les expériences réalisées en faisceau gaussien et pour tous les processus d'interaction lumière-matière linéaires. Avec cette méthode, nous déduisons une section efficace de photodétachement de  $H^-$  à 1064 nm – longueur d'onde sélectionnée pour les futurs injecteurs de neutres – en léger désaccord avec les prédictions théoriques.

Pour réduire les exigences technologiques sur la cavité et le laser, nous étudions les résonances de Landau qui apparaissent dans le spectre de photodétachement en champ magnétique. S'asservir sur l'une de ces résonances permettrait d'augmenter la probabilité de photodétachement à un flux donné.

Par ailleurs, nous présentons nos mesures des affinités électroniques du phosphore, du sélénium et de l'étain, réalisées avec le microscope de photodétachement. L'expérience de microscopie de photodétachement du phosphore est la première où l'atome neutre est laissé dans un terme excité.

**Mots clefs :** ions négatifs, photodétachement, saturation, section efficace, hydrogène, cavité Fabry-Perot, injecteurs de neutres, résonances de Landau, microscopie de photodétachement, affinité électronique

## Abstract

*Photodetachment spectroscopy and microscopy ; measurement of the photodetachment cross section of  $H^-$  at 1064 nm by the observation of the asymptotic behaviour in the saturated regime*

In this thesis, we initiate the demonstration, at a reduced scale, of the feasibility of the almost-complete laser photodetachment of negative hydrogen ion beams in a Fabry-Perot optical cavity for future neutral beam injectors for the heating of fusion power plants plasmas.

We develop a new method to measure a photodetachment cross section, the knowledge of which at the exciting wavelength is needed to scale the Fabry-Perot cavity, based on the observation of the saturation in a pulsed lighting regime. The analytical calculus of the detachment signal growth produced while illuminating a negative ion beam with a Gaussian laser pulse bring out a mathematical constraint on the required flux to pass through the saturated regime. This constraint is the signature of the transition toward the saturation for all experiment carried out in Gaussian beam and for all linear light-matter interaction processes. With this method, we measure the photodetachment cross section of  $H^-$  at 1064 nm - selected wavelength for future neutral beam injectors - in slight disagreement with theoretical predictions.

To reduce the technological requirement on the Fabry-Perot cavity and the laser, we study Landau resonances which appear in the photodetachment spectrum. Locking the laser on one of these resonances would allow increasing the photodetachment probability at a given flux.

We also present our phosphorus, selenium and tin electron affinity measurements carried out with the photodetachment microscope. The photodetachment microscopy experiment of phosphorus is the first one where the neutral atom is left in an excited term.

**Keywords :** negative ion, photodetachment, saturation, cross section, hydrogen, Fabry-Perot cavity, neutral beam injector, Landau resonances, photodetachment microscopy, electron affinity.