



**HAL**  
open science

# Étude des Collisions à Basse Énergie entre Ions Multichargés et Dimères de Gaz Rare

Wael Iskandar

► **To cite this version:**

Wael Iskandar. Étude des Collisions à Basse Énergie entre Ions Multichargés et Dimères de Gaz Rare. Agrégats Moléculaires et Atomiques [physics.atm-clus]. Université de Caen Normandie, 2015. Français. NNT : 2015CAEN2050 . tel-01243329

**HAL Id: tel-01243329**

**<https://theses.hal.science/tel-01243329>**

Submitted on 14 Dec 2015

**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.



Distributed under a Creative Commons Attribution - NonCommercial - NoDerivatives 4.0  
International License

## Université de Caen Normandie

École Doctorale : SIMEM

### THÈSE DE DOCTORAT

présentée et soutenue le 30/11/2015

par

**Waël ISKANDAR**

pour obtenir le

**Doctorat de l'Université de Caen Normandie**

**Spécialité : Milieux Dilués et Optique Fondamentale**

---

## Étude des Collisions à Basse Énergie entre Ions Multichargés et Dimères de Gaz Rare

---

Directeurs de thèse : Xavier FLÉCHARD  
Amine CASSIMI

### Jury

M. Amine CASSIMI	Chercheur, CIMAP, Caen	Directeur de thèse
M. Dominique DURAND	Directeur de Recherche, LPCCAEN, Caen	
M. Xavier FLÉCHARD	Chargé de Recherche, LPCCAEN, Caen	Directeur de thèse
M. Serge MARTIN	Directeur de Recherche, ILM, Lyon	Rapporteur
M. Bernard PONS	Professeur des Universités, CELIA, Bordeaux	Rapporteur
M. Nicolas SISOURAT	Maitre de Conférences, LCPMR, Paris	



# Remerciements

Ce projet doctoral a été réalisé au laboratoire CIMAP en collaboration avec le laboratoire LPCCAEN. Je tiens donc à remercier tous les membres de ces deux laboratoires pour leur accueil pendant ces trois années. Je suis également reconnaissant à l'université de Caen Normandie, à l'école doctorale SIMEM et au ministère de l'enseignement supérieur et de la recherche pour les tâches administratives liées à mon contrat doctoral ainsi qu'à son financement.

En premier lieu, je souhaite remercier les rapporteurs de cette thèse, Serge MARTIN et Bernard PONS ainsi que Dominique DURAND et Nicolas SISOURAT pour avoir fait partie du jury et pour leurs commentaires sur mon travail et sur le manuscrit.

Je tiens à remercier mes deux directeurs de thèse, Xavier FLECHARD et Amine CASSIMI d'avoir accepté de diriger mon projet doctoral et pour leur soutien tout au long de ces trois années. Leur supervision a été prépondérante pour le bon déroulement de cette thèse et pour la réussite de ce travail. Enfin, leurs conseils sur la rédaction du manuscrit et la présentation de ma soutenance de thèse m'ont été très précieux.

Je souhaite remercier Alain MERY pour son encadrement durant mes projets de stage de master 1 et master 2. Je lui suis très reconnaissant pour ses qualités pédagogiques et scientifiques ainsi que de m'avoir aidé à apprendre beaucoup de choses dans le domaine de la recherche scientifique (ex. utiliser SIMION, analyser des données expérimentales et simuler sous ROOT/C++).

Je tiens à remercier également l'ensemble de l'équipe qui a travaillé sur la réalisation des expériences de ce projet, particulièrement Stéphane GUILLOUS, Jimmy RANGAMA, Alain MERY, Xavier FLECHARD, Amine CASSIMI ainsi que nos collaborateurs Japonais Jun MATSUMOTO et Haruo SHIROMARU. Leurs temps consacré à ce projet et les discussions scientifiques que j'ai partagées avec eux ont été un atout pour le succès de ce travail de recherche.

Je termine par un grand merci à ma famille pour leur soutien et leur encouragement durant toutes mes années d'études universitaires et au cours de ces trois années de travail sur mon projet doctoral.



# Table des matières

<b>Introduction générale</b>	<b>1</b>
<b>1 Dynamique des Collisions Ions/Molécules Diatomiques</b>	<b>5</b>
1.1 Liaisons Interatomiques	6
1.2 Collisions entre des Ions Multichargés et des Molécules Diatomiques	8
1.2.1 Traitement de la Collision	9
1.2.2 Cas des Molécules Covalentes	11
1.2.3 Cas des Dimères de Gaz Rare	12
<b>2 Calculs Théoriques</b>	<b>19</b>
2.1 Introduction	19
2.2 Modèle de la Barrière Coulombienne (COBM)	20
2.2.1 Cas d'une Cible Atomique	20
2.2.2 Cas d'une Cible Moléculaire de Dimères de Gaz Rare	28
2.3 Conclusion	30
<b>3 Dispositif Expérimental</b>	<b>31</b>
3.1 Faisceau d'Ions Multichargés : Production et Transport	32
3.2 Spectromètre COLTRIMS	33
3.3 Jet Supersonique	35
3.4 Détecteurs	38
3.5 Électronique et Système d'Acquisition	40
<b>4 Analyse des données</b>	<b>45</b>
4.1 Traitement des Données Expérimentales	45
4.1.1 Programme de Conversion	46
4.1.2 Programme d'Analyse	49
4.2 Traitement des Données de Calcul MC-COBM	53
4.2.1 Estimation des Voies de Relaxation	53
4.2.2 Simulation du Spectromètre	54
4.2.3 Analyse	55
<b>5 Résultats Expérimentaux vs MC-COBM</b>	<b>57</b>
5.1 Kinetic Energy Release (KER)	59
5.1.1 Voies de Fragmentation de la Double Capture	59
5.1.2 Voies de Fragmentation de la Triple Capture	66
5.1.3 Voies de Fragmentation de la Quadruple Capture	71
5.2 Ratios des Différents Processus et Voies de Fragmentation	75
5.2.1 Cas du dimère de Ne	77

5.2.2	Cas du dimère d'Ar . . . . .	79
5.3	Échange de quantité de mouvement : Composante Transverse . . . . .	81
5.4	Distribution en Angle de Diffusion . . . . .	83
5.5	Image 2D de la Collision en $P(\vec{b})$ . . . . .	86
5.6	Auto-Ionisation du Projectile . . . . .	89
5.6.1	Double Capture . . . . .	90
5.6.2	Triple Capture . . . . .	91
5.6.3	Quadruple Capture . . . . .	92
<b>Conclusion et Perspectives</b>		<b>95</b>
<b>A Simulation du Spectromètre et Analyse</b>		<b>99</b>
A.1	Zone d'Extraction : Cas de deux Fragments . . . . .	99
A.2	Zone de la Collision : référentiel du CM . . . . .	101
A.3	Zone de la Collision : référentiel du laboratoire . . . . .	102
<b>Bibliographie</b>		<b>105</b>

# Introduction

L'étude de l'interaction entre deux particules est depuis toujours un sujet d'intérêt pour la recherche scientifique qui a pour but de comprendre les lois de la nature qui nous entoure. Dans le domaine de la physique atomique, une partie importante et active des recherches menées a été consacrée à l'étude de collisions entre des ions projectiles et des atomes cibles. Durant ces dernières décennies, on a vu une progression continue dans la description théorique de la collision entre un ion projectile et une cible atomique ainsi que dans le développement des techniques expérimentales (en spectroscopie et dans les différents types d'accélérateur et de source d'ions). Ces progressions théoriques et développements expérimentaux ont permis de mieux comprendre l'interaction entre un ion et un atome qui est un point de départ pour étudier des systèmes et des phénomènes plus complexes en physique et dans d'autres disciplines scientifiques. L'effet des rayonnements ionisants sur des tissus biologiques, les réactions chimiques, les plasmas et la physique atmosphérique sont quelques domaines où les collisions atomiques prennent une place importante.

L'interprétation de la collision ion/atome n'est pas simple du fait des nombreux paramètres qui entrent en jeu et qui conduisent à favoriser un processus primaire par rapport aux autres processus. Ces processus primaires sont de trois types : l'excitation, la capture et l'ionisation d'électrons de la cible. Au moment de l'interaction, les électrons de l'atome cible vont pouvoir passer de leur état initial à un autre état. Ce dernier peut être un état excité de l'atome, un état du projectile ou bien le continuum. L'énergie fournie aux électrons de l'atome cible, durant la collision, est parfois très faible ce qui permet d'avoir une apparition des processus d'excitation faisant passer la cible vers un état excité. En parallèle du processus d'excitation, deux autres processus entrent en compétition qui sont le processus de capture (transfert d'électrons de la cible vers le projectile) et d'ionisation (émission vers le continuum) des électrons de la cible. Ces deux processus apparaissent si l'énergie fournie aux électrons de l'atome cible est suffisamment élevée pour faire passer la cible vers un état ionisé. La production de ces trois processus dépend principalement de la vitesse incidente du projectile pendant la collision. Généralement, on peut distinguer trois régions d'énergie de collision. Le premier est le régime de basse énergie pour lequel la vitesse des ions projectiles est plus faible que la vitesse des électrons actifs de la cible ( $v_{proj} \ll v_e$ ). Dans ce cas, le transfert d'électron de la cible vers le projectile est le processus dominant. Pour une énergie cinétique  $E_c$  du projectile de masse  $m_{proj}$ , cela correspond



classiquement à :

$$0.2\sqrt{\frac{E_c}{m_{proj}}} \ll \frac{Z}{n}$$

où  $n$  est le nombre quantique principal de l'électron de valence de la cible et  $Z$  son numéro atomique. Si cette condition est applicable, les orbitales électroniques vont pouvoir s'ajuster au potentiel créé par les deux centres tout au long du parcours du projectile afin de créer un état quasi-moléculaire entre le projectile et la cible. L'image "classique" est qu'une fois dans cet état, les électrons vont pouvoir se déplacer autour des deux centres nucléaires (projectile et cible). Suite à la collision, ces électrons auront une chance d'être capturés par le projectile ou bien de rester liés à la cible. Le deuxième régime concerne les collisions à haute énergie ( $v_{proj} \gg v_e$ ) pour lesquelles l'ionisation et l'excitation des électrons de la cible deviennent dominants. Dans ce domaine de vitesse de collision, l'ionisation ou l'excitation de l'électron de la cible se produit après interaction avec un champ coulombien à longue portée dû au passage du projectile. Finalement, le troisième régime de vitesse, appelé intermédiaire, correspond à des collisions à moyenne énergie où la vitesse du projectile est comparable à la vitesse orbitale des électrons de la cible. Dans ce domaine de collision, les différents processus primaires (capture, ionisation et excitation des électrons de la cible) ont une probabilité comparable.

Pour identifier lequel des processus a été mis en jeu, il faut avoir accès à plusieurs observables comme l'état de charge, l'énergie et la trajectoire du projectile, de la cible et de toutes particules émises durant la collision. Expérimentalement et théoriquement, ces informations doivent être fournies afin d'identifier et de déterminer la section efficace de production de chacun des processus et d'avoir une image complète de la réaction qui a eu lieu. De cette réaction, on peut remonter à une description détaillée de la transition entre une condition initiale, avant que le projectile commence à entrer en collision avec la cible, et la condition finale, après que le projectile quitte la région de la collision laissant la cible dans un état excité et/ou ionisé.

À la suite des collisions ion/atome, des recherches ont été menées sur l'étude des systèmes de plus en plus complexes. Parmi ces systèmes, on trouve les molécules diatomiques à liaisons covalentes et à liaisons de Van-der-Waals. La différence entre ces deux liaisons est que les molécules covalentes se caractérisent par un partage des électrons de valence contrairement au cas des dimères à liaison de Van der-Waals où chacun des deux atomes du dimère conserve les électrons qui lui "appartiennent". Plusieurs études utilisant des cibles moléculaires covalentes ont été réalisées dans le but de comprendre la façon dont le projectile interagit avec chacune des deux espèces de la molécule et ainsi d'essayer de comprendre l'effet de la liaison internucléaire, de l'orientation de la molécule et de la mobilité électronique entre les deux centres sur la dynamique de la collision et de la fragmentation de la molécule. En revanche, peu d'études ont été menées sur les collisions d'ions avec des dimères à liaison de Van-der-Waals. Cela est dû à la difficulté de produire une cible de dimère de gaz rare. L'originalité des dimères par rapport à une molécule covalente est qu'ils possèdent une large distance internucléaire et une faible énergie de liaison entre les deux

---

centres. Cette caractéristique permet de considérer, en première approximation, la collision avec des cibles de dimère comme une collision du projectile avec un atome, en faible interaction avec un environnement chimique. Considérer la collision ion/dimère comme deux interactions quasi-indépendantes permet de faire apparaître d'autres processus de relaxation basés sur l'échange d'électrons et d'énergie entre les deux centres du dimère. De plus, l'utilisation de cibles de dimères permet également d'étudier les différences, par comparaison aux molécules covalentes, pour ce qui concerne les processus primaires et les voies de fragmentation. L'étude de la collision ion/dimère est un atout permettant de répondre à tous ces points et d'approfondir notre compréhension des systèmes à faible liaison chimique.

Les expériences présentées dans cette thèse portent sur des collisions entre des ions projectiles multichargés et des dimères de gaz rare ( $\text{Ar}_2$  et  $\text{Ne}_2$ ). Trois différents projectiles  $\text{O}^{3+}$ ,  $\text{Ar}^{9+}$  et  $\text{Xe}^{20+}$  ont été utilisés pendant l'expérience, chacun avec une énergie de collision de 0.35 u.a. ce qui permet une dominance de l'échange d'électrons entre le projectile et la cible. La détection des produits après collision (fragments ioniques de la cible et le projectile) est assurée par un spectromètre COLTRIMS (COLd Target Recoil-Ion Momentum Spectroscopy). Cela permet de mesurer la charge du projectile après la collision, d'identifier la nature et la charge des fragments ioniques produits et de déterminer leur vecteur quantité de mouvement ainsi que leur distribution angulaire. Les résultats obtenus expérimentalement vont par la suite être confrontés à des calculs théoriques basés sur le modèle de la barrière coulombienne utilisé pour traiter des collisions à trois centres entre des ions de basse énergie et des dimères de gaz rare. Cette confrontation porte sur la distribution de charge des fragments produits et sur la distribution angulaire de diffusion du projectile et de recul du centre de masse de la molécule.

Cette thèse est organisée comme suit. Le premier chapitre est consacré à une étude bibliographique sur la dynamique de la collision entre des ions et des molécules diatomiques. Un traitement théorique de la collision à trois centres basé sur le modèle de la barrière coulombienne est décrit dans le deuxième chapitre. Une description du dispositif expérimental utilisé pendant l'expérience et la façon dont on détecte les produits est détaillée dans le troisième chapitre. Le quatrième chapitre porte sur le traitement de l'information et l'analyse des données collectées pendant l'expérience ainsi que celles fournies par le modèle. Les résultats expérimentaux sont présentés et comparés aux calculs théoriques dans le cinquième chapitre. Ces résultats sont discutés en terme d'énergie cinétique libéré par fragmentation de la molécule, en terme de production relatives des différents processus de relaxation et voies de fragmentation, en terme de distribution angulaire des ions de recul et du projectile, en terme de paramètre d'impact et en terme d'autoionisation du projectile. Finalement, un résumé de tous les résultats et les perspectives est donné dans le dernier chapitre.



# Chapitre 1

## Dynamique des Collisions Ions/Molécules Diatomiques

### Sommaire

---

<b>1.1 Liaisons Interatomiques</b> . . . . .	<b>6</b>
<b>1.2 Collisions entre des Ions Multichargés et des Molécules Diatomiques</b> . . . . .	<b>8</b>
1.2.1 Traitement de la Collision . . . . .	9
1.2.2 Cas des Molécules Covalentes . . . . .	11
1.2.3 Cas des Dimères de Gaz Rare . . . . .	12
Mécanismes de Relaxation . . . . .	14
Interatomic Coulombic Decay (ICD) . . . . .	15
Étude du paramètre d'impact et de l'orientation de la molécule . . . . .	16

---

Les collisions ions/atomes et ions/molécules ont été étudiées pendant très longtemps que ce soit expérimentalement ou théoriquement [73]. Ces études ont porté sur l'identification des processus primaires intervenant durant l'interaction entre le projectile et la cible : l'excitation, l'ionisation et la capture des électrons. Durant des dizaines d'années, plusieurs projets ont porté sur l'investigation de ces processus primaires. Cela est dû aux développements technologiques et scientifiques des accélérateurs et à plusieurs applications telles que la fusion thermonucléaire [77], l'étude de parcours des ions dans la matière [38], le diagnostic de faisceaux [49], la fragmentation de particules exotiques [37], l'astrophysique [27], l'utilisation de faisceaux pour le traitement thérapeutique [4, 89] ainsi que l'utilisation pour le design des nouvelles générations d'accélérateurs et d'anneaux de stockage.

La collision entre un ion projectile et une cible moléculaire est plus complexe à étudier en comparaison au cas d'une cible atomique. Cette complexité est due à la présence de plus de degrés de liberté dans les collisions ions/molécules diatomiques lié à l'orientation de la molécule par rapport à l'axe du faisceau. L'étude de cette collision à trois centres (le projectile et les deux atomes de la molécule cible) présente un intérêt multiple. D'une part, l'effet de la nature du projectile sur la production des processus primaires est important dans des collisions ion/molécule comme dans le cas ion/atome, en favorisant un processus primaire par rapport à un autre. D'autre part, la nature de la cible a également un effet sur

la production des processus primaires mais aussi sur le devenir de la cible après collision. L'utilisation d'une cible moléculaire permet d'augmenter le nombre d'électrons actifs de la cible pendant l'interaction avec le projectile. Cela peut engendrer une augmentation des sections efficaces de production des processus primaires. Cette étude permet également de voir l'effet de la proximité d'un centre au moment de l'interaction du projectile avec l'autre centre de la molécule et de mieux comprendre la liaison internucléaire qui lie ces deux centres. Enfin, l'interaction du projectile avec la cible permet de créer une molécule dans un état excité et/ou ionisé ce qui va engendrer, dans certains cas, une étape supplémentaire de relaxation de la molécule après collision.

Tous ces effets de la nature du projectile et de la cible sur la dynamique de la collision et sur la relaxation de la molécule vont être décrits dans ce chapitre. Une première partie va être consacrée à la description des différentes natures de liaison internucléaire entre deux centres d'une molécule diatomique. Une deuxième partie va être dédiée à l'étude de la collision entre un ion projectile et une cible moléculaire diatomique. Une comparaison utilisant une molécule à liaison covalente et une molécule à liaison de Van-der-Waals va être faite afin de lister les observables d'intérêts. Dans la suite du manuscrit, ces observables vont être utilisées pour nous permettre d'avoir une compréhension plus claire de l'effet de la nature de la liaison internucléaire sur les processus primaires et sur la relaxation de la molécule.

## 1.1 Liaisons Interatomiques

Dans une molécule, seule une partie des électrons va participer à la création de la liaison. Ce sont les électrons de valence. Les électrons de coeur, qui sont plus liés au noyau de l'atome, ne vont pas contribuer à la liaison. Une liaison moléculaire comporte deux composantes, l'une attractive qui est nécessaire pour créer la liaison et l'autre répulsive pour éviter que les deux noyaux ne fusionnent. L'expression du potentiel interatomique correspondant à cette liaison peut donc être grossièrement approximée comme suit

$$U(r) = \frac{A}{r^n} - \frac{B}{r^m} \quad (1.1.1)$$

où A et B sont les composantes répulsive et attractive respectivement, r la distance internucléaire et  $n > m$  pour que la partie répulsive domine à très basse distance. La courbe de potentiel de la Fig.1.2 illustre bien cette expression  $U(r)$  en montrant une partie décroissante à longue distance, pour laquelle la composante attractive domine, et une partie croissante, à petite distance, où la composante répulsive devient prépondérante.

Plusieurs types de liaison peuvent exister, selon la nature et la structure électronique des deux atomes qui forment la molécule. On peut citer par exemple la liaison ionique, la liaison covalente, la liaison hydrogène et la liaison de Van-der-Waals. La liaison ionique est due à l'échange d'électrons entre un atome électropositif et un atome électronégatif pour former une molécule comme, par exemple, le cas de NaCl. La force qui lie ces deux ions produits est une attraction coulombienne ( $-e^2/r$ ) de quelque eV (Fig.1.1). La liaison covalente est basée sur un partage des électrons de valence des deux atomes. Plusieurs

liaisons peuvent se former entre les deux centres en fonction du nombre d'électrons de valence de chaque atome. Par exemple, le diazote possède trois liaisons de valence parce qu'il manque trois électrons de valence à l'atome d'azote pour que sa couche soit complète. L'atome d'hydrogène a seulement un seul électron et ne peut donc former qu'une seule liaison covalente. Il est également à la base de la liaison hydrogène. Si une liaison covalente est formée avec un atome électronégatif (comme F ou O), l'électron de l'atome d'hydrogène devient localisé, proche du centre électronégatif. Cela permet à l'atome d'hydrogène d'attirer des charges négatives présentes dans d'autres molécules pour former une faible liaison électrostatique (énergie de liaison de quelques centaines de meV) appelée liaison hydrogène. Cette liaison est présente par exemple dans des molécules comme le SO<sub>2</sub>-HF, dans des glaces d'eau et dans la formation de la double hélice de l'ADN. Parmi tous les types de liaisons, la liaison de Van-der-Waals est la plus faible, avec une énergie de quelques meV. Les liaisons de Van-der-Waals n'entrent pas complètement dans le cadre des liaisons chimiques, en ce sens que les électrons restent sur leurs atomes (ou molécules) respectifs (les termes d'échanges d'électrons restent négligeables). La polarisabilité d'un atome permet de former un dipôle, et sous la présence d'un autre atome, une attraction dipôle-dipôle se produit pour former une liaison entre les deux atomes appelée liaison de Van-der-Waals. Autrement dit, cette liaison a la forme d'une attraction coulombienne entre l'extrémité positive d'un dipôle et la région négative d'un dipôle adjacent. À cause de sa faible énergie de liaison (Tab.1.1), la force de Van-der-Waals peut être rencontrée dans des systèmes où les autres types de liaison ne peuvent pas être présents, comme pour lier des atomes de gaz rare (couche de valence complète comme l'Ar, le Ne...) ou pour former des cristaux à très basse température.

	$R_e$ [Å]	$U_e$ [eV]		$R_e$ [Å]	$U_e$ [eV]
H <sub>2</sub>	0.74	4.52	SO <sub>2</sub> --HF	3.19 à 3.25 (S-H distance)	0.210 à 0.299
N <sub>2</sub>	1.10	9.87	Ne <sub>2</sub>	3.10	0.004
NaCl	2.36	4.26	Ar <sub>2</sub>	3.80	0.011

FIGURE 1.1 – Tableau présentant l'énergie de liaison  $U_e$  et la distance internucléaire  $R_e$  des molécules diatomiques de H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, NaCl, SO<sub>2</sub>-HF, Ne<sub>2</sub> et Ar<sub>2</sub>.

La liaison ionique existe en phase solide tandis que les trois autres peuvent être présentes sous phase gazeuse ou liquide. La liaison hydrogène existe principalement dans des grosses molécules tandis que les trois autres liaisons existent également dans des molécules de petites tailles. Puisque notre étude se limite au cas des molécules diatomiques en phase gazeuse, nous ne discuterons dans la suite que des collisions entre des ions projectiles et des cibles moléculaires à liaison covalente ou des cibles de dimères de gaz rare à liaison de Van-der-Waals.

## 1.2 Collisions entre des Ions Multichargés et des Molécules Diatomiques

L'interaction entre un ion projectile et une cible moléculaire diatomique peut être décrite en deux étapes permettant une transition d'un état initial vers un état final du système collisionnel (Fig.1.2). La première étape de cette transition se passe pendant la collision, après que le projectile excite, ionise et/ou capture des électrons de la cible. Cette étape fait passer la molécule vers un état ionique et/ou excité. En théorie, cette transition doit préserver le principe de Franck-Condon [26, 34]. Ce principe se base sur l'évolution de la distance internucléaire entre les différents centres de la molécule en fonction de la durée de la collision. Il suppose que si le temps de la collision (transition électronique) est très court, il n'y aura pas de changement dans la distance de séparation des centres de la molécule durant la collision. Après l'interaction projectile/cible, la transition de l'état initial vers l'état intermédiaire (état excité et/ou ionisé de la molécule) est associée à un changement d'énergie potentielle de la molécule, sans changement de la distance internucléaire. Cela correspond à une transition verticale désignant la région Franck-Condon dans le spectre qui présente les courbes d'énergie potentielle de la molécule en fonction de la distance internucléaire de la molécule (Fig.1.2). Durant la collision, un faible transfert d'impulsion peut avoir lieu entre le projectile et la cible dû principalement aux charges effectives des deux partenaires de la collision et à l'énergie de réaction  $Q$  (ou inélasticité).

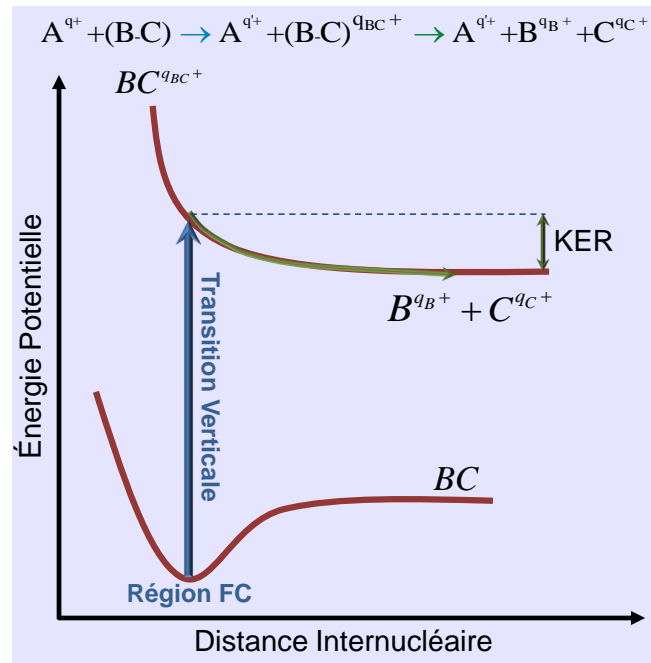


FIGURE 1.2 – Représentation schématique de la transition de l'état initial vers un état intermédiaire de la molécule ionisée et/ou excitée puis de sa dissociation en deux fragments ioniques. La transition verticale due à la collision a lieu dans la région Franck-Condon (FC).

Après la première étape (état initial  $\rightarrow$  état intermédiaire) qui va laisser la molécule dans un état ionisé et/ou excité, la molécule va se réarranger pour passer à un état d'équi-

libre final. Si l'état de la molécule est non-dissociatif, la molécule va pouvoir conserver sa liaison (comme dans le cas de molécules covalentes Sect.1.2.2) ou bien passer vers une voie dissociative via un processus de relaxation (comme dans le cas de dimère de gaz rare Sect.1.2.3). Si c'est un état dissociatif, la molécule diatomique va fragmenter en plusieurs fragments neutres et/ou ioniques. Dans le cas d'une voie dissociative en un ion chargé et un neutre, une énergie de quelques centaines de meV va être libérée et partagée sous forme d'énergie cinétique entre les deux fragments, nommée Kinetic Energy Release (KER). Dans le cas d'une voie dissociative en deux ions chargés, cette fragmentation va pouvoir libérer une énergie KER de quelques eV due à la répulsion coulombienne entre les deux fragments ioniques. Cette énergie, qui va être partagée entre les deux fragments de la molécule, est inversement proportionnelle à la distance internucléaire entre les deux centres de la molécule avant dissociation. Dans le cas d'une molécule diatomique qui se fragmente en deux ions de charge  $q_1$  et  $q_2$  à la distance internucléaire  $R_{12}$  avant dissociation, cette énergie peut être calculée approximativement en utilisant le modèle de l'explosion coulombienne :

$$KER = E_1 + E_2 \propto \frac{q_1 * q_2}{R_{12}}. \quad (1.2.1)$$

La mesure de la charge finale des ions produits nous donne accès à la voie de fragmentation et dépend essentiellement du nombre d'électrons retirés de chaque centre de la molécule, de la mobilité électronique au sein de la molécule et de la nature de la liaison. La mesure en KER des fragments va nous permettre d'estimer la distance internucléaire  $R_{12}$  et de remonter à l'état intermédiaire avant fragmentation de la molécule.

### 1.2.1 Traitement de la Collision

**Expérimentalement**, toutes ces mesures nécessitent des instruments adéquats de détection et de spectrométrie. Dans ce but, plusieurs développements instrumentaux ont été effectués afin de collecter toutes les informations nécessaires pour décrire avec finesse une collision. L'idée générale est de trouver une situation idéale où on peut mesurer la charge, la masse et la vitesse de la particule détectée. Plusieurs types de détecteurs ont été testés et utilisés afin d'avoir la meilleure technologie de détection des particules et la meilleure résolution sur les données collectées. Des développements ont été faits afin d'avoir le détecteur idéal pour chaque type (électron, photon, ion, atome) et caractéristique (masse, charge, vitesse) de particules à étudier. Des améliorations sur les performances de ces détecteurs ont été faites afin d'assurer une sensibilité et précision maximale avec une réponse rapide dans le but d'avoir la meilleure résolution et le plus faible temps mort possible entre deux particules successives. Ces différents types de détecteur ainsi que leurs performances sont listés et décrits dans un article de Koppelaar et al [74]. Parallèlement au domaine des détecteurs, de nouvelles techniques de spectroscopie ont été développées afin de collecter toutes les particules produites durant la collision (ions et électrons) en conservant une bonne résolution sur les mesures [25, 28, 114]. Ces techniques sont la spectroscopie d'ions de recul, RIMS (Recoil-Ion Momentum Spectroscopy) ou COLTRIMS (Cold Target Recoil-Ion Momentum Spectroscopy), pour lesquelles des améliorations continues ont eu lieu depuis les premières mesures [113]. Depuis, plusieurs équipes dans le monde



[2, 28, 63, 83, 114] ont contribué aux développements afin d’avoir la spectroscopie la plus performante pour une mesure complète de la cinématique de l’interaction projectile/cible. Cette mesure complète comporte la détection en multi-coïncidence des ions projectiles, des fragments ioniques et des électrons avec une efficacité de collection de  $4\pi$  d’angle solide. Les études faites sur les collisions ion/molécule utilisant le spectromètre COLTRIMS ont permis de mesurer la production relative des processus primaires et des voies de fragmentation [1, 81], de déterminer l’énergie KER des fragments produits [1, 71, 81], d’étudier la dépendance des processus à l’orientation de la molécule [71, 115] et, plus récemment, la distribution angulaire du projectile diffusé et du recul du centre de masse de la molécule [53].

*Théoriquement*, le traitement quantique et complet de la collision devient très complexe pour des systèmes à plusieurs électrons, d’où la nécessité d’une approche classique pour simplifier le traitement. L’utilisation de la mécanique classique dans la physique des collisions possède une longue histoire [109] et a été discutée en détails dans plusieurs articles et livres [9, 14]. Plusieurs méthodes classiques ont réussi la description des processus d’interaction ion-atome et ion-molécule à des vitesses de collision plus petite ou plus grande que la vitesse des électrons actifs de la cible et en utilisant essentiellement des systèmes à un électron comme les cibles hydrogénoïdes mais aussi des systèmes plus complexes à plusieurs électrons. Parmi ces modèles figure le modèle CTMC (Classical Trajectory Monte Carlo) et le modèle de la barrière coulombienne (OBM) qui ont été beaucoup utilisés dans le calcul des sections efficaces de production des processus d’excitation, d’ionisation et de capture électronique [24, 40, 41, 86, 91]. La confrontation des résultats expérimentaux avec ceux donnés par ces modèles a largement contribué à notre compréhension de la dynamique de la collision.

L’approche du modèle CTMC utilise une technique numérique et la simulation Monte-Carlo pour générer et résoudre les équations de mouvement des électrons actif de la cible ainsi que la trajectoire de l’ion projectile durant son interaction avec la cible. Ce modèle commence par résoudre les équations d’Hamiltonien qui décrit classiquement le mouvement des électrons et de l’ion projectile durant l’interaction. Selon la position des deux partenaires de l’interaction (électron et projectile) après la collision, il va classer les événements simulés (1 événement = 1 collision) selon trois catégories. La première est une diffusion élastique pour lequel l’électron actif a été trouvé proche du noyau de la cible. Le second est la capture pour lequel l’électron est trouvé proche de l’ion projectile. La troisième est l’ionisation pour lequel l’électron est trouvé loin du projectile et de la cible. Après simulation de plusieurs événements, le dénombrement de l’occurrence de chacun des processus permet de déterminer sa section efficace. La vitesse de collision où la méthode CTMC donne de bonnes estimations de la section efficace est pour des ions projectiles à moyenne énergie (vitesse du projectile comparable à la vitesse de l’électron actif de la cible) [32, 92, 93].

Le deuxième modèle est basé sur la barrière coulombienne entre le projectile et les électrons de la cible afin de traiter la capture multiélectronique. Ce modèle traite la collision en deux parties : la voie d’entrée où le projectile se rapproche de la cible, et la voie de sortie où le projectile quitte la cible. Ce traitement a été utilisé dans des collisions à basse

énergie (vitesse des ions projectile est plus faible que la vitesse des électrons actifs de la cible) entre des ions multichargés et des cibles moléculaires notamment pour déterminer la section efficace de capture d'électrons, la production relative des voies de fragmentation [53, 118, 120] et la diffusion du projectile [53].

### 1.2.2 Cas des Molécules Covalentes

L'interaction entre un ion projectile et une cible de molécules diatomiques à liaison covalente est étudiée depuis très longtemps. La plupart de ces études ont été effectuées avec des cibles de  $N_2$ ,  $O_2$  et  $CO$  parce que ce sont des molécules simples à produire et qu'elles présentent un intérêt dans l'étude de phénomènes atmosphériques [79]. Ces études ont été focalisées sur deux points majeurs : l'une est la cinématique de la collision et l'autre porte sur le devenir de la cible.

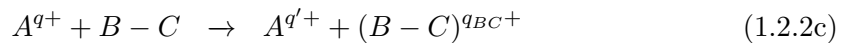
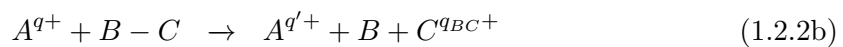
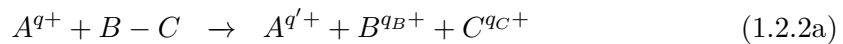
L'étude de la cinématique de la collision ion/molécule covalente porte, d'une part, sur la mesure de la section efficace de production des processus primaires et, d'autre part, sur la mesure du  $Q$  de la réaction et de l'impulsion échangée entre le projectile et la cible durant la collision. La production des processus primaires dépend essentiellement de l'énergie incidente du projectile. Des expériences sur des cibles de molécules covalentes ont montré que le processus de capture d'électron domine pour les faibles énergies de collision [52] tandis que le processus d'ionisation d'électrons domine pour les fortes énergies de collision [50]. Le  $Q$  de la réaction et l'impulsion échangée entre le projectile et la cible durant la collision ont été mesurées dans des collisions à basse énergie (19 eV/u et 48 eV/u) entre un projectile  $Kr^{8+}$  et une cible de  $N_2$  [66–68]. Ces mesures ont permis de conclure que le  $Q$  de la réaction et l'angle de diffusion induit par l'échange d'impulsion augmente avec la charge des fragments ioniques produits. Ces mesures ont montré également que l'angle de diffusion augmente en diminuant l'énergie du projectile incident dû au fait que le projectile passe un temps plus long en interaction avec la cible.

Des mesures ont été dédiées à l'étude de la dépendance des sections efficaces des processus primaires avec l'orientation de la molécule par rapport à l'axe du faisceau [18]. Une forte dépendance a été observée en comparant les sections efficaces des processus primaires et la distribution en KER des fragments produits pour des orientations parallèle et perpendiculaire à l'axe du faisceau [16, 65, 116]. Cette dépendance est expliquée en utilisant un modèle géométrique montrant que l'effet de l'orientation de la molécule devient de plus en plus important pour les processus résultant de paramètres d'impact de l'ordre de grandeur de la taille de la molécule.

Des chercheurs ont également étudié la corrélation entre l'angle d'émission du fragment le plus chargé et le transfert d'impulsion au centre de masse. Dans le cas d'une cible de  $N_2$  et de projectiles très lents (quelques keV), Ehrich et al. [30] ont mis en évidence une diffusion du projectile favorisée pour la direction du fragment le moins chargé. L'explication est que la charge positive du projectile, en sortie de collision, joue un rôle attracteur pour les électrons du centre le plus éloigné. Cela va générer une délocalisation des électrons du centre le plus loin vers le centre le plus proche du projectile et va donc permettre de trouver plus d'électrons sur le centre le plus proche du projectile au moment de la collision.

En plus des mesures faites sur les processus primaires, une étape complémentaire consiste en l'étude du devenir de la molécule après interaction avec l'ion incident afin d'avoir une vue plus globale sur la collision ion/molécule covalente. Cette étude du devenir de la molécule nous permet de distinguer deux cas de figure : l'un est le cas dissociatif et l'autre est le cas non-dissociatif. On trouve, dans le cas dissociatif, les réactions pour lesquelles la cible se relaxe en deux fragments chargés (réaction 1.2.2a) ou en un fragment chargé et un fragment neutre (réaction 1.2.2b). Dans le cas non-dissociatif, la molécule reste liée (réaction 1.2.2c). On va s'intéresser ici uniquement au cas des voies de fragmentation en deux fragments chargés comme dans le cas de la réaction 1.2.2a.

État initial  $\rightarrow$  État final



L'étude de la fragmentation des molécules à liaison covalente induite par collision à basse énergie [31, 33, 35] et à haute énergie [13, 29, 105] a permis de déterminer l'énergie cinétique libérée (KER) des deux fragments ioniques produits. Plusieurs études ont montré qu'après collision avec des molécules à liaison covalente, la charge sur les différents fragments produits se redistribue de sorte à favoriser des voies de fragmentations symétriques (avec des charges réparties de façon quasi-égale sur les deux fragments [10, 30]). Cela est expliqué par la grande mobilité électronique existant entre les deux centres de la molécule covalente. Autrement dit, les électrons de valence sont suffisamment délocalisés entre les différents centres de la molécule pour permettre un réarrangement réduisant l'asymétrie de charge avant fragmentation.

### 1.2.3 Cas des Dimères de Gaz Rare

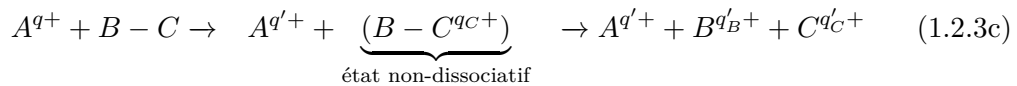
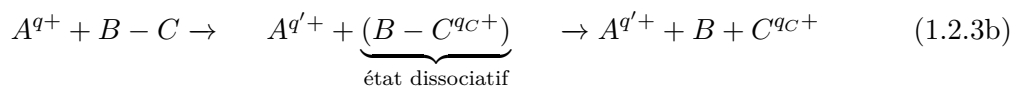
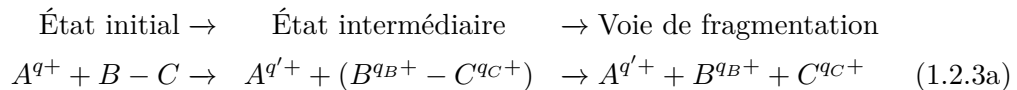
En plus des collisions entre des ions projectiles et des molécules à liaison covalente, d'autres études utilisant des cibles de dimère de gaz rare ont été menées pour voir l'effet de la liaison (Covalente vs Van-der-Waals) sur la dynamique de la collision. Comme mentionné dans le paragraphe 1.1, les principales différences entre des molécules à liaisons covalentes et des dimères à liaisons de Van-der-Waals se résument à deux choses : l'une est la distance internucléaire et l'autre l'énergie de liaisons entre les deux noyaux de la molécule diatomique (Tab.1.1). Ces deux caractéristiques de la liaison de Van-der-Waals et covalente vont contribuer d'une manière différente à la cinématique de la collision ainsi qu'à la relaxation de la molécule d'où la nécessité de cette étude.

Plusieurs expériences ont été réalisées sur des collisions ion/dimère. Parmi ces expériences, on trouve les études de collision à moyenne et haute énergie faites sur des dimères d'He, de Ne et d'Ar [69, 70, 111]. Ces études ont porté sur la détermination des processus de relaxation en mesurant la distribution en énergie cinétique des électrons émis de la cible et en KER des fragments produits. Des études de collision à basse énergie ont

été également faites sur des dimères d'Ar [81] pour mesurer l'énergie cinétique libérée (KER) par fragmentation et pour déterminer la production relative des différentes voies de fragmentation et processus de relaxation. Ces mesures ont permis de voir comment les électrons sont capturés de chacun des deux centres du dimère et d'étudier la dynamique des électrons en termes de transfert de charge avec le projectile et en termes d'échange d'électrons entre les deux centres du dimère. Un comportement à l'opposé des résultats obtenus avec des molécules covalentes a été observé avec les dimères d'Ar, en favorisant des voies de fragmentation asymétriques. La distribution en KER des voies de fragmentation a permis d'identifier les processus de capture d'un seul site et les processus de capture des deux sites du dimère. Ces deux observations résultent de la faible mobilité des électrons entre les deux sites du dimère contrairement au cas des molécules covalentes.

Comme discuté dans le paragraphe 1.2, la collision ion/dimère peut être décrite en deux étapes ; la première concerne les processus primaires (la capture et/ou l'ionisation et/ou l'excitation des électrons de la cible) et la deuxième correspond au devenir de la cible. On a vu aussi qu'il y a trois cas de réaction. Le premier conduit directement, après interaction avec le projectile, à un état moléculaire dissociatif pour créer deux fragments chargés (réaction 1.2.3a) ou un fragment chargé et un neutre (réaction 1.2.3b). Le deuxième, pour lequel il existe une différence entre les molécules covalentes et les dimères de gaz rare, est la production d'une voie non-dissociative intermédiaire. Dans le cas d'une liaison covalente, la molécule dans un état non-dissociatif va conserver sa liaison (réaction 1.2.2c) tandis que dans le cas d'une liaison de Van-der-Waals, le dimère peut conserver la liaison mais après la collision peut se relaxer en échangeant un électron et/ou de l'énergie entre les deux centres du dimère pour passer à une voie dissociative en deux fragments (réaction 1.2.3c).

Ce comportement, qui fait passer d'un état non-dissociatif vers un état dissociatif par le biais d'un processus de relaxation, est une des caractéristiques des dimères de gaz rare et est dû au fait que les deux atomes du dimère ne partagent pas d'électrons ce qui permet de pouvoir séparer la production d'une voie dissociative directe ou par le biais d'un état non-dissociatif. Cette distinction n'est pas possible dans le cas d'une molécule covalente pour lequel la forte mobilité électronique rend impossible une telle étude. Cette particularité présente dans les dimères de gaz rare constitue une grande partie de cette thèse (Sec.5.1 et 5.2) et permet d'étudier et d'identifier la transition ou le processus de dissociation qui a eu lieu pour faire passer d'un état initial (interaction ion/dimère) à un état intermédiaire (voie de capture) pour arriver à l'état final (voie de fragmentation).



## Mécanismes de Relaxation

Grâce à la faible mobilité électronique, elle-même liée au fait que le dimère peut être considéré comme deux atomes indépendants, on a une chance d'avoir accès à une signature du processus primaire puis du processus de relaxation qui précède la fragmentation.

Quand un atome du dimère perd un électron de couche interne, il peut se désexciter par la transition d'un électron de valence vers le trou de la couche interne. Si l'énergie potentielle libérée dans ce changement de couche n'est pas suffisante pour ioniser un autre électron de valence, un photon sera émis ou un électron sera excité. Au contraire, si cette énergie est plus grande ou égale à l'énergie d'ionisation d'un électron de valence, un électron sera émis vers le continuum par effet Auger. Ces deux processus (émission de photon et/ou effet Auger) peuvent être aussi observés dans d'autres cas pour lesquels le projectile excite un ou plusieurs électrons de la cible. En plus de la présence de ces deux processus d'émission de photon et d'électron vers le continuum, d'autres processus entrent en compétition à cause de la relation donneur/accepteur existant entre les différents composants atomiques du dimère. On peut y observer l'échange de photons, d'électrons ou bien des deux entre les deux centres du dimère.

Comme mentionné auparavant, on peut rencontrer deux cas de figure pour la production de deux fragments chargés après interaction ion/dimère. D'une part, pour les transitions directes de l'état fondamental vers un état dissociatif (réaction 1.2.3a), dans lequel le projectile retire des électrons des deux centres du dimère, on va pouvoir détecter deux fragments ioniques. Nous appellerons ce processus Explosion Coulombienne (CE). D'autre part, pour les transitions de l'état fondamental vers un état non-dissociatif, où le projectile ne retire des électrons que d'un seul des deux centres du dimère, une étape de relaxation intermédiaire est nécessaire pour conduire à la dissociation en deux fragments ioniques de l'ion moléculaire (réaction 1.2.3c). Ces processus seront classés selon le processus de relaxation qui a eu lieu.

Parmi ces processus de relaxation, on peut rencontrer le cas où une transition de l'état non-dissociatif vers un état dissociatif de l'ion moléculaire peut avoir lieu via l'échange d'un électron du centre neutre vers le centre ionisé du dimère. La différence entre l'énergie de liaison de l'électron vers le centre neutre et vers le centre ionisé peut être utilisée sous plusieurs formes. Premièrement, cette énergie libérée par l'échange d'électron peut être émis sous forme d'un photon vers le continuum. C'est le processus de Transfert de Charge Radiatif (RCT) [62]. Deuxièmement, cette énergie libérée peut exciter un autre électron d'un des deux centres du dimère. C'est le processus de Transfert de Charge non-radiatif (CT). Troisièmement, cette énergie libérée peut servir pour ioniser un électron d'un des deux centres. C'est le processus Electron Transfer Mediated Decay (ETMD) [123] (Fig.1.3).

D'autres processus de relaxation peuvent également être produits impliquant un transfert d'énergie entre les deux centres du dimère. On peut citer par exemple le processus d'Interatomic (ou Intermolecular) Coulombic Decay (ICD) [19] qui fait intervenir l'échange d'un photon virtuel.

On a vu dans l'équation 1.2.1 que l'énergie libérée par fragmentation est inversement proportionnelle à la distance internucléaire avant dissociation des deux noyaux du dimère.

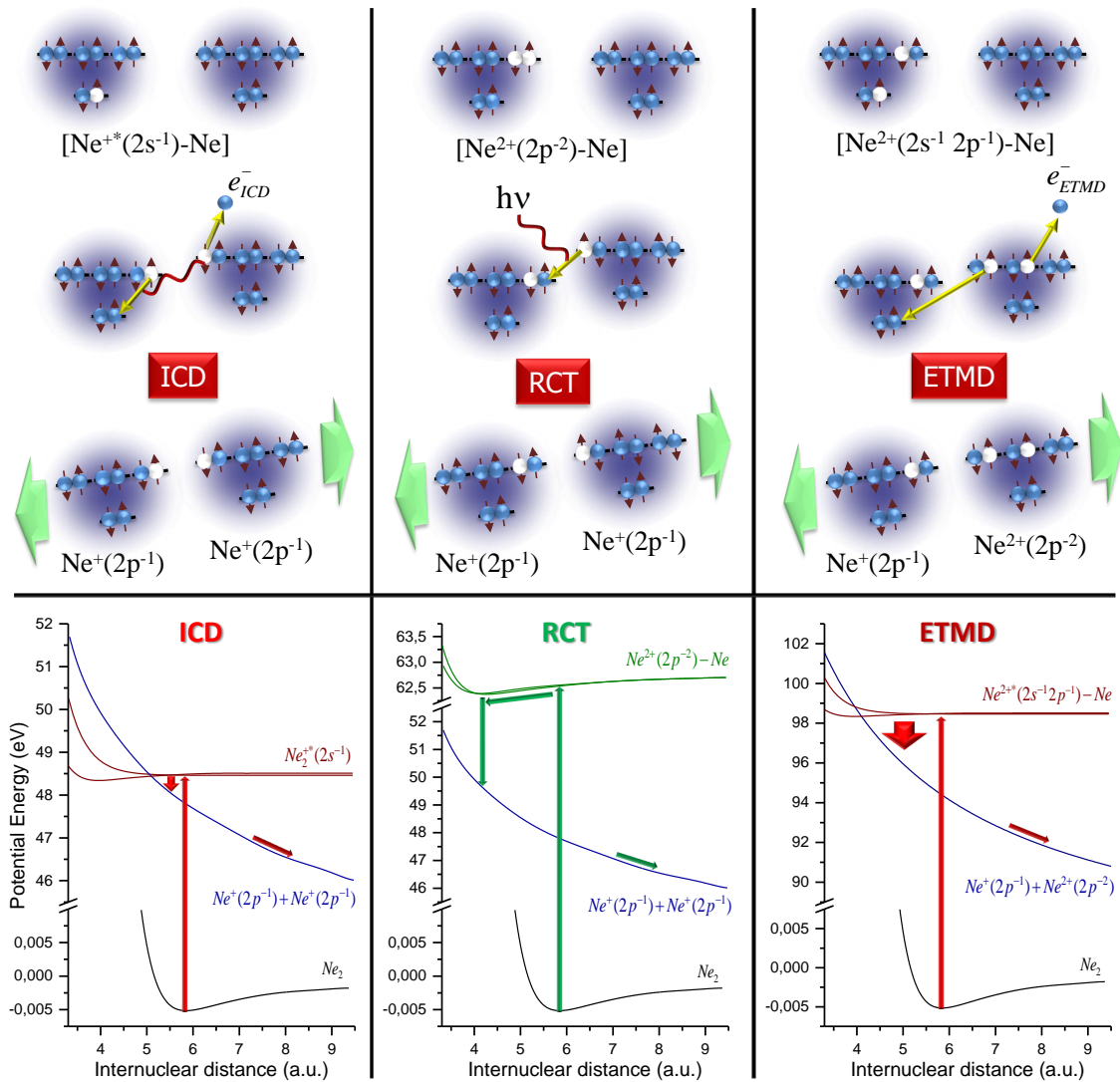


FIGURE 1.3 – Présentation schématique et courbes d'énergie potentielle de la production des processus ICD, RCT et ETMD du dimère de Ne.

Sur la Fig. 1.3, on voit que la dissociation suivant chaque processus est initiée à des distances internucléaires différentes. Cela permet d'identifier expérimentalement lequel des processus a contribué à la voie de fragmentation en utilisant la distribution en KER (Sec.5.1).

### Interatomic Coulombic Decay (ICD)

Le processus ICD a été prédit pour la première fois en 1997 [19]. Son existence a été confirmé expérimentalement en photoionisation pour les agrégats et dimères de Néon en utilisant plusieurs techniques [56, 80, 90], puis pour d'autres dimères de gaz rare [5, 48] et enfin pour des dimères moléculaires comme le  $(\text{H}_2\text{O})_2$  [59, 84]. Ce processus correspond à la transition d'un état excité vers un état ionisé dissociatif pour lequel l'énergie d'excitation d'un centre est transférée au deuxième centre dont un électron peut alors être éjecté vers le continuum. Deux scénarios peuvent permettre de produire le processus ICD. D'une part, nous avons les cas où le projectile retire simplement un électron de couche interne

d'un atome ou d'une molécule du dimère. L'énergie libérée par relaxation d'un électron de valence vers le trou formé en couche interne est transférée vers le deuxième centre du dimère et peut suffire à ioniser un électron de valence de ce dernier (ex.  $\text{Ne}_2$  [56, 80] présenté dans Fig.1.3 et  $(\text{H}_2\text{O})_2$  [59, 110]). D'autre part, nous avons les cas où le projectile retire un électron de valence tout en excitant un autre électron de valence du même centre du dimère. L'énergie libérée par le retour de l'électron excité vers le trou en couche de valence est transférée vers le deuxième centre d'où un électron est émis dans le continuum (ex.  $\text{Ar}_2$  [72, 76] et  $\text{He}_2$  [47, 106]). Avant notre étude, ces deux cas de production du processus ICD avait été observés en photoionisation ainsi que dans des collisions utilisant des ions projectiles de moyenne et haute énergie [70].

De nombreuses publications et plusieurs revues [48, 60] ont été dédiées à l'étude du processus ICD ainsi qu'à son rôle dans plusieurs domaines de la Physique, de la Chimie et de la Biologie. Plusieurs études ont suggéré une implication importante de l'ICD dans l'endommagement des cellules par irradiation. Ces études ont montré que l'électron secondaire (généralement de faible énergie) émis par le processus ICD peut permettre de briser des liaisons simples et doubles de l'ADN causant ainsi des mutations et la production de cellules cancéreuses [3, 12, 45]. Récemment, une étude théorique a prédit que le processus ICD pourrait être utilisé comme un mécanisme pour réparer les molécules d'ADN [46]. Le processus ICD joue également un rôle dans le domaine des "Quantum dots" où il participe aux mécanismes de relaxation [6, 7, 23].

### Étude du paramètre d'impact et de l'orientation de la molécule

Comme nous l'avons vu, la mesure du KER associé à une voie de fragmentation peut permettre de déterminer le processus de relaxation précédent la dissociation, et donc, de donner accès à l'état de l'ion moléculaire produit par la collision.

Pour étudier plus en détail le processus primaire, la collision proprement dite, on peut s'intéresser au rôle de l'angle entre le vecteur paramètre d'impact et l'orientation de la molécule sur la production des processus de dissociation. Cette étude va nous permettre d'avoir une vue détaillée des trajectoires du projectile, par rapport aux deux centres de la cible, contribuant à chaque processus de relaxation.

Plusieurs études théoriques et expérimentales ont déjà été menées sur la dépendance à l'orientation de la molécule par rapport à la direction du faisceau sur la production des processus de dissociation et des voies de fragmentation dans des collisions entre des ions à moyenne énergie et des dimères de gaz rare [71, 111]. Ces études ont montré que le projectile favorise une capture d'électrons ou une ionisation des deux sites du dimère pour des orientations de la molécule parallèles à l'axe du faisceau tandis que la capture d'électrons ou l'ionisation d'un seul site du dimère est favorisée pour des orientations perpendiculaires à l'axe du faisceau.

Une étude plus poussée sur la collision peut être faite en se basant sur la distance d'approche minimale entre le projectile et le centre de masse de la cible appelée paramètre d'impact. Pour des cibles atomiques, le nombre d'électrons retirés de la cible dépend largement du paramètre d'impact. L'échange d'impulsion entre le projectile et la cible dû à la

répulsion coulombienne entre leur charge effective durant la collision dépend également du paramètre d'impact et du nombre d'électrons retirés à la cible. Plus le projectile est proche de la cible, plus il y aura d'échange d'impulsion projectile/cible. L'énergie du projectile incident a également un effet sur l'impulsion échangée. Généralement, plus l'énergie de la collision est petite, plus il y a d'échange de quantité de mouvement entre le projectile et la cible. Expérimentalement, la détermination conjointe de la charge de la cible et de l'impulsion échangée permet d'avoir un accès indirect au paramètre d'impact dans des collisions ion/atome. Pour des collisions à haute énergie conduisant à l'ionisation de la cible, il y a peu d'échange de quantité de mouvement, et une partie de cette quantité de mouvement est communiquée à l'électron éjecté. Il devient alors difficile de déterminer le paramètre d'impact dans des collisions à haute énergie.

Dans le cas d'un dimère de gaz rare, ce lien entre paramètre d'impact et production des processus de relaxation devient plus complexe. D'une part, on brise la symétrie sphérique de la cible et d'autre part, on doit prendre en compte non seulement la distance du projectile au centre de masse du dimère, mais également l'orientation de ce dernier par rapport à l'axe faisceau pour établir le lien avec la production des processus primaires sur chaque centre du dimère (ou processus de relaxation). En parallèle, ces trois paramètres (paramètre d'impact, orientation de la molécule et processus primaire) sont indispensables pour avoir accès à l'échange d'impulsion entre le projectile et les deux centres du dimère durant la collision. Expérimentalement, la mesure de l'énergie cinétique libérée après fragmentation est essentielle pour déterminer le processus de relaxation qui a eu lieu. Les mesures conjointes de l'orientation de la molécule et du vecteur quantité de mouvement échangé entre le projectile et la cible sont aussi requises pour avoir accès au vecteur paramètre d'impact de la collision.

Pour des collisions à basse énergie, le processus de capture électronique domine, et la quantité de mouvement transférée à la cible par le projectile, qui est plus importante que dans le cas de collision à haute énergie, devient mesurable. La composante transverse de ce vecteur quantité de mouvement permet de déterminer l'angle de diffusion ( $\phi_{proj}$ ) du projectile dans le plan azimutal. La mesure expérimentale de l'angle  $\phi_{proj}$ , de l'angle d'orientation du dimère ainsi que la détermination du processus de relaxation peuvent permettre de répondre à plusieurs questions sur la cinématique de la collision. Notamment, la corrélation entre la direction du projectile diffusé et la direction des fragments émis peut indiquer si le projectile est bien diffusé du côté du centre le plus chargé du dimère avant dissociation. Cela correspondrait à une probabilité de capture plus importante sur le centre du dimère le plus proche de la trajectoire du projectile. Ces observables expérimentales sont aussi très contraignantes pour les modèles théoriques. Une confrontation théorie/expérience peut donc permettre de valider certaines approximations telles que celle qui consiste à traiter le dimère comme deux atomes indépendants pendant la collision.

Ces études vont être exploitées théoriquement et expérimentalement dans les Sec. 5.3 et 5.4 afin d'obtenir une image la plus complète possible des processus de collision et de relaxation impliqués dans les systèmes étudiés.





# Chapitre 2

## Calculs Théoriques

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>19</b>
<b>2.2</b>	<b>Modèle de la Barrière Coulombienne (COBM)</b>	<b>20</b>
2.2.1	Cas d'une Cible Atomique	20
	Simulation Monte-Carlo	24
	Calcul de l'échange de quantité de mouvement entre le projectile et la cible	24
2.2.2	Cas d'une Cible Moléculaire de Dimères de Gaz Rare	28
<b>2.3</b>	<b>Conclusion</b>	<b>30</b>

---

### 2.1 Introduction

Les collisions ion-atome et ion-molécule impliquant les processus d'ionisation, d'excitation et de capture d'électrons ont attiré l'attention des chercheurs depuis plusieurs décennies [28], et cela dans plusieurs domaines, allant de la recherche fondamentale [88, 96, 112] aux applications en astrophysique [27], en fusion thermonucléaire [55], en radiobiologie et bien d'autres. D'un point de vue théorique, la dynamique de la collision est un processus complexe à décrire à cause des différents chemins de réaction entrant en jeu, des différents processus pouvant intervenir, du grand nombre de corps à prendre en compte, et de leurs interactions (noyau-électron, noyau-noyau et électron-électron).

Décrire théoriquement la dynamique de la collision est un enjeu majeur pour mieux comprendre et prédire les résultats expérimentaux. L'objectif des modèles théoriques est donc de donner accès à plusieurs observables d'intérêt, afin d'obtenir une image la plus complète possible de la collision, et de pouvoir les confronter à l'expérience. Parmi les observables d'intérêt, on trouve les sections efficaces de peuplement des différentes voies de capture, d'excitation ou d'ionisation des électrons de la cible. On peut également calculer le défaut d'énergie entre l'état initial et l'état final de la réaction, afin de remonter au  $Q$  de réaction (l'inélasticité de la collision), ou même encore à l'échange de quantité de mouvement entre le projectile et la cible. On peut également s'intéresser à l'étude des processus de relaxation survenant après une collision, tels que l'effet Auger, par exemple.

Il est aujourd’hui essentiel, pour un système collisionnel donné, de pouvoir décrire avec précision tous les processus sous-jacents, et d’avoir une vision approfondie de l’évolution des différentes observables avec la nature du projectile et de la cible.

Dans ce chapitre, nous allons présenter en détail le modèle de simulation développé et utilisé ici pour traiter les collisions ion/dimère à basse énergie. Il s’agit dans un premier temps de traiter une collision entre un projectile multichargé de basse énergie et des cibles atomiques, et dans un second temps d’adapter le modèle à des systèmes à trois corps, afin de traiter une collision projectile/cible de dimère de gaz rare. Nous détaillerons également les observables qui nous sont accessibles et qui seront confrontées aux résultats expérimentaux dans le chapitre 5 afin de tester la validité du modèle

## 2.2 Modèle de la Barrière Coulombienne (COBM)

Plusieurs modèles théoriques de collision ont été développés au cours des dernières décennies [25, 36, 88, 97] afin d’avoir un outil complet qui permette d’expliquer la plus grande partie des résultats expérimentaux. Parmi ces modèles, on trouve le modèle de la barrière coulombienne qui est utilisé pour traiter une collision à basse énergie entre des ions multichargés et des atomes cibles composés de plusieurs électrons. Ce modèle a été introduit par Ryufuku et al. [100] pour traiter la simple capture d’électrons par des ions multichargés. Ensuite, Barany et al. [8] ont développé ce modèle afin d’étudier la capture multiple d’électrons. Le traitement de la collision dans la version de Barany a cependant montré ses limites quand il s’est agi d’une étude en fonction de l’état de charge du projectile. Cette version ne prend en compte que la voie d’entrée de la collision en considérant que tous les électrons molécularisés entre le projectile et la cible seront finalement capturés par le projectile, avec une probabilité de capture de 100%, quelle que soit la charge du projectile. Pour remédier à ce problème et calculer la probabilité de capture en voie de sortie de la collision, A. Niehaus [86] a modifié le modèle en estimant les nombres quantiques principaux de l’électron une fois capturé par le projectile ou recapturé par la cible. C’est de cette dernière version que sont inspirés nos calculs.

Plusieurs observables peuvent être obtenues par ce modèle afin d’être confronté avec l’expérience. En plus de la prédiction de la section efficace de capture d’électrons, ce modèle permet d’estimer le  $Q$  de réaction, défini comme la différence entre l’énergie de liaison des électrons avant et après la collision [86, 88]. Moyennant quelques adaptations, ce modèle permet aussi d’estimer l’angle de diffusion du projectile ou l’échange de la quantité de mouvement transverse générée par la répulsion coulombienne entre la cible et le projectile durant la collision [42, 87].

### 2.2.1 Cas d’une Cible Atomique

Le calcul basé sur le modèle COBM traite la collision entre le projectile  $A^{q+}$  et la cible  $B$  en deux parties qui sont dénommées la voie d’entrée et la voie de sortie (Fig.2.1 et 2.3). Ces deux voies décrivent complètement la réaction suivante



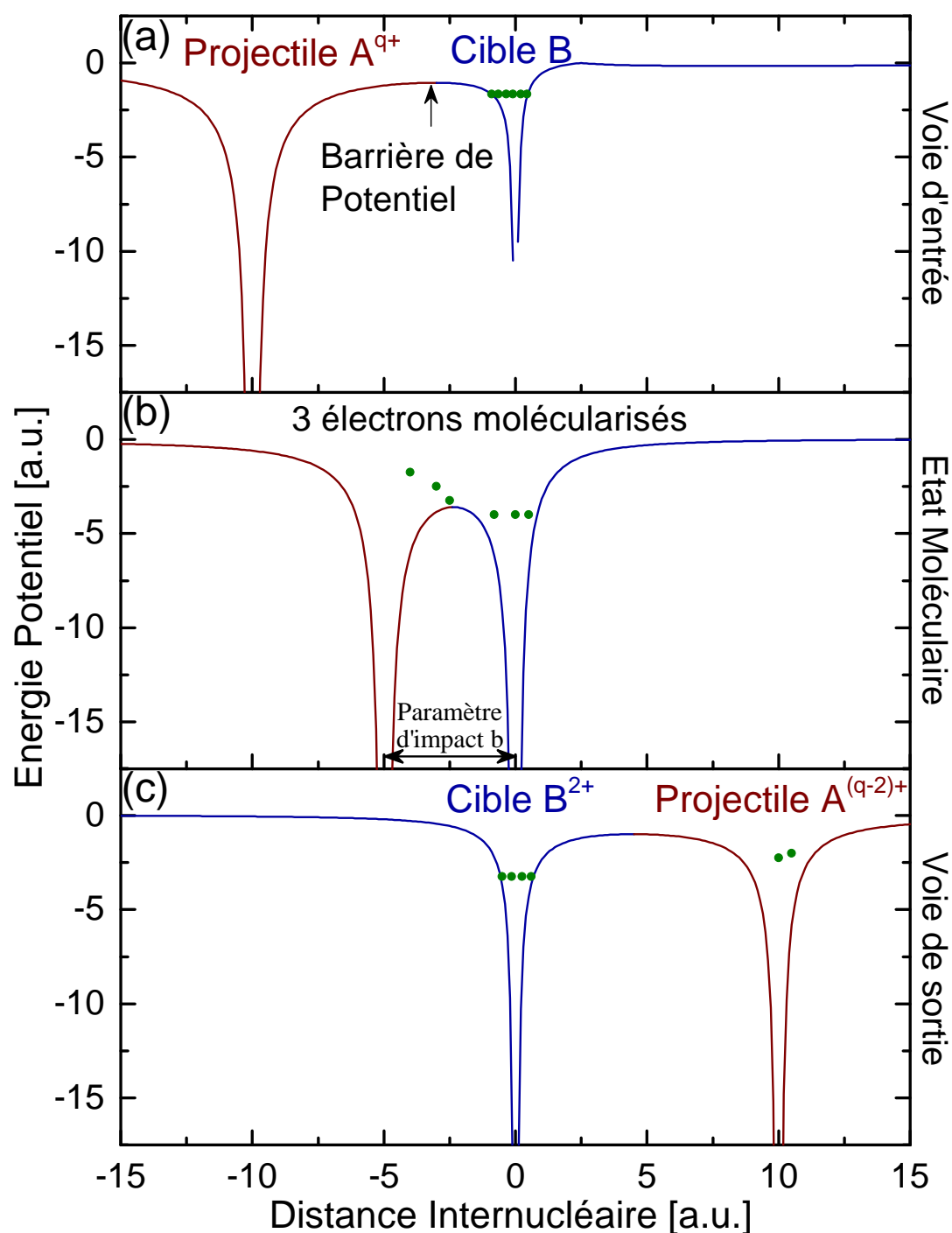


FIGURE 2.1 – Représentation schématique du modèle de la barrière coulombienne appliqué au traitement de la collision entre un projectile  $A^{q+}$  et une cible B. Dans la voie d'entrée de la collision, l'approche de l'ion incident permet de baisser la barrière de potentiel entre le projectile et la cible (a). À une distance internucléaire donnée, la barrière de potentiel devient inférieure aux énergies de liaison des électrons de valence de la cible B. Ces électrons vont ainsi se déplacer entre les deux centres projectile/cible formant ainsi un état moléculaire (b). Dans la voie de sortie et après le point d'approche minimale  $||\vec{b}||$ , le projectile va s'éloigner de la cible engendrant une augmentation de la barrière de potentiel. À une distance internucléaire donnée, chaque électron molécularisé va donc être soit capturé par le projectile, soit recapturé par la cible (c).

en traitant un à un la libération des électrons actifs de leur orbitale autour de la cible, et en estimant ensuite la probabilité de transfert de ces électrons actifs vers le projectile. Avant la collision, quand l'interaction entre le projectile et la cible est négligeable, les électrons de la cible voient une barrière de potentiel qu'ils ne peuvent pas franchir (sauf par effet Tunnel). Lorsque le projectile se rapproche de la cible, l'interaction devient de plus en plus importante jusqu'au moment où un ou plusieurs électrons vont occuper des états moléculaire du système, c'est-à-dire partagés entre le projectile et la cible. Dans ce modèle, on ne prend pas en compte l'effet tunnel, et le projectile est considéré avoir une trajectoire rectiligne.

Dans la voie d'entrée (Fig.2.1(a)), quand le projectile s'approche de la cible, la barrière coulombienne entre les deux partenaires de la collision s'abaisse avec la distance internucléaire. La molécularisation d'un électron devient possible quand son énergie de liaison à la cible devient égale ou inférieure à l'énergie du sommet de la barrière. Cette énergie maximale est atteinte pour chaque électron actif quand le projectile et la cible sont à une distance critique appelée rayon de capture. Dans le modèle de Niehaus, les électrons molécularisés ne contribuent pas à l'effet d'écrantage entre les noyaux de la cible et du projectile. Ce qui veut dire que, durant la collision, la charge effective du projectile  $q$  reste la même tout au long de la voie d'entrée de la collision, sans être affectée par ces électrons molécularisés. Cependant, la charge de la cible  $i$  augmente d'une unité pour chaque électron partagé avec le projectile. Pour chaque électron actif numéroté  $i$ , le rayon de capture  $R_i^{in}$  est estimé en utilisant son énergie d'ionisation  $I_i$  avec la cible et la charge initiale  $q$  du projectile (Eq.2.2.1a). Pour simplifier l'écriture des équations, nous allons utiliser le système d'unités atomiques dans ce chapitre.

$$R_i^{in} = \frac{i + 2\sqrt{qi}}{I_i} \quad (2.2.1a)$$

$$R_i^{out} = R_i^{in} \frac{\sqrt{q - c_i} + \sqrt{i + c_i}}{\sqrt{q} + \sqrt{i}}. \quad (2.2.1b)$$

Une fois dans un état moléculaire (Fig.2.1(b)), l'énergie de liaison de l'électron  $i$  sous l'effet de la charge du projectile et de la cible devient :

$$E_i^{mol} = I_i + \frac{q}{R_i^{in}} \quad (2.2.2)$$

Le nombre d'électrons maximal qui peuvent être molécularisés ne dépend pas seulement de l'énergie de liaison avec la cible et la charge du projectile mais aussi de la distance d'approche minimale qui est le paramètre d'impact  $||\vec{b}||$  entre le projectile et la cible. En connaissant le paramètre d'impact et en déterminant les rayons de capture des électrons de la cible, on peut estimer le nombre d'électrons maximal qui peuvent être molécularisés et donc qui peuvent passer la barrière minimale atteinte à la distance minimale  $||\vec{b}||$ . C'est à cette distance minimale que s'effectue la transition entre la voie d'entrée et la voie de sortie de la collision.

Dans la voie de sortie (Fig.2.1(c)), quand le projectile quitte la cible, la barrière coulombienne commence à augmenter avec la distance internucléaire entre le projectile et la

cible. Les électrons qui étaient partagés dans la voie d'entrée vont devoir passer sur le projectile ou sur la cible quand l'énergie de la barrière atteint à nouveau la valeur de l'énergie de liaison de l'électron  $i$  dans son état moléculaire (Eq.2.2.2). La distance critique  $R_i^{out}$  correspondant à cette énergie, pour chaque électron  $i$  molécularisé, peut être différente de la distance critique  $R_i^{in}$  calculée dans la voie d'entrée (Eq.2.2.1a). Cela est dû au changement possible de la charge de la cible et du projectile avant le traitement de l'électron  $i$  dans la voie de sortie. En effet, on considère que chaque capture par le projectile ayant lieu en voie de sortie va cette fois modifier à la fois la charge de la cible et celle du projectile. L'estimation de la distance critique en voie de sortie est donnée par la formule (Eq.2.2.1b) en tenant compte du nombre d'électrons capturés par le projectile  $c_i$  et du nombre d'électrons restant en état de molécularisation  $i$ . Comme mentionné précédemment, chaque électron molécularisé va devoir passer sur le projectile ou sur la cible quand cette distance critique est atteinte. La probabilité de capture par le projectile ou par la cible est alors quantifiée en utilisant l'état final que peut occuper l'électron. Cette probabilité  $P_i$ , donnée dans la formule (Eq.2.2.3a), tient compte du nombre quantique principal  $n_i$  (s'il est capturé par le projectile) et du nombre quantique principal  $m_i$  (s'il est recapturé par la cible).

$$P_i = \frac{n_i^2}{m_i^2 + n_i^2} \quad (2.2.3a)$$

$$n_i = \frac{q - c_i}{\sqrt{2E_i^{proj}}} \quad (2.2.3b)$$

$$m_i = \frac{i + c_i}{\sqrt{2E_i^{targ}}} - \frac{i + c_i}{\sqrt{2I_{i+c_i}}} + m_0. \quad (2.2.3c)$$

En utilisant le modèle de Bohr ( $E_n \propto 1/n^2$ ), ces nombres quantiques  $n_i$  et  $m_i$  peuvent être estimés en utilisant les deux formules (Eq.2.2.3b et 2.2.3c) avec  $m_0$  le nombre quantique principal de l'état fondamental de la cible qui est de 2 pour le néon et 3 pour l'argon. L'énergie de liaison finale de chaque électron  $i$ , une fois capturé par le projectile ou recapturé par la cible, est déterminée par les relations :

$$E_i^{proj} = E_i^{mol} - \frac{i + c_i}{R_i^{out}} \quad (2.2.4a)$$

$$E_i^{targ} = E_i^{mol} - \frac{q - c_i}{R_i^{out}}. \quad (2.2.4b)$$

Pour résumer, les électrons molécularisés dans la voie d'entrée sont traités dans l'ordre  $i$  allant de 1 à  $N_B$  où  $N_B$  est le nombre maximal d'électrons pouvant être molécularisés. Ces électrons mis en commun seront redistribués (selon la probabilité de capture de chaque électron) sur les deux partenaires projectile/cible dans la voie de sortie et seront traités dans l'ordre inverse de celui dans lequel ils ont été molécularisés ( $i$  allant de  $N_B$  à 1). Pour chaque électron  $i$  molécularisé à la distance  $R_i^{in}$ , la redistribution aura lieu à une distance  $R_i^{out}$  avec une probabilité  $P_i$  pour être capturé par le projectile et une probabilité  $(1-P_i)$  pour être recapturé par la cible. Toutes les formules utilisées précédemment sont issues de l'article de A. Niehaus [86].

### Simulation Monte-Carlo

Un traitement basé sur une simulation Monte-Carlo (MC) est combiné avec le modèle COBM pour la création des conditions initiales de la cible et du projectile. Pour le cas de collisions ion-atome, la simulation MC permet simplement de tirer de façon aléatoire les coordonnées du projectile notées  $A(x_A; y_A)$ . L'axe en  $z$  est la direction de propagation du projectile (trajectoire rectiligne suivant  $z$ ) tandis que le plan  $(x,y)$  est le plan transverse. La position de l'atome cible est fixée au centre du repère et est noté  $B(x_B=0; y_B=0; z_B=0)$ . Ensuite, le vecteur paramètre d'impact (approche minimale) peut être déterminé en utilisant les coordonnées du projectile et de la cible  $\vec{b}(x_A-x_B; y_A-y_B)$ . Comme nous le verrons, ce traitement Monte-Carlo permet également d'estimer de façon simple l'échange de quantité de mouvement entre la cible et le projectile.

La méthode de calcul décrite par Niehaus [86] permet d'intégrer directement les probabilités de capture et paramètres d'impact conduisant à une multiplicité de capture donnée. L'approche Monte-Carlo est tout autre. Pour chaque événement simulé, où le paramètre d'impact est tiré de façon aléatoire, on déterminera dans un premier temps les coordonnées successives de la trajectoire du projectile pour lesquelles des électrons de la cible sont molécularisés dans la voie d'entrée, à une distance  $R_i^{in}$  de la cible (Fig.2.3). La même chose est effectuée en voie de sortie, lorsque le projectile croise une sphère de rayon  $R_i^{out}$ . Pour chaque croisement de capture en voie de sortie, un tirage est alors effectué pour déterminer si l'électron  $i$  est capturé ou non par le projectile, en utilisant la probabilité donnée par la relation 2.2.3a. Chaque événement donne donc une multiplicité de capture unique, et c'est seulement après simulation de nombreuses trajectoires (typiquement de  $10^8$  événements simulés) que les sections efficaces de capture peuvent en être déduites. Quoique moins élégante que la méthode de Niehaus, cette technique de simulation permet de traiter des cibles plus complexes, comme nous le verrons dans la section 2.2.2.

### Calcul de l'échange de quantité de mouvement entre le projectile et la cible

Pour avoir accès à plus d'informations sur la dynamique de la collision, l'échange de quantité de mouvement longitudinale et transverse est aussi calculée en utilisant la répulsion coulombienne durant la collision entre le projectile et la cible. Ces informations sont connectées à l'angle de diffusion du projectile, ce qui permet d'avoir une comparaison et une compréhension plus complète des résultats expérimentaux.

Dès que le projectile commence à partager des électrons avec la cible, les deux partenaires de la collision vont exercer l'un sur l'autre une force de répulsion liée à leur charge effective. Cette répulsion va produire un échange de quantité de mouvement entre le projectile et l'ion de recul (Fig.2.2). Plus il y a d'électrons molécularisés, plus la répulsion coulombienne devient grande et plus l'échange de quantité de mouvement est important.

L'estimation de l'échange de quantité de mouvement tout au long de la trajectoire du projectile se fait en trois étapes : la première en voie d'entrée, la seconde entre les voies d'entrée et de sortie, et enfin en voie de sortie (Fig.2.3). Le problème qui se pose est de choisir une charge effective réaliste pour les deux partenaires à chacune de ces étapes, en tenant compte du nombre d'électrons molécularisés et capturés. Pour cela, et dans

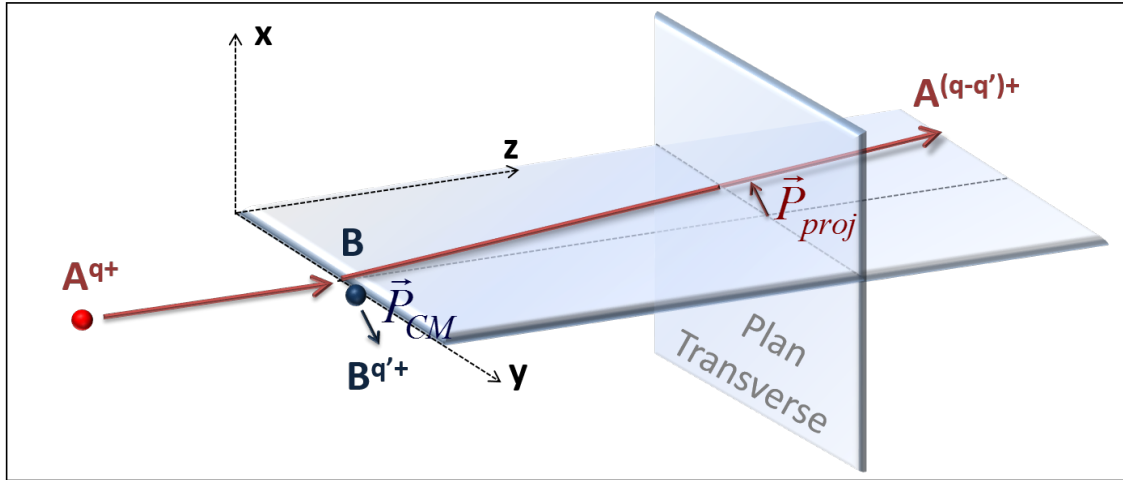


FIGURE 2.2 – Vu schématique de la collision entre un projectile  $A^{q+}$  et une cible B.  $A^{(q-q')+}$  est l'état final du projectile après captures de  $q'$  électrons de la cible qui devient  $B^{q'+}$ .  $\vec{P}_{proj} = -\vec{P}_{CM}$  est le vecteur quantité de mouvement échangé entre le projectile et la cible durant la collision par répulsion coulombienne.

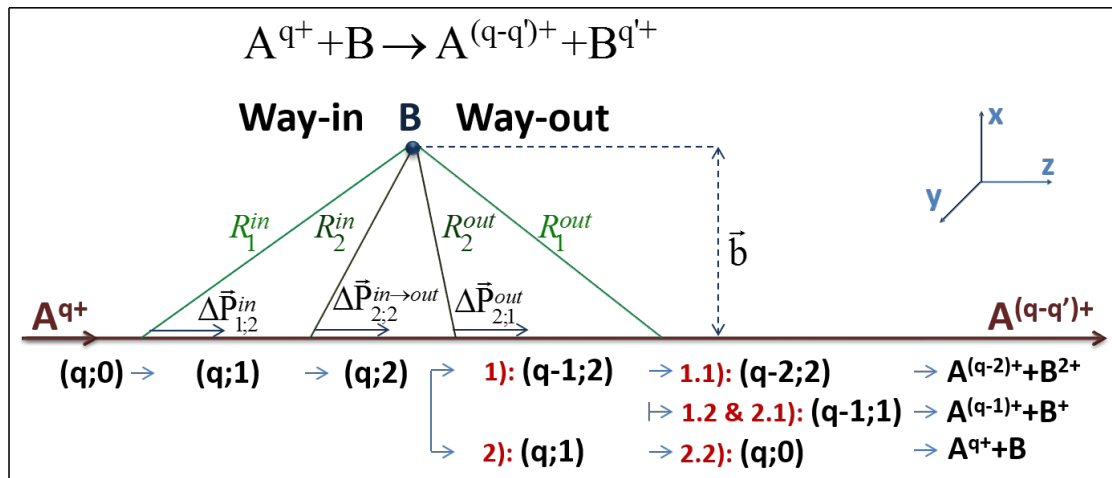


FIGURE 2.3 – Schéma de la collision entre un projectile  $A^{q+}$  et une cible B pour laquelle deux électrons sont impliqués dans la voie d'entrée et selon la probabilité de capture, 0 à 2 électrons pourront être capturés par le projectile dans la voie de sortie.  $R_i^{in}$  et  $R_i^{out}$  sont respectivement le rayon de molécularisation dans la voie d'entrée et le rayon de capture dans la voie de sortie. La paire  $(q;q')$  correspond à l'évolution de la charge du projectile et celle de la cible tout au long de chaque étape de la collision. La somme des  $\Delta\vec{P}$  vaut  $\vec{P}_{proj}$ , ils correspondent aux échanges de quantité de mouvement transverse à l'axe de la collision à chaque étape de l'interaction.



un premier temps, on va étudier le cas intermédiaire où on considère que la charge des électrons molécularisés est partagée de manière égale entre le projectile et la cible. En d'autres termes, on considère que la moitié de la charge des électrons molécularisés va contribuer à la charge du projectile et l'autre moitié à la charge de la cible pour le calcul de la répulsion coulombienne. Pour chaque étape entre l'électron (i) et (i+1) dans la voie d'entrée, l'échange de quantité de mouvement peut être alors estimé comme suit :

$$\Delta \vec{P}_{i;i+1}^{in} = \frac{(q - i/2)(i/2)(z_{i+1}^{in} - z_i^{in})}{v_{proj} * \|\vec{R}_{AB_i}\|^3} \vec{R}_{AB_i} \quad (2.2.5a)$$

Cette estimation tient compte de la vitesse initiale du projectile incident  $v_{proj}$  (suivant l'axe incident  $z$ ) qui est reliée directement au temps mis par le projectile pour parcourir chaque étape  $i \rightarrow i+1$ . Il tient compte également de la charge effective du projectile ( $(q-i/2)$ ), la charge effective de la cible ( $(i/2)$ ) et aussi de la position, suivant l'axe incident  $z$ , du projectile  $z_i^{in}$  pour le traitement de l'électron  $i$ . Le nombre total des étapes à calculer pour  $\Delta \vec{P}_{i;i+1}^{in}$  est de  $N_B-1$  dans la voie d'entrée de la collision où  $N_B$  est le nombre total des électrons molécularisés.  $\|\vec{R}_{AB_i}\|$  est la distance entre le projectile et la cible au moment du traitement de l'électron  $i$ . Comme  $R_{AB}$  change généralement peu pendant l'étape  $i \rightarrow i+1$ , on a fait l'approximation que  $R_{AB}$  est constant ( $R_{AB_i} \approx R_{AB_{i+1}}$ ) dans la fenêtre en position du projectile ( $z_i; z_{i+1}$ ).

Dans la deuxième partie traitant l'étape moléculaire entre la voie d'entrée et de sortie, le nombre total d'électrons molécularisés  $N_B$  est déterminé par le modèle COBM, ce qui va permettre d'avoir la charge effective du projectile égale à  $(q-N_B/2)$  et la charge effective de la cible égale à  $N_B/2$ . Le calcul de l'échange de quantité de mouvement devient :

$$\Delta \vec{P}_{N_B;N_B}^{in \rightarrow out} = \frac{(q - N_B/2)(N_B/2)(z_{N_B}^{out} - z_{N_B}^{in})}{v_{proj} * \|\vec{R}_{AB_{N_B}}\|^3} \vec{R}_{AB_{N_B}} \quad (2.2.5b)$$

en tenant compte de la vitesse du projectile et des positions  $z_i^{in}$  et  $z_i^{out}$  dans la voie d'entrée et de sortie, suivant l'axe  $z$  de l'électron numéroté  $i=N_B$ .

Finalement, dans la voie de sortie, où la charge de l'électron est comptée sur le projectile s'il est capturé ou sur la cible s'il est recapturé par cette dernière, le calcul d'échange de quantité de mouvement pour chacune des  $(N_B-1)$  étape devient :

$$\Delta \vec{P}_{i;i-1}^{out} = \frac{(q - c_i - (i - 1)/2)(c_i + (i - 1)/2)(z_{i-1}^{out} - z_i^{out})}{v_{proj} * \|\vec{R}_{AB_i}\|^3} * \vec{R}_{AB_i}. \quad (2.2.5c)$$

Comme précédemment, ce calcul tient compte de la vitesse, de la charge effective  $(q-c_i-(i-1)/2)$  et de la position  $z_i^{out}$  et  $z_{i-1}^{out}$  du projectile et aussi de la charge effective  $(c_i+(i-1)/2)$  de la cible pour l'étude de l'étape  $(i) \rightarrow (i-1)$ . Le nombre d'électrons capturés est noté  $c_i$  tandis que les électrons encore partagés est  $(i-1)$  et cela avant l'étude de l'étape  $(i) \rightarrow (i-1)$ .

Dans cette étude, la position du projectile tout au long de son interaction avec la cible notée  $z_i^{in}$  pour la voie d'entrée et  $z_i^{out}$  pour la voie de sortie peut être estimée en utilisant

les rayons de molécularisation  $R_i^{in}$  et de capture  $R_i^{out}$  (Eq.2.2.6).

$$z_i^{in;out} = z_B - \sqrt{(R_i^{in;out})^2 - (x_A - x_B)^2 - (y_A - y_B)^2}. \quad (2.2.6)$$

La distance entre le projectile et la cible au moment de la molécularisation en voie d'entrée ou au moment du traitement de capture en voie de sortie de l'électron  $i$  est simplement le rayon de molécularisation  $R_i^{in}$  ou de capture  $R_i^{out}$  :

$$\|\vec{R}_{AB_i}\| = R_i^{in;out}. \quad (2.2.7)$$

Pendant toute la durée de l'interaction entre le projectile et la cible, le vecteur quantité de mouvement totale  $\Delta\vec{P}$  est obtenu en faisant la somme des contributions de toutes les étapes ( $N_B-1$ ) de la voie d'entrée, de la voie de sortie, et de l'étape intermédiaire entre les deux voies.

$$\begin{aligned} \Delta\vec{P} &= \sum_{i=1}^{N_B-1} \Delta\vec{P}_{i;i+1}^{in} + \Delta\vec{P}_{N_B;N_B}^{in \rightarrow out} + \sum_{i=N_B}^2 \Delta\vec{P}_{i;i-1}^{out} \\ &= \Delta\vec{P}_x + \Delta\vec{P}_y + \Delta\vec{P}_z = \Delta\vec{P}_\perp + \Delta\vec{P}_{//}. \end{aligned} \quad (2.2.8)$$

où  $\Delta\vec{P}_\perp$  est la quantité de mouvement transverse dans le plan (x;y) perpendiculaire à l'axe z du faisceau et  $\Delta\vec{P}_{//}$  est la quantité de mouvement longitudinale suivant l'axe incident z.

Le cas étudié ici pour le calcul de la quantité de mouvement, en considérant que la charge des électrons molécularisés est partagée entre le projectile et la cible (écranage partiel), n'est pas le seul possible. En modifiant la répartition entre le projectile et la cible de la charge des électrons molécularisés, d'autres scénarios peuvent être envisagés dans cette simulation. Pour cela, on a testé les deux scénarios extrêmes pour lesquels on considère que la charge des électrons moléculaires est entièrement associée au projectile ou entièrement à la cible. Les formules (2.2.5a), (2.2.5b) et (2.2.5c) deviennent

$$\Delta\vec{P}_{i;i+1}^{in} = \frac{(q)(0)(z_{i+1}^{in} - z_i^{in})}{v_{proj} * \|\vec{R}_{AB_i}\|^3} \vec{R}_{AB_i} = \vec{0} \quad (2.2.9a)$$

$$\Delta\vec{P}_{N_B;N_B}^{in \rightarrow out} = \frac{(q)(0)(z_{N_B}^{out} - z_{N_B}^{in})}{v_{proj} * \|\vec{R}_{AB_{N_B}}\|^3} \vec{R}_{AB_{N_B}} = \vec{0} \quad (2.2.9b)$$

$$\Delta\vec{P}_{i;i-1}^{out} = \frac{(q - c_i)(c_i)(z_{i-1}^{out} - z_i^{out})}{v_{proj} * \|\vec{R}_{AB_i}\|^3} \vec{R}_{AB_i} \quad (2.2.9c)$$

pour le cas où les électrons restent sur la cible (la charge du projectile ou de la cible varie

seulement en voie de sortie, dans le cas où il y a eu capture d'électrons) et

$$\Delta \vec{P}_{i;i+1}^{in} = \frac{(q-i)(i)(z_{i+1}^{in} - z_i^{in})}{v_{proj} * \|\vec{R}_{AB_i}\|^3} \vec{R}_{AB_i} \quad (2.2.10a)$$

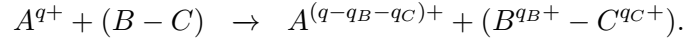
$$\Delta \vec{P}_{N_B;N_B}^{in \rightarrow out} = \frac{(q-N_B)(N_B)(z_{N_B}^{out} - z_{N_B}^{in})}{v_{proj} * \|\vec{R}_{AB_{N_B}}\|^3} \vec{R}_{AB_{N_B}} \quad (2.2.10b)$$

$$\Delta \vec{P}_{i;i-1}^{out} = \frac{(q-c_i - (i-1))(c_i + (i-1))(z_{i-1}^{out} - z_i^{out})}{v_{proj} * \|\vec{R}_{AB_i}\|^3} \vec{R}_{AB_i} \quad (2.2.10c)$$

pour le cas où les électrons sont associés au projectile dès qu'ils sont molécularisés dans la voie d'entrée de la collision.

### 2.2.2 Cas d'une Cible Moléculaire de Dimères de Gaz Rare

Dans ce paragraphe, on va traiter la réaction entre un projectile  $A^{q+}$  et une cible moléculaire composée de deux atomes B et C :



Afin d'adapter le modèle COBM à une collision avec des cibles moléculaires, et plus précisément avec des dimères de gaz rare, nous avons fait l'approximation que les dimères peuvent être traités comme deux atomes indépendants. Cette approximation est ici justifiée par la grande distance internucléaire qui sépare les deux centres (voir tableau 1.1) et par la faible mobilité des électrons de valence entre ces deux centres. En considérant les interactions du projectile avec chacun des deux centres du dimère comme étant totalement indépendantes, on peut utiliser la même approche que celle utilisée avec des collisions ion-atome. En d'autres termes, la collision de chaque projectile avec le dimère est traitée comme deux collisions quasi-indépendantes, l'une avec le premier centre et l'autre avec le deuxième centre. Dans le traitement de la collision, la seule influence de la présence d'un centre sur l'interaction du projectile avec l'autre centre est le changement de charge du projectile en voie de sortie. Quand le projectile capture des électrons d'un des deux centres, sa charge va diminuer et les rayons de molécularisation/capture des électrons du deuxième centre vont diminuer. Cela va affecter le traitement des électrons du deuxième centre qui ne sont pas encore molécularisés ainsi que celui des électrons qui vont être capturés. C'est notamment cette problématique, ainsi que les degrés de liberté supplémentaires liés à une cible comportant deux centres qui nous ont conduit à utiliser une méthode Monte-Carlo.

Dans un premier temps, le traitement MC-COBM de la collision ion-dimère doit tenir compte à la fois des trajectoires du projectile et des positions des deux centres du dimère (Fig.2.4). Pour le projectile, on a utilisé la même approche que précédemment dans la collision ion-atome, en tirant profit de la combinaison MC-COBM qui permet de générer la position du projectile dans le plan transverse (x,y). Pour la cible, cette simulation Monte-Carlo a permis de tirer aléatoirement et de façon isotrope l'orientation du dimère par rapport à son centre de masse qui est fixé à (0,0,0). Ce tirage aléatoire du  $\cos(\theta)$  et de l'angle  $\Phi$  qui caractérise l'orientation du dimère nous permet ensuite de déduire la position

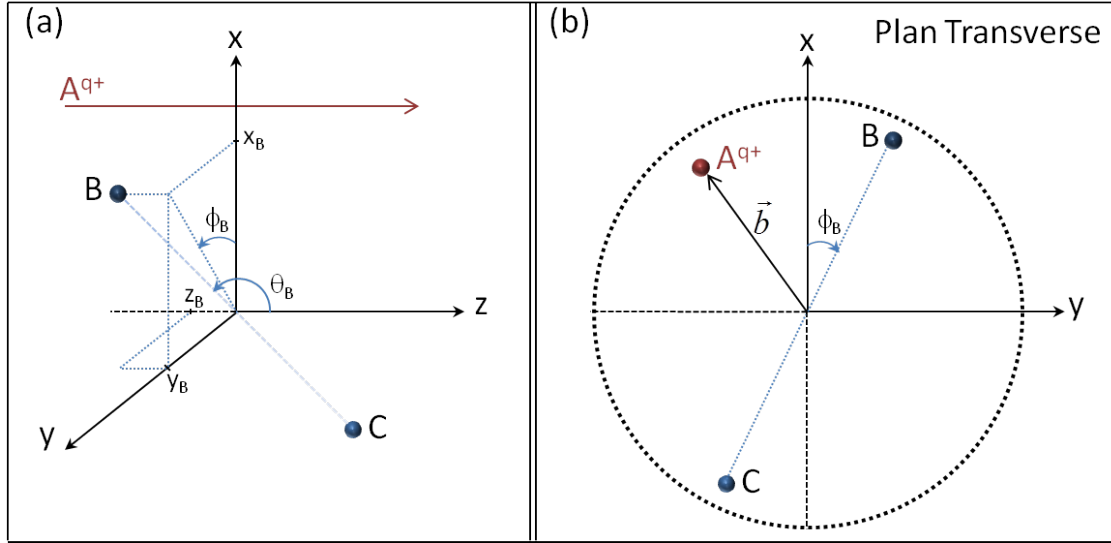


FIGURE 2.4 – Représentation géométrique de la collision entre un projectile  $A^{q+}$  et une cible moléculaire B-C dans le repère cartésien  $(x,y,z)$  (a) et dans le plan transverse  $(x;y)$  (b).  $(x_B; y_B; z_B)$  sont les coordonnées du centre B,  $\theta_B$  est l'angle de l'axe du dimère (orienté vers B) par rapport à l'axe z dans le repère  $(x;y;z)$  et  $\Phi_B$  est l'angle de la projection dans le plan transverse de l'axe du dimère (orienté vers B) par rapport à l'axe x. Le vecteur paramètre d'impact  $\vec{b}$  est aussi indiqué (b).

$(x;y;z)$  de chacun des deux centres en respectant la distance internucléaire du dimère noté  $d_{BC}$ .

$$\begin{aligned}
 \theta_B &= \arccos\left(\frac{z_B}{\sqrt{x_B^2 + y_B^2 + z_B^2}}\right) \\
 \Phi_B &= \arccos\left(\frac{x_B}{\sqrt{x_B^2 + y_B^2}}\right) \\
 z_B &= -z_C = d_{BC}/2 * \cos(\theta_B) \\
 y_B &= -y_C = d_{BC}/2 * \sin(\theta_B) * \sin(\Phi_B) \\
 x_B &= -x_C = d_{BC}/2 * \sin(\theta_B) * \cos(\Phi_B)
 \end{aligned} \tag{2.2.11}$$

Enfin, le paramètre d'impact, défini comme la distance d'approche minimale entre le projectile et le centre de masse du dimère, peut être déduit en utilisant les coordonnées du projectile  $(x_A, y_A)$  et celle du CM  $(0,0,0)$  :  $\vec{b}=(x_A, y_A)$ .

Une fois que l'on a généré les coordonnées du projectile et l'orientation du dimère, on passe au calcul COBM, comme présenté dans la section 2.2.1, mais cette fois-ci en traitant deux collisions quasi-indépendantes (comme mentionné auparavant, l'une avec le centre B et l'autre avec le centre C du dimère). Cela consiste à déterminer, dans la voie d'entrée, le nombre d'électrons molécularisés sur chaque centre du dimère ( $N_B; N_C$ ) et, dans la voie de sortie, le nombre d'électrons capturés afin d'avoir accès à la répartition de charge sur les deux centres du dimère ( $(q_B; q_C)_C$  appelée voie de capture). L'échange de quantité de mouvement est ensuite calculé séparément pour la collision avec le centre B ( $\Delta\vec{P}_{AB}$ )

et la collision avec le centre C ( $\Delta\vec{P}_{AC}$ ) en utilisant les formules de la section 2.2.1. La somme de ces deux vecteurs permet de calculer le vecteur quantité de mouvement total ( $\Delta\vec{P}=\Delta\vec{P}_{AB}+\Delta\vec{P}_{AC}=\Delta\vec{P}_{\perp}+\Delta\vec{P}_{//}$ ) échangé entre le projectile et chacun des deux centres du dimère. La composante transverse ( $\Delta\vec{P}_{\perp}=\Delta\vec{P}_x+\Delta\vec{P}_y$ ) permet ensuite de déterminer l'angle de diffusion total du projectile  $\Phi_{proj}$  dans le plan transverse (x;y) :

$$\Phi_{proj} = \arccos\left(\frac{\Delta P_x}{\sqrt{\Delta P_x^2 + \Delta P_y^2}}\right). \quad (2.2.12)$$

## 2.3 Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre le traitement COBM d'une collision ion/atome et la façon dont il a pu être adapté pour traiter l'interaction entre des ions multichargés et des dimères de gaz rare. Pour cela, nous avons considéré le dimère comme deux atomes indépendants fixés dans l'espace et nous avons combiné le modèle COBM à une simulation Monte-Carlo qui permet de générer la trajectoire du projectile ainsi que la position et l'orientation de la cible. Ces calculs donnent accès à la charge finale de chaque site du dimère, juste après la collision, en fonction du paramètre d'impact du projectile dans le repère du dimère. Pour chaque voie de capture, le calcul fournit également l'angle de diffusion du projectile dans le repère de la molécule.

Pour une confrontation aux résultats expérimentaux, plusieurs étapes supplémentaires ajoutées à ce modèle MC-COBM permettent de déterminer la voie de relaxation empruntée (mécanisme de dissociation) et de simuler la trajectoire des fragments en tenant compte de la résolution du dispositif expérimental (voir Sect.4.2). Ces étapes vont ensuite permettre à cette combinaison MC-COBM de donner accès non seulement à la production relative des voies de capture mais aussi à celle des voies de fragmentation (Sect.5.2). Pour chaque événement simulé, la connaissance du vecteur paramètre d'impact  $\vec{b}$  et de l'orientation de la molécule donnera également accès à la carte en 2D du  $P(\vec{b})$  (Sect.5.5), cartographie qui présente la probabilité de capture des électrons en fonction du vecteur paramètre d'impact dans le repère de la molécule. Pour chaque voie de capture, cette carte  $P(\vec{b})$  permet de voir la probabilité de capture des électrons pour chaque trajectoire du projectile par rapport au dimère afin d'étudier précisément la dépendance entre le vecteur paramètre d'impact et la distribution de charge sur chaque site du dimère [53]. Enfin, le calcul de l'échange de quantité de mouvement entre le projectile et les deux centres du dimère va permettre à ce modèle MC-COBM de déterminer l'angle de diffusion du projectile et d'étudier la corrélation angulaire entre le projectile diffusé et l'orientation du dimère pour chaque voie de capture (Sect.5.4).

# Chapitre 3

## Dispositif Expérimental

### Sommaire

---

<b>3.1 Faisceau d'Ions Multichargés : Production et Transport . . . . .</b>	<b>32</b>
<b>3.2 Spectromètre COLTRIMS . . . . .</b>	<b>33</b>
<b>3.3 Jet Supersonique . . . . .</b>	<b>35</b>
<b>3.4 Détecteurs . . . . .</b>	<b>38</b>
Galettes à Micro-Canaux . . . . .	38
Anodes à Lignes à Retard . . . . .	39
<b>3.5 Électronique et Système d'Acquisition . . . . .</b>	<b>40</b>

---

L'objet principal de cette thèse est l'étude de l'interaction entre des ions multichargés et des dimères de gaz rare. Nous nous sommes limités à des ions projectiles de basse énergie (de l'ordre de la dizaine ou la centaine de keV) pour lesquels la capture d'électron est le processus dominant. La cible de dimère de gaz rare est produite à l'aide d'un jet supersonique orienté perpendiculairement à l'axe du faisceau projectile incident. Dans la zone de collision, plusieurs électrons de la cible peuvent être capturés par le projectile incident ce qui permet de produire des états ioniques de la cible. Cette dernière va alors pouvoir se dissocier en deux fragments ioniques qui seront extraits par un champ électrique puis détectés. Plusieurs motivations scientifiques étaient à l'origine de cette expérience. D'une part, nous nous sommes intéressés aux caractéristiques de la cible, en étudiant les effets de la liaison de Van-der-Waals pour deux types d'atomes sur la dynamique de la collision, sur la production relative des différentes voies de fragmentation, sur les distributions angulaires des fragments ioniques et sur l'angle de diffusion du projectile. D'autre part, nous avons utilisé différents projectiles afin d'étudier l'effet de l'état de charge initial du projectile sur les différents processus de capture et de dissociation.

Les expériences présentées ici ont été effectuées au GANIL en utilisant des ions projectiles de basse énergie produits par une source ECR (Electron Cyclotron Resonance) installée sur une plateforme haute tension. Nous avons utilisé successivement trois différents projectiles  $O^{3+}$ ,  $Ar^{9+}$  et  $Xe^{20+}$  à une énergie de 15 qkeV afin d'interagir avec deux types de cibles moléculaires consistant en un jet supersonique de dimères de Ne ou de dimères d'Ar (Fig.3.1). Cette énergie de 15 qkeV correspond à une vitesse de 0.35 u.a. qui est inférieure à celle des électrons actifs de la cible, ce qui permet d'avoir une très large

dominance des processus de capture d'électrons de la cible vers le projectile. Pour notre étude, nous avons employé un dispositif COLTRIMS (COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy) comprenant deux détecteurs sensibles en temps et en position afin d'étudier en multi-coïncidence les informations obtenues, après la collision, sur les ions projectiles et les fragments ioniques. Une étude en fonction de l'état de charge final du projectile est aussi rendue possible en utilisant un déflecteur situé entre la région de collision et le détecteur des projectiles.

### 3.1 Faisceau d'Ions Multichargés : Production et Transport

Les ions projectiles utilisés dans cette expérience sont produits à l'aide d'une source ECR installée sur la ligne de faisceau ARIBE de l'accélérateur GANIL. L'application d'un champ électromagnétique hyperfréquence (14 GHz) sur un gaz injecté dans l'enceinte permet d'ioniser ce gaz et de créer un plasma ionique. Les électrons créés après ionisation du gaz sont confinés par un champ magnétique et accélérés à l'aide du champ électromagnétique hyperfréquence. Ces électrons vont à leur tour arracher d'autres électrons du gaz injecté afin de produire des ions d'état de charge élevé. Ces ions multichargés sont extraits de la chambre vers la ligne du faisceau à l'aide d'un champ électrique ajustable généré par une électrode d'extraction. La source ECR est placée sur une plateforme haute tension dont le potentiel permet de donner une énergie spécifique aux ions. Une sélection de l'état de charge des ions extraits (rapport masse/charge des ions projectile) est effectuée par le biais d'un dipôle magnétique situé à la sortie de la source.

À la sortie du dipôle, les ions projectiles sont conduits jusqu'à la chambre de collision. Des multipôles électromagnétiques sont installés tout au long de la ligne de transport afin de bien guider et focaliser le faisceau. Des jeux de fentes dans le plan perpendiculaire au faisceau sont aussi installés après des multipôles dans le but de réduire l'intensité et la taille du faisceau s'il y a besoin. Des profileurs et des cages de Faraday sont utilisés pour permettre le diagnostic du faisceau et obtenir un profil optimal des ions incidents à l'entrée de la chambre de collision. Tout au long de la ligne de faisceau, un vide de l'ordre de  $10^{-9}$  mbar est assuré à l'aide de pompes cryogéniques et de pompes turbo moléculaires. À la fin de son parcours, le projectile passe à l'intérieur d'un tube cylindrique de 3 cm de diamètre et un collimateur de 0.6 mm séparant la ligne de transport et la chambre de collision. Ce trou de 0.6 mm permet de bien définir la zone de collision avec la cible, et comme nous le verrons dans la suite, d'obtenir une meilleure résolution sur les observables mesurées après interaction avec la cible.

Selon la nature du projectile choisi pour l'expérience, un gaz spécifique est injecté dans la source (Xe, Ar, ou O<sub>2</sub>), un état de charge est sélectionné, et le réglage de la ligne est optimisé afin d'avoir un bon profil de faisceau à l'entrée de la chambre de collision. L'optimisation finale se fait ensuite à l'aide des détecteurs du dispositif COLTRIMS, en maximisant le nombre d'événements détectés correspondant à des processus d'échange de charge sur la cible gazeuse du jet supersonique.

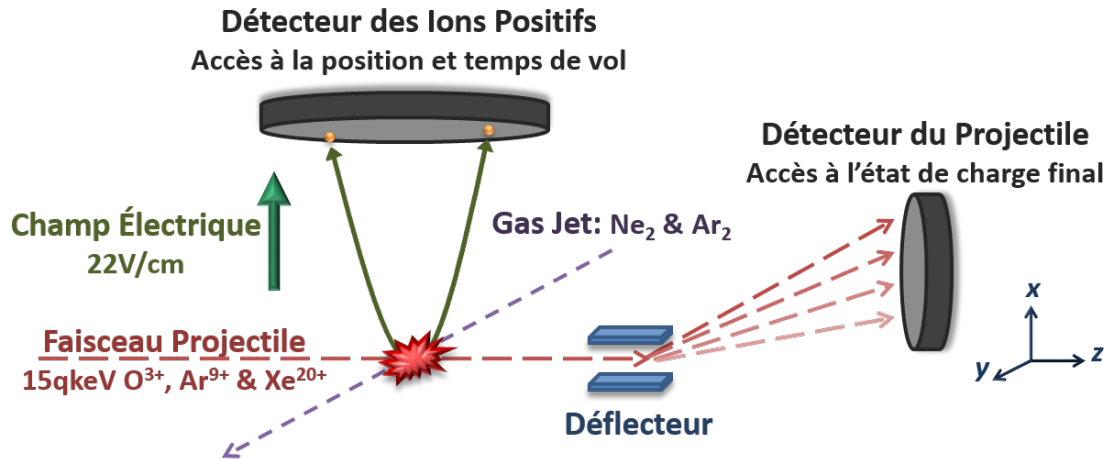


FIGURE 3.1 – Schéma du dispositif expérimental COLTRIMS.

### 3.2 Spectromètre COLTRIMS

Pour étudier l'interaction entre le projectile et la cible dans des collisions ion sur cible gazeuse, plusieurs techniques expérimentales ont été développées et améliorées. En fonction de ce que l'on veut étudier durant l'expérience, une technique spécifique est utilisée. On peut par exemple s'intéresser aux ions positifs résultant de la cible, aux ions projectiles, ou aux émissions de particules secondaires (électrons, photons). Dans la suite de ce paragraphe, je vais me limiter à la description des techniques utilisées pour la détection des ions positifs issus de la cible, que ce soit des ions de recul (capture/ionisation de la cible dans des collisions projectile/atome ou dans des collisions projectile/molécule sans fragmentation) ou des fragments ioniques (capture/ionisation de la cible dans des collisions projectile/molécule suivies de la fragmentation de la cible).

La première technique employée utilisait l'injection et le transport du gaz cible à l'intérieur d'un cylindre de longueur de 4 cm et de diamètre de 1 cm jusqu'à la région de collision avec le projectile. Quelques pourcents des ions de la cible produits dans la chambre de la collision qui sont suivant l'axe de la cible vont se propager jusqu'à un autre chambre de détection. L'application d'une différence de voltage entre la chambre de collision et la chambre de détection permet d'accélérer les ions de recul produits jusqu'à un détecteur à galette de micro-canaux comportant une anode sensible en position. Le but du développement de cette technique était de mesurer la section efficace de multiple ionisation et de capture des électrons d'atomes de Ne en utilisant des ions projectiles multichargés de quelque MeV/u [113].

Une deuxième technique a été employée pour permettre une détection suivant les  $4\pi$  d'angle solide des ions produits après collision. Cette technique utilise un jet effusif qui consiste à faire passer le gaz cible dans un capillaire avant de le faire interagir avec le faisceau projectile. Les ions produits après collision sont extraits par un champ électrique vers un détecteur sensible en position et temps. Plusieurs études ont été faites en utilisant cette technique pour mesurer la quantité de mouvement longitudinale (selon l'axe de collision) des ions de recul, qui est liée au Q de réaction (autrement dit à l'inélasticité de la



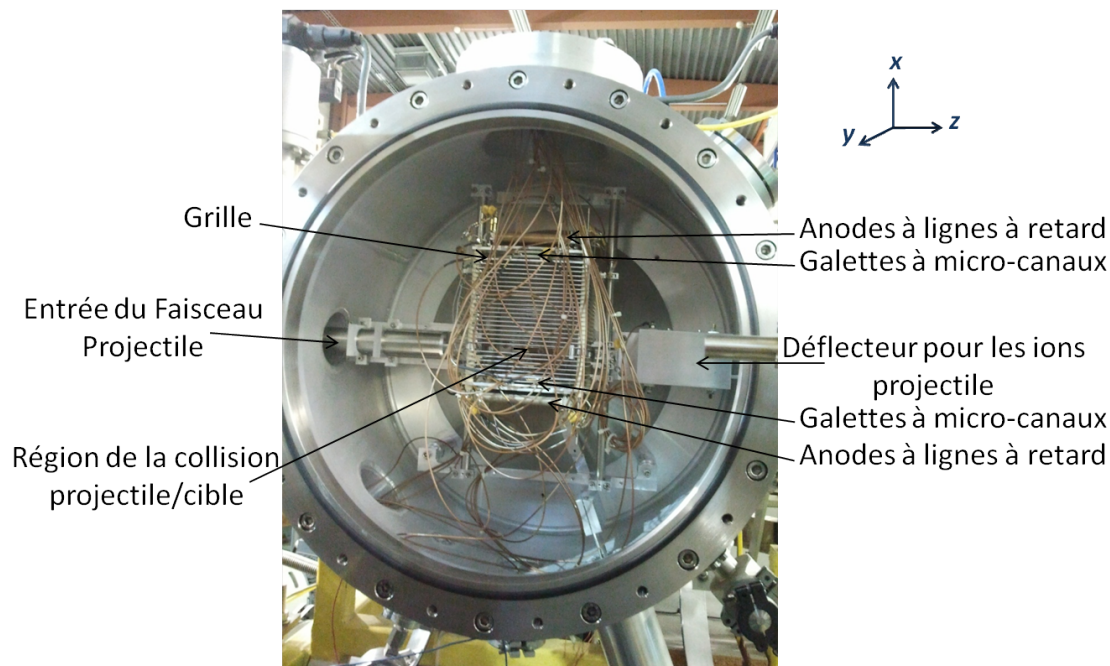


FIGURE 3.2 – Image du spectromètre COLTRIMS du CIMAP montrant la région d’entrée du faisceau projectile, la région de collision et la région de sortie du faisceau projectile. Au dessus et en dessous de la région de collision, on trouve une série d’électrodes et deux détecteurs. La partie haute est dédiée à l’extraction et à la détection des ions positifs tandis que la partie du bas est dédiée à l’extraction et à la détection des ions négatifs et des électrons.

collision) [2].

La troisième technique appelée COLTRIMS a été développée pour à la fois permettre une détection suivant les  $4\pi$  d’angle solide des ions produits après collision et bénéficier d’une meilleure résolution sur la mesure de leur quantité de mouvement. À cet effet, un jet supersonique a remplacé le jet effusif pour permettre d’avoir une cible froide avant son interaction avec le projectile. La résolution sur la mesure de la quantité de mouvement transférée aux ions de recul durant la collision n’est alors plus limitée par la température du jet effusif (température ambiante) mais par celle du jet supersonique qui est de l’ordre de quelques Kelvins (Sect.3.3). Tout comme pour la deuxième technique citée dans ce paragraphe, les ions produits sont extraits par le biais d’un champ électrique vers un détecteur sensible en temps et position (Fig.3.1). Ces mesures de temps et position vont nous permettre de remonter à la quantité de mouvement initiale après la collision des ions de recul.

Après que le projectile ait capturé des électrons de la cible, les ions de recul ou les fragments ioniques (dans le cas de la fragmentation des ions moléculaires) vont être produits avec une énergie donnée. D’une part, la collision induit un transfert d’impulsion à la cible (qui correspond à des énergies de recul de l’ordre de la fraction d’eV), et modifie son état de charge. D’autre part, cette cible moléculaire multichargée, dans le cas d’une dissociation, va ensuite fragmenter du fait notamment de la répulsion coulombienne avec une énergie de fragmentation (KER) communiquée aux fragments qui est de l’ordre de

quelques eV. En appliquant un champ électrique au sein du spectromètre (suivant l'axe  $x$ ), ces ions vont être extraits en direction d'un détecteur sensible à la position (Fig.3.1).

Le spectromètre COLTRIMS du CIMAP est constitué d'un ensemble d'électrodes espacées de 4 mm l'une par rapport à l'autre et connectées entre elles par des résistances de  $2.75M\Omega$ . À chaque extrémité du spectromètre, la dernière électrode est complétée par une grille de transmission 90% permettant d'assurer un champ homogène. Le détecteur des ions positifs est placé derrière la grille située en haut du spectromètre, comme le montre la Fig.3.2. De l'autre côté, un deuxième détecteur permet la détection des électrons ou des ions négatifs. Le spectromètre a été conçu de manière à pouvoir faire varier les distances de vol des ions et des électrons en ajoutant ou retirant des électrodes. Pour les expériences présentées ici, le détecteur des ions positifs a été placé à une distance de 97 mm du centre de la zone de collision. Durant l'expérience, un champ électrique de 22 V/cm a été employé pour permettre d'extraire 100% des ions d'énergie par charge inférieure à 8,8 qeV. Cette énergie est ajustée pour notre système de collision afin de détecter tous les ions simplement, doublement ou triplement chargés produits après fragmentation du dimère de Ne ou d'Ar (l'énergie maximale fournie aux ions par fragmentation est inférieure à 8,8 qeV). Du fait de ce champ d'extraction relativement élevé, la résolution attendue sur l'énergie des électrons est très mauvaise, et le détecteur d'électrons (ou d'ions négatifs) n'a pas été utilisé durant ces expériences.

La reconstruction complète du vecteur impulsion des fragments ou des ions de recul nécessite une mesure de leur position sur le détecteur, mais également de leur temps de vol. Le spectromètre est donc complété par un analyseur de charge des ions projectiles constitué d'un déflecteur électrostatique et d'un autre détecteur sensible à la position (Fig.3.1). La position de ce détecteur et les tensions appliquées au déflecteur sont choisies de sorte à ne détecter que les projectiles diffusés ayant capturé un ou plusieurs électrons (le faisceau direct n'est pas détecté). La position des projectiles sur ce détecteur permet d'identifier leur charge, et leur temps d'arrivée est utilisé comme référence pour déterminer le temps de vol des fragments.

### 3.3 Jet Supersonique

Comme mentionné auparavant, les dimères de gaz rare sont produits à l'aide d'un jet supersonique orienté perpendiculairement au faisceau projectile. Cette technique a été développée pour permettre d'avoir une meilleure résolution sur les mesures de la quantité de mouvement des ions de recul. Elle permet d'avoir une très faible dispersion en énergie des particules de la cible à la sortie du jet supersonique (en comparaison à d'autres techniques telle que le jet effusif). Cela est fait par une détente adiabatique qui convertit l'énergie thermique du gaz injecté, qui est initialement à la température ambiante, en une énergie cinétique suivant une direction donnée (celle du jet). En plus de cela, cette technique permet d'avoir un jet peu divergent et de faible diamètre (de l'ordre du mm) et donc une zone de collision avec le projectile bien définie.

La génération du jet supersonique est obtenue en appliquant des conditions de pression particulières à l'entrée et à la sortie d'une micro-tuyère. Un gaz est injecté avec une grande

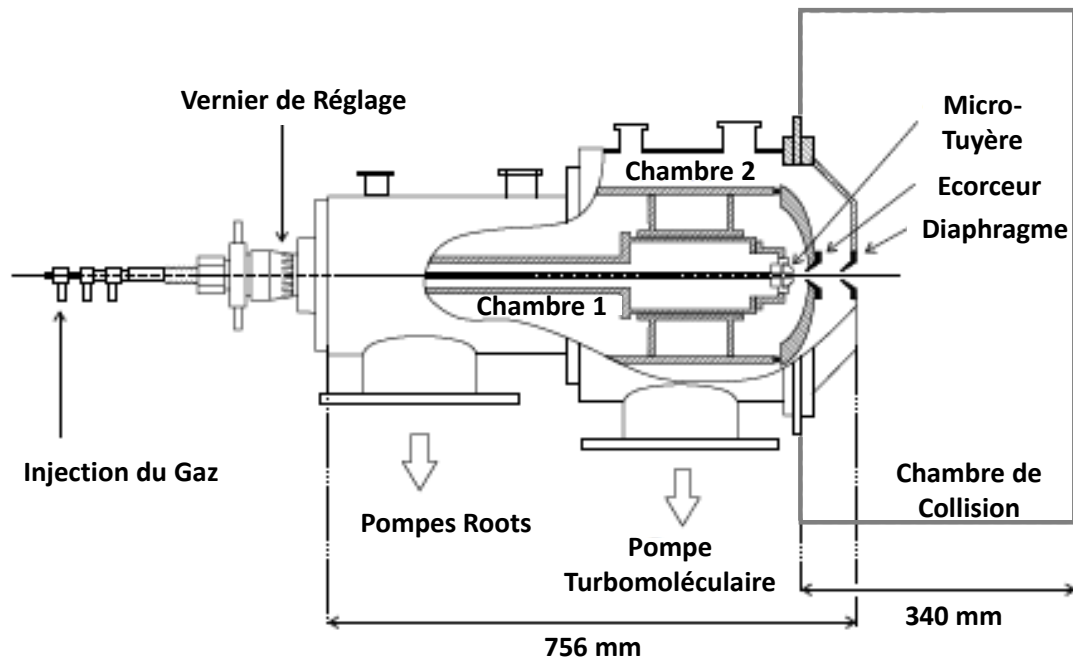


FIGURE 3.3 – Schéma des différentes sections du Jet Supersonique.

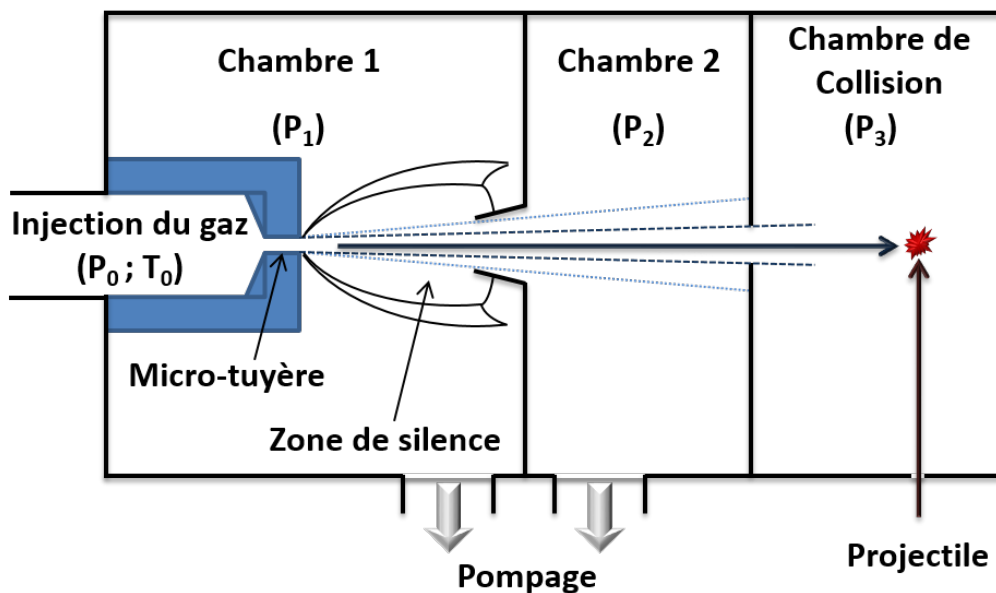


FIGURE 3.4 – Schéma des différentes sections du Jet Supersonique montrant la formation de la zone de silence dans la chambre 1 après passage du gaz par la micro-tuyère.

pression  $P_0$  (typiquement une dizaine de bars) dans la région d'entrée où il va se propager dans un tube cylindrique. À l'extrémité du tube cylindrique, le gaz va traverser une micro-tuyère donnant sur une région de basse pression (typiquement de  $10^{-3}$  à  $10^{-4}$  mbar) afin de créer le phénomène appelé expansion supersonique du gaz. Dans cette phase, l'enthalpie  $H=5/2k_B T_0$  ( $k_B$  est la constante de Boltzmann et  $T_0$  la température du gaz avant la tuyère) est convertie en énergie cinétique. Le gaz atomique va avoir, après la tuyère, une vitesse  $v_{jet}$  calculée comme suit :

$$v_{jet} = \sqrt{\frac{5k_B T_0}{m_{jet}}}. \quad (3.3.1)$$

Cette vitesse après expansion dépend de plusieurs paramètres tels que la nature du gaz, la pression d'injection  $P_0$ , la température initiale  $T_0$  du gaz et la pression dans la chambre 1 (après la micro-tuyère). La micro-tuyère utilisée dans l'expérience a un diamètre  $d_{tuyere}=30$   $\mu\text{m}$ .

Dans la chambre 1 (Fig.3.4), après la micro-tuyère, règne une zone appelée zone de silence [15] dans laquelle le gaz est à une température très faible. En dehors de cette zone de silence, le gaz du jet commence à interagir avec le gaz résiduel et diffuse dans toutes les directions. Dans cette zone de silence, la distance typique, par rapport à l'axe de la tuyère, pour laquelle le gaz commence à perdre ses caractéristiques de jet supersonique est calculée à  $y_1=\frac{2}{3}d_{tuyere}\sqrt{\frac{P_0}{P_1}}$  où  $P_1$  est la pression dans la chambre 1. Pour extraire le jet atomique froid de la zone de silence, un écorceur qui sépare la chambre 1 de la chambre 2 doit être placé à l'intérieur de la zone de silence, à une distance inférieure à  $y_1$ . La distance entre la micro-tuyère et l'écorceur est ajustée par le biais d'un vernier de réglage (distance ajustée  $y_e$  entre 0 et 20 mm) afin d'optimiser les performances pour un gaz donné et une pression  $P_0$  donnée.

Un diaphragme est employé entre la chambre 2 et la chambre de collision pour collimater le jet. Cela permet d'avoir un jet fin et bien défini pour interagir avec le faisceau projectile, dans la zone de collision. Les particules du jet qui n'ont pas interagi avec le projectile entrent, via un tube de diamètre de 1 cm, dans une autre chambre appelée "beam dump". Celle-ci est connectée à une pompe turbo-moléculaire, ce qui permet de ne pas dégrader le vide de la chambre du spectromètre par rétrodiffusion des atomes ou molécules du jet.

Deux différents gaz cible (Néon et Argon) ont été utilisés dans cette expérience. La formation des dimères, ou même des trimères et des clusters, se fait après interaction entre les atomes du gaz au moment de l'expansion du gaz (juste après que le gaz traverse la micro-tuyère). Cette formation d'agrégats dépend essentiellement de la nature du gaz, de la température et pression d'injection du gaz et du diamètre et forme de la micro-tuyère [43, 44, 78, 117]. Pour la production optimale du gaz de dimère de Ne, nous avons utilisé une micro-tuyère de diamètre de 30  $\mu\text{m}$ , une injection du gaz à une pression de 25 bars et à température ambiante et une distance  $y_e$  de 6 mm. Pour la production optimale du gaz de dimère d'Ar, nous avons utilisé une micro-tuyère de diamètre de 30  $\mu\text{m}$ , une pression d'injection de 2,5 bars à température ambiante et une distance  $y_e$  de 4 mm. Ces

paramètres sont optimisés en tenant compte de deux choses. D'une part, on regarde la pression du jet à la fin de son parcours (dans la chambre "beam dump") en fonction de la distance  $y_e$  et pour une pression d'injection  $P_0$  donnée, et on choisit la valeur de  $y_e$  pour laquelle on obtient la pression  $P_{beam-dump}$  la plus élevée, c'est à dire le jet le plus dense après le diaphragme. D'autre part, on analyse le jet dans la chambre "beam dump" à l'aide d'un QMS (analyseur de masse quadripolaire). Ce QMS permet d'ioniser le gaz à l'aide d'une source d'électrons avant d'être détecté par une cage de Faraday ou un channeltron. L'analyse en masse de ces ions permet d'avoir une comparaison quantitative entre le gaz atomique et les agrégats formés dans le jet (dimères, trimères ...). En faisant cette analyse pour différents couples  $(P_0, y_e)$ , plusieurs spectres sont générés et sont comparés entre eux afin de choisir le couple qui permet d'avoir la production optimale de dimères de gaz rare (meilleure densité du dimère par rapport aux atomes et aux agrégats plus gros). Pendant l'expérience, la pression dans la chambre 1 a été de l'ordre de  $10^{-3}$  mbar, dans la chambre 2 de l'ordre de  $10^{-5}$  mbar et celle de la chambre de collision de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-8}$  mbar.

### 3.4 Détecteurs

Trois détecteurs sensibles en temps et en position sont utilisés dans le dispositif expérimental afin de collecter en coïncidence toutes les informations nécessaires sur le projectile et les fragments produits après collision (Fig.3.1). Un détecteur est placé dans le plan transverse (x;y) pour détecter les ions projectiles qui ont capturé au moins un électron. Deux autres détecteurs sont placés dans le plan (y;z) du spectromètre, de part et d'autre du spectromètre, pour détecter les ions positifs, les ions négatifs et les électrons. Ces détecteurs consistent en une combinaison de galettes à micro-canaux (MCP) et d'anode à ligne à retard (DL) (Fig.3.5). Ils fournissent l'information temporelle correspondant aux temps d'arrivée des particules sur le détecteur (MCP), ainsi que la position dans le plan du détecteur de leur point d'impact par le biais des anodes à ligne à retard. Le détecteur des ions négatifs et des électrons n'a pas été utilisé dans cette expérience.

#### Galettes à Micro-Canaux

Selon le but de l'expérience, le type de détecteur et les particules à détecter, une, deux ou trois galettes mises en cascade peuvent être utilisées. Plus il y a de galettes, plus le gain augmente. Ces galettes sont constituées de micro-canaux inclinés à  $7^\circ$  qui couvre 50% de la surface totale de la galette. Lorsque les particules produites (fragments ou électrons) et les ions projectiles arrivent sur leur détecteur, ils peuvent percuter un des canaux de la galette MCP ce qui va produire l'émission d'électrons. Le nombre moyen d'électrons émis dépend de la nature et de l'énergie de la particule. Sur la face avant et arrière des galettes, une différence de potentiel est appliquée pour créer un champ électrique qui accélère les électrons émis à l'intérieur des canaux et qui les attire vers l'anode. Ces électrons vont percuter la paroi interne du canal ce qui va arracher d'autres électrons, qui sous l'effet du même champ électrique vont arracher d'autres électrons. Après plusieurs cycles, cette avalanche d'électrons créée à la fin de la galette va être dirigée vers l'anode à ligne à retard

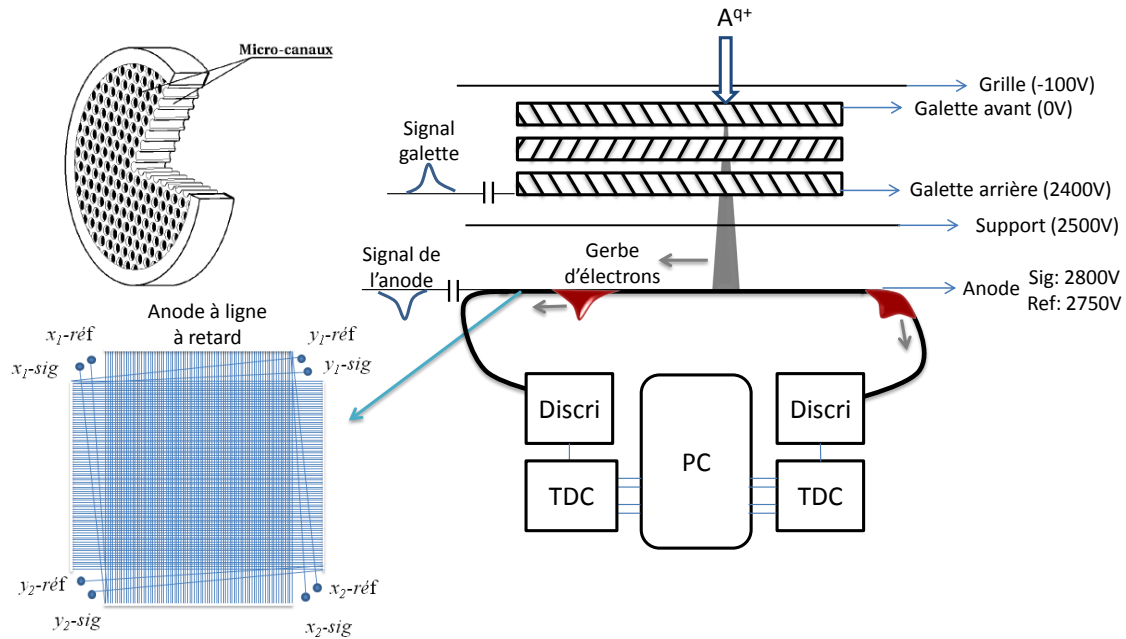


FIGURE 3.5 – Schéma du détecteur MCP-DLD. Les valeurs de polarisation appliquées sont pour le détecteur projectile. Pour le détecteur d'ions positifs, une polarisation sur la galette avant est appliquée, de sorte à post-accélerer les ions et avoir une bonne efficacité de détection.

pour une étude en position des ions.

À chaque fois qu'une particule heurte un micro-canal de la galette, le départ de l'avalanche d'électrons va provoquer sur la face arrière des galettes une impulsion positive de quelque mV pendant quelque ns qui est prélevée via une capacité de découplage. Ce signal appelé "signal galette" va servir pour deux choses. D'une part, ce signal va permettre de vérifier le bon fonctionnement des galettes et d'autre part, il va permettre de calculer le temps de vol des fragments ioniques produits. Ces deux fonctions vont être discutées en détail dans la section 3.5.

### Anodes à Lignes à Retard

Une anode carrée de 40 mm de côté a été utilisée pour le détecteur du projectile et deux autres anodes de 80 mm de côté ont été utilisées pour détecter des ions positifs et des particules de charge négative produites lors de la collision. Ces anodes sont constituées de deux bobinages comportant chacun deux fils en cuivre de même longueur et mis en parallèle sur un support métallique. Les deux fils bobinés selon la direction verticale (x-ref et x-sig de la Fig.3.5) donnent accès à la position suivant la direction horizontale, et les deux fils bobinés selon la direction horizontale (y-ref et y-sig de la Fig.3.5) donnent accès à la position suivant la direction verticale du plan du détecteur. Les électrons sortant de la face arrière des galettes sont attirés vers l'anode en polarisant ces fils avec une tension positive par rapport à celle de la galette arrière. L'utilisation en parallèle de deux fils notés sig. et ref. sert à réduire le bruit électromagnétique afin d'avoir un signal le plus propre

possible. Pour cela, les deux fils sig sont polarisés à une tension de 50 V de plus que celle des deux autres fils ref. La gerbe d'électrons arrivant de la galette va préférentiellement aller vers le fil qui est au potentiel le plus fort. Le bruit qui est présent sur les fils sig et ref va être ensuite éliminé en faisant la soustraction des signaux ref-sig pour ne conserver à la fin que le signal issu de la gerbe d'électrons. Chaque fil possédant deux extrémités de part et d'autre du détecteur, on a donc 8 signaux au total. Ces 8 signaux sont distribués deux à deux sur chacune des quatre extrémités du détecteur (Fig.3.5). Chaque couple de signaux sig/ref va passer par un transformateur passif qui opère la soustraction analogique des deux signaux (sig-ref). Après soustraction, les 4 signaux obtenus vont permettre d'obtenir le temps de propagation mis par le signal généré par les électrons pour aller du point d'impact du nuage d'électrons vers les 4 extrémités des fils (T1\_X, T2\_X, T1\_Y, T2\_Y). On peut alors déterminer la position dans le plan du détecteur de l'ion détecté en utilisant les deux formules 3.4.1a et 3.4.1b.

$$x = \frac{v_{axial}}{2}(T1\_X - T2\_X) \quad (3.4.1a)$$

$$y = \frac{v_{axial}}{2}(T1\_Y - T2\_Y) \quad (3.4.1b)$$

$$v_{axial} = \frac{L}{T1\_X + T2\_X}. \quad (3.4.1c)$$

Dans le repère que nous avons choisi pour décrire notre dispositif (Fig.3.1), le détecteur du projectile va permettre de générer des positions en x et y des ions détectés tandis que celui des fragments (ou ions de recul) et celui des électrons donneront les positions suivant y et z. La vitesse  $v_{axial}$  correspond à la vitesse de propagation du signal sur les fils de l'anode où L est la longueur totale du fil et T1\_X+T2\_X est le temps total mis par l'électron pour passer d'une extrémité à l'autre du fil.

### 3.5 Électronique et Système d'Acquisition

Après détection d'un projectile ou fragment, chaque détecteur génère 5 signaux donnant le temps d'arrivée de l'ion sur la galette (signal galette) et le temps d'arrivée des signaux anodes aux quatre extrémités du détecteur. Ces signaux sont ensuite filtrés et amplifiés, puis traités par des discriminateurs à fraction constante CFD et numérisés par des convertisseurs temps-numérique TDC. Après le passage dans le TDC, les signaux vont être collectés par un serveur et un ordinateur pour stockage et visualisation des données (Fig.3.6).

Les signaux générés par le détecteur (les quatre signaux d'anode et le signal galette) vont d'abord passer par un amplificateur rapide. Dans un deuxième temps, ces signaux sont nettoyés et mis en forme par le biais d'un discriminateur à fraction constante CFD possédant un seuil réglable. Ce seuil est ajusté au mieux pour chacun des signaux afin d'éliminer les bruits de fond et les signaux de rebonds. Les signaux sortant du CFD sont au format NIM qui va être converti ensuite en format ECL en utilisant un module "NIM/ECL converter". Ces signaux convertis en ECL vont être envoyés vers un TDC multi-hit pour la

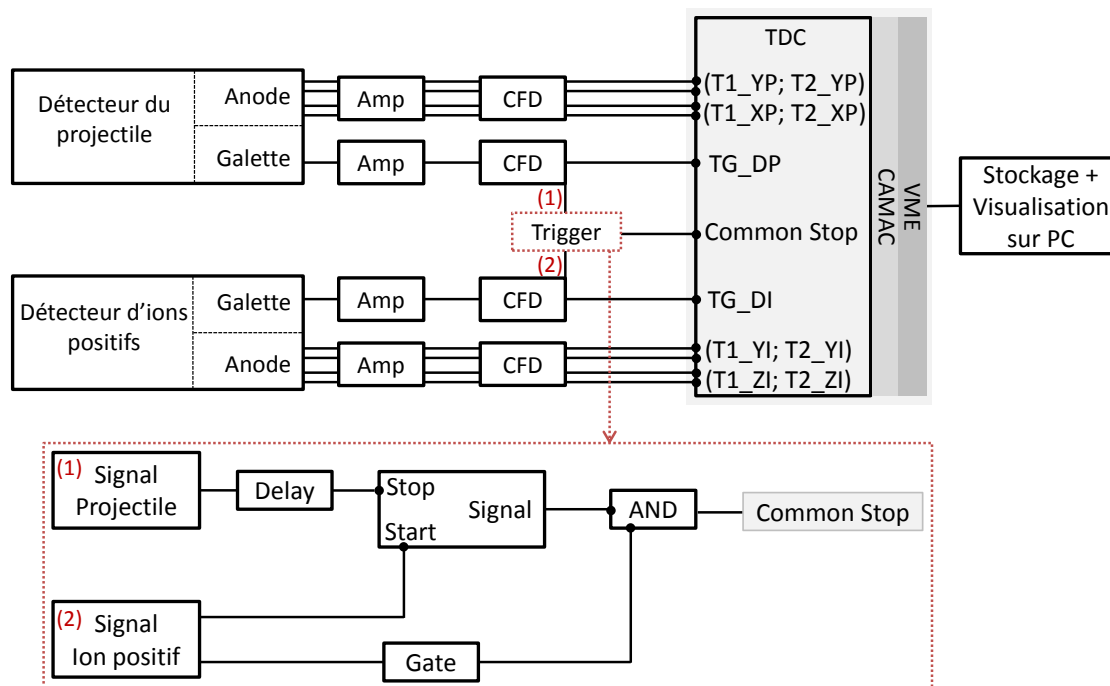


FIGURE 3.6 – Schéma de l'électronique montrant les étapes de traitement des signaux, issus des deux détecteurs (ions positifs et projectiles), dans les différents modules jusqu'au PC.

mesure et le codage en temps du signal. Ce module TDC possède 32 voies et pour chacune de ces voies, il peut accepter jusqu'à 16 coups consécutifs par événement sur un temps de codage de  $16 \mu\text{s}$ . Au total, on a donc 10 signaux provenant des deux détecteurs (projectiles et ions positifs) qui sont connectés au TDC afin de collecter les informations reçues au cours d'un événement de collision donné.

Un signal "Common Stop" est aussi connecté à l'une des voies du TDC et est à la fois utilisé comme référence en temps du TDC et comme "trigger" permettant de déclencher la lecture du TDC. La logique de ce trigger utilise plusieurs modules électroniques permettant de générer le signal "Common Stop" uniquement si la condition de coïncidence est approuvée. Cette condition comporte la détection à la fois d'au moins un projectile et d'un fragment ionique dans une fenêtre en temps choisie. Les modules qui sont utilisés pour générer le "trigger" sont de type "Gate and Delay" ainsi que de type "AND" (Fig.3.6). Les modules Gate and Delay permettent de générer des fenêtres avec un retard et une durée réglables, les modules "AND" permettent de générer un signal lorsque les deux signaux d'entrée sont en coïncidence.

Après le passage dans le CFD, les deux signaux issus de la galette du détecteur projectiles et ions positifs vont être dupliqués en plusieurs branches par un module "FanIn-FanOut". Une branche va directement vers la voie TDC et d'autres branches vont aller vers le système trigger. Une branche du signal provenant de la galette projectile va être retardée par l'intermédiaire du module "Gate and Delay". Ce retard est réglé en fonction du système collisionnel étudié et il est déterminé en fonction de l'énergie cinétique du projectile (temps mis par le projectile pour parcourir la distance entre la région de la collision



jusqu'au détecteur projectiles), du champ d'extraction appliqué et de la nature de la cible (temps de vol attendu pour les fragments de la cible pour parcourir la distance entre la région de la collision jusqu'au détecteur ions positifs). Ce signal retardé de la galette projectile et une branche du signal direct provenant de la galette ions positifs sont connectés au start et stop d'un autre module "Gate and Delay" qui permet cette fois-ci de vérifier la condition de coïncidence. Si le start et le stop sont déclenchés, un signal va être généré et envoyé au module "AND". Une autre branche du signal provenant de la galette ions positifs va passer par un troisième module "Gate and Delay" mais cette fois-ci pour ouvrir une porte étalée sur  $15.5 \mu\text{s}$  qui va être envoyé au module "AND". Ce module "AND" permet de générer un signal s'il y a eu ces deux signaux d'entrée en coïncidence. Le signal généré par le module "AND" va être envoyé après vers la voie du TDC appelé "Common Stop" afin de signaler la fin d'un événement et d'autoriser la transmission et le stockage des données. Le signal analogique issu de la galette des ions positifs est également divisé en deux branches après préamplification. Une branche passe par le CFD et est utilisée par le TDC et la logique, comme décrit précédemment, tandis que l'autre est envoyée vers un QDC (Charge to Digital Converter). Cette information supplémentaire (la charge du signal galette) est utilisée pour contrôler le bon fonctionnement du détecteur ainsi que pour le réglage du seuil du CFD. Enfin, chaque signal logique issu d'un CFD (pour les 10 signaux issus des deux détecteurs) ou du trigger est envoyé vers des échelles de comptage qui permettent de contrôler le taux de déclenchement de chaque voie en temps réel. Dans le mode d'acquisition choisi, les données qui sont collectées et gardées en mémoire sur les différentes voies du TDC et pendant une fenêtre de  $16 \mu\text{s}$  avant l'arrivée du signal "Common Stop" vont être envoyés via le châssis CAMAC (Computer Automated Measurement And Control) vers le processeur du châssis VME (Versa Module Europa) et enfin vers la station d'acquisition. Le châssis CAMAC du TDC permet de contrôler et lire les données afin d'être envoyées vers le VME. Le châssis VME permet de collecter les données du CAMAC, les regrouper d'abord par événement puis sous forme de buffers et enfin les transmettre à la station linux pour être stockées au format GANIL afin d'être visualisées et analysées online et offline.

Les données transmises vers le PC sont lues en mode online à l'aide d'un système d'acquisition développé par les informaticiens de GANIL [126]. Ces données sont aussi stockées dans un serveur sous des fichiers run au format GANIL. Ce format de longueur variable structure les données dans une matrice de buffers. Chaque ligne de la matrice correspond à un buffer contenant les données de plusieurs événements de coïncidence et leurs en-têtes. Ces en-têtes donnent des informations sur le nombre et la taille de l'événement. Pour chaque événement, les données sont structurées par paires : la première donnée enregistrée indique le numéro de la voie du TDC et la deuxième donnée donne la valeur en temps enregistrée. Le nombre de coups par voie enregistrés dans un événement est simplement le nombre de fois qu'il y a eu apparition du numéro de voie. Une fois qu'un buffer atteint la limite en taille qui est de 16384 octets, on passe à une autre ligne (ou buffer) afin d'effectuer la même opération.

Afin de visualiser en mode online les données au format GANIL, nous avons développé un programme qui permet, d'une part, de convertir ce format ganil en format ROOT [125]

et, d'autre part, de visualiser ces données. Ce programme est structuré en plusieurs sections regroupant des paramètres bruts et des paramètres de contrôle ainsi que les spectres associés. Les données issues du système d'acquisition vont passer à travers ce programme et permettre de contrôler en temps réel le bon déroulement de l'expérience. Les spectres définis renseignent sur le bon fonctionnement des détecteurs, sur les voies de fragmentation observées, sur les charges de projectiles détectées, et de nombreuses corrélations entre le temps de vol et la position des différents fragments et des projectiles.

La même démarche est aussi effectuée en mode offline, que ce soit pour convertir ou pour contrôler les données. La seule différence entre les deux modes est la présence du programme d'analyse des données en mode offline, et le plus grand soin qui peut apporter à la calibration et le nettoyage des données. Dans ce mode, un programme de conversion est d'abord utilisé pour générer un fichier root à partir des fichiers run sauvegardés au format GANIL pendant l'expérience et cela pour chacun des systèmes de collision projectile/cible ( $O^{3+}/Ne_2$ ,  $O^{3+}/Ar_2$ ,  $Ar^{9+}/Ne_2$ ,  $Ar^{9+}/Ar_2$ ,  $Xe^{20+}/Ne_2$ ,  $Xe^{20+}/Ar_2$ ). Après conversion, le programme d'analyse est utilisé pour lire les données du fichier root afin de calculer et visualiser les observables d'intérêt. Le mode offline ainsi que les programmes de conversion et d'analyse vont être discutés en détail dans le chapitre suivant (Sect.4.1).



# Chapitre 4

## Analyse des données

### Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Traitement des Données Expérimentales</b>	<b>45</b>
4.1.1	Programme de Conversion	46
	Conversion des données du format GANIL au format ROOT	46
	Sélection des données valides	47
4.1.2	Programme d'Analyse	49
	Identification des Différentes Voies de Fragmentation	49
	Nettoyage des Données des Mauvaises Coïncidences	51
<b>4.2</b>	<b>Traitement des Données de Calcul MC-COBM</b>	<b>53</b>
4.2.1	Estimation des Voies de Relaxation	53
4.2.2	Simulation du Spectromètre	54
4.2.3	Analyse	55

---

### 4.1 Traitement des Données Expérimentales

Dans ce paragraphe, nous allons présenter les différentes étapes de conversion et d'analyse des données expérimentales mises en oeuvre afin d'identifier, nettoyer et classer les résultats suivant leur appartenance à une voie de fragmentation donnée d'un système collisionnel. Comme mentionné dans le chapitre précédent, les données transmises par les deux détecteurs (4 paramètres anode et 1 paramètre galette pour chaque détecteur) sont stockées dans des fichiers au format GANIL. Chaque fichier comporte des données sur le numéro du paramètre (voie TDC) et la valeur en temps correspondante. Les fichiers associés à un système collisionnel vont être lus par un programme de conversion qui permet de passer du format GANIL vers un format ROOT (Sect.4.1.1). Ce fichier root va ensuite être lu par un programme d'analyse qui va assurer plusieurs fonctions (Sect.4.1.2). Dans un premier temps, il va permettre d'identifier les différentes voies de fragmentation en utilisant le temps de vol des fragments ioniques produits. Dans un deuxième temps, il va nettoyer les données appartenant à chaque voie en utilisant l'information en temps et en position pour éliminer des événements de bruit ou fortuits, et ne conserver que les

événements de vraies coïncidences. Après ce nettoyage, l'étape suivante consiste à calculer la quantité de mouvement de chacun des deux fragments afin de déterminer d'une part l'énergie cinétique libérée KER (Sect.5.1) et l'orientation de la molécule, et d'autre part, la quantité de mouvement échangée entre la cible et le projectile durant la collision (Sect.5.3). Ces calculs de la quantité de mouvement vont également permettre de déduire les corrélations angulaires entre les fragments émis et le projectile diffusé (Sect.5.4).

#### 4.1.1 Programme de Conversion

##### Conversion des données du format GANIL au format ROOT

La structure des événements de coïncidence dans des fichiers au format GANIL est discutée dans la section 3.5. Cette structure consiste en une suite de buffers dans lesquels les données sont regroupées événement par événement. À l'intérieur de chaque événement, les données sont groupées par paires de mots de 16 bits donnant le numéro du paramètre et la valeur du temps codé. Chaque fichier de données va être traité par l'intermédiaire d'un programme de conversion afin de créer un arbre ROOT. Chaque signal issu d'un détecteur (que ce soit l'un des 4 signaux anode ou celui de la galette, pour le détecteur projectile ou celui des ions positifs) va être identifié par un numéro de paramètre qui est simplement le numéro de sa voie TDC. La valeur en temps enregistrée pour chaque paramètre correspond au temps d'arrivée d'un signal issu de sa voie TDC par rapport au COMMON STOP (CS) utilisé comme trigger. La particule qui arrive en premier (coup 1) sur le détecteur va avoir le plus grand temps par rapport au CS et cette donnée va donc être transmise du TDC vers le serveur et sauvegardée comme si elle était arrivée en dernier. Au contraire, les particules qui arrivent en dernier (coup 2 ou 3 ...) vont correspondre à des temps codés plus faibles et vont être sauvegardées en premier. Cette inversion en temps et en classement des coups va être prise en compte dans le programme de conversion. La matrice créée dans le programme de conversion est structurée en numéro de paramètre (en ligne) et en numéro de coup (en colonne). Le numéro de coup va prendre en compte cette inversion de classement afin de remettre en ordre les différents coups reçu par le détecteur. Les valeurs en temps de l'arrivée du signal par rapport au CS pour chaque coup/paramètre vont être mises dans la matrice afin d'être traité après pour le calcul des temps de vol et positions sur les détecteurs.

Le programme de conversion au format ROOT convertit également les données en temps du TDC (codant le temps avec une résolution de 0.5 ns/canal) en nanosecondes. En plus de cela et pour éviter les problèmes de "binning", un temps aléatoire de  $\pm 0.25$  ns est ajouté à chaque valeur provenant du TDC.

Dans cette analyse, on ne va sauvegarder dans le fichier ROOT, pour chaque événement traité, que le premier coup ion projectile et les deux premiers coups arrivant sur le détecteur des ions positifs, afin de minimiser au maximum la taille du fichier. Cela est dû au fait que notre étude se limite aux collisions entre des ions multichargés et des dimères de gaz rare pour lesquelles le projectile capture des électrons de la cible qui se fragmente en deux ions chargés positivement.

En plus du classement des paramètres bruts dans une matrice, ce programme de conver-

sion permet de créer des vecteurs de données et des spectres pour les paramètres de contrôle et les paramètres calculés. D'une part, les paramètres de contrôle sont utilisés pour vérifier le bon fonctionnement des détecteurs et pour nettoyer les données. D'autre part, les paramètres calculés comportent la détermination du temps de vol du premier (coup 1) et du deuxième fragment (coup 2) ainsi que leurs positions sur le détecteur d'ions positifs. Cela permet aussi de calculer la position sur le détecteur de projectile ayant capturé au moins un électron.

### Sélection des données valides

Dans un premier temps, nous effectuons un contrôle des événements de coïncidence. Les paramètres de contrôle permettent de vérifier le bon fonctionnement des détecteurs et un premier nettoyage des données. Ils consistent à calculer et regarder le temps total mis par la charge collectée sur les lignes à retard pour traverser d'une extrémité vers l'autre un fil de l'anode du détecteur. Ce temps total est une constante puisque les électrons ont une vitesse fixe de parcours dans les fils en cuivre. Ce temps est calculé en utilisant les cinq paramètres bruts de chaque ion qui sont le temps d'arrivée du projectile TG\_DP et du fragment TG\_DI sur la galette ainsi que le temps enregistré sur chacune des quatre extrémités de l'anode (T1\_YP, T2\_YP, T1\_XP, T2\_XP pour le projectile et T1\_YI, T2\_YI, T1\_ZI, T2\_ZI pour les fragments). Pour les fragments ioniques par exemple, ce temps est calculé comme suit :

$$\begin{aligned} T_{YI\_tot} &= 2 * TG\_DI - (T1\_YI + T2\_YI) \\ T_{ZI\_tot} &= 2 * TG\_DI - (T1\_ZI + T2\_ZI) \end{aligned} \quad (4.1.1)$$

où TG\_DI-T1\_YI par exemple correspond au vrai temps de parcours des électrons sur les fils de l'anode (vrai temps de parcours du point d'impact jusqu'à l'extrémité du fil). Cela permet de générer 6 paramètres de contrôle (2 paramètres/ion) afin de les tracer. Une fois les spectres tracés, on sélectionne une position minimale et une position maximale de part et d'autre de la valeur du pic en temps total afin de nettoyer les événements provenant d'une mauvaise donnée (Fig.4.1(a)). Afin de vérifier le réglage et le bon fonctionnement du détecteur projectile et ions positifs, on a défini 2 spectres 2D pour chaque ion qui permet de tracer par exemple  $(TG\_DI-T1\_YI)=f(TG\_DI-T2\_YI)$  et  $(TG\_DI-T1\_ZI)=f(TG\_DI-T2\_ZI)$  pour les fragments ioniques. Si les données dans ces spectres 2D forment bien une diagonale, cela implique que l'anode du détecteur fonctionne bien. Autrement dit, pour le cas par exemple d'ions projectiles suivant l'axe Y, quand T1\_YP est grand, T2\_YP est petit parce-que le temps total T\_YP\_tot est une constante (Fig.4.1(b)).

En parallèle du calcul des paramètres de contrôle, on a défini des paramètres calculés en temps et position des ions. Le temps de vol des fragments ioniques est calculé en utilisant trois informations qui sont le temps d'arrivé du projectile et du fragment sur la galette ainsi que le temps d'arrivée des photons sur la galette des ions positifs. Ces photons qui sont générés durant la collision projectile/cible nous permettent d'obtenir le vrai temps de la collision. Dans un premier temps, on calcule la différence en temps entre le projectile et le fragment  $T_{diff}=TG\_DP-TG\_DI$ . Cela permet de sortir du référentiel CS et donc de

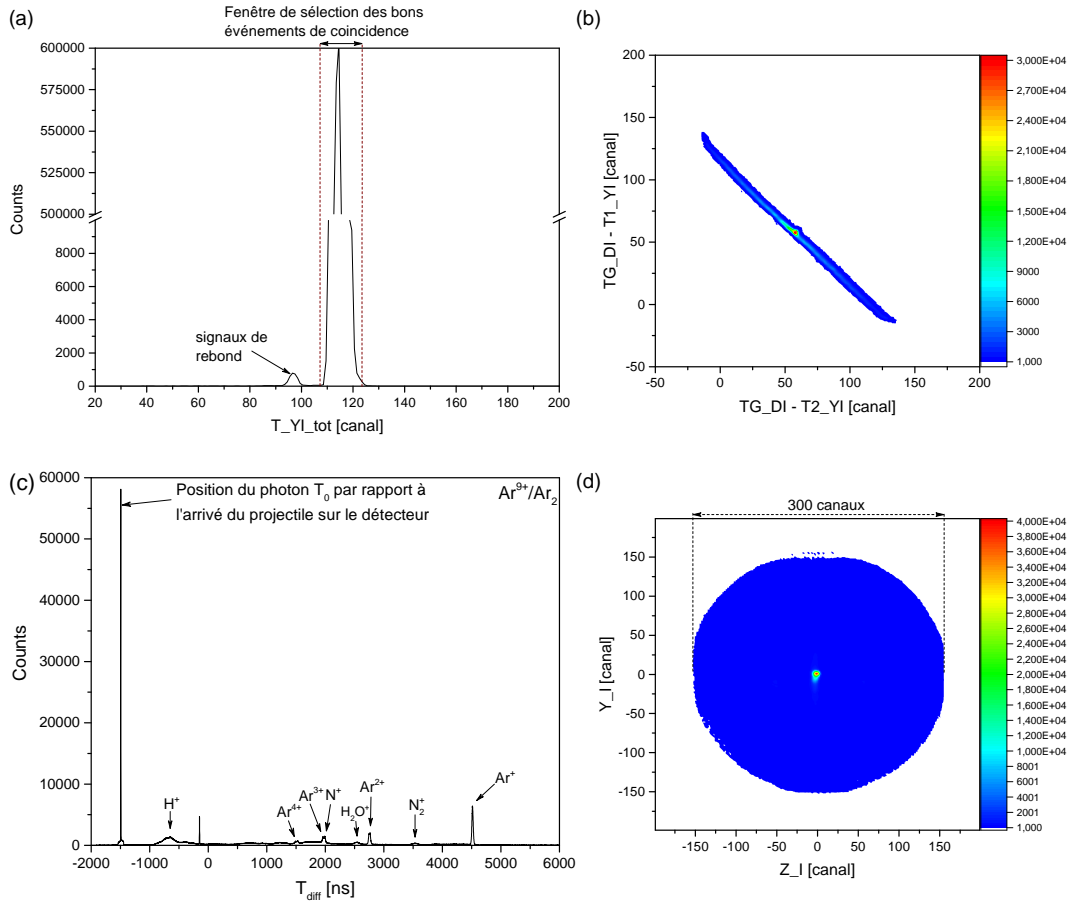


FIGURE 4.1 – (a) Spectre montrant le temps total de parcours des électrons sur les fils de l’anode du détecteur des ions positifs le long de l’axe Y. (b) Spectre 2D du temps de parcours des électrons de part et d’autre de leur position sur l’anode vers les deux extrémités du fil. (c) Temps d’arrivé du premier coup sur le détecteur ions positifs par rapport à celui du projectile montrant les différents ions produits ainsi que les photons issus de la collision. (d) Image 2D du premier coup arrivant sur le détecteur ions positifs.

calculer le temps d’arrivée de chacun des deux fragments par rapport à celui du projectile sur les deux détecteurs. Ensuite, on crée deux vecteurs de données qui contiennent la valeur du paramètre calculé  $T_{diff}$  pour chacun des deux fragments et pour tous les événements de coïncidence (Fig.4.1(c)). On peut directement voir dans la partie négative du spectre en  $T_{diff}$  un pic fin proche de la valeur théorique du temps de parcours du projectile entre la région de collision et le détecteur. La position de ce pic  $T_0$  qui correspond bien au temps d’arrivée de photons issus de la collision vers le détecteur va ensuite être utilisé pour calculer le vrai temps de vol ( $TOF=T_{diff}-T_0$ ) de chacun des deux fragments.

En plus du temps de vol, la position en 2D sur le détecteur de chacun des ions est déterminée en utilisant les informations des paramètres bruts sur les quatre extrémités de l’anode (Formules 3.4.1a et 3.4.1b). Comme mentionné auparavant, le détecteur projectile est situé dans le plan (x;y) et celui des ions positifs dans le plan (y;z). Cela permet de générer un couple de paramètres calculé ( $X_P;Y_P$ ) pour la position de l’ion projectile

et deux couples (Y\_I;Z\_I) pour les deux fragments ioniques. Six vecteurs sont créés pour chaque position/ion et trois spectres 2D sont enfin tracés (Fig.4.1(d)). La constante  $\alpha=v_{axial}/2$  utilisée dans les formules 3.4.1a et 3.4.1b est déterminée en divisant le nombre de canaux formant le détecteur par son diamètre (qui est de 40 mm pour le détecteur projectile et 80 mm pour le détecteur ions positifs). Cette constante est pour le détecteur d'ions positifs de 0.27 mm/canal suivant les deux directions (y;z).

Une fois que l'on a généré ces vecteurs de données pour les paramètres calculés et de contrôle, on les sauvegarde sous format root afin de pouvoir les traiter par la suite avec le programme d'analyse (pour identification des voies de fragmentation et pour un deuxième nettoyage des données).

### 4.1.2 Programme d'Analyse

Les fichiers ROOT générés pour chacun des systèmes collisionnels par le programme de conversion vont passer par une deuxième phase qui consiste à identifier les différentes voies de fragmentation. Après chaque interaction, le projectile capture des électrons des deux centres du dimère. Ce dernier va pouvoir se dissocier en deux fragments chargés  $q_1$  et  $q_2$ . La détection de ces deux fragments en coïncidence avec le projectile permet de regrouper les données suivant chaque paire d'ions  $(q_1 ; q_2)_F$  appelée voie de fragmentation.

#### Identification des Différentes Voies de Fragmentation

Chaque fichier root est formé d'un arbre contenant pour chaque événement les paramètres calculés qui sont la position du premier et du deuxième fragment sur le détecteur, leur temps de vol et la position du projectile sur son détecteur. Ces 8 informations vont nous permettre d'identifier les différentes voies de fragmentation et de remonter à la quantité de mouvement d'émission des fragments ainsi qu'à celle échangée entre le projectile et la cible durant la collision.

Dans un premier temps, les temps de vol du premier et du deuxième fragments, notés TOF\_1 et TOF\_2, vont être utilisés pour isoler chaque paire d'ions  $(q_1 ; q_2)_F$  détectée en coïncidence avec le projectile. En traçant le spectre en 2D  $TOF\_2=f(TOF\_1)$  (Fig.4.2), on peut identifier les différentes voies de fragmentation présentes dans un système collisionnel donné. Si les deux ions viennent d'une même molécule qui fragmente, on va voir sur ce spectre 2D une quasi-droite (diagonale) correspondant à la formule A.1.4 (Annexe A) qui donne le temps simulé des deux fragments ioniques pour passer de la région de la collision au détecteur d'ions positifs.

La Fig.4.2 montre deux spectres 2D du temps de vol du premier fragment en fonction de celui du deuxième fragment pour les deux systèmes collisionnels  $Ar^{9+}-Ar_2$  et  $Ar^{9+}-Ne_2$ . Les lignes horizontales et verticales correspondent à la détection d'un ion (ou photon) associé au projectile détecté, en coïncidence avec un autre déclenchement (ion ou photon) à un temps aléatoire. Ces événements sont dominés par l'échange de charge entre le projectile et les atomes d'Ar et de Ne qui représentent plus de 99% du jet. On voit bien la position en temps des photons, ligne verticale centrée à 0 suivant l'axe x (premier coup sur le détecteur ions positifs) qui donne le temps initial de la collision. On peut aussi identifier



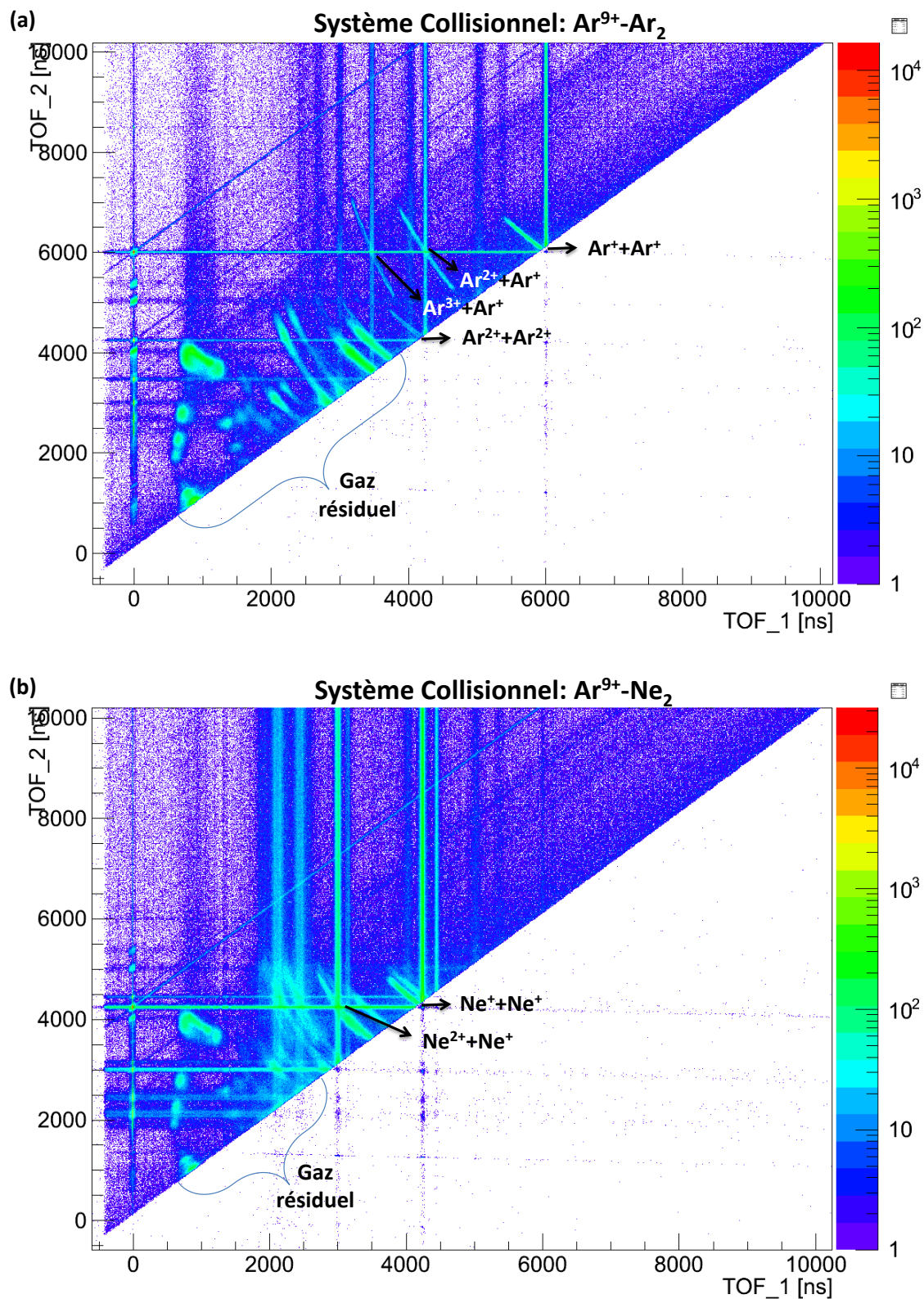


FIGURE 4.2 – Spectre 2D du temps de vol du second fragment en fonction de celui du premier fragment pour les deux systèmes collisionnels  $\text{Ar}^{9+}-\text{Ar}_2$  (a) et  $\text{Ar}^{9+}-\text{Ne}_2$  (b) montrant les différentes voies de fragmentation.

les collisions du projectile avec les molécules du gaz résiduel (ex.  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{N}_2$  ...) produisant plusieurs fragments. Finalement, les voies de fragmentation issus du dimère de Ne et d'Ar apparaissent sur la partie haute du spectre, montrant ainsi plusieurs diagonales. Pour la collision avec un dimère d'Ar, on voit clairement 4 contributions qui sont celle de double capture  $(1+;1+)_F$ , de triple capture  $(2+,1+)_F$  et de quadruple capture  $(2+;2+)_F$ ,  $(3+;1+)_F$ . Pour la collision avec un dimère de Ne, on voit aussi la double et la triple capture mais la présence d'autres voies de fragmentation provenant du gaz résiduel nous empêche d'identifier facilement les deux contributions de quadruple capture. Ces dernières vont réapparaître en faisant le nettoyage des données des mauvaises coïncidences. On voit aussi une "ombre" à plus grand temps de vol pour les deux voies  $(1+;1+)_F$  et  $(2+,1+)_F$  de  $\text{Ne}_2$ . Cette ombre est due à l'isotope  $^{22}\text{Ne}$  qui représente 9% du gaz de néon, les 91% restant correspondant au  $^{20}\text{Ne}$ . Pour chaque paire  $(q_1; q_2)_F$ , on a pris 4 valeurs de temps de vol de part et d'autre de la diagonale notées (TOF\_1\_min, TOF\_1\_max, TOF\_2\_min, TOF\_2\_max) afin d'isoler ces voies. Après cette sélection, une deuxième phase consistera à nettoyer les données des fausses coïncidences.

### Nettoyage des Données des Mauvaises Coïncidences

Une fois que l'on a identifié et isolé les différentes voies de fragmentation, on va utiliser les informations en temps de vol et positions de chacun des deux fragments afin de déterminer la position initiale de chaque collision. Cette position notée  $(x_0, y_0, z_0)$  est calculée pour chaque événement de coïncidence en utilisant les formules de A.2.2. Dans la suite de l'analyse, on va utiliser le paramètre  $L_0$  ( $L_0 = L_d - x_0$ ,  $L_d$  étant la longueur de vol nominale entre le point de collision et le détecteur des ions positifs) pour désigner la position suivant  $x$  de la position du centre de masse du dimère au moment de la collision afin de s'affranchir des incertitudes provenant de la mesure expérimentale de la position du détecteur  $L_d$  suivant la direction  $x$ .

La figure 4.3 montre les distributions de la position initiale de la molécule pour toutes les données. Ces distributions correspondent bien à des gaussiennes centrées sur la position la plus probable appelée centre de la région de la collision notée  $(L_{0c}, y_{0c}, z_{0c})$ . Une fois qu'on a tracé la distribution en  $L_0$ ,  $y_0$  et  $z_0$ , on sélectionne une fenêtre en position de part et d'autre de la position la plus probable  $(L_{0c}, y_{0c}, z_{0c})$  afin de se débarrasser des données provenant du gaz résiduel et de mauvaises coïncidences (Fig.4.4).

Après nettoyage des données, on passe au calcul du vecteur quantité de mouvement d'émission des deux fragments ( $\vec{P}_{01}$  et  $\vec{P}_{02}$ ) en utilisant les formules A.2.1 afin de déterminer l'énergie cinétique KER libérée par fragmentation des deux centres du dimère (relation A.2.3). En utilisant la position centrale  $(L_{0c}, y_{0c}, z_{0c})$ , une étude en fonction du vecteur quantité de mouvement échangé entre le projectile et la cible durant la collision peut être effectuée en utilisant les formules A.3.1a (Sect.5.3). L'énergie cinétique totale  $\text{KER}_{tot}$  des deux fragments due à la fragmentation (relation A.2.3) et l'échange d'impulsion entre le projectile et la cible est enfin calculée en utilisant la relation A.3.2.

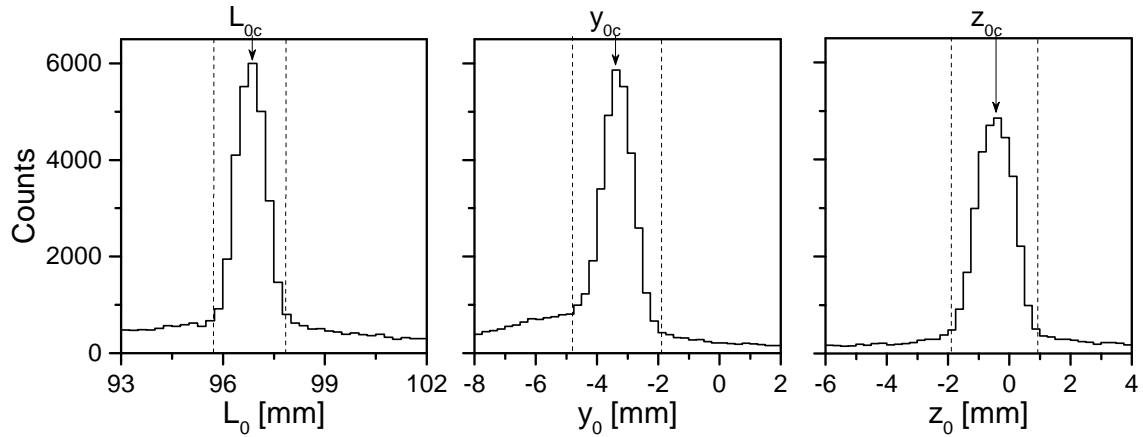


FIGURE 4.3 – Spectre montrant, pour chaque événement de coïncidence, la distribution des positions initiales du dimère ( $L_0=L_d-x_0$ ,  $y_0$ ,  $z_0$ ) au moment de l'interaction entre  $\text{Ar}^{9+}$ - $\text{Ar}_2$  produisant la voie de fragmentation  $\text{Ar}^+-\text{Ar}^+$ . Les lignes verticales en pointillé sont les positions minimales et maximales qui sont utilisées pour le nettoyage des données. La position du pic dans les trois directions correspond à la position centrale de la région de la collision ( $L_{0c}=L_d-x_{0c}$ ,  $y_{0c}$ ,  $z_{0c}$ ).

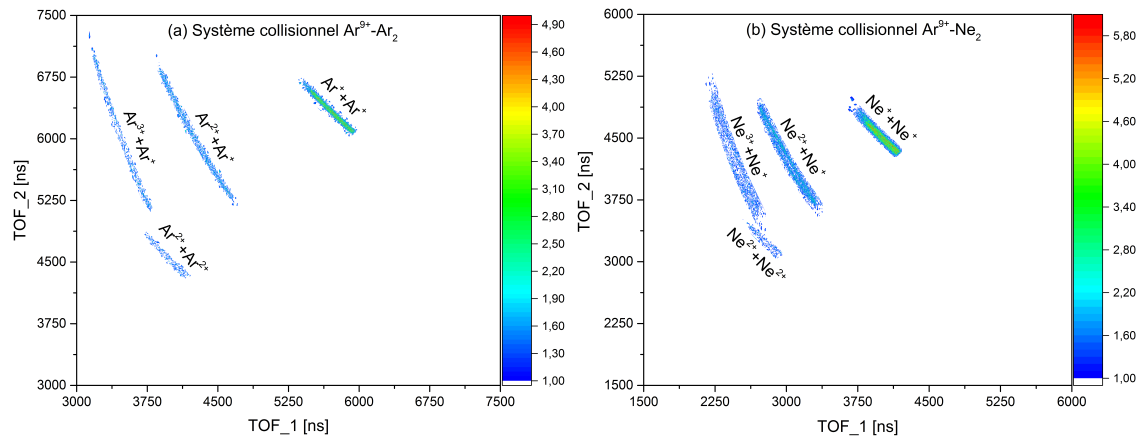


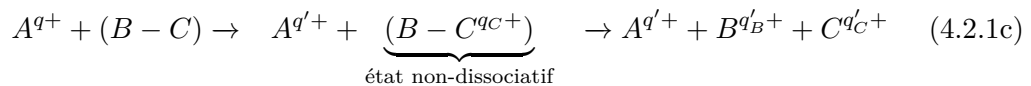
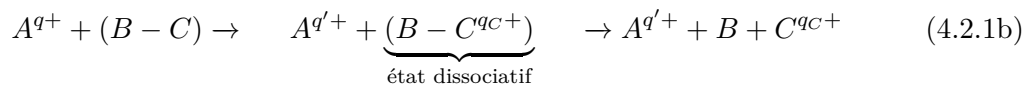
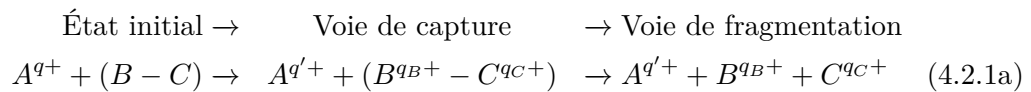
FIGURE 4.4 – Spectre 2D du temps de vol du premier fragment en fonction du deuxième fragment pour les deux systèmes collisionnels  $\text{Ar}^{9+}$ - $\text{Ar}_2$  (a) et  $\text{Ar}^{9+}$ - $\text{Ne}_2$  (b). Ces deux spectres sont obtenus en utilisant les informations en temps de vol ( $\text{TOF}_{H1}$ ,  $\text{TOF}_{H2}$ ) et en position ( $L_0$ ,  $y_0$  et  $z_0$ ) pour isoler et nettoyer chaque voie de fragmentation.

## 4.2 Traitement des Données de Calcul MC-COBM

Dans le chapitre 2, nous avons vu une description de la méthode de traitement de la collision entre des ions multichargés de basse énergie et des dimères de gaz rare en utilisant le modèle de la barrière coulombienne MC-COBM. Les calculs utilisés dans MC-COBM ont permis de déterminer le nombre d'électrons capturés par le projectile de chacun des deux centres du dimère ( $(q_1, q_2)_C$  appelée voie de capture). Après avoir déterminé cette distribution de charges, le calcul va devoir tenir compte des différentes voies de relaxation (mécanisme de dissociation) possibles qui aboutissent à la production de deux fragments ioniques (Sect.4.2.1). Enfin, une étape supplémentaire va permettre de tenir compte de la résolution instrumentale de notre dispositif pour une comparaison plus réaliste entre la théorie et l'expérience. Dans un premier temps, on va associer le KER obtenu expérimentalement pour chaque mécanisme de dissociation présent dans une voie de fragmentation donnée pour pouvoir calculer le vecteur quantité de mouvement d'émission de chacun des deux fragments. Ce vecteur permet ensuite de simuler la trajectoire des fragments ioniques à l'intérieur du spectromètre jusqu'au détecteur (Sect.4.2.2), en tenant compte de la taille de la zone de collision et la résolution des détecteurs. Dans un second temps, les informations obtenues à la fin de la simulation de la trajectoire des ions vont permettre de reconstruire la position initiale de la collision, le KER, l'angle d'émission des fragments et l'angle de diffusion du projectile, avec la même procédure que pour les données expérimentales (Sect.4.2.3).

### 4.2.1 Estimation des Voies de Relaxation

Après traitement de la collision à trois corps projectile/dimère de gaz rare, le modèle MC-COBM permet d'avoir accès aux voies de capture ( $(q_1, q_2)_C$  : nombre d'électrons capturés sur le projectile de chacun des deux centres du dimère). L'estimation de la transition de la voie de capture à la voie de fragmentation ( $(q_1, q_2)_C \rightarrow (q_1, q_2)_F$ ) est essentielle avant de passer à la phase de simulation et d'analyse. Cela est dû au fait que pendant l'expérience et l'analyse expérimentale, on ne s'intéresse qu'aux événements où l'on produit deux fragments chargés positivement (les seuls auxquels le dispositif est sensible). Comme on l'a vu dans la section 1.2.3, ces deux fragments peuvent être produits de deux façons distinctes.



La première voie de production de deux fragments chargés positivement est directe : le projectile capture des électrons à chacun des deux centres du dimère, produisant des états moléculaires dissociatifs qui se relaxent en deux fragments ioniques (comme pour le

processus CE (Eq.4.2.1a)).

La deuxième voie de production de deux fragments chargés positivement peut être indirecte, après que le projectile ait interagit avec un seul des deux centres du dimère produisant des états moléculaires non-dissociatifs (Eq.4.2.1c). Cette interaction avec un seul centre permet aussi de produire, d'une façon équivalente (que nous considérons ici comme équiprobable aux états moléculaires non-dissociatifs), des états moléculaires dissociatifs qui vont se fragmenter directement en un ion chargé positivement et un neutre (Eq.4.2.1b). Ces états moléculaires dissociatifs, produits après interaction du projectile avec un seul centre du dimère, ne seront pas traités par la suite dans le modèle puisque l'on ne détecte pas expérimentalement les particules neutres. Cependant, les états moléculaires non-dissociatifs sont des états pour lesquels les deux centres du dimère conservent leur liaison de façon transitoire mais qui peuvent se relaxer vers un autre état dissociatif via un mécanisme intermédiaire (comme les processus RCT, ICD, ETMD...). Ces processus conduisent, par échange d'énergie et/ou de charge entre les deux centres du dimère, à des voies de fragmentation auxquelles notre dispositif est sensible (Eq.4.2.1c). Dans ce contexte, seulement 50% des événements issus de l'interaction du projectile avec un seul centre du dimère (ceux qui correspondent aux états moléculaires non-dissociatifs) seront donc pris en compte dans le modèle MC-COBM pour une comparaison avec l'expérience.

Dans le modèle MC-COBM, la distribution de charge  $(q_1, q_2)_C$  (voie de capture) sur chacun des deux centres du dimère et l'état d'origine (nl) de ces électrons va nous permettre de déterminer si la collision sera suivie d'un processus CE, RCT, ICD, ou autre. Les données seront ensuite classées selon leur appartenance à un processus et à une voie de fragmentation donnée.

## 4.2.2 Simulation du Spectromètre

Cette partie permet de simuler la trajectoire des fragments produits après collision projectile/cible à l'intérieur du spectromètre jusqu'à la détection. À cet effet, on a introduit dans la simulation la géométrie du spectromètre et des détecteurs utilisés, ainsi que la valeur et direction du champ électrique appliqué.

Chaque processus conduisant à une voie de fragmentation donnée possède un KER spécifique au scénario de dissociation qui le produit. Ce scénario de dissociation tient compte de la charge de chaque fragment  $(q_1, q_2)_C$  et de la distance internucléaire avant dissociation. Dans la simulation, nous avons utilisé les distributions en KER obtenues expérimentalement pour chaque processus et effectué un tirage aléatoire sur ces distributions. Pour chaque événement de simulation d'un processus donné, le KER qui lui est associé va être divisé entre les deux fragments ioniques afin de calculer leur quantité de mouvement due à la fragmentation. En utilisant l'orientation du dimère (Sect.2.2.2) et le KER, on peut donc déterminer le vecteur quantité de mouvement lié à la fragmentation dans chacune des trois directions (x,y,z). Ce vecteur va ensuite être ajouté au vecteur quantité de mouvement  $\Delta\vec{P}$  ( $\vec{P}_{proj}$ ) échangé entre le projectile et la cible durant la collision (Sect.2.2.1). Le total de ces deux vecteurs va déterminer la vitesse de départ des deux ions pour la simulation de leurs trajectoires.

Il nous reste à déterminer la position initiale  $(x_0, y_0, z_0)$  de l'ion moléculaire pour chaque événement de collision. Afin de prendre en compte la taille de la région de collision qui est estimé être une sphère de diamètre de 0.6 mm (correspondant à la taille du faisceau incident), nous avons ajouté pour cette partie de la simulation un tirage gaussien avec une FWHM de 0.6 mm et centré sur la position  $(0,0,0)$ .

Pour chaque événement de collision produisant deux fragments ioniques, cette nouvelle position initiale du dimère et le vecteur vitesse de départ des deux fragments vont être utilisés comme paramètres initiaux pour simuler la trajectoire des deux ions à l'intérieur du spectromètre.

L'équation A.1.1a décrit la force appliquée aux deux fragments de charge et de masse  $(m_1; q_1)$  et  $(m_2; q_2)$  sous l'effet du champ électrique. Ces deux forces  $\vec{F}_1$  et  $\vec{F}_2$  permettent de déterminer le vecteur accélération qui va être ensuite utilisé pour calculer les vitesses et positions en fonction du temps de chacun des deux fragments ioniques (équations A.1.2a, A.1.2b). Pour chacun des deux fragments ionique arrivant sur le détecteur, qui est à 97 mm du centre de la région de la collision, on détermine alors la position d'impact et le temps de vol correspondant au temps entre le moment de la collision et le moment de l'impact sur le détecteur (Sect.A.1). À chaque fois que l'on a collecté ces valeurs de position et temps de vol pour chaque événement de collision produisant deux fragments ioniques, on passe à la dernière étape qui consiste à analyser ces données.

### 4.2.3 Analyse

La dernière étape consiste à analyser les données en position et en temps de vol des fragments obtenues précédemment. Ces deux informations vont permettre de recalculer le vecteur quantité de mouvement d'émission de chacun des deux fragments et de déterminer la position initiale du centre de masse de la cible pour chacun des événements de collision. Les valeurs de la quantité de mouvement d'émission vont être utilisées pour une étude basée sur l'orientation du dimère. Le vecteur quantité de mouvement échangée entre le projectile et la cible durant la collision est aussi calculé pour permettre une étude en fonction de l'angle de diffusion du projectile et du recul du centre de masse du dimère. Tous ces calculs sont faits en utilisant la même méthode d'analyse déjà employée pour les données expérimentales.

Les valeurs en temps de vol et position  $(y; z)$  sur le détecteur de chacun des fragments ioniques vont permettre de calculer la position initiale du centre de masse du dimère dans la région de la collision (Eq.A.2.2). Tout comme pour l'analyse expérimentale, nous allons utiliser dans la suite le paramètre  $L_0$  à la place de  $x_0$ . Utilisant ces valeurs  $(L_0; y_0; z_0)$  de la position du centre de masse de l'ion moléculaire, on peut calculer le vecteur quantité de mouvement d'émission des deux ions en utilisant les équations du A.2.1. Ces valeurs de  $(P_{0x}; P_{0y}; P_{0z})$  de chacun des deux fragments vont être utilisé pour calculer le KER (équations A.2.3 et A.3.2) et l'orientation du dimère (équations A.2.4 et A.2.5 :  $\theta$  est l'angle d'orientation du dimère par rapport à l'axe z du faisceau et  $\Phi$  est l'angle d'orientation du dimère dans le plan transverse  $(x; y)$ ). Le centre de la zone de collision est déterminé en traçant la distribution en  $(L_0; y_0; z_0)$  de tous les événements et en prenant la position

$(L_{0c}; y_{0c}; z_{0c})$  correspondante à la position la plus probable. Enfin, la détermination du vecteur quantité de mouvement échangé entre le projectile et la cible durant la collision  $(P_{xCM}; P_{yCM}; P_{zCM})$  en utilisant la relation [A.3.1a](#) permet de calculer l'angle de diffusion du projectile (équation [A.3.1c](#)).

# Chapitre 5

## Résultats Expérimentaux vs MC-COBM

### Sommaire

---

<b>5.1</b>	<b>Kinetic Energy Release (KER)</b>	<b>59</b>
5.1.1	Voies de Fragmentation de la Double Capture	59
	Ne <sup>+</sup> +Ne <sup>+</sup>	62
	Ar <sup>+</sup> +Ar <sup>+</sup>	65
5.1.2	Voies de Fragmentation de la Triple Capture	66
	Ne <sup>2+</sup> +Ne <sup>+</sup>	67
	Ar <sup>2+</sup> +Ar <sup>+</sup>	69
5.1.3	Voies de Fragmentation de la Quadruple Capture	71
	Formation d'ions projectiles de charge négative O <sup>-1</sup>	72
<b>5.2</b>	<b>Ratios des Différents Processus et Voies de Fragmentation</b>	<b>75</b>
5.2.1	Cas du dimère de Ne	77
5.2.2	Cas du dimère d'Ar	79
<b>5.3</b>	<b>Échange de quantité de mouvement : Composante Transverse</b>	<b>81</b>
	Cas du système collisionnel Ar <sup>9+</sup> -Ar <sub>2</sub>	83
<b>5.4</b>	<b>Distribution en Angle de Diffusion</b>	<b>83</b>
	Cas du système collisionnel Ar <sup>9+</sup> -Ar <sub>2</sub>	84
<b>5.5</b>	<b>Image 2D de la Collision en P(<math>\vec{b}</math>)</b>	<b>86</b>
	Cas du système collisionnel Ar <sup>9+</sup> -Ar <sub>2</sub>	87
<b>5.6</b>	<b>Auto-Ionisation du Projectile</b>	<b>89</b>
5.6.1	Double Capture	90
5.6.2	Triple Capture	91
5.6.3	Quadruple Capture	92

---

Dans ce chapitre, les résultats de l'étude de collisions entre des ions multichargés (Xe<sup>20+</sup>, Ar<sup>9+</sup> et O<sup>3+</sup>) et des dimères de gaz rare ( Ne<sub>2</sub> et Ar<sub>2</sub>) sont présentés, discutés, et comparés à des calculs théoriques basés sur le modèle de la barrière coulombienne MC-COBM détaillé au chapitre 2. L'objectif est de tester les hypothèses du modèle MC-COBM, d'explorer en détail la dynamique de l'interaction (les processus de capture) et les modes de relaxation des ions moléculaires produits.



Rappelons ici que pour chaque événement conduisant à la fragmentation de la cible en deux fragments chargés, l'analyse présentée au chapitre précédent fournit les observables expérimentales suivantes : le temps de vol et la charge des deux fragments, le vecteur impulsion de chaque fragment (donnant accès au KER et à l'orientation de la cible), et l'état de charge du projectile diffusé.

La mesure du temps de vol des deux fragments produits après la collision entre des ions multichargés et des dimères est une étape importante pour l'identification des différentes voies de fragmentation (Sect.4.1.2). En traçant l'image en 2D du temps de vol du premier fragment en fonction de celui du deuxième fragment (Fig.4.2 et 4.4), on peut isoler chacune des voies correspondant aux paires d'ions détectés en coïncidence avant de lancer une étude plus approfondie sur chacune de ces voies de fragmentation. L'obtention expérimentale de la distribution en KER va par la suite permettre d'identifier les différents processus possibles dans chacune des voies de fragmentation et donc de remonter aux différentes voies de capture qui ont abouti à la production de ces voies de fragmentation (Sect.5.1).

Une fois les processus et voies de fragmentation identifiés pour chacun des six systèmes collisionnels, on s'est intéressé à la production relative de tous ces processus en intégrant les distributions en KER obtenues. En comparant ces productions entre elles, on peut, par exemple, étudier comment le rapport entre les différents processus évolue avec la nature du projectile et celle de la cible (Sect.5.2). En parallèle, une deuxième étude en fonction de la charge du projectile est aussi menée sur chacune des voies de fragmentation afin de voir le poids relatif entre les processus de stabilisation (relaxation par émission de photons) et d'autoionisation (relaxation par émission Auger) des électrons capturés par le projectile (Sect.5.6).

Une étude plus approfondie utilisant la distribution angulaire des fragments et du projectile diffusé est aussi présentée. En utilisant la quantité de mouvement d'émission des deux fragments et l'échange de quantité de mouvement entre le projectile et la cible (Sect.5.3), les angles correspondant à l'orientation de la molécule au moment de la collision et ceux correspondant à la direction de diffusion du projectile sont déterminés. Cette étude permet de rechercher une éventuelle corrélation entre ces angles pour chacun des processus observés (Sect.5.4).

En parallèle, une étude théorique (Chap.2) est aussi effectuée pour comparaison avec les résultats expérimentaux. Cette approche théorique permet la comparaison des productions relatives et des distributions angulaires associées pour les différents processus et voies de fragmentation observés. Le but de cette confrontation théorie/expérience est tout d'abord de tester la validité des hypothèses ou approximations utilisées dans le calcul théorique. Dans un deuxième temps, cet outil théorique permet d'accéder à une meilleure compréhension de la dynamique de la collision en permettant, par exemple, de tracer l'image 2D en  $P(\vec{b})$  donnant, pour chaque processus, la probabilité de capture en fonction du vecteur paramètre d'impact  $\vec{b}$  du projectile par rapport aux deux centres du dimère (dans le repère du dimère) (Sect.5.5).

## 5.1 Kinetic Energy Release (KER)

Aux énergies de collision concernées par notre étude, on peut considérer la collision proprement dite et la fragmentation de l'ion moléculaire (après que le projectile ait capturé des électrons de la cible) comme deux étapes indépendantes. La première étape concerne l'interaction entre le projectile et la cible durant la collision, qui conduit ici très majoritairement à la capture d'électrons de la cible par le projectile. Elle s'accompagne d'une modification de l'énergie potentielle du système ( $Q$  de réaction) et de la diffusion du projectile à un angle donné, ce qui communique au centre de masse de l'ion moléculaire une impulsion de l'ordre de quelques dizaines d'u.a. (ou de quelques  $10^{-2}$  eV en énergie). La deuxième étape est la relaxation de l'ion moléculaire en deux fragments ioniques. Cette fragmentation communique une impulsion aux deux fragments, dans le centre de masse de l'ion moléculaire, qui est de l'ordre de quelques centaines d'u.a. (soit une énergie de fragmentation, ou KER, de quelques eV). Cette énergie peut être approximativement déterminée en utilisant la formule  $\frac{q_1 * q_2}{R}$  pour le cas de deux fragments produits de charge  $q_1$  et  $q_2$  et où  $R$  est la distance internucléaire entre ces deux ions avant dissociation. Cela permet de dire que l'impulsion acquise par les deux fragments diffère en fonction de la distance internucléaire et de la charge des fragments ioniques. Plus la charge des fragments est grande ou bien plus la distance entre les différents fragments avant dissociation est petite, plus l'impulsion reçue par chacun des fragments est grande. Dans notre analyse, ces deux impulsions sont transformées en énergie notée  $KER_{tot}$  (Kinetic Energy Release, qui est la somme des énergies cinétiques des fragments produits (Eq.A.3.2)). Vu que l'énergie due à l'interaction entre le projectile et la cible est 100 fois plus petite que l'énergie libérée par fragmentation de la molécule, nous allons dans un premier temps négliger la première contribution et utiliser la deuxième contribution, obtenue par l'Eq.A.2.3, afin de la comparer aux valeurs théoriques estimées pour chaque dissociation. La distribution en KER obtenue après analyse des données expérimentales est une information importante pour l'étude de la dynamique de la collision en permettant d'identifier les différents processus de relaxation mis en jeu pour passer des voies de capture  $(q_1 ; q_2)_C$  (où  $q_1$  et  $q_2$  sont les charges des deux centres de la cible après capture) vers des voies de fragmentation  $(q_1 ; q_2)_F$  (où  $q_1$  et  $q_2$  sont les charges des deux fragments de la cible après fragmentation).

### 5.1.1 Voies de Fragmentation de la Double Capture

Dans ce paragraphe, nous allons présenter les KER obtenus expérimentalement dans la voie de fragmentation de double capture  $(1+ ; 1+)_F$  des dimères de Ne et d'Ar pour les six systèmes collisionnels étudiés (Fig.5.2). Plusieurs processus peuvent être à l'origine de ces deux voies de fragmentation et sont illustrés dans la Fig.5.1. Un de ces processus est l'explosion coulombienne, notée CE, et intervient directement après que le projectile ait capturé un seul électron sur chaque centre du dimère. Ce processus intervient à la distance internucléaire d'équilibre du dimère dans son état fondamental neutre. Le deuxième processus, pour lequel le projectile capture deux électrons sur un seul des deux sites du dimère, est noté RCT ou CT pour "Radiative/non-radiative Charge Transfer". Un transfert de charge intervient ensuite entre le centre neutre et le centre doublement chargé ce qui ré-

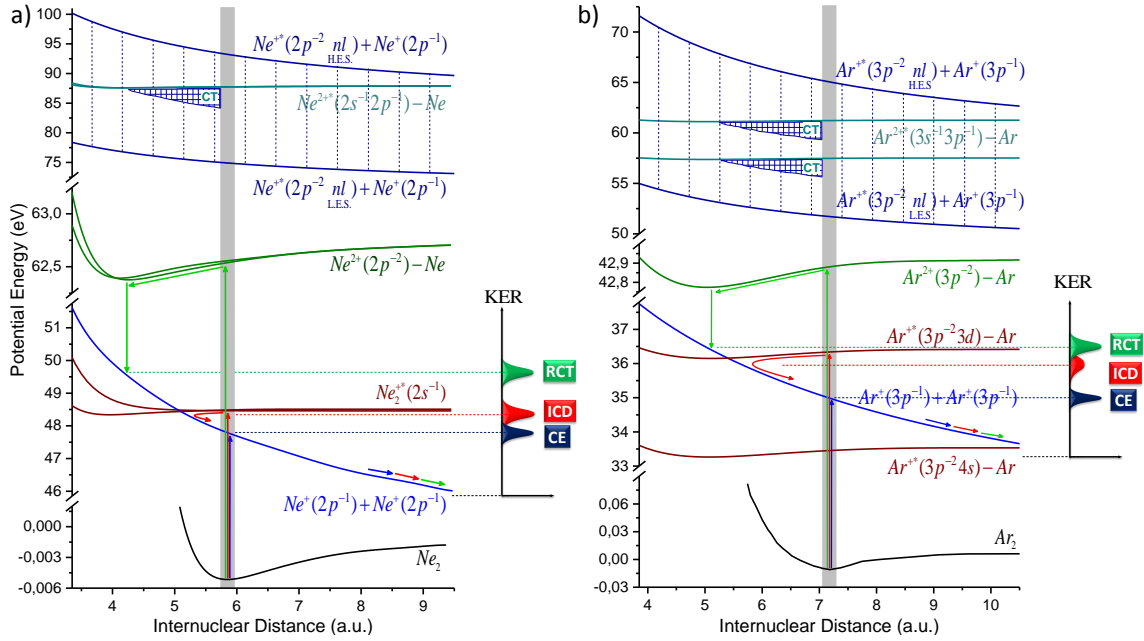


FIGURE 5.1 – Illustration des processus CE, RCT, CT et ICD dans une collision entre des ions multichargés et des dimères de Ne (a) et d’Ar (b) produisant la voie de fragmentation de la double capture. Les courbes d’énergie potentielle sont adaptées de [57, 76, 95, 108]. La position en KER estimée pour chaque processus est schématisée sur la droite de chacune des deux figures. La zone en gris correspond à la région Franck-Condon. LES et HES correspondent à Low Excited States et High Excited States respectivement.

sulte en l’émission de deux fragments ioniques simplement chargés. Dans le cas des dimères mononucléaire de Ne et d’Ar, un croisement entre les deux états  $(2+;0)_C$  ( $\text{Ne}^{2+}(2p^{-2})\text{-Ne}$  ou  $\text{Ar}^{2+}(3p^{-2})\text{-Ar}$ ) et  $(1+;1+)_F$  ( $\text{Ne}^+(2p^{-1})\text{+Ne}^+(2p^{-1})$  ou  $\text{Ar}^+(3p^{-1})\text{+Ar}^+(3p^{-1})$ ) n’est pas autorisé (Fig.5.1), ce qui exclut ici l’existence du processus CT. Pour le processus RCT, illustré par des flèches vertes sur la Fig.5.1, la relaxation de  $(2+;0)_C \rightarrow (1+;1+)_F$  peut avoir lieu via l’émission d’un photon d’énergie égale à la différence d’énergie potentielle entre ces deux états. La seule possibilité de production du processus CT est illustrée par une région triangulaire en bleu et blanc sur la Fig.5.1. Il correspond à la capture d’un électron de valence et d’un électron de couche interne du même centre du dimère, produisant l’état non-dissociatif du  $(2+^*;0)_C$  ( $\text{Ne}^{2+^*}(2s^{-1}2p^{-1})\text{-Ne}$  ou  $\text{Ar}^{2+^*}(3s^{-1}3p^{-1})\text{-Ar}$ ) qui va ensuite croiser un état excité dissociatif du  $(1+^*;1+)_F$  ( $\text{Ne}^{1+^*}(2p^{-2}nl)\text{-Ne}^+(2p^{-1})$  ou  $\text{Ar}^{1+^*}(3p^{-2}nl)\text{-Ar}^+(3p^{-1})$ ) en échangeant un seul électron (et sans émission de photon).

En plus de ces processus de double capture, un nouveau processus appelé Interatomic Coulombic Decay (ICD) peut être observé dans la voie  $(1+;1+)_F$ . Deux différentes voies de production ont été observées pour ce processus ICD (Fig.5.1). La première, illustrée en rouge sur la Fig.5.1(b), correspond à la perte d’un électron de couche de valence alors qu’un autre électron est excité, tout cela sur un même centre du dimère. L’énergie gagnée par relaxation de l’électron excité permet alors d’ioniser un électron de valence du deuxième centre neutre [76, 106]. Cette voie de production de l’ICD est autorisée pour les deux cibles utilisées pendant l’expérience (dimères de Ne et d’Ar), mais la faible section efficace du

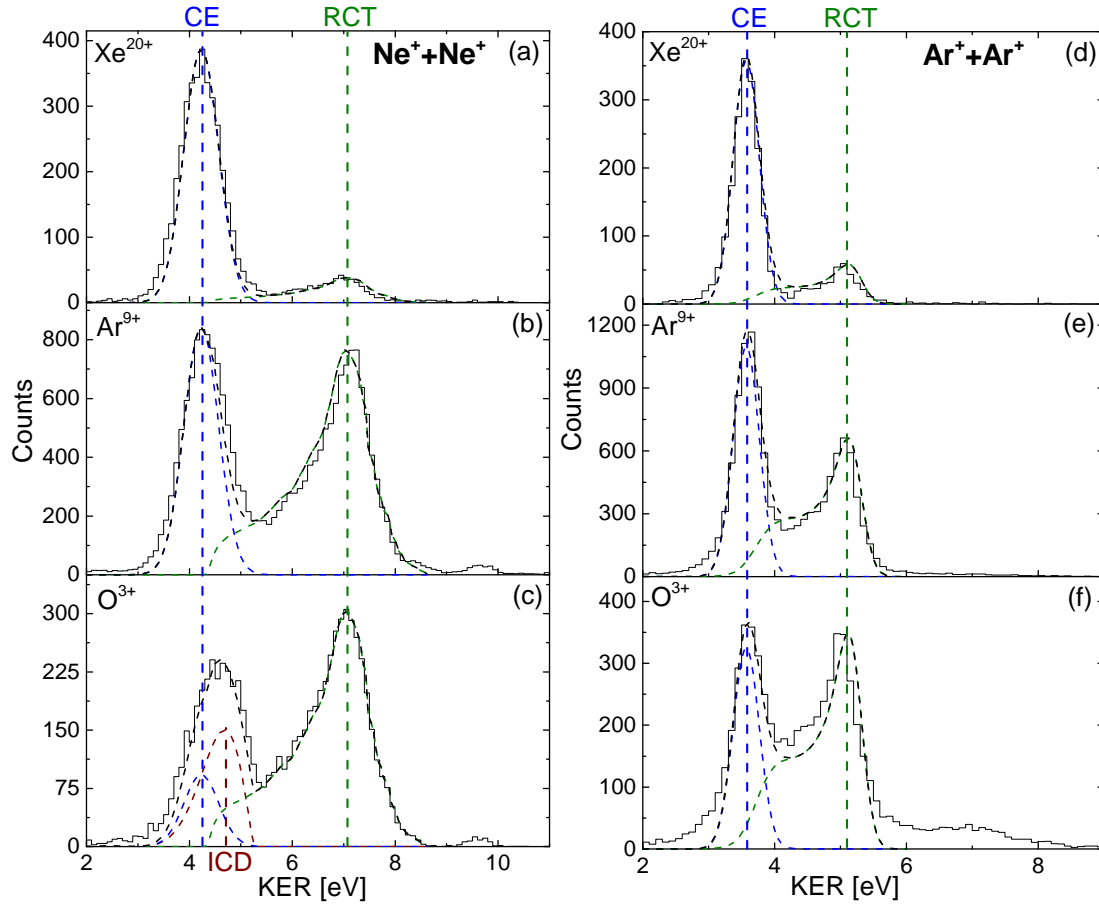


FIGURE 5.2 – Distribution en énergie cinétique KER produite après fragmentation de  $\text{Ne}^+ + \text{Ne}^+$  (gauche) et  $\text{Ar}^+ + \text{Ar}^+$  (droite) utilisant les trois projectiles  $\text{Xe}^{20+}$  (a,d),  $\text{Ar}^{9+}$  (b,e) et  $\text{O}^{3+}$  (c,f) et sans sélection sur la charge finale du projectile. Les courbes bleues et vertes en pointillés correspondent à une distribution ajustée pour les deux processus CE et RCT respectivement. La courbe rouge en pointillés (c) représente la distribution de l'ICD issue de [56]. La somme de toutes les contributions est représentée en pointillés noirs. Trois lignes verticales bleues, vertes et rouges indiquent le pic en KER pour les trois processus CE, RCT et ICD respectivement.

processus d'excitation par rapport au processus de capture d'électron rend cette possibilité peu probable. Par conséquent, ce scénario de production d'ICD ne va pas être étudié par la suite. La deuxième voie, illustrée en rouge sur la Fig.5.1(a), correspond à la perte d'un électron en couche interne de valence d'un centre du dimère. La relaxation d'un électron de valence vers le trou du couche interne permet de générer une énergie qui est, dans certains cas, comme pour  $\text{Ne}_2$  et  $(\text{H}_2\text{O})_2$  [56, 59, 80, 84], suffisante pour ioniser un électron de valence du deuxième centre neutre. Cette énergie libérée par relaxation est de 13.48 eV ( $\text{EI}(3s^{-1})=29.24$  eV et  $\text{EI}(3p^{-1})=15.76$  eV) pour le cas du dimère d'argon et de 26.9 eV ( $\text{EI}(2s^{-1})=48.5$  eV et  $\text{EI}(2p^{-1})=21.6$  eV) pour le cas du dimère de néon. Cette énergie n'est pas suffisante pour ioniser un électron de valence du deuxième centre neutre du dimère d'Ar et limite donc notre étude de cette voie de production d'ICD aux dimères de Ne.

L'étude et l'identification de ces processus sont particulièrement intéressantes. D'une

part, le processus ICD se produit via l'échange d'énergie d'un photon virtuel entre les deux centres du dimère tandis que les processus RCT ou CT conduisent à un échange d'électron entre les deux centres du dimère. D'autre part, ces processus de relaxation sont associés à des processus de capture différents : simple capture en couche interne ou transfert excitation pour ICD, double capture sur un seul site pour RCT et CT, et double capture sur les deux sites pour CE. Comme illustré sur la Fig.5.1, ces processus se produisent à des distances internucléaires différentes et peuvent donc être séparés et identifiés en utilisant la distribution en KER de la voie de fragmentation de double capture. Le processus CE se produit à la distance internucléaire de l'état neutre du dimère qui est de 5.86 a.u pour le Ne<sub>2</sub> et 7.18 a.u. pour l'Ar<sub>2</sub>. Le processus RCT se produit préférentiellement à la distance internucléaire d'équilibre de l'état non-dissociatif doublement chargé du dimère qui est entre 4.05 → 4.35 a.u pour le Ne<sup>2+</sup>-Ne et 5.20 → 5.86 a.u. pour l'Ar<sup>2+</sup>-Ar. Cet intervalle de distance internucléaire d'équilibre de l'état non-dissociatif du (2+;0)<sub>C</sub> est dû aux différents états vibrationnels et arrangements spin-orbite des électrons du dimère doublement chargé. Différents points de croisement entre la voie de capture et la voie de fragmentation peuvent contribuer à la distribution en KER du processus CT. Ces croisements correspondent aux points d'intersection entre un état non-dissociatif (Ne<sup>2+\*</sup>(2s<sup>-1</sup>2p<sup>-1</sup>)-Ne ou Ar<sup>2+\*</sup>(3s<sup>-1</sup>3p<sup>-1</sup>)-Ar) et plusieurs états excités dissociatifs (Ne<sup>1+\*</sup>(2p<sup>-2</sup>nl)-Ne<sup>+</sup>(2p<sup>-1</sup>) ou Ar<sup>1+\*</sup>(3p<sup>-2</sup>nl)-Ar<sup>+</sup>(3p<sup>-1</sup>)), générant des possibilités de fragmentation à plusieurs endroits. Cela donne une distribution en KER pour le processus CT qui peut s'étaler sur une large région et qui est difficile à prédire avec précision : en plus de l'existence de multiples croisements, l'approximation purement Coulombienne n'est plus valide pour des états moléculaires très excités. Pour le processus ICD (Fig.5.1(a)), l'énergie cinétique totale disponible dans le cas du dimère de Ne est égale à la différence entre l'énergie d'ionisation d'un électron de couche (2s) et le double de l'énergie d'ionisation d'un électron de couche (2p) :  $E_{tot}=48.5-2*21.6=5.3$  eV. Cette énergie de 5.3 eV est distribuée entre les deux fragments et l'électron ICD.

### Ne<sup>+</sup>+Ne<sup>+</sup>

Comme on peut le voir dans la Fig.5.2(a-c) pour les dimères de Ne, plusieurs pics correspondant à différents processus sont présents. Le premier pic, qui apparaît à 4.2 eV et correspondant à une distance internucléaire de 6.32 a.u., est attribué au processus CE. Le second pic est attribué au processus RCT et apparaît à 7 eV, ce qui correspond à une distance internucléaire de 3.88 a.u. pour une estimation utilisant une pure répulsion coulombienne entre deux fragments simplement chargés. Ces deux pics correspondent bien aux valeurs théoriques en KER (présentées en ligne pointillée verticale bleu et vert) prévues pour ces deux processus en utilisant la distance internucléaire d'équilibre du dimère neutre pour le processus CE et de l'état non-dissociatif du dimère doublement chargé pour le processus RCT. D'autres pics apparaissent à une énergie de 8.4 et 9.6 eV pour les projectiles Ar<sup>9+</sup> et O<sup>3+</sup> (Fig.5.2(b,c)). Un décalage vers les énergies plus grandes mais proches du processus CE apparaît également pour le projectile O<sup>3+</sup> (Fig.5.2(c)). L'extraction et l'identification de ces contributions est plus délicate, d'où la nécessité d'utiliser l'information

expérimentale liée à la charge du projectile.

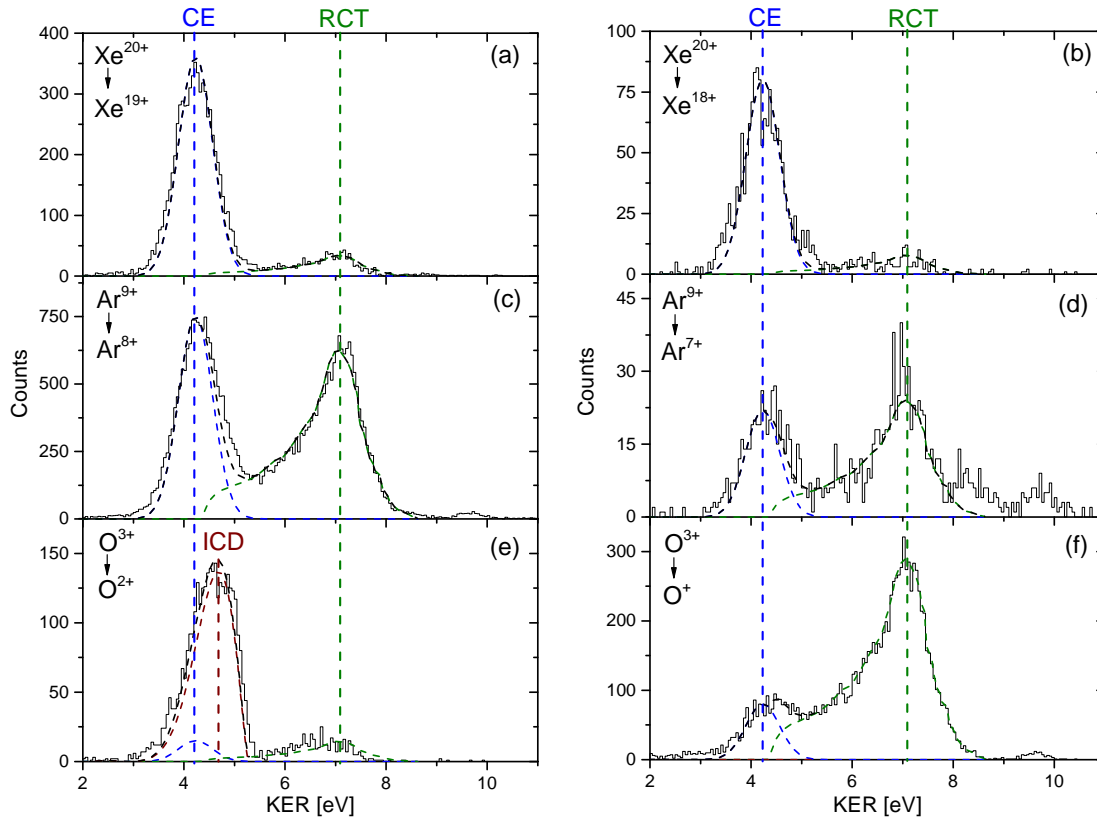
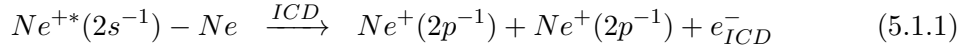


FIGURE 5.3 – Distribution en énergie cinétique KER produite après fragmentation de  $\text{Ne}^+ + \text{Ne}^+$  utilisant les trois projectiles  $\text{Xe}^{20+}$  (a,b),  $\text{Ar}^{9+}$  (c,d) and  $\text{O}^{3+}$  (e,f). Les événements associés au simple changement de charge SCC du projectile sont présentés sur la gauche et ceux de double changement de charge DCC sont présentés à droite. Les courbes bleues et vertes en pointillés correspondent à une distribution ajustée pour les deux processus CE et RCT respectivement. La courbe rouge en pointillés (e) représente la distribution de l'ICD issue de [56]. La somme de tous ces processus est représentée en pointillés de couleur noire. Trois lignes verticales bleues, vertes et rouges sont aussi tracées pour les trois processus CE, RCT et ICD respectivement aux valeurs en KER les plus probables.

Afin d'étudier plus en détail les contributions de processus CE et RCT et d'identifier les contributions provenant d'autre processus (ex. ICD ou CT), nous avons tracé la distribution en KER des six systèmes collisionnels en sélectionnant le simple changement de charge (SCC) ou le double changement de charge (DCC) du projectile pour la voie de fragmentation  $\text{Ne}^+ + \text{Ne}^+$  (Fig.5.3). Les spectres en KER associés au SCC du projectile sont montrés sur les Fig.5.3(a,c,e). Ils correspondent aux processus pour lesquels le projectile ne conserve qu'un électron. Les événements de SCC peuvent être associés à une capture d'un seul électron, comme dans le cas de l'ICD, ou bien à la capture de deux électrons (comme dans le cas des processus CE, RCT et CT) suivie par une autoionisation du projectile qui émet un des deux électrons par effet Auger. Les spectres associés au DCC du projectile sont montrés sur la Fig.5.3(b,d,f). Ils correspondent aux événements pour lesquels le projectile capture et conserve les deux électrons capturés.

La forme de la distribution en KER obtenue pour les deux processus CE et RCT tracée en pointillés bleus et verts provient d'un ajustement des données expérimentales. Pour CE, la forme est ajustée par une gaussienne pour laquelle la moyenne et l'écart-type sont extraits du spectre obtenu dans le cas de  $\text{Xe}^{20+} + \text{Ne}_2$  de la Fig.5.2(a), où le processus CE est largement dominant. De même, la courbe d'ajustement du processus RCT est obtenue à l'aide du spectre en KER du système collisionnel  $\text{O}^{3+} + \text{Ne}_2$  en ne sélectionnant que les données correspondant à un DCC du projectile et en retranchant la contribution du CE Fig.5.3(f). Ces courbes d'ajustement sont ensuite utilisées pour les autres systèmes collisionnels (avec ou sans sélection sur la charge du projectile) et reproduisent bien les deux processus CE et RCT, surtout pour les événements de SCC pour lesquels le projectile perd un électron par autoionisation.

La distribution en KER de la Fig.5.3(e) pour le système collisionnel  $\text{O}^{3+} + \text{Ne}_2$  montre une troisième contribution piquée à un KER proche mais plus grand que celui du processus CE. Ce processus apparaît uniquement pour les événements de simple changement de charge du projectile  $\text{O}^{3+}$  ce qui indique que c'est un processus pour lequel le projectile capture un seul électron du dimère. La seule réaction qui permette le passage d'un état de simple capture vers une voie de fragmentation de double capture est le processus ICD. Comme mentionné auparavant, la production du processus ICD est possible après que le projectile capture un électron de couche interne (2s) d'un des deux centres du dimère de néon.

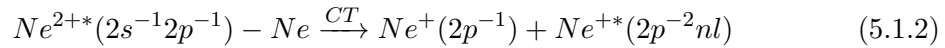


La réaction 5.1.1 illustrée en rouge sur la Fig.5.1(a) permet d'avoir une distribution en KER correspondant à la région de dissociation allant de la distance internucléaire d'équilibre du  $\text{Ne}_2$  jusqu'au point de croisement situé aux alentours de 5.1 a.u. donnant ainsi une énergie maximale pour les deux fragments de  $E_{\text{tot}}=5.3$  eV. Afin d'identifier clairement le scénario contribuant à ce spectre en KER pour le système collisionnel  $\text{O}^{3+} - \text{Ne}_2$ , nous avons tracé la forme du spectre en KER du processus ICD obtenu dans une autre expérience utilisant du rayonnement synchrotron [56] et produisant uniquement la réaction 5.1.1 (courbe rouge pointillé du Fig.5.3(e)). On voit que la forme du processus ICD reproduit ici parfaitement la contribution expérimentale montrant un pic en KER centré à 4.7 eV et s'étendant jusqu'à 5.3 eV, comme prévu dans le calcul de  $E_{\text{tot}}$ . Cela valide la présence du processus ICD sous forme de la réaction 5.1.1 dans le système collisionnel  $\text{O}^{3+} - \text{Ne}_2$ . Comme le montre la réaction 5.1.1, ce processus ICD produit des électrons  $e_{\text{ICD}}^-$  de basse énergie correspondante à  $E_{e_{\text{ICD}}^-} = 5.3 - \text{KER}_{\text{ICD}}$ .

Un autre point marquant est la faible contribution du processus RCT pour les événements SCC de la Fig.5.3(e), comparée à celle des événements DCC de la Fig.5.3(f). Cela indique un très faible poids de l'émission Auger dans le cas du projectile  $\text{O}^{3+}$ , contrairement aux cas des autres projectiles ( $\text{Ar}^{9+}$  et  $\text{Xe}^{20+}$ ), et permet de dire que la production d'électrons de basse énergie par le processus ICD domine ici largement l'émission d'électrons Auger par le projectile.

Deux autres faibles contributions sont observées aux alentours de 8.4 et 9.6 eV pour

les projectiles  $\text{Ar}^{9+}$  et  $\text{O}^{3+}$  (Fig.5.3(c,d,f)). Ces deux petits pics apparaissent sur les distributions en KER pour SCC et DCC. Cela permet de dire que ces processus sont liés à la double capture électronique. Ces deux pics apparaissent à des KER plus grands que celui du processus RCT ce qui pourrait correspondre à des scénarios de dissociation vers des voies excitées de  $(1+^*;1+)_F$  pour lesquelles la répulsion coulombienne produit un KER se situant entre celui libéré par la voie  $(1+;1+)_F$  ( $\text{KER} \propto \frac{1*1}{R}$ ) et celui de  $(2+;1+)_F$  ( $\text{KER} \propto \frac{2*1}{R}$ ) où  $R$  est la distance internucléaire au moment du croisement. Plus l'état d'excitation de l'électron de la voie  $(1+^*;1+)_F$  est grand, plus la répulsion coulombienne devient grande, jusqu'à approcher l'énergie libérée par une explosion entre un centre simplement chargé et un centre doublement chargé  $(2+;1+)_F$ , s'éloignant ainsi de celle de deux centres simplement chargés  $(1+;1+)_F$ . Cela permet de s'attendre à un KER plus grand que celui du processus CE et éventuellement plus grand que celui du RCT. De plus, on remarque que la contribution de ces deux pics est à peu près proportionnelle au processus RCT pour les deux projectiles concernés  $\text{O}^{3+}$  et  $\text{Ar}^{9+}$ . Sur les courbes d'énergie potentielle (Fig.5.1(a)), le passage d'une voie de capture non dissociative  $(2+;0)_C$  vers des voies excitées de  $(1+^*;1+)_F$  n'est pas autorisé. La seule possibilité de production est suivant le processus CT dans lequel le projectile capture un électron de couche interne (2s) et un électron de valence (2p) du même centre du dimère [75, 108].



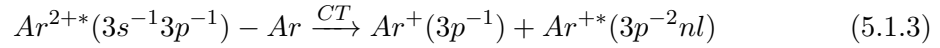
Les courbes d'énergie potentielle de cette voie montrent plusieurs croisements avec celles des voies hautement excitée du  $(1+^*;1+)_F$  (illustration en région triangulaire en bleu et blanc sur la Fig.5.1(a)) permettant d'obtenir des énergies libérées assez grandes (de 2 eV à 14.5 eV selon [75]). Cependant, la capture d'électrons de couche (2s) dans le cas du projectile  $\text{Ar}^{9+}$  est beaucoup moins probable (comme nous le verrons dans la Sect.5.2) que dans le cas de  $\text{O}^{3+}$ . En la comparant aux autres processus CE, RCT et ICD, la contribution venant de cette réaction 5.1.2 devrait donc être beaucoup plus présente dans le cas d' $\text{O}^{3+}$  que dans celui d' $\text{Ar}^{9+}$ . Cela va à l'encontre d'une contribution de cette réaction 5.1.2 et cela laisse un grand point d'interrogation sur la nature de la réaction qui contribue à cette distribution en KER.

### $\text{Ar}^+ + \text{Ar}^+$

Les deux processus de CE et RCT sont aussi présents dans la distribution en KER de la voie de fragmentation  $\text{Ar}^+ + \text{Ar}^+$  Fig.5.2(d-f). Le pic de CE à 3.55 eV est assez bien séparé de celui du RCT qui apparaît à 5.1 eV. Les positions de ces deux pics sont trouvées en bon accord avec les valeurs prédites en utilisant une pure répulsion coulombienne entre deux fragments simplement chargés et la distance internucléaire d'équilibre du dimère  $\text{Ar}_2$  neutre pour le CE, et de l'état non-dissociatif du dimère doublement chargé  $\text{Ar}-\text{Ar}^{2+}$  pour le RCT. Les contributions de ces deux processus CE et RCT sont tracées en bleu et vert pointillé respectivement. La forme de ces courbes est tirée de calculs théoriques tenant compte des états vibrationnels d' $\text{Ar}_2$ ,  $\text{Ar}-\text{Ar}^{2+}$  et  $\text{Ar}^+-\text{Ar}^+$  [81], et leur amplitude a été ajustée aux données expérimentales.



Une autre contribution est aussi présente dans la Fig.5.2(f) pour le projectile  $O^{3+}$ . Elle apparait à des KER plus larges que ceux du processus RCT, entre 6 eV et 9 eV, ce qui peut correspondre à une voie finale de dissociation qui est excitée. Si l'on regarde les courbes d'énergie potentielles de la Fig.5.1(b), il n'y a pas possibilité d'avoir un croisement entre l'état non-dissociatif  $(2+;0)_C$  et des états excités de  $(1+^*;1+)_F$ . Cependant, la réaction 5.1.3 [107], pour laquelle le projectile capture un électron de couche interne ( $3s$ ) et un électron de valence ( $3p$ ) du même centre du dimère d'Ar, est possible dans ce système collisionnel  $O^{3+}$ -Ar<sub>2</sub>.



Ce processus de type CT attribué à la réaction (5.1.3) peut avoir lieu à plusieurs points d'intersection entre les deux voies de capture et de fragmentation (illustration en région triangulaire en bleu et blanc sur la Fig.5.1(b)) et former cette queue à des KER allant de 6 eV à 9 eV. Comme nous le verrons dans la suite, la capture en couche interne semble favorisée pour les faibles états de charge du projectile, ce qui va dans le sens de l'apparition de cette queue en KER, via ce processus, pour le cas spécifique d' $O^{3+}$ .

### 5.1.2 Voies de Fragmentation de la Triple Capture

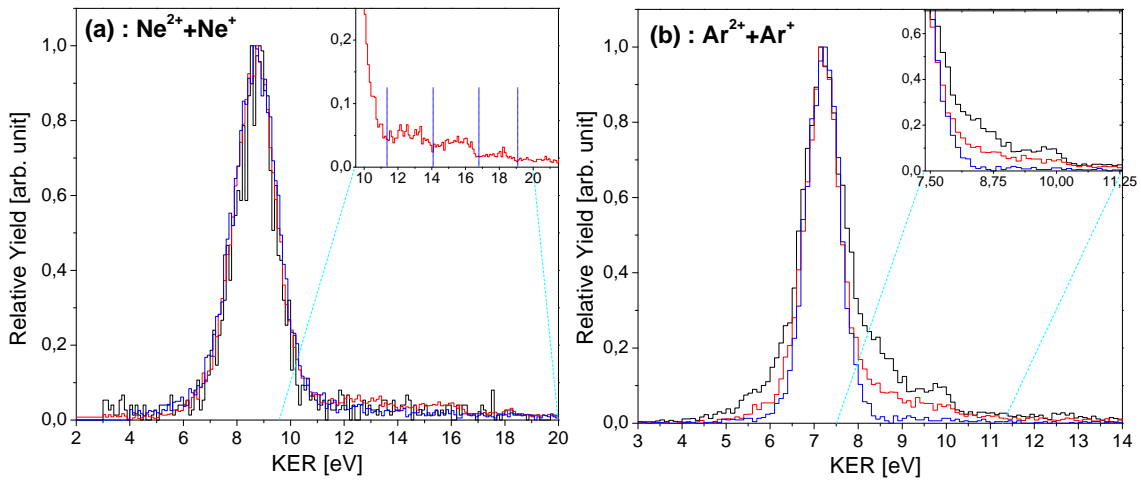


FIGURE 5.4 – Distributions en KER obtenues pour les voies de fragmentation de  $Ne^{2+}+Ne^+$  (gauche) et  $Ar^{2+}+Ar^+$  (droite) et sans sélection sur la charge finale du projectile. Les courbes noires, rouges et bleues correspondent aux résultats obtenus pour l' $O^{3+}$ ,  $Ar^{9+}$  et  $Xe^{20+}$  respectivement.

Pour les deux voies asymétriques de fragmentation  $Ar^{2+}+Ar^+$  et  $Ne^{2+}+Ne^+$ , les distributions en KER obtenues avec les différents projectiles sont données dans Fig.5.4. La contribution la plus importante vient du processus CE pour lequel le projectile capture deux électrons d'un des deux centres du dimère et un troisième électron du deuxième centre. Ce processus donne lieu à des pics centrés à 8.7 eV pour le dimère de Ne et à 7.1 eV pour celui d'Ar, correspondant bien aux valeurs estimées en utilisant la répulsion

coulombienne entre deux fragments chargé (2+) pour le premier et (1+) pour le deuxième à la distance internucléaire d'équilibre du dimère de Ne (5.86 a.u.) et d'Ar (7.1 a.u.). De faibles contributions sont également présentes à des KER plus élevés. Une discussion des processus pouvant être à leur origine est présentée dans la suite.

### $\text{Ne}^{2+} + \text{Ne}^+$

En regardant plus en détail la fenêtre en KER allant de 10 à 20 eV pour les données obtenues avec le projectile  $\text{Ar}^{9+}$  produisant la voie de fragmentation  $\text{Ne}^{2+} + \text{Ne}^+$  (Fig.5.4(a)), on voit trois petites structures sur des intervalles en KER de (12 ; 14) eV, (14 ; 17) eV et (17 ; 19) eV qui sont au-delà du KER attendu pour le processus CE. Cela peut être attribué à des processus tels que RCT ou CT permettant d'obtenir des grands KER.

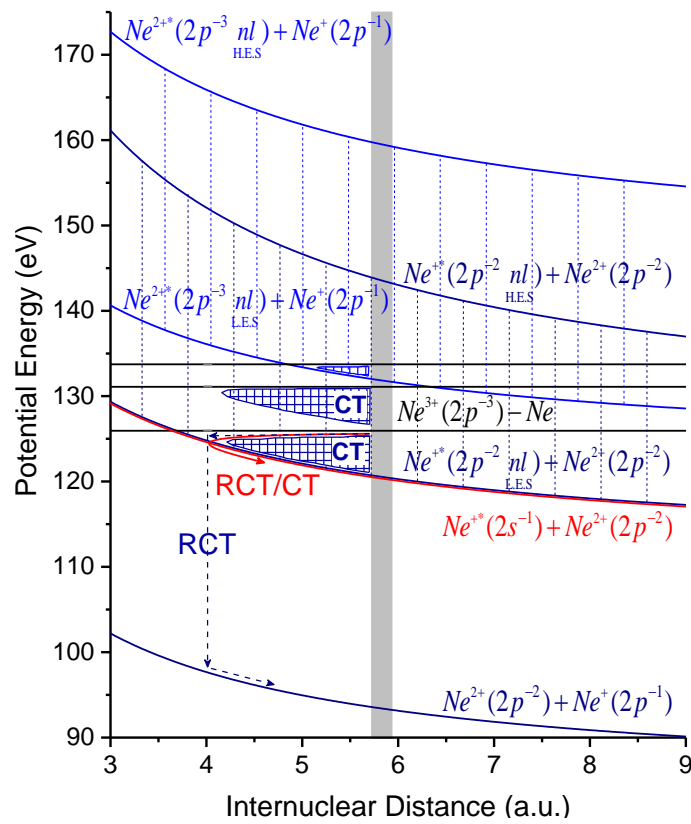
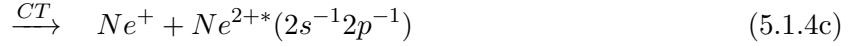
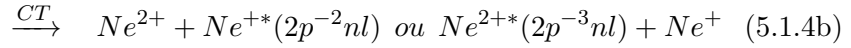


FIGURE 5.5 – Illustration des différents processus pour la voie de fragmentation  $\text{Ne}^{2+} + \text{Ne}^+$ . Pour les voies dissociatives, les courbes d'énergie potentielle sont calculées en utilisant les énergies de liaison des électrons émis de la cible et une pure répulsion coulombienne entre deux ions. Pour les voies non-dissociatives, les courbes d'énergie potentielle sont tracées en ligne horizontale et la position correspond à la somme des énergies de liaison des électrons émis de la cible. La présence de trois lignes horizontales est due aux différents réarrangements spin-orbite des électrons de la cible. LES et HES correspondent à Low Excited States et High Excited States respectivement. Les courbes LES sont calculées en utilisant une répulsion coulombienne entre un centre chargé (1+) et un centre chargé (2+) tandis que les courbes HES sont calculées en considérant une explosion coulombienne entre (2+ ; 2+) ou (3+ ; 1+) selon que l'électron excité est situé sur le centre simplement chargé ou doublement chargé. La zone en gris correspond à la région Franck-Condon.

Un premier scénario peut être associée à une triple capture à un centre (pour laquelle le projectile capture trois électrons de valence (2p) d'un des deux centres du dimère de Ne) relaxant vers les différentes voies de fragmentation listées ci-dessous et illustrées sur la Fig.5.5.

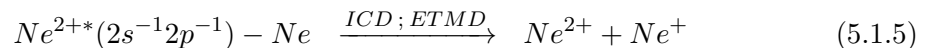


La première réaction 5.1.4a illustrée par des flèches en bleu foncé sur la Fig.5.5 permet une relaxation, par échange de charge radiatif entre les deux centres du dimère, vers une voie de fragmentation entre un centre doublement chargé et un centre simplement chargé. Le KER produit dans ce processus RCT est estimé dans un intervalle de (13; 13.7) eV, correspondant à une distance internucléaire d'équilibre des états non-dissociatifs du  $Ne^{3+}$ -Ne située à (3.97; 4.16) a.u. [108].

La deuxième réaction 5.1.4b illustrée par des régions triangulaires en bleu et blanc sur la Fig.5.5 permet une dissociation entre la voie de capture  $(3+;0)_C$  et les voies de fragmentation  $(2+;1+^*)_F$  (ou  $(2+^*;1+)_F$ ). Cette dissociation peut avoir lieu à plusieurs points d'intersection permettant d'avoir des valeurs en KER allant approximativement de 9 eV (pic CE du voie  $(2+;1+)_F$ ) à 27 eV (estimation de l'énergie libérée après fragmentation entre deux ions doublement chargés à une distance internucléaire d'équilibre située à (3.97; 4.16) a.u.).

Les deux dernières réactions illustrées par la flèche rouge sur la Fig.5.5 sont proposées dans les articles [75, 108]. Elles se produisent par un échange d'électron 2s entre le centre neutre et le centre triplement chargé pour la réaction 5.1.4d, ou bien d'une façon plus compliquée pour laquelle il y a échange d'électron (2p) qui libère une énergie suffisante pour exciter un électron (2s) (réaction 5.1.4c). La réaction 5.1.4c qui combine plusieurs processus est moins probable que celle du 5.1.4d. Ces réactions conduisent à un KER allant approximativement de 9.6 eV à 16.4 eV (elles ont lieu à des points d'intersection d'environ (3.31; 5.67) a.u. [108]).

En plus de ces quatre réactions concernant la voie de capture  $(3+;0)_C$ , une autre possibilité peut être considérée pour le cas où le projectile capture un électron de valence (2p) et un électron de couche interne (2s) du même centre du dimère [75, 108]. Cette voie de double capture peut ensuite se dissocier par le biais du processus ICD ou ETMD vers une voie de fragmentation entre un centre doublement chargé et un centre simplement chargé (réaction 5.1.5).

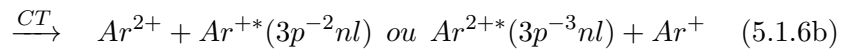


La capture d'un électron de couche interne (2s) étant très peu probable par rapport à la capture d'un électron de couche (2p) dans ce système collisionnel impliquant le projectile  $Ar^{9+}$  (Voir Sect.5.2), et par conséquent, cette possibilité ne sera pas étudiée.

Pour résumer, nous avons vu dans ce paragraphe que le processus CE domine très largement dans la voie de fragmentation  $\text{Ne}^{2+} + \text{Ne}^+$  pour les trois projectiles. Pour le projectile  $\text{Ar}^{9+}$ , les faibles contributions à des KER plus élevés peuvent être attribuées aux réactions 5.1.4a, 5.1.4b, 5.1.4c et 5.1.4d, mais sans qu'une identification claire du rôle joué par chaque processus puisse être effectuée.

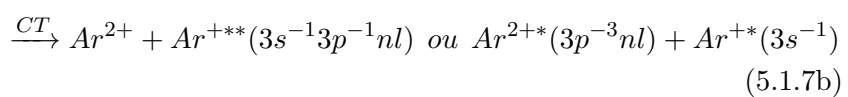
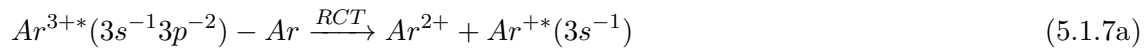
### $\text{Ar}^{2+} + \text{Ar}^+$

En regardant la distribution en KER dans la fenêtre (8;11) eV de la voie de fragmentation  $\text{Ar}^{2+} + \text{Ar}^+$  obtenue pour les deux projectiles  $\text{O}^{3+}$  et  $\text{Ar}^{9+}$  (Fig.5.4(b)), d'autres contributions apparaissent avec un KER proche mais plus grand que celui du processus CE. Une première possibilité peut être attribuée à une capture de trois électrons de valence (3p) d'un des deux centres du dimère qui relaxe vers plusieurs voies de fragmentation via les processus RCT ou CT donnés ci-dessous et illustrés sur la Fig.5.6(a).



La réaction 5.1.6a attribuée au processus RCT et illustrée par des flèches en bleu foncé sur la Fig.5.6(a) conduit à une relaxation vers la voie de fragmentation  $(2+;1+)_F$  par le biais d'un échange de charge radiatif. Cette dissociation a lieu à la distance internucléaire d'équilibre de l'état non-dissociatif de l' $\text{Ar}^{3+}$ -Ar conduisant à un pic en KER plus large que celle du CE. La deuxième réaction 5.1.6b attribuée au processus CT et illustrée par des régions triangulaires en bleu et blanc sur la Fig.5.6(a) permet une relaxation vers des états excités de  $(2+;1+^*)_F$  (ou  $(2+^*;1+)_F$ ). Ces transitions, qui résultent de plusieurs points d'intersection allant de la distance d'équilibre de l'état non-dissociatif ( $\text{Ar}^{3+}$ -Ar) jusqu'à celle de l'état neutre  $\text{Ar}_2$ , génèrent des KER allant du pic du processus CE (7.1 eV) et dépassant le pic du processus RCT de la réaction 5.1.6a. La troisième réaction 5.1.6c attribuée au processus RCT et illustrée en rose sur la Fig.5.6(a) permet une dissociation vers la voie de fragmentation  $\text{Ar}^{2+}(3p^{-2}) + \text{Ar}^{+*}(3s^{-1})$  par le biais d'un échange d'un électron (3s) entre le centre neutre et le centre triplement chargé. Cette dissociation génère à peu près la même énergie de fragmentation que pour la première réaction 5.1.6a.

Une autre possibilité pour ces contributions peut provenir d'une capture de deux électrons de valence (3p) et un électron interne (3s) d'un des deux centres du dimère qui se relaxe vers plusieurs voies de fragmentation comme illustrée sur la Fig.5.6(b).



La réaction 5.1.7a attribuée au processus RCT et illustrée par des flèches en rose sur la Fig.5.6(b) se produit par un échange d'électron (3s) et émission de photon. Cette réaction, qui se passe à la distance internucléaire d'équilibre de l'état non-dissociatif de

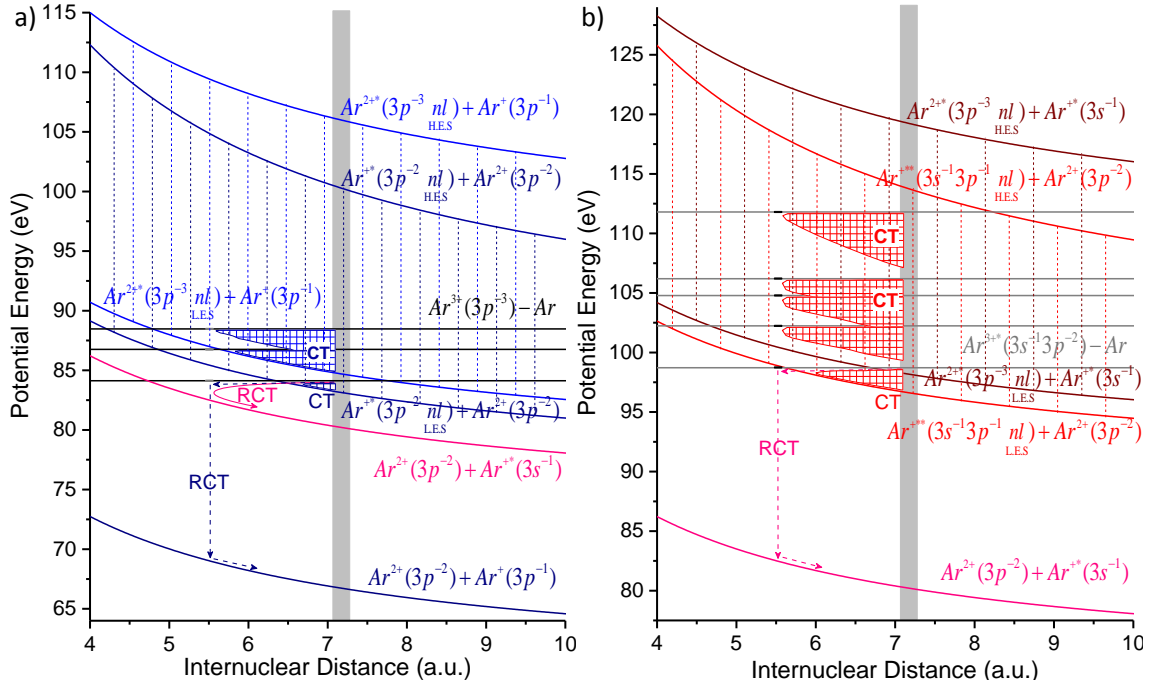


FIGURE 5.6 – Illustration des différents processus dans la voie de fragmentation  $\text{Ar}^{2+} + \text{Ar}^+$ . Pour les voies dissociatives, les courbes d'énergie potentielle sont calculées utilisant les énergies de liaison des électrons émis de la cible et une pure répulsion coulombienne entre deux ions. Pour les voies non-dissociatives, les courbes d'énergie potentielle sont tracées en ligne horizontale et la position correspond à la somme des énergies de liaison des électrons émis de la cible. La présence de plusieurs lignes horizontales est due aux différents réarrangements spin-orbite des électrons de la cible. LES et HES correspondent à Low Excited States et High Excited States respectivement. Les courbes LES sont calculées en utilisant une répulsion coulombienne entre un centre chargé (1+) et un centre chargé (2+) tandis que les courbes HES sont calculées en considérant une explosion coulombienne entre (2+;2+) ou (3+;1+) selon que l'électron excité est situé sur le centre simplement chargé ou doublement chargé. La zone en gris correspond à la région Franck-Condon.

l' $\text{Ar}^{3+}(3s^{-1}3p^{-2})-\text{Ar}$ , permet de générer une KER plus large que celle obtenu pour le processus CE. La deuxième réaction 5.1.7b attribuée au processus CT et illustrée par des régions triangulaires en rouge et blanc sur la Fig.5.6(b) permet une dissociation vers des états excités de  $\text{Ar}^{2+} + \text{Ar}^{3+}(3s^{-1}3p^{-1}nl)$  (ou  $\text{Ar}^{2+}(3p^{-3}nl) + \text{Ar}^{3+}(3s^{-1})$ ). Cette réaction, qui résulte de plusieurs points d'intersection, génère des KER plus grands que ceux obtenus pour le processus CE.

En utilisant le projectile  $\text{Ar}^{9+}$ , cette possibilité impliquant une capture de couche interne (3s) et conduisant aux réactions 5.1.7a et 5.1.7b a une faible probabilité par rapport à la capture en couche de valence (3p). Cependant, ces deux réactions peuvent prendre de l'importance, notamment avec le projectile  $\text{O}^{3+}$  comme nous le verrons dans la Sect.5.2.

Pour résumer, nous avons vu dans ce paragraphe que le processus CE domine très largement dans la voie de fragmentation  $\text{Ar}^{2+} + \text{Ar}^+$  pour les trois projectiles. D'autres faibles contributions provenant d'autres processus sont présentes pour les projectiles  $\text{O}^{3+}$  et  $\text{Ar}^{9+}$ . Ces contributions sont attribuées aux réactions 5.1.6a, 5.1.6b et 5.1.6c pour les

projectiles  $O^{3+}$  et  $Ar^{9+}$  et, aux deux réactions 5.1.7a et 5.1.7a pour le projectile  $O^{3+}$ . Ici encore, la contribution exacte de chaque processus ne peut pas être extraite des données.

### 5.1.3 Voies de Fragmentation de la Quadruple Capture

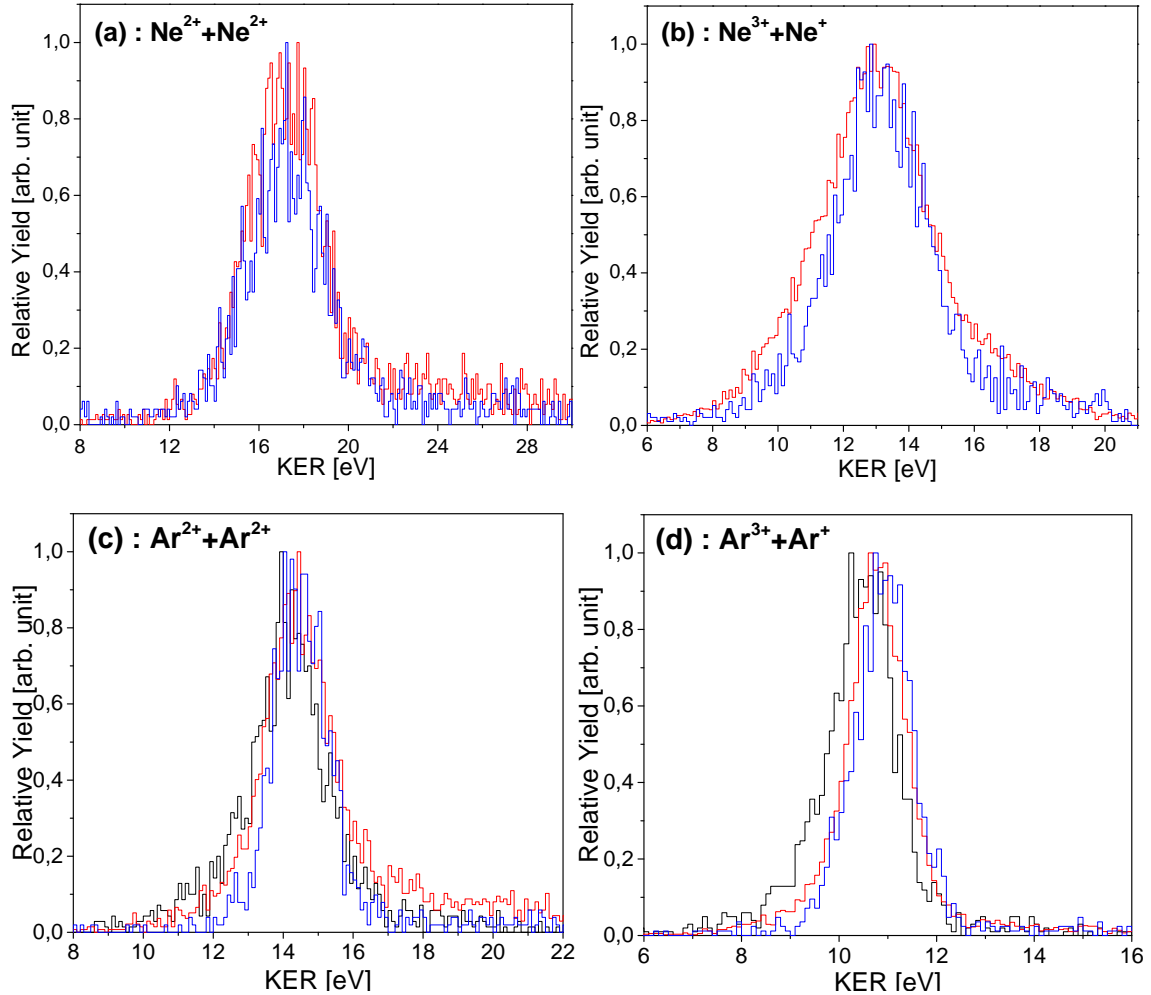


FIGURE 5.7 – Distribution en énergie cinétique KER produite après fragmentation en  $Ne^{3+} + Ne^{+}$  (b) et  $Ne^{2+} + Ne^{2+}$  (a) pour le dimère de Ne, et  $Ar^{3+} + Ar^{+}$  (c) et  $Ar^{2+} + Ar^{2+}$  (d) pour le dimère d'Ar. Les courbes noires, rouges et bleues correspondent aux résultats obtenus pour les projectiles  $O^{3+}$ ,  $Ar^{9+}$  et  $Xe^{20+}$  respectivement.

Les spectres en KER des deux voies de fragmentation (symétriques  $(2+;2+)_F$  et asymétriques  $(3+;1+)_F$ ) issues d'une capture de quatre électrons par le projectile sont présentées dans la Fig.5.7. Pour la voie symétrique  $(2+;2+)_F$ , pour laquelle le projectile retire deux électrons de chacun des deux centres du dimère, le processus CE est le processus dominant et est centré à une KER d'environ 17.2 eV pour le dimère de Ne et 14.5 eV pour le dimère d'Ar. Pour la voie asymétrique  $(3+;1+)_F$ , pour laquelle le projectile retire trois électrons du premier centre et un électron du deuxième centre du dimère, il y a aussi dominance du processus CE qui est centré à un KER d'environ 13 eV pour le dimère de Ne et 11 eV pour le dimère d'Ar.

### Formation d'ions projectiles de charge négative $O^{-1}$

Avec le projectile  $O^{3+}$ , il était inattendu d'observer les deux voies de fragmentation  $Ar^{3+}+Ar^+$  et  $Ar^{2+}+Ar^{2+}$  (courbe noire de la Fig.5.7(c,d)) pour lesquelles le projectile  $O^{3+}$  retire quatre électrons des deux sites du dimère. Ces voies de fragmentation peuvent être dues à une quadruple capture pour éventuellement former un anion  $O^{-1}$  ou bien à un processus de transfert-ionisation.

Afin de vérifier que ces deux voies de fragmentation proviennent d'une production d' $O^{-1}$  après capture de quatre électrons, nous avons tracé l'image en position (x;y) du détecteur projectile ( $X\_P=f(Y\_P)$  Fig.5.8(a,c)). Cette image est obtenue en appliquant une différence de tension adéquate sur le déflecteur électrostatique (suivant l'axe x (Fig.3.1)) situé entre la chambre de collision et le détecteur du projectile afin de voir la contribution des différents états de charge final du projectile pour la production des deux voies de fragmentation  $Ar^{3+}+Ar^+$  et  $Ar^{2+}+Ar^{2+}$ . En observant l'image du détecteur projectile pour ces deux voies de fragmentation (Fig.5.8(a,c)), on voit des événements correspondant aux ions  $O^{-1}$ , aux neutres O (après quadruple capture + simple ionisation du projectile ou bien triple capture + simple ionisation de la cible) et aux ions  $O^+$  (après émission dans le continuum de deux électrons du projectile et/ou de la cible). Ces deux images montrent bien la production d' $O^{-1}$  ainsi que la dominance des événements provenant du projectile neutre O et simplement chargé  $O^+$ .

Afin de pousser notre étude, nous avons aussi tracé l'image de la position suivant x du projectile  $X\_P$  en fonction du KER des deux fragments ( $X\_P=f(KER)$  Fig.5.8(b,d)). Ces deux images permettent de montrer la contribution de l'état de charge final du projectile au KER des deux fragments présentés dans Fig.5.7(c,d). On voit bien que les trois différents états de charge final du projectile,  $O^{-1}$ , O et  $O^+$  observés dans la Fig.5.8(a,c), contribuent au pic en KER qui est attribué au processus CE.

La contribution provenant du projectile  $O^{-1}$  montre bien la possibilité de production d'anions après capture de quatre électrons dans le système collisionnel  $O^{3+}-Ar_2$ . Cette production d'ions  $O^{-1}$  est due à l'affinité électronique de l'atome d'oxygène qui est de 1.46 eV ce qui permet à l'atome d'avoir un excès d'électrons avec une faible énergie de liaison de 1.46 eV. Cette faible énergie de liaison peut faciliter la perte par effet Auger d'électrons capturés par le projectile. Cela peut expliquer la forte production du neutre après passage d' $O^{-1} \rightarrow O$  par simple autoionisation et la production d'oxygène simplement chargé après passage d' $O^{-1} \rightarrow O^+$  par double autoionisation, d'où la dominance des projectiles O et  $O^+$  sur les quatre images du Fig.5.8.

Cette production d' $O^{-1}$  n'est pas observée avec les dimères de Ne, ce qui peut être expliqué en utilisant la différence d'énergie entre l'état initial et l'état final de la réaction (on considère ici les dimères comme étant constitués de deux atomes indépendants). L'énergie minimale de la réaction  $\Delta E_{min}$  est de +42.5 eV pour produire  $O^{-1}-Ne^{3+}+Ne^+$  et de +19.91 eV pour produire  $O^{-1}-Ne^{2+}+Ne^{2+}$  tandis qu'elle est de -5.24 eV pour produire  $O^{-1}-Ar^{3+}+Ar^+$  et de -18.35 eV pour produire  $O^{-1}-Ar^{2+}+Ar^{2+}$  (Tab.5.9). Des valeurs négatives de  $\Delta E_{min}$  montrent que la réaction peut être exothermique dans le cas des dimères d'argon tandis que des valeurs positives montrent que la réaction est forcément endother-

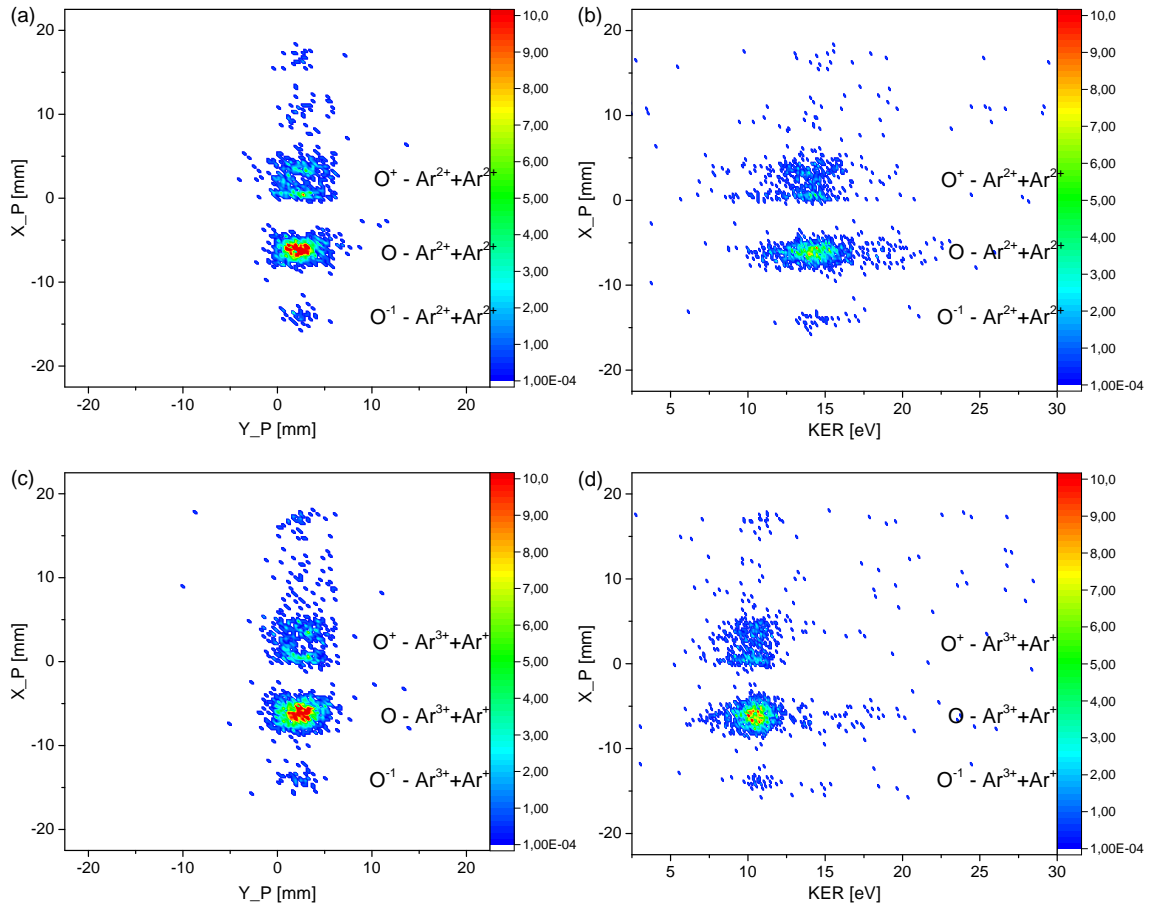


FIGURE 5.8 – Images montrant la position du projectile sur son détecteur ( $X_P=f(Y_P)$ ) et la position du projectile suivant l'axe x en fonction du KER des fragments ( $X_P=f(KER)$ ) pour les voies de fragmentation  $Ar^{2+} + Ar^{2+}$  (a,b) et  $Ar^{3+} + Ar^+$  (c,d).

mique pour le cas des dimères de néon. Une réaction très endothermique, comme dans le cas du  $Ne_2$ , ne peut ici avoir lieu qu'à très faible paramètre d'impact, là où des rayons de croisement entre l'état initial  $O^{3+} - Ne_2$  et l'état final  $O^{-1} - Ne^{3+} + Ne^+$  (ou  $O^{-1} - Ne^{2+} + Ne^{2+}$ ) sont possibles. Cela explique ici l'absence de quadruple capture avec des cibles de dimère de Ne. Notons que pour le système collisionnel  $O^{3+} - Ne_2$ , aucune voie de fragmentation correspondant à une quadruple ionisation du dimère n'a été observée. Cela montre que les processus de transfert-ionisation (capture d'électrons accompagnée de l'ionisation de la cible) sont également négligeables. Dans le cas des dimères d'Ar, une contribution des processus de transfert-ionisation ne peut être ni exclue ni quantifiée pour les projectiles diffusés avec une charge (1+) ou nulle.

En regardant avec attention la distribution en KER des deux voies de fragmentation du dimère d'Ar (Fig. 5.7(c,d)), un décalage vers les énergies de fragmentation plus faibles que celle du CE est observé avec le projectile  $O^{3+}$ . Une hypothèse qui peut être émise est que le dernier électron capturé sur le projectile, de très faible énergie de liaison, est délocalisé et reste donc plus longtemps partagé entre le projectile et le centre correspondant du dimère. Durant ce temps de partage de cet électron,  $\Delta T$ , les deux centres du dimère se trouveraient



$O^{3+}-Ne_2$	$\Delta E_{\min}$ [eV]	$O^{3+}-Ar_2$	$\Delta E_{\min}$ [eV]
$O^{-1}-Ne^{3+}+Ne^+$	+42.4	$O^{-1}-Ar^{3+}+Ar^+$	-5.24
$O^{-1}-Ne^{2+}+Ne^{2+}$	+19.91	$O^{-1}-Ar^{2+}+Ar^{2+}$	-18.35

FIGURE 5.9 – Tableau montrant les valeurs du défaut d'énergie minimal estimé après transition de l'état initial  $O^{3+}-Ne_2$  (et  $O^{3+}-Ar_2$ ) à l'état final  $O^{-1}-Ne_2^{4+}$  (et  $O^{-1}-Ar_2^{4+}$ ).

alors soumis à une répulsion proche de celle attendue pour des voies  $Ar^{2+}+Ar^+$  ou  $Ar^{3+}-Ar$  (hypothèse d'écrantage total pour l'électron délocalisé). Si c'est la voie  $Ar^{3+}-Ar$  qui est peuplée, la capture de l'électron partagé va ensuite conduire à la voie de fragmentation  $Ar^{3+}+Ar^+$  en libérant une énergie correspondant à l'explosion coulombienne entre un fragment triplement chargé et un fragment simplement chargé à la distance d'équilibre du dimère  $R$  ( $KER_{(3+;1+)_F} \propto \frac{3*1}{R}$ ). Cela doit conduire, pour la voie  $(3+;1+)_F$ , à la même distribution en KER pour  $O^{3+}$  que pour les deux autres projectiles  $Ar^{9+}$  et  $Xe^{20+}$ . Si c'est la voie  $Ar^{2+}+Ar^+$  qui est peuplée, les deux centres du dimère vont voir leur distance internucléaire augmenter de  $\Delta R$  pendant l'intervalle en temps  $\Delta T$  du fait de la répulsion coulombienne, en libérant une énergie suivant la voie de fragmentation de  $(2+;1+)_F$ . Une fois que l'électron est complètement capturé sur le projectile, la fragmentation est effectuée sur la voie  $(3+;1+)_F$  ou  $(2+;2+)_F$ , mais cette fois-ci, à partir d'une distance internucléaire  $(R+\Delta R)$  un peu plus grande que celle d'équilibre du dimère. La somme de ces deux énergies libérées par la voie  $(2+;1+)_F$  et  $(3+;1+)_F$  (ou  $(2+;2+)_F$ ) peut être estimée :

$$KER_{(3+;1+)_F} = E_{c(2+;1+)} + E_{c(3+;1+)} \propto \frac{2*1}{R} - \frac{2*1}{R+\Delta R} + \frac{3*1}{R+\Delta R} \quad (5.1.8a)$$

$$KER_{(2+;2+)_F} = E_{c(2+;1+)} + E_{c(2+;2+)} \propto \frac{2*1}{R} - \frac{2*1}{R+\Delta R} + \frac{2*2}{R+\Delta R}. \quad (5.1.8b)$$

Ces deux estimations de KER nous montrent que l'énergie libérée est un peu plus faible que celle obtenue par une fragmentation directe à la distance d'équilibre  $R$  ( $KER_{(3+;1+)_F} \propto \frac{3*1}{R}$  et  $KER_{(2+;2+)_F} \propto \frac{2*2}{R}$ ). Le décalage en énergie obtenu expérimentalement sur la Fig.5.7(c,d) est de 0.3 eV pour la voie de fragmentation finale  $(3+;1+)_F$  et de 0.15 eV pour la voie de fragmentation finale de  $(2+;2+)_F$ . Ce décalage en énergie nous permet d'estimer un temps de partage de l'électron  $\Delta T$  de 4.72 fs pour le passage de  $(2+;1+)_F$  vers  $(3+;1+)_F$  (et 1.15 fs de  $(2+;1+)_F$  vers  $(2+;2+)_F$ ) et une distance  $\Delta R$  de 0.62 a.u. de  $(2+;1+)_F$  vers  $(3+;1+)_F$  (et 0.14 a.u. de  $(2+;1+)_F$  vers  $(2+;2+)_F$ ). Ces valeurs semblent un peu trop élevées, surtout dans le cas de la voie de fragmentation finale  $(3+;1+)_F$ , compte tenu du temps de l'interaction du projectile  $O^{3+}$  (de vitesse de 13.92 a.u./fs) avec les deux centres du dimère d'Ar qui est estimé être de l'ordre de 1 à 2 fs. De plus, selon le scénario proposé ici, le décalage en KER attendu pour un temps  $\Delta T$  donné est plus grand pour la voie de fragmentation  $(2+;2+)_F$  que pour la voie de fragmentation  $(3+;1+)_F$ , ce qui va à l'inverse des résultats expérimentaux. Le mécanisme à l'origine du décalage en KER observé pour ce système reste donc incompris.

## 5.2 Ratios des Différents Processus et Voies de Fragmentation

Après avoir identifié la plupart des processus et voies de fragmentation impliquées dans nos six systèmes collisionnels, nous nous sommes intéressés à la production relative de chacune de ces contributions. Cela permet de les comparer entre elles et de voir l'effet de l'état de charge du projectile, de la distance internucléaire du dimère, et de l'énergie de liaison des électrons de la cible. Pour cela, nous avons mesuré, lorsque c'était possible, l'intégrale des événements obtenus pour chaque processus représentée par une paire  $(q_1; q_2)_C$ . Cette intégrale est obtenue en utilisant les distributions en KER, présentées dans la section précédente, pour chaque voie de capture appartenant à une voie de fragmentation, et cela pour les six systèmes collisionnels étudiés pendant l'expérience.

Les résultats expérimentaux de la production relative des différents processus et voies de fragmentation sont présentés en blanc dans la Fig.5.11 pour les dimères de Ne et Fig.5.12 pour les dimères d'Ar utilisant les trois ions incident  $O^{3+}$ ,  $Ar^{9+}$  et  $Xe^{20+}$  et sans aucune sélection sur le changement de charge du projectile. Cela consiste à prendre, pour chaque voie de fragmentation, tous les événements appartenant à une voie de capture que ce soit après capture d'électrons sur un seul site (comme pour les processus ICD, RCT et CT) ou sur les deux sites du dimère (comme pour le processus CE). Pour les voies de fragmentation de triple et de quadruple capture d'électrons, ces deux types de contribution sont regroupés : on a une faible production des processus de capture sur un seul site du dimère, et on ne peut pas les discriminer clairement par rapport aux processus de capture sur deux sites. Cette problématique n'est pas présente dans le cas de la voie de fragmentation de double capture d'électrons pour laquelle il y a compétition entre les processus CE, RCT et ICD, mais où le KER permet de séparer chacune de ces contributions.

La nature du projectile (en terme d'état de charge) et la nature de la cible (en termes d'énergie de liaison et distance internucléaire d'équilibre) influencent clairement la balance entre tous les différents processus de capture, comme le montrent les figures 5.11 et 5.12 pour les six systèmes collisionnels étudiés. D'une part, on remarque une augmentation du poids de la section efficace de la triple et de la quadruple capture par rapport à celui de la double capture pour les hauts états de charge du projectile. D'autre part, on observe que la double capture à 2 centres (processus CE) est favorisée par rapport à la double capture à 1 centre (processus RCT) quand la charge du projectile augmente. Comme nous le verrons plus en détail dans les sections suivantes, cela peut s'expliquer qualitativement par une approche géométrique consistant à comparer les rayons de capture des électrons de la cible avec la distance internucléaire d'équilibre du dimère. Ce rayon de capture donné par le modèle de la barrière coulombienne dans la voie d'entrée de la collision (formule 2.2.1a) varie en fonction de la charge du projectile et de l'énergie d'ionisation des électrons de la cible. Les valeurs estimées de ces rayons de capture pour la simple, la double et la triple capture d'électrons dans une collision entre les trois projectiles ( $O^{3+}$ ,  $Ar^{9+}$  et  $Xe^{20+}$ ) et des atomes de Ne et d'Ar sont présentées dans le tableau 5.10.

Le tableau 5.10 montre l'évolution des rayons de capture calculés utilisant la formule

$R_{in}[\text{a.u.}]$	Ne			Ar		
	$2p^{-1}$	$2p^{-2}$	$2p^{-3}$	$3p^{-1}$	$3p^{-2}$	$3p^{-3}$
$O^{3+}$	5.63	4.58	3.86	7.70	6.79	6.01
$Ar^{9+}$	8.83	6.96	5.74	12.08	10.32	8.94
$Xe^{20+}$	12.54	9.73	7.93	17.16	14.42	12.35

FIGURE 5.10 – Rayon de capture minimal estimé par le modèle COBM pour la simple, la double et la triple capture d'électrons de la couche 2p du Ne et la couche 3p de l'Ar pour les trois projectiles  $O^{3+}$ ,  $Ar^{9+}$  et  $Xe^{20+}$ .

2.2.1a avec la charge du projectile et l'énergie de liaison des électrons de la cible. En comparant les projectiles entre eux, on voit bien que le rayon de capture augmente avec la charge du projectile. Si l'on compare les deux cibles, l'énergie de liaison du premier électron de valence est de 15.76 eV pour l'Ar et 21.56 eV pour le Ne, ce qui permet d'avoir des rayons de capture plus larges dans le cas de l'Ar.

Pour mener à bien une investigation plus poussée de la dépendance des contributions relatives des différents processus de capture à la nature du projectile et de la cible, un calcul classique basé sur le modèle de la barrière coulombienne COBM (Chap.2) a été développé. Les résultats donnés par le modèle COBM pour la production relative des processus et voies de fragmentation pour les trois projectiles  $O^{3+}$ ,  $Ar^{9+}$  et  $Xe^{20+}$  en collision avec des dimères de Ne et d'Ar sont montrés en gris sur les Fig.5.11 pour le  $Ne_2$  et Fig.5.12 pour l' $Ar_2$ . Afin de pouvoir facilement comparer les résultats du calcul aux résultats expérimentaux, les contributions sont également regroupées par voie de fragmentation. Lorsque l'on traite avec le modèle COBM une voie de capture à un seul centre (par exemple  $(2+;0)_C$ ,  $(3+;0)_C$  ou  $(4+;0)_C$ ), on considère que la possibilité de peupler des états non dissociatifs est la même que pour les états dissociatifs. Ainsi, 50% des événements de capture à un seul centre obtenus avec le COBM (ceux correspondant à des états dissociatifs) vont produire un fragment chargé et un autre neutre. Ces événements sont volontairement exclus de notre simulation puisque les événements correspondants à ces voies de fragmentation ne sont pas détectés par notre dispositif expérimental. On ne tient compte que des états non-dissociatifs pour lesquels il y aura relaxation avec échange de charge entre les deux centres du dimère, et donc une dissociation en deux fragments chargés. Au final, 50% de la population des paires  $(2+;0)_C$ ,  $(3+;0)_C$  et  $(4+;0)_C$  obtenus avec le calcul COBM correspondant à des états non-dissociatifs vont nourrir les voies de fragmentation  $(1+;1+)_F$ ,  $(2+;1+)_F$  et  $(3+;1+)_F$  par le biais des processus CT ou RCT.

Comme on peut le voir sur les figures 5.11 et 5.12, l'ensemble des résultats du calcul COBM montrent un bon accord avec les données expérimentales. Cet accord permet de valider notre traitement de dimère de gaz rare comme deux atomes indépendants séparés par la distance internucléaire d'équilibre du dimère.

### 5.2.1 Cas du dimère de Ne

Pour la voie de double capture d'électron du dimère de Ne sur la Fig.5.11, on a identifié trois différents processus contribuant à la formation de paires d'ions simplement chargés. En plus de l'apparition inattendue du processus ICD dans le système collisionnel  $O^{3+}$ - $Ne_2$ , on voit clairement l'évolution de la production relative des processus CE  $(1+;1+)_C$  et RCT  $(2+;0)_C$  avec les trois différents états de charge du projectile. Pour les hauts états de charge (ex :  $Xe^{20+}$ ), le processus CE domine tandis que pour les faibles états de charge (ex :  $O^{3+}$ ), c'est le processus RCT qui est favorisé. Comme déjà discuté auparavant, ce comportement peut être expliqué en utilisant une approche géométrique. Les rayons de capture données dans le tableau 5.10 pour la simple et la double capture d'électrons de couche 2p dans une collision entre un projectile  $Xe^{20+}$  et une cible atomique de Ne sont de 12.54 et 9.73 a.u. respectivement. Ces valeurs sont beaucoup plus grandes que la distance internucléaire du dimère de Ne qui est de 5.86 a.u. favorisant ainsi la capture d'un électron de chacun des deux sites du dimère. Pour le projectile  $O^{3+}$ , les rayons de capture pour le premier et le deuxième électron 2p sont de 5.63 et 4.58 a.u. respectivement, ce qui est comparable à la distance internucléaire du dimère de Ne. Cela limite la capture d'électrons des deux atomes (un électron sur chaque atome) à des paramètres d'impact localisés dans une région proche de centre de masse de la molécule. Dans ce cas, c'est la capture asymétrique (de deux électrons sur un même site du dimère) qui est favorisée.

L'apparition inattendue du processus ICD dans les données expérimentales de la voie de fragmentation  $(1+;1+)_F$  du système collisionnel  $O^{3+}$ - $Ne_2$  est aussi prédite par les résultats théoriques. La production relative de ce processus est sous-estimée par la théorie qui prédit une contribution de 8.2% tandis qu'expérimentalement elle est à 20% des événements de la voie de fragmentation  $Ne^+ + Ne^+$ . On constate également une surestimation théorique du processus CE. Ces écarts, obtenus pour le projectile  $O^{3+}$ , montrent les limites du modèle pour le traitement des faibles états de charge du projectile. Dans le cas de faibles états de charge du projectile, les états peuplés par les électrons capturés sont peu excités, et l'approximation hydrogénoïde utilisée dans l'équation 2.2.3a pour le calcul des probabilités de capture n'est plus vraiment valide. En revanche, ce modèle peut nous servir pour une interprétation qualitative de la production du processus ICD avec le projectile  $O^{3+}$ . Cette apparition du processus ICD venant de la capture d'un électron de couche interne 2s ne peut pas être simplement expliquée en utilisant une approche géométrique. Les rayons de capture de l'électron 2s d'un atome de Ne par les projectiles  $O^{3+}$  et  $Xe^{20+}$  sont de 2.12 et 4.02 a.u. respectivement. Le rapport des sections efficace géométriques entre la capture de deux électrons 2p (RCT) et capture d'un électron 2s (ICD) est de 0.42 pour  $O^{3+}$  et 0.34 pour  $Xe^{20+}$ . Cela ne favorise que très légèrement la capture d'un électron 2s dans le cas de faibles états de charge du projectile. En revanche, la probabilité de capture d'au moins un électron 2p après capture d'un électron 2s est de 100% pour le projectile  $Xe^{20+}$  et de seulement 11.5% pour le projectile  $O^{3+}$ . Ce sont ces valeurs de la probabilité de capture obtenues par le modèle COBM en utilisant la formule 2.2.3a qui expliquent cette apparition inattendue de la simple capture d'électron de couche 2s. Pour le projectile  $Xe^{20+}$ , la capture d'un électron 2s est suivie par une série de captures d'électrons 2p laissant la cible avec

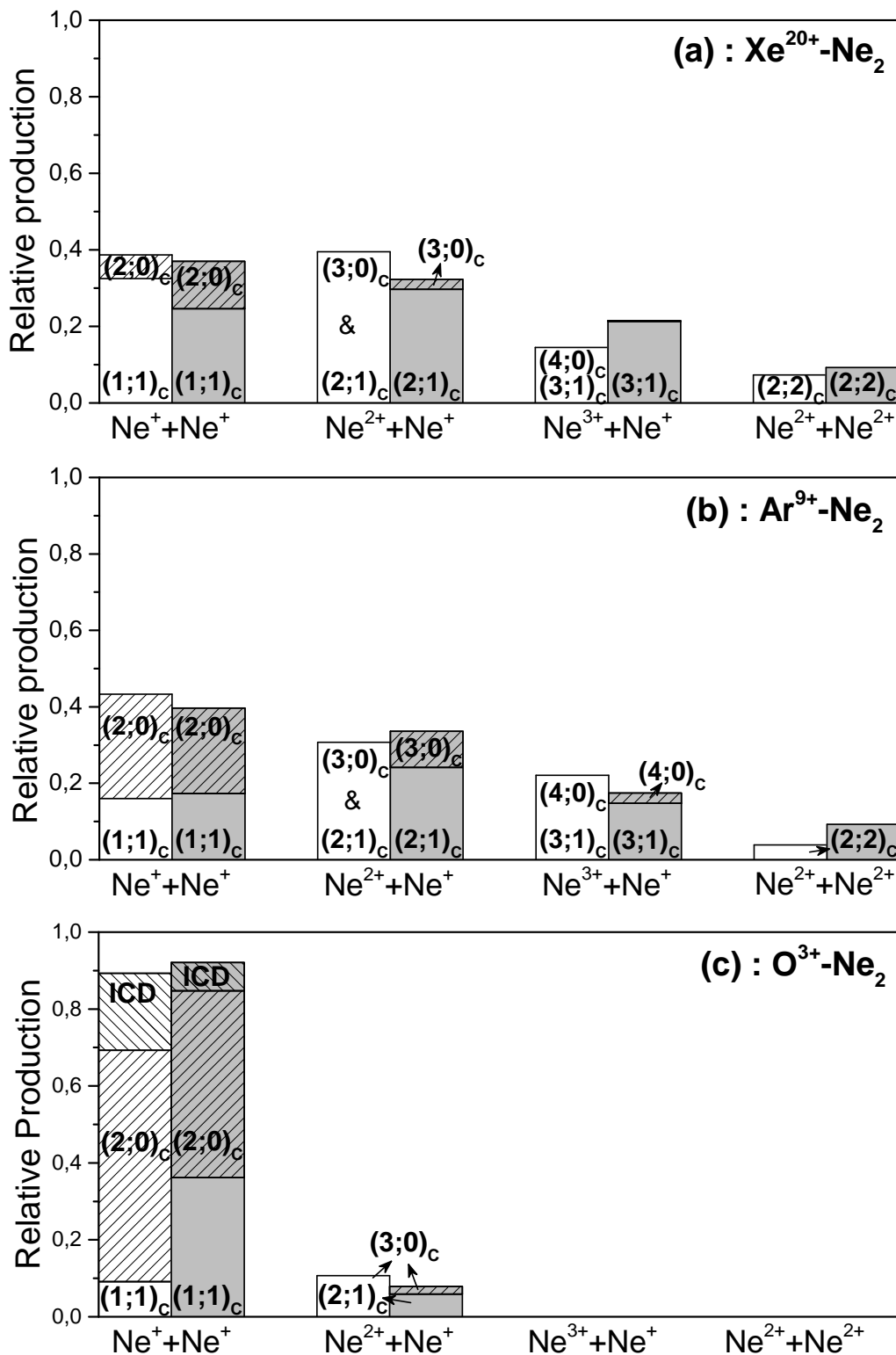


FIGURE 5.11 – Productions relatives des différents processus et voies de fragmentation obtenues expérimentalement (blanc) et théoriquement en utilisant le modèle MC-COBM (gris) pour tous les trois projectiles O<sup>3+</sup> (c), Ar<sup>9+</sup> (b) et Xe<sup>20+</sup> (a) en collision avec des dimères de Ne.

une charge d'au moins deux ou trois tandis que pour le projectile  $O^{3+}$ , la faible probabilité de capture d'électrons 2p après capture d'un électron 2s augmente largement le poids de simple capture de couche 2s qui conduit au processus ICD. Cette différence de la probabilité de capture obtenue pour les deux projectiles vient principalement de l'estimation par le modèle COBM (utilisant la formule 2.2.3b) du nombre quantique principal occupé par les électrons en cas de capture par le projectile. Pour le projectile  $O^{3+}$ , la valeur moyenne du nombre quantique principal du premier électron 2p traité après capture d'un électron 2s est de  $n=2$  tandis qu'elle varie entre 7 et 9 pour le  $Xe^{20+}$ . Cette situation permet, d'une part, d'avoir une grande probabilité de capture pour des hauts états de charge du projectile, et, d'autre part, favorise significativement la production de simple capture en couche interne dans des collisions avec des projectiles de faible état de charge. Ces grandes valeurs de "n" expliquent aussi la forte contribution de l'autoionisation des projectiles par émission Auger dans le cas du projectile  $Xe^{20+}$  (comme vu sur la distribution en KER de la Fig.5.3) tandis que la population des états de faible n limite largement l'effet Auger au profit d'une production d'électron de faible énergie produite par le processus ICD.

Afin d'avoir une image plus complète de la production du processus ICD dans des collisions de basse énergie utilisant des dimères de Ne, nous avons calculé avec le modèle MC-COBM le poids du processus ICD par rapport aux processus CE et RCT de la voie de fragmentation  $Ne^+ + Ne^+$  pour différentes charge du projectile  $O^{q+}$ . Nous avons obtenu les valeurs suivantes : 30% pour  $O^{2+}$ , 8% pour  $O^{3+}$ , 3% pour  $O^{4+}$  et 1% pour  $O^{5+}$ , montrant ainsi le rôle du processus ICD qui augmente en diminuant la charge du projectile.

Pour les voies de triple et de quadruple capture d'électrons du dimère de Ne, on voit une évolution de la section efficace relative de capture avec la charge du projectile. Pour le projectile  $Xe^{20+}$ , le poids de la triple et de la quadruple capture d'électrons dépasse le poids de la double capture tandis que pour l' $O^{3+}$ , la voie de double capture d'électrons domine largement avec 90% de tous les événements. Comme montré précédemment pour la production d'ICD, cela peut être expliqué, par le modèle COBM, en utilisant le nombre quantique principal n occupé par les électrons capturés par le projectile. Cette estimation montre que les électrons capturés par le projectile occupent des états de faible n pour l' $O^{3+}$  (aux alentours de 2) et de grand n pour le  $Xe^{20+}$  (n allant de 7 à 9). Cela affecte les probabilités de capture d'électrons sur le projectile, avec des valeurs très faibles pour le cas de l' $O^{3+}$  et des valeurs élevées pour le cas de  $Xe^{20+}$  et affaiblit largement, dans le cas d' $O^{3+}$ , la contribution de la voie  $(2+;1+)_F$ . Pour les voies  $(3+;1+)_F$  et  $(2+;2+)_F$ , l'absence totale d'événements expérimentaux est liée à la nature très endothermique des processus susceptibles d'y conduire (Sect.5.1.3). Quant au calcul MC-COBM, il ne permet pas la prise en compte de la quadruple capture avec formation d'anions  $O^-$ .

### 5.2.2 Cas du dimère d'Ar

L'accord entre les résultats expérimentaux et théoriques est également très bon pour les dimères d'Ar utilisant les projectiles  $Ar^{9+}$  et  $Xe^{20+}$  (Fig.5.12). On observe la même évolution des contributions relative des processus CE et RCT que pour le Ne avec la charge du projectile : le processus CE est favorisé par rapport au processus RCT pour le  $Xe^{20+}$

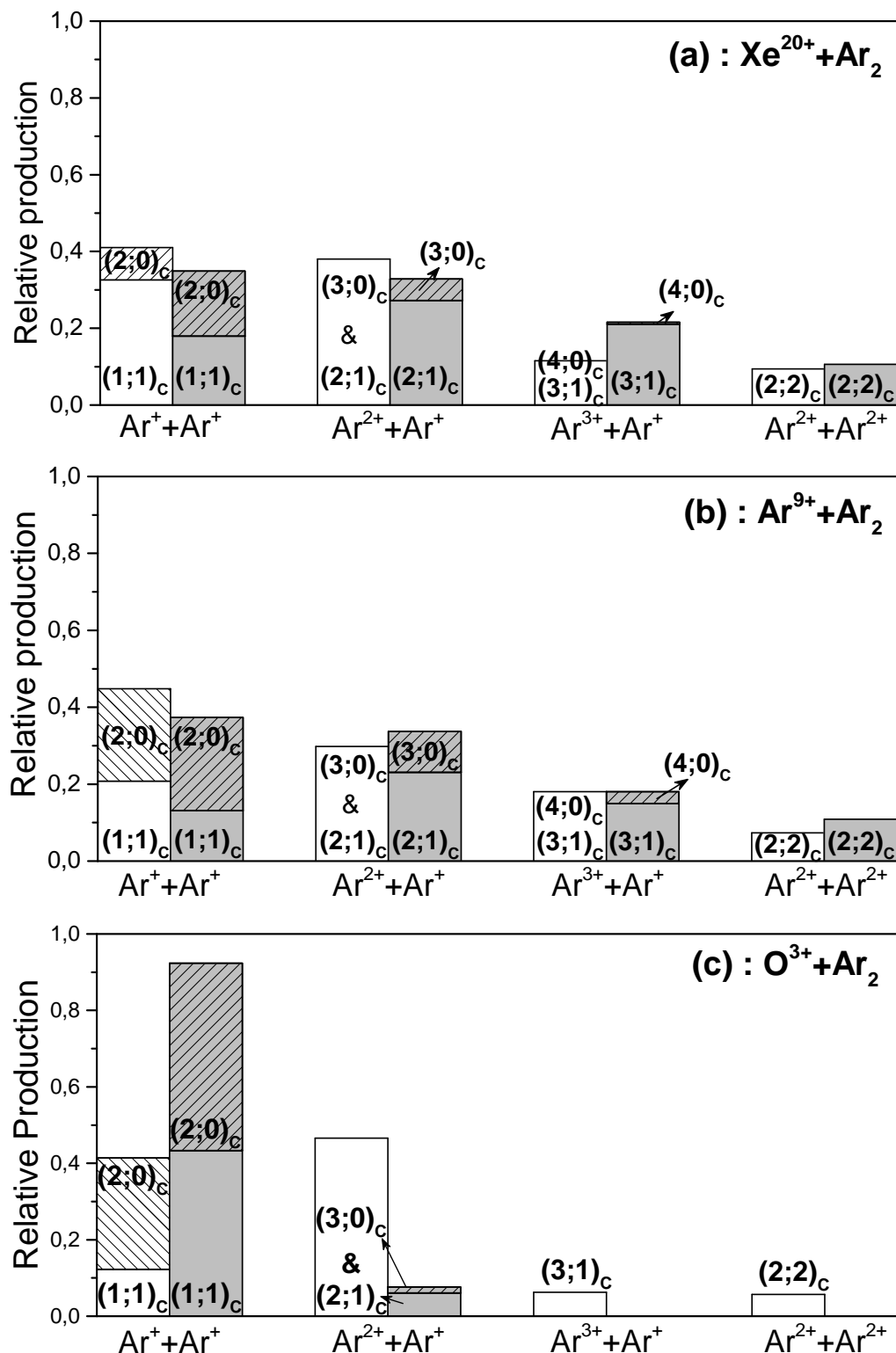


FIGURE 5.12 – Productions relatives des différents processus et voies de fragmentation obtenues expérimentalement (blanc) et théoriquement en utilisant le modèle MC-COBM (gris) pour tous les trois projectiles O<sup>3+</sup> (c), Ar<sup>9+</sup> (b) et Xe<sup>20+</sup> (a) en collision avec des dimères d'Ar.

tandis que RCT domine pour  $O^{3+}$ .

Pour le système collisionnel  $O^{3+}+Ar_2$ , la confrontation théorie/expérience montre un comportement assez différent. On voit une très forte contribution expérimentale provenant de la voie de fragmentation de triple capture représentant 50% des événements de ce système collisionnel, ce qui n'est pas reproduit par le modèle MC-COBM. Ce désaccord peut être dû, d'une part, à la limitation du modèle pour le traitement des faibles états de charge du projectile qui est liée à l'approximation hydrogénoïde utilisée dans le calcul des probabilités de capture des électrons en voie de sortie de la collision. D'autre part, en regardant le système collisionnel  $O^{3+}+Ne_2$ , on voit que la contribution de la triple capture est faible, qu'elle soit issue du calcul théorique ou des données expérimentales. On peut donc aussi penser à de nouveaux processus devenant actifs dans la voie de triple capture d' $O^{3+}+Ar_2$ . Une contribution possible pourrait être liée à une capture d'électron de couche interne 3s, comme le montrent les réactions 5.1.7a et 5.1.7b. Mais le modèle COBM prédit un faible poids de 1.2% pour ces deux réactions ce qui ne permet pas d'expliquer ici le grand désaccord théorie/expérience.

De même, les contributions non négligeables des voies  $(3+;1+)_F$  et  $(2+;2+)_F$  observées expérimentalement ne sont pas reproduites par le modèle MC-COBM. Ce désaccord peut s'expliquer aisément puisque la production d' $O^-$  n'est pas prise en compte dans le calcul de la barrière coulombienne et limite ainsi la confrontation théorie/expérience à la capture de trois électrons maximum pour ce système collisionnel.

### 5.3 Échange de quantité de mouvement : Composante Transverse

Dans le paragraphe précédent sur la confrontation théorie/expérience des productions relatives, un très bon accord a été observé pour les systèmes collisionnels impliquant des projectiles  $Xe^{20+}$  et  $Ar^{9+}$ . Cet accord montre que l'hypothèse qui consiste à traiter les dimères de gaz rares comme deux atomes indépendants semble raisonnable. En revanche, le modèle a montré ses limites pour les projectiles de faible état de charge tel que  $O^{3+}$ . La confrontation théorie/expérience a également permis d'expliquer l'évolution du poids des différents processus avec la nature de la cible et du projectile.

Afin d'avoir une compréhension plus complète de la dynamique de la collision, nous avons calculé l'échange de quantité de mouvement entre le projectile et le centre de masse du dimère associé à chaque événement pour le système collisionnel  $Ar^{9+}-Ar_2$ . Pour les données expérimentales, ce calcul est effectué en sommant, dans le référentiel du laboratoire, les vecteurs quantité de mouvement des deux fragments (voir section A.3). Pour les événements de la simulation MC-COBM, l'échange de la quantité de mouvement est obtenu par le calcul de la répulsion coulombienne entre le projectile et la cible dans la voie d'entrée et de sortie de la collision, en utilisant les trois scénarios du section 2.2.1 : le premier, décrit par les formules (2.2.5a, 2.2.5b, 2.2.5c) pour lequel la charge des électrons molécularisés est partagée entre le projectile et la cible, le deuxième (2.2.9a, 2.2.9b, 2.2.9c), pour lequel la charge des électrons molécularisés ne contribue pas à la charge du projectile



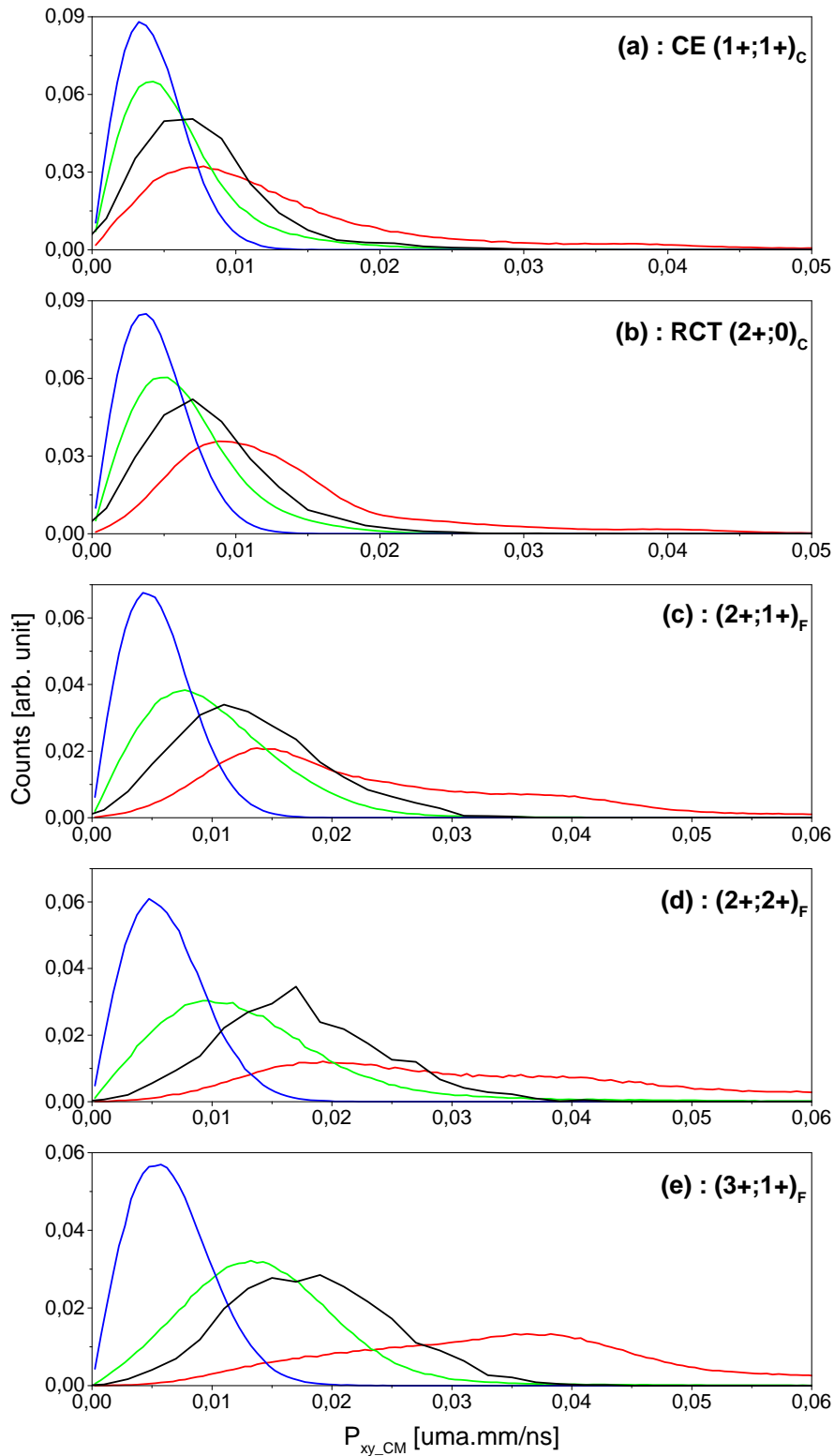


FIGURE 5.13 – Distributions de la quantité de mouvement transverse échangée durant la collision entre le projectile  $\text{Ar}^{9+}$  et le dimère d'Ar. Les courbes en vert, bleu et rouge correspondent aux résultats de simulation obtenus pour les trois scénarios de calcul de  $\vec{P}_{CM}$  décrits dans les formules (2.2.5a, 2.2.5b, 2.2.5c), (2.2.9a, 2.2.9b, 2.2.9c) et (2.2.10a, 2.2.10b, 2.2.10c) dans la voie d'entrée et de sortie de la collision. La courbe en noir correspond aux résultats expérimentaux.

(les électrons molécularisés restent sur la cible) et le troisième (2.2.10a, 2.2.10b, 2.2.10c) pour lequel la charge des électrons molécularisés est totalement associée au projectile.

### Cas du système collisionnel $\text{Ar}^{9+}\text{-Ar}_2$

Une confrontation théorie/expérience des distributions en quantité de mouvement transverse échangée entre le projectile et la cible durant la collision est présentée dans la Fig.5.13 pour le système collisionnel  $\text{Ar}^{9+}\text{-Ar}_2$ . Pour cette étude, l'orientation du dimère est préalablement sélectionnée dans la fenêtre  $\theta = 60^\circ$  à  $120^\circ$ , de sorte que le dimère soit quasi-perpendiculaire à l'axe  $z$  du faisceau. Les résultats expérimentaux sont tracés en noir et les résultats théoriques sont présentés en bleu, vert et rouge pour chacun des trois scénarios de calcul. Comme nous l'avons mentionné dans la section 4.2.2, la distribution en  $P_{CM}$  obtenue par le modèle MC-COBM a été convoluée avec la résolution instrumentale en tenant compte du diamètre de la région de collision (FWHM = 0.6 mm).

Pour les cinq processus et voies de fragmentation présentés sur la Fig.5.13, la quantité de mouvement transverse obtenue expérimentalement (courbe noire) montre systématiquement une distribution proche des résultats MC-COBM donnés en vert et rouge. L'augmentation de l'angle de diffusion moyen avec le nombre d'électrons capturés est bien reproduit, et le scénario montrant le meilleur accord est ici celui pour lequel la charge des électrons molécularisés est partagée entre les deux partenaires. Par contre, le scénario extrême donné en bleu, pour lequel les électrons molécularisés restent localisés sur la cible, est le moins réaliste pour ce système collisionnel. Cela montre ici que la charge des électrons molécularisés en voie d'entrée se répartit entre le projectile et la cible, mais avec une préférence pour une localisation de la charge sur le projectile.

Comme décrit dans les articles [119–121], un facteur d'écrantage intermédiaire pour les électrons molécularisés dans la voie d'entrée de la collision peut être estimé pour chaque système collisionnel et ajouté au modèle de la barrière coulombienne. L'implantation de ce facteur d'écrantage sera une des améliorations qui doit être apportée à la version actuelle du modèle MC-COBM afin d'obtenir un meilleur accord entre expérience et simulation et avoir accès, durant la collision, à la répartition de charge des électrons dans leurs état moléculaire entre la cible et le projectile.

## 5.4 Distribution en Angle de Diffusion

Après avoir déterminé expérimentalement et théoriquement l'échange de quantité de mouvement transverse, nous nous sommes intéressés à la corrélation angulaire entre l'orientation de la molécule et la direction de diffusion du projectile. Pour cela, nous avons sélectionné les données correspondant à des orientations du dimère proche de  $90^\circ$  ( $\theta$  entre  $60^\circ$  et  $120^\circ$ ), ce qui permet d'imposer des trajectoires du projectile qui sont quasi-perpendiculaires à l'axe de la molécule. Si l'orientation de la molécule dans le plan transverse à la collision est également connue, la direction dans laquelle le projectile est diffusé dans ce même plan transverse va pouvoir nous renseigner sur le paramètre d'impact du projectile dans le repère de la molécule cible.

L'angle d'orientation de la molécule est calculé en utilisant le vecteur quantité de mouvement transverse d'émission des deux fragments, juste après l'explosion coulombienne (sect.A.2). Cette orientation est définie par l'angle  $\phi_{Ar^{q_1+}}$  où  $Ar^{q_1+}$  est le fragment le plus chargé. La direction (ou vecteur) du quantité de mouvement transverse échangée va servir pour calculer l'angle de recul du centre de masse de la molécule  $\phi_{CM}$  et l'angle de diffusion du projectile  $\phi_{proj}$  (sect.A.3). Ces deux angles calculés dans le plan (x,y) pour des orientations perpendiculaires à l'axe z du faisceau nous permettent de déterminer la distribution en  $\phi_{diff} = \phi_{proj} - \phi_{Ar^{q_1+}}$ . Cette distribution en  $\phi_{diff}$  donne alors accès aux directions de diffusion privilégiées du projectile par rapport à la direction de l'axe moléculaire donnée par le centre du dimère le plus chargé après la collision.

### Cas du système collisionnel $Ar^{9+}-Ar_2$

Les distributions angulaires en  $\phi_{diff}$  des différents processus et voies de fragmentation observés dans le système collisionnel  $Ar^{9+}-Ar_2$  sont présentées dans la Fig.5.14 pour une sélection des données correspondant à des orientations du dimère proche de  $90^\circ$  ( $\theta$  entre  $60^\circ$  et  $120^\circ$ ). Les données sont symétrisées par rapport à l'axe horizontal (plan passant par l'axe du dimère) afin de tenir compte de la symétrie de la collision. Pour les voies de fragmentation symétriques, les deux fragments ne sont pas distinguables et la reconstruction de  $\phi_{diff}$  compte en plus une symétrie par rapport à l'axe vertical (plan de symétrie passant par le centre de masse du dimère).

Pour une meilleure compréhension de la signification des distributions angulaires en  $\phi_{diff}$ , nous avons ajouté la Fig.5.14(f) qui indique la direction d'émission des deux fragments  $Ar^{q_1+}$  et  $Ar^{q_2+}$  sur l'axe horizontal ( $q_1$  et  $q_2$  sont les charges des deux fragments,  $Ar^{q_1+}$  étant le plus chargé) et la direction de diffusion du projectile qui peut parcourir tout le cercle angulaire. La direction de diffusion du projectile est reliée à l'état de charge de chacun des deux fragments et à la position du vecteur paramètre d'impact entre le centre de masse du dimère et le projectile dans le plan transverse (x,y). L'étude de cette corrélation angulaire, pour chaque processus de capture, consiste à regarder si la distribution en  $\phi_{diff}$  est isotrope (pas de préférence de direction de diffusion du projectile par rapport à l'orientation des deux fragments) ou bien si elle présente une structure montrant une préférence pour une diffusion du côté d'un fragment plus que de l'autre.

Sur la Fig.5.14, on voit que l'angle  $\phi_{diff}$  obtenu expérimentalement (points noir) présente, pour chaque processus, différentes structures favorisant des angles particuliers ou bien un site par rapport à l'autre dans le cas de voies de fragmentation asymétriques. La distribution des voies symétriques  $(1+;1+)_C$  et  $(2+;2+)_F$  de la Fig.5.14(a,d) atteint un maximum à  $90^\circ$  et  $270^\circ$  indiquant la dominance des vecteurs paramètre d'impact qui sont proches du plan médian entre les deux centres du dimère. Pour les voies de fragmentation  $(2+;1+)_F$  et  $(3+;1+)_F$  des Fig.5.14(c,e), on observe une forte asymétrie montrant que le projectile est diffusé dans la direction du centre le plus chargé du dimère. Ce résultat va à l'encontre de ceux obtenus précédemment avec des cibles de  $N_2$  et des projectiles de  $Kr^{8+}$  à basse énergie [30]. Dans le cas d'une cible de  $N_2$  et de projectiles très lents (quelques keV), Ehrich et al. [30] ont mis en évidence une diffusion du projectile favorisée pour la direction

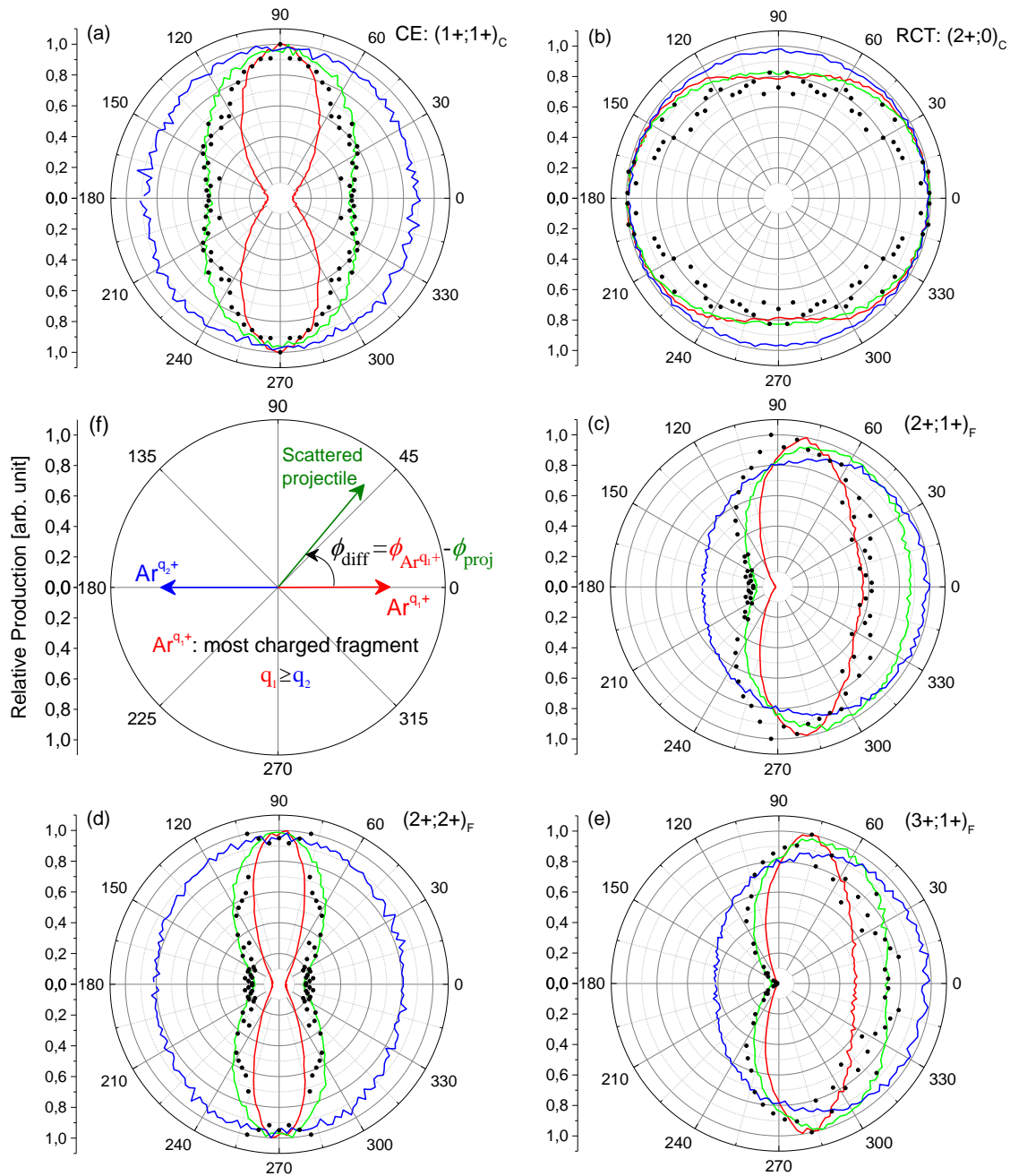


FIGURE 5.14 – Distributions angulaires en  $\phi_{diff}$  pour les voies de double (a,b), triple (c) et quadruple (d,e) capture d'électrons dans le système collisionnel  $Ar^{9+}-Ar_2$ . Les données expérimentales sont présentées en noir et comparées aux résultats de simulation. Les lignes en vert, bleu et rouge correspondent aux résultats de simulation obtenus pour les trois scénarios de calcul de  $\vec{P}_{CM}$  utilisant les formules (2.2.5a, 2.2.5b, 2.2.5c), (2.2.9a, 2.2.9b, 2.2.9c) et (2.2.10a, 2.2.10b, 2.2.10c) dans la voie d'entrée et de sortie de la collision. Une représentation de la direction des deux fragments, du projectile et de l'angle  $\phi_{diff}$  est illustrée dans la figure (f).

du fragment le moins chargé. L'explication alors avancée est que la charge positive du projectile, en sortie de collision, joue un rôle d'attracteur pour les électrons de la molécule non capturés. Ces derniers se trouvent alors plus nombreux sur le centre le plus proche du projectile au moment de la fragmentation. Dans notre cas, la corrélation observée peut s'expliquer par la faible mobilité des électrons entre les deux centres du dimère et la plus grande vitesse de collision. On peut ici raisonnablement avancer l'hypothèse que le projectile capture de façon préférentielle sur le centre le plus proche, et que la répartition des charges qui en résulte sur les deux centres du dimère reste figée jusqu'à la fragmentation de l'ion moléculaire. Pour la voie de capture  $(2+;0)_C$  de la Fig.5.14(b), le processus RCT conduit à une dissociation sur une voie de fragmentation symétrique  $(1+;1+)_F$  ce qui nous empêche de distinguer lequel des deux fragments était doublement chargé et lequel était neutre avant la relaxation de  $(2+;0)_C$  vers  $(1+;1+)_F$  par échange de charge. Cela impose ici une symétrie par rapport à l'axe vertical de la distribution angulaire en  $\phi_{diff}$ . On voit cependant une légère préférence pour les angles à  $0^\circ$  et  $180^\circ$  et donc pour une diffusion du projectile dans la direction d'un des deux centres du dimère.

Afin d'être comparées avec les résultats expérimentaux de la Fig.5.14, les distributions angulaires en  $\phi_{diff}$  obtenues avec le modèle MC-COBM ont été convoluées par la résolution instrumentale en tenant compte du diamètre de la région de collision qui se caractérise par une FWHM de 0.6 mm. Comme pour les données expérimentales, on a sélectionné l'orientation du dimère  $\theta$  entre  $60^\circ$  et  $120^\circ$ . Nous avons calculé l'angle  $\phi_{diff}$  pour chacun des trois scénarios de calcul de  $\vec{P}_{CM}$  présentés en vert (formules (2.2.5a, 2.2.5b, 2.2.5c)), bleu (formules (2.2.9a, 2.2.9b, 2.2.9c)) et rouge (formules (2.2.10a, 2.2.10b, 2.2.10c)). Les distributions obtenues avec ces trois scénarios montrent bien les tendances observées sur les résultats expérimentaux, et cela pour tous les processus et voies de fragmentation. De manière générale, les distributions expérimentales sont très proches des distributions théoriques données en vert et rouge, pour lesquelles la charge des électrons molécularisés est répartie soit entre le projectile et la cible (vert), soit sur le projectile (rouge). Cela confirme les conclusions de la section précédente indiquant qu'en voie d'entrée de la collision, cette charge est partagée mais plutôt localisée sur le projectile.

Le bon accord entre les données expérimentales et les résultats de simulation données par les calculs MC-COBM, en terme de production relative des voies de fragmentation, et en terme de distributions en  $P_{CM}$  et en  $\phi_{diff}$ , montre que ce modèle donne une image assez réaliste des processus de multiple capture d'électron pour des cibles moléculaires tels que des dimères de gaz rare. Le traitement de la répartition de charge des électrons molécularisés en voie d'entrée peut encore être amélioré, mais le fait de traiter les deux centres du dimère comme deux atomes indépendants semble être une bonne approximation pour les systèmes de collision étudiés ici.

## 5.5 Image 2D de la Collision en $P(\vec{b})$

Après que l'on ait démontré le bon accord théorie/expérience et afin d'exploiter au maximum le modèle de simulation, nous avons tracé la représentation en 2D de la probabilité de capture fonction du vecteur paramètre d'impact  $p(\vec{b})$  dans le repère de la molécule.

Cette image 2D de  $p(\vec{b})$  donne cette fois de façon directe, dans le plan transverse à l'axe du faisceau, les trajectoires du projectile, par rapport aux deux centres du dimère, qui contribuent aux différents processus de capture.

### Cas du système collisionnel $\text{Ar}^{9+}-\text{Ar}_2$

La Fig.5.15 montre les histogrammes 2D de la probabilité  $p(\vec{b})$  obtenus pour les différentes voies de capture du système collisionnel  $\text{Ar}^{9+}-\text{Ar}_2$ . Pour ces distributions, seules des orientations du dimère à  $90^\circ$  par rapport à l'axe z du faisceau d'ions projectiles ont été considérées. L'échelle de couleur indique le nombre d'événements simulés obtenus pour un processus donné à un paramètre d'impact  $\vec{b}$  donné. Le nombre total d'événement simulés était de  $10^9$ . Le vecteur paramètre d'impact est donné par rapport au centre de masse du dimère qui est fixé ici à la position (0;0). La région en blanc signifie qu'il n'y a pas eu d'événements de capture, tandis que la couleur rouge foncée correspond à la densité maximale de population à un paramètre d'impact donnée qui est fixé à 1800 événements dans la Fig.5.15. Une illustration indiquant les positions des deux centres et du projectile est aussi présentée dans la Fig.5.15(h) afin d'avoir une meilleure compréhension de l'image  $p(\vec{b})$ . Les deux fragments sont illustrés en deux points rouge et bleu et sont fixés sur un axe horizontal séparé par la distance internucléaire d'équilibre du dimère d'Ar. Le fragment le plus chargé (s'il y en a un) est le point qui est à droite de chaque figure.

Pour les voies asymétriques  $(2+;0)_C$ ,  $(2+;1+)_C$ ,  $(3+;0)_C$ ,  $(3+;1+)_C$  et  $(4+;0)_C$  des Fig.5.15-(b,c,f,e,g), on voit clairement que la capture d'électrons du site le plus proche du projectile est la plus favorable, ce qui confirme l'interprétation proposée dans la section précédente. Les paramètres d'impact qui contribuent à la production de ces voies de fragmentation couvrent la région autour du site le plus chargé du dimère. Pour les voies symétrique  $(1+;1+)_C$  et  $(2+;2+)_C$  de la Fig.5.15(a,d), le vecteur paramètre d'impact est situé dans une région proche du plan médian de l'axe internucléaire du dimère. Cela signifie que le projectile doit être quasi-équidistant des deux centres du dimère pour capturer le même nombre d'électron sur chacun d'eux. Cela explique l'augmentation des contributions des voies de capture symétrique  $((1+;1+)_C$  et  $(2+;2+)_C$ ) avec l'état de charge du projectile remarquées dans les Fig.5.11 et Fig.5.12. Quand la charge du projectile diminue, le rayon de capture diminue et les paramètres d'impact contribuant à une capture symétrique deviennent de plus en plus contraints à une région très proche du plan médian, entre les deux centres du dimère.

On voit également plusieurs structures caractérisant les images  $p(\vec{b})$  de la Fig.5.15 et cela pour tous les processus de capture. Les structures circulaires correspondent à des intersections entre la trajectoire du projectile et les différentes sphères de molécularisation ou de capture impliquées dans un processus donné. Leur nombre est dû à la probabilité de capture qui n'est pas de 100%, ce qui permet d'aller chercher plus profondément les électrons en molécularisant par exemple plus de trois électrons pour ne capturer qu'un ou deux de ces électrons. De plus, quand le projectile capture des électrons dans la voies de sortie de la collision, sa charge va diminuer, ce qui va changer les valeurs des rayons de capture du tableau 5.10 et contribuer aux nombreux cercles observés.

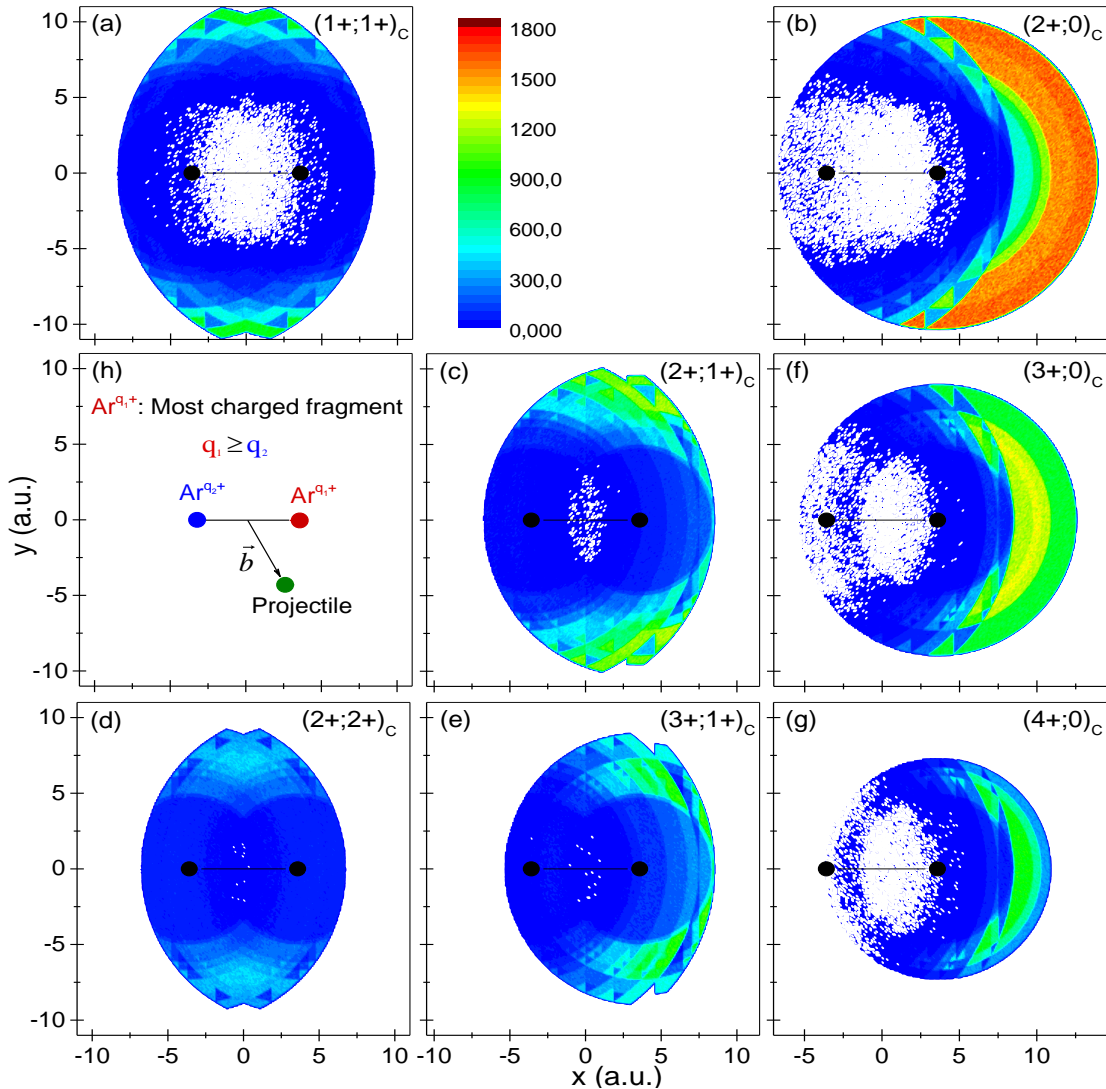


FIGURE 5.15 – Image en 2D des  $p(\vec{b})$  pour les différents processus de capture observés dans le système collisionnel  $\text{Ar}^{9+}-\text{Ar}_2$ . L'échelle de couleur indique le nombre d'événements résultant de la simulation MC-COBM. La région où il n'y a pas d'événement est en blanc. L'échelle des axes  $x$  et  $y$  est en unité atomique et correspond au plan perpendiculaire à l'axe  $z$  de propagation du faisceau. La ligne et les deux points noirs correspondent à l'axe internucléaire et aux positions des deux centres du dimère. Le point noir qui est à droite correspond au fragment le plus chargé. Une présentation des deux fragments, du projectile et du vecteur paramètre d'impact est illustrée dans la figure (h).

Plusieurs structures verticales sont aussi visibles. Ces dernières correspondent à des plans d'intersections entre deux sphères de capture. Elles sont dues au fait que, dans la voie de sortie de la collision, la trajectoire du projectile peut traverser une sphère d'un centre avant celle de l'autre centre favorisant ainsi la production d'une voie de capture par rapport à une autre. En prenant les voies de double capture  $(1+;1+)_C$  et  $(2+;0)_C$  de la Fig. 5.15(a,b), les structures verticales proviennent des événements où le projectile molécularise au moins trois électrons dans la voie d'entrée de la collision. Ces électrons sont partagés entre le projectile et le centre correspondant et, selon l'ordre de molécularisation de ces électrons (selon la trajectoire du projectile par rapport aux deux centres du dimère), on va aboutir préférentiellement à la voie  $(2+;0)_C$  ou la voie  $(1+;1+)_C$ .

## 5.6 Auto-Ionisation du Projectile

Après la capture multiple d'électrons dans une collision entre un ion multichargé et une cible comportant plusieurs électrons, un ou plusieurs électrons peuvent être réémis par le projectile après la collision. Ce processus de relaxation par émission d'électrons Auger est appelé autoionisation du projectile. Elle entre généralement en compétition avec un autre processus de relaxation du projectile, la relaxation par émission de photons. Cette autoionisation du projectile, dans laquelle deux électrons capturés dans des états excités échangent leur énergie pour conduire à l'éjection d'un des électrons (effet Auger), a attiré une grande attention dans plusieurs domaines scientifiques. Elle est source d'électrons secondaires qui vont jouer un rôle dans l'endommagement de la matière [99], et a également été à la base de la technique de spectroscopie d'électrons pour l'étude des collisions ion-atome [11, 122]. Plusieurs études expérimentales et théoriques ont été menées dans le but de mieux comprendre et prédire ce processus. Ces études ont permis de voir que la structure électronique de la cible, celle du projectile [20, 21], ainsi que la charge initiale du projectile [98, 101] sont décisives pour déterminer la répartition entre la capture d'électrons directement dans un état fondamental, la capture d'électrons dite "stabilisée" par émission de photons et la capture d'électron auto-ionisante. Il a été montré que la capture d'électrons stabilisée domine la capture d'électron auto-ionisante quand la charge du projectile est faible [54]. Pour des charges de projectile élevées, les électrons ont tendance à être capturés sur des états multi-excités du projectile ce qui autorise la relaxation par effet Auger et donc d'avoir une prédominance de l'autoionisation. La capture d'électrons stabilisée a lieu pour des charges du projectile intermédiaires pour lesquelles l'énergie gagnée après relaxation d'un électron ne suffit pas à ioniser un autre électron excité. La structure électronique du projectile est aussi un paramètre important puisque l'état fondamental du projectile joue un rôle dans la production des différents processus. L'autoionisation augmente quand le nombre quantique de l'état fondamental du projectile est faible [98], ce qui est le cas par exemple lorsque l'on compare  $\text{Ar}^{8+}$  ( $1s^2 2s^2 2p^6$ ) avec  $\text{Ar}^{9+}$  ( $1s^2 2s^2 2p^5$ ) pour lequel un seul état 2p ouvert permet d'augmenter significativement l'autoionisation dans le cas de l' $\text{Ar}^{9+}$ . L'énergie de liaison des électrons de la cible joue aussi un rôle très important pour ces trois processus. Plusieurs expériences ont démontré que l'autoionisation devient de plus en plus importante dans des collisions avec des cibles lourdes pour lesquelles les



électrons de valence sont moins liés que ceux de cibles légères [85].

Dans cette expérience, la détection en coïncidence des fragments et du projectile nous permet de classer les données expérimentales en fonction du nombre d'électrons capturés à la cible (voies de fragmentation) et du nombre d'électrons conservés par le projectile (charge finale du projectile). Comme nous l'avons vu, nous avons également accès au nombre d'électrons capturés sur chaque site de la cible de dimère (processus de relaxation ou voie de capture). En utilisant ces informations, on peut alors comparer la contribution de la capture stabilisée à celle de la capture auto-ionisante pour chaque processus et chaque système collisionnel. Ces contributions sont présentées ici pour les voies de double, triple, et quadruple capture afin d'étudier les effets liés à la nature du projectile et à celle de la cible.

### 5.6.1 Double Capture

Dans la Fig.5.16, on présente la production relative de double capture stabilisée DCC (Double Changement de Charge du projectile) et de double capture auto-ionisante SCC (Simple Changement de Charge du projectile) pour les deux processus CE  $(1+;1+)_C$  et RCT  $(2+;0)_C$  conduisant aux voies de fragmentation  $(1+;1+)_F$  des six systèmes collisionnels. La double capture stabilisée correspond aux événements pour lesquels le projectile conserve ses deux électrons capturés pendant la collision. La double capture auto-ionisante correspond aux événements pour lesquels le projectile perd un seul électron par autoionisation.

Pour les processus de double capture CE et RCT, les deux contributions de SCC sont présentées en couleur rouge et celles de DCC en couleur bleue. Pour les projectiles  $\text{Ar}^{9+}$  et  $\text{Xe}^{20+}$ , il est clair que l'effet Auger est le processus dominant, ne laissant qu'une petite place à la capture stabilisée avec environ 5% des événements. Ce n'est plus le cas pour le projectile  $\text{O}^{3+}$  pour lequel les électrons ont tendance à être capturés sur des couches de valence, ce qui limite la présence d'autoionisation et favorise la stabilisation par émission de photons.

L'influence de la structure électronique de la cible et des processus de fragmentation est également visible. On voit que pour le système de collision  $\text{O}^{3+} - \text{Ne}_2$ , l'autoionisation du projectile est presque négligeable et la stabilisation des électrons sur le projectile domine avec 95% des événements de double capture (qu'il s'agisse du processus CE ou du processus RCT). Ce n'est pas le cas avec le système  $\text{O}^{3+} - \text{Ar}_2$  pour lequel on observe une contribution importante de SCC mais aussi de DCC. Cette répartition n'est pas la même pour les processus CE et RCT. On voit une contribution équivalente de SCC et DCC pour le processus RCT. Pour le processus CE, la capture autoionisante SCC prend plus de poids avec 75% des événements.

Toutes ces dépendances peuvent être expliquées qualitativement en utilisant la charge du projectile et la structure électronique de la cible. Les énergies d'ionisation du premier et du deuxième électron sont de 21.56 et 40.96 eV pour le Ne et de 15.76 et 27.63 eV pour l'Ar. En comparant les résultats obtenus sur les dimères de Ne et d'Ar avec le projectile  $\text{O}^{3+}$  (Fig.5.16), on voit plus d'autoionisation avec des dimères d'Ar qu'avec des dimères

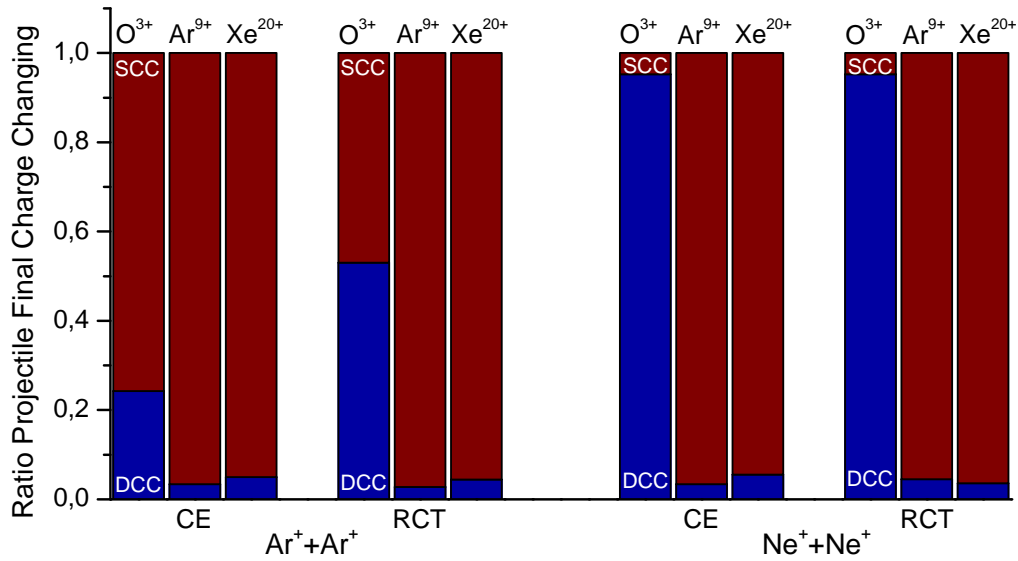


FIGURE 5.16 – Production relative de double capture d’électron stabilisée et auto-ionisante pour les deux processus CE et RCT de la voie de fragmentation (1+ ;1+) des dimères d’Ar (gauche) et de Ne (droite). DCC et SCC correspondent respectivement à la double capture stabilisée et à la double capture autoionisante pour les trois projectiles étudiés  $O^{3+}$ ,  $Ar^{9+}$  et  $Xe^{20+}$ .

de Ne. Ceci est dû à l’énergie de liaison des électrons de l’Ar qui est plus faible que pour le Ne, ce qui favorise la capture vers des états excités, moins liés, sur le projectile. Plus l’énergie de liaison est faible, plus la capture vers des états hautement excités est probable, et plus on obtient d’autoionisation.

Le même type d’interprétation permet d’expliquer nos observations concernant les processus CE et RCT dans le cas de collision  $O^{3+}$ -Ar<sub>2</sub>. On remarque qu’il y a plus d’autoionisation dans le cas du processus CE que dans celui du processus RCT. Pour les deux processus CE et RCT, le premier électron capturé a la même énergie de liaison de 15.76 eV ce qui permet de dire que les états peuplés sur le projectile sont similaires dans les deux cas. Ce qui diffère est l’énergie de liaison du deuxième électron capturé sur le projectile qui est de 15.76 eV pour le processus CE et de 27.63 eV pour le processus RCT. Il en résulte un état plus excité, en moyenne, dans le cas de CE et donc plus d’autoionisation que pour RCT.

### 5.6.2 Triple Capture

Pour les événements de triple capture, on présente sur la Fig.5.17 les productions relatives de capture avec trois électrons stabilisés TCC (Triple Changement de Charge), simplement autoionisante DCC, et doublement autoionisante SCC pour la voie de fragmentation (2+ ;1+)<sub>F</sub>. La triple capture stabilisée TCC correspond aux événements pour lesquels le projectile conserve les trois électrons capturés pendant la collision. Les deux autres scénarios DCC et SCC correspondent à la perte d’un seul ou de deux électrons respectivement par effet Auger.

Pour la voie de fragmentation (2+ ;1+)<sub>F</sub>, le modèle MC-COBM prédit une assez faible

contribution de triple capture à un centre. Pour ces événements, l'énergie d'ionisation du troisième électron est de 63.45 eV pour le Ne et 40.74 eV pour l'Ar. On observe la même dépendance avec la charge du projectile et la structure électronique de la cible que dans le cas de la double capture. L'autoionisation augmente en augmentant la charge du projectile, mais aussi en passant de la cible de Ne<sub>2</sub> à celle d'Ar<sub>2</sub>, ce qui reflète bien l'effet lié à l'énergie de liaison des électrons à la cible.

Après capture consécutive de trois électrons par le projectile, on voit clairement le processus SCC, où la relaxation d'un seul électron permet d'émettre les deux autres électrons capturés. Ce phénomène, qui domine dans le cas d'Ar<sup>9+</sup> et de Xe<sup>20+</sup>, est moins présent pour O<sup>3+</sup>. Cela montre que dans le cas d'Ar<sup>9+</sup> et de Xe<sup>20+</sup>, les électrons transférés de la cible vers le projectile occupent des états très excités. Cette double autoionisation diminue en diminuant la charge du projectile mais aussi en passant de la cible de dimère de Ne à un dimère d'Ar. Inversement, le processus TCC correspondant à une relaxation du projectile uniquement radiative n'apparaît que pour le projectile le moins chargé O<sup>3+</sup>. Là encore, le rôle joué par la nature de la cible est clairement visible avec une augmentation de TCC pour les dimères de Ne.

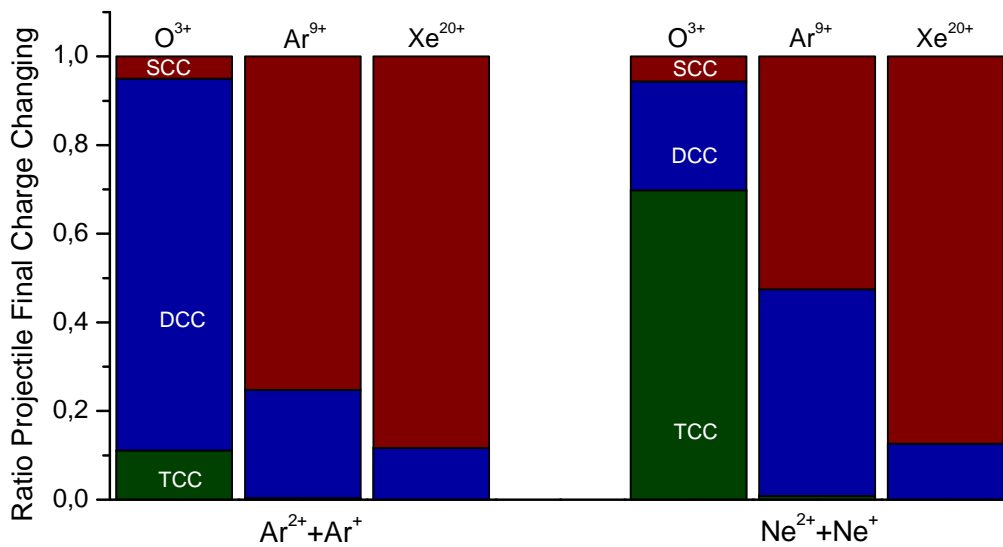


FIGURE 5.17 – Productions relatives de capture d'électrons stabilisée et auto-ionisante pour la voie de fragmentation (2+;1+) du dimère d'Ar (gauche) et de Ne (droite). TCC, DCC et SCC correspondent à la triple capture stabilisée, simplement autoionisante et doublement autoionisante respectivement pour les trois projectiles étudiés O<sup>3+</sup>, Ar<sup>9+</sup> et Xe<sup>20+</sup>.

### 5.6.3 Quadruple Capture

Pour la quadruple capture, on présente sur la Fig.5.18 les productions relatives de capture avec 4 électrons stabilisés QCC (Quadruple Changement de Charge), simplement autoionisante TCC, doublement autoionisante DCC et triplement autoionisante SCC pour les deux voies de fragmentation (3+;1)<sub>F</sub> et (2+;2)<sub>F</sub>. La quadruple capture stabilisée QCC correspond aux événements pour lesquels le projectile conserve les quatre électrons

capturés pendant la collision.

En comparant les deux cibles, on voit que l'on produit également plus d'ionisation multiple par effet Auger dans le cas de l'Ar que dans le cas du Ne, du fait de l'énergie de liaison qui est plus faible dans les dimères d'Ar. Concernant la dépendance à l'état de charge du projectile, on a les mêmes observations et les mêmes conclusions que pour la triple capture.

Si on s'intéresse maintenant aux deux voies de fragmentation présentées, on voit légèrement plus d'électrons qui sont émis par autoionisation du projectile dans le cas de  $(2+;2+)_F$  que dans le cas de  $(3+;1+)_F$ , surtout pour la cible de Ne<sub>2</sub>. Cela s'explique encore une fois par l'énergie de liaison initiale totale des quatre électrons capturés dans le cas de  $(3+;1+)_F$  qui est plus grande que celle de  $(2+;2+)_F$ .

En plus de la diminution de l'émission Auger lorsque l'on diminue la charge du projectile, on voit l'apparition assez surprenante d'événements où le projectile capture et conserve quatre électrons pour le système collisionnel O<sup>3+</sup>-Ar<sub>2</sub>. Cette apparition correspond à la production d'anions O<sup>-1</sup> après capture de quatre électrons. Après la collision, ces anions peuvent donc rester stables comme dans le cas ici de QCC ou s'autoioniser comme dans le cas de TCC et DCC. Au vu de l'affinité électronique de l'oxygène (de 1.46 eV), la production de QCC nous permet de conclure que les électrons peuvent être capturés dans l'état fondamental ou dans des états très faiblement excités du projectile.

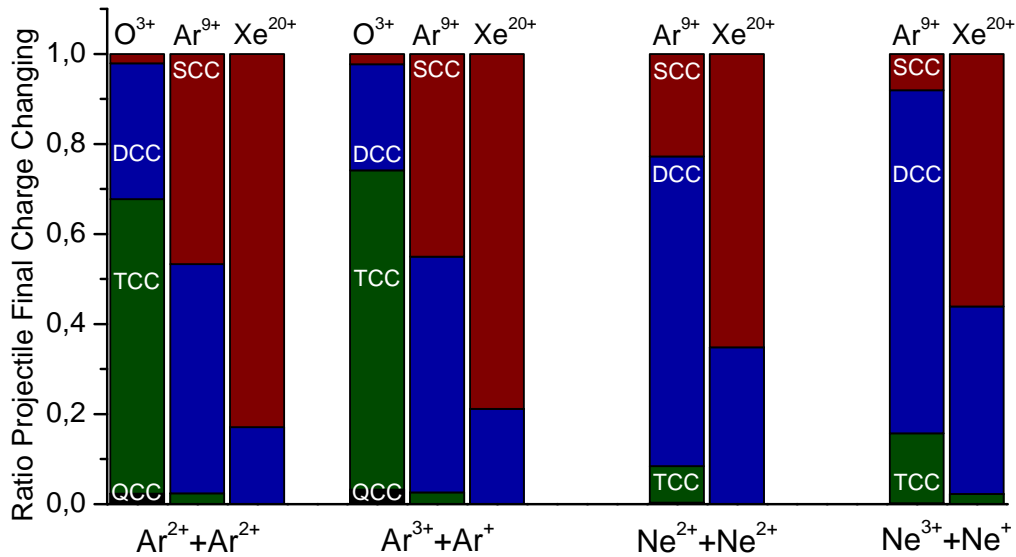


FIGURE 5.18 – Productions relatives de capture d'électrons stabilisée et auto-ionisante pour les deux voies de fragmentation  $(3+;1+)$  et  $(2+;2+)$  du dimère d'Ar (gauche) et de Ne (droite). QCC, TCC, DCC et SCC correspondent respectivement à la capture de 4 électrons suivie de leur stabilisation, avec simple autoionisation, double autoionisation et triple autoionisation pour les trois projectiles étudiés O<sup>3+</sup>, Ar<sup>9+</sup> et Xe<sup>20+</sup>.



# Conclusion et Perspectives

Dans cette thèse, nous avons présenté et discuté les principaux résultats expérimentaux et théoriques obtenus sur des collisions entre des ions multichargés de basse énergie et des dimères de gaz rare ( $\text{Ar}_2$  et  $\text{Ne}_2$ ). En utilisant expérimentalement la technique COLTRIMS, nous avons pu mesurer la charge et l'impulsion des fragments ioniques produits et la charge finale du projectile. Ces mesures ont permis d'isoler chaque voie de fragmentation, de déterminer la distribution en KER associée et ensuite d'identifier la plupart des processus de relaxation. Dans la voie de fragmentation de la double capture, nous avons réussi à séparer la capture d'électrons à partir d'un seul ou des deux sites du dimère conduisant à deux processus CE (capture sur les deux sites du dimère) et RCT (capture sur un seul site du dimère) dans le cas des dimères d'Ar, et à trois processus CE, RCT et ICD (capture d'un électron de couche interne sur un des deux sites du dimère) pour les dimères de Ne. La mise en évidence des processus RCT et ICD dans des collisions à basse énergie montre que de nouveaux chemins de relaxation doivent être pris en compte lorsqu'une cible atomique se trouve à proximité d'un autre atome.

Contrairement au cas des molécules covalentes, une forte proportion de voies de fragmentation asymétriques a été observée avec une section efficace comparable à celle des voies de fragmentation symétriques. Ce comportement est expliqué par la faible mobilité électronique entre les deux centres du dimère. Cette faible mobilité électronique, associée à l'analyse des spectres en KER, a permis d'obtenir de manière quantitative les multiplicités de capture associées à chacun des deux centres du dimère, avant relaxation et fragmentation. Une confrontation entre ces résultats expérimentaux et ceux obtenus en utilisant le modèle MC-COBM a été présentée et un bon accord a été observé. Cet accord a permis d'expliquer, par une approche géométrique basée sur la distance internucléaire d'équilibre du dimère et les rayons de capture des électrons, l'évolution de la production relative des processus de relaxation avec l'état de charge initial du projectile. Nous avons montré que les voies de capture asymétriques dominent pour les faibles états de charge. Dans ce cas, les rayons de capture deviennent comparables à la distance internucléaire d'équilibre du dimère ce qui limite la capture d'électrons des deux atomes à des paramètres d'impact localisés dans une région proche du centre de masse du dimère.

Nous avons également montré que la simple capture d'un électron de couche interne suivie par l'ICD peut être un des processus dominants dans les collisions à basse énergie. Dans le système collisionnel  $\text{O}^{3+}$ - $\text{Ne}_2$ , le processus ICD a une section efficace comparable à celle de double capture dans la couche de valence du dimère. De plus, le processus ICD apparaît ici comme une source d'électrons de basse énergie qui domine largement

l'émission d'électrons par effet Auger. Les prédictions du modèle MC-COBM indiquent que le processus ICD devient de plus en plus important lorsque l'on diminue l'état de charge initial du projectile. Ceci est dû à une limitation du nombre d'électrons qui peuvent être capturés par le projectile et à une plus faible probabilité de capture des électrons de la cible sur le projectile en voie de sortie.

Finalement, la mesure de la corrélation angulaire entre la diffusion du projectile et l'émission des fragments a permis d'avoir accès au paramètre d'impact du projectile dans le repère du dimère. Nous avons montré une capture préférentielle d'électrons à partir du centre le plus proche du projectile; le projectile est alors diffusé du côté du centre le plus chargé du dimère ce qui est à l'opposé de ce qui a été observé dans des collisions avec des molécules covalentes comme  $N_2$ . Cette originalité dans le cas des dimères de gaz rare est due à la faible mobilité des électrons qui limite le partage des électrons entre les deux centres du dimère. La confrontation théorie/expérience sur la mesure de  $\Phi_{diff}$  a également montré que la charge des électrons molécularisés est partagée entre le projectile et la cible mais avec une préférence pour une localisation proche du projectile. Afin d'avoir un meilleur accord, un facteur d'écrantage intermédiaire pour les électrons molécularisés dans la voie d'entrée de la collision pourrait être estimé et ajouté au modèle MC-COBM.

Une apparition inattendue des voies de quadruple capture dans le système collisionnel  $O^{3+}-Ar_2$  a été observée. Elle s'explique par l'affinité électronique de l'atome d'oxygène autorisant la production d'anions  $O^{-1}$  après capture de 4 électrons et par la nature de la réaction qui est exothermique. Globalement, l'accord entre les résultats expérimentaux et théoriques n'est pas satisfaisant pour les projectiles de faible état de charge tel que  $O^{3+}$ . Deux points permettront d'améliorer le modèle pour les faibles états de charge. Tout d'abord, il faudrait ajouter dans le modèle une étape supplémentaire qui permet un passage du projectile vers des états de charge négatifs si l'affinité électronique le permet. Ensuite, il faudrait estimer le nombre quantique principal de l'électron, une fois capturé sur le projectile ou recapturé sur la cible, d'une façon plus réaliste que celle faisant appel au modèle hydrogénoïde.

D'autres résultats restent à éclaircir. Sur l'ensemble des spectres en KER des voies de fragmentation associées à la double et à la triple capture, de faibles contributions ont été observées sans qu'une identification claire des processus produisant ces contributions puisse être effectuée. Il serait souhaitable de pouvoir améliorer la résolution en impulsion afin de mesurer avec précision le  $Q$  de la réaction. Cela faciliterait la séparation des différents processus de relaxation présents dans une même voie de fragmentation. La détection en coïncidence des électrons émis par la cible permettrait également d'identifier sans ambiguïté les processus de relaxation par émission d'électrons comme pour les cas ICD et ETMD.

Pour résumer, les résultats expérimentaux obtenus dans cette thèse et leur comparaison à des calculs basés sur un modèle MC-COBM ont permis d'avoir une image complète des processus collisionnels puis des processus de relaxation intervenants lors de collision d'ions multichargés à basse énergie et des dimères de gaz rare. Dans de tels systèmes, la nature de la liaison implique une faible mobilité électronique entre les deux atomes. Cette propriété des dimères de gaz rares a permis indirectement de rendre accessible les sites sur

lesquels sont capturés les électrons lors de la collision. De même, des processus de relaxation spécifiques à ces systèmes (RCT, ICD) ont pu être étudiés en détails. Finalement, la méthodologie décrite dans cette thèse pourra être utilisée afin d'étendre les études à différents états de charge du projectile et à des cibles plus complexes telles que les trimères de gaz rare et les dimères moléculaires ((N<sub>2</sub>)<sub>2</sub>, (H<sub>2</sub>O)<sub>2</sub> par exemple).





# Annexe A

## Simulation du Spectromètre et Analyse

### A.1 Zone d'Extraction : Cas de deux Fragments

Considérons le cas où un projectile incident suivant l'axe z entre en collision avec une molécule composée de deux atomes de masse  $m_1$  et  $m_2$  produite par un jet supersonique suivant la direction y. Après collision, le projectile capture  $q_1$  et  $q_2$  électrons des deux atomes de la molécule. Cette dernière fragmente en deux ions possédant chacun les caractéristiques suivantes :  $(m_1, q_1, \vec{v}_{01})$  pour le premier et  $(m_2, q_2, \vec{v}_{02})$  pour le deuxième où  $\vec{v}_{01}$  et  $\vec{v}_{02}$  sont les vecteurs vitesses d'émission initiales des deux fragments. Au moment de l'interaction, la position du centre de masse de la molécule est notée  $\vec{r}_0(x_0, y_0, z_0)$ . À l'intérieur du spectromètre, un champ électrique est appliqué suivant l'axe x ( $\vec{E} = \vec{E}_x$ ) afin d'extraire ces fragments vers le détecteur pour la mesure du temps et position d'impact sur le détecteur (Fig.A.1). La force appliquée par ce champ électrique sur chacun des deux fragments est notée :

$$\vec{F}_i = q_i * \vec{E} = m_i * \vec{a}_i \quad (\text{A.1.1a})$$

où i représente le premier fragment (i=1) ou le deuxième fragment (i=2).

L'évolution de la vitesse et de la position suivant x tout au long de la propagation des deux fragments à l'intérieur du spectromètre est donnée par :

$$v_{ix}(t) = \frac{q_i * E_x}{m_i} * t + v_{0ix} \quad (\text{A.1.2a})$$

$$x_i(t) = \frac{q_i * E_x}{2m_i} * t^2 + v_{0ix} * t + x_0. \quad (\text{A.1.2b})$$

Puisqu'il n'y a pas de force appliquée selon les directions y et z, on a simplement le long de la trajectoire des deux fragments :

$$v_{iy}(t) = v_{0iy} \quad ; \quad y_i(t) = v_{0iy} * t + y_0 \quad (\text{A.1.3a})$$

$$v_{iz}(t) = v_{0iz} \quad ; \quad z_i(t) = v_{0iz} * t + z_0. \quad (\text{A.1.3b})$$

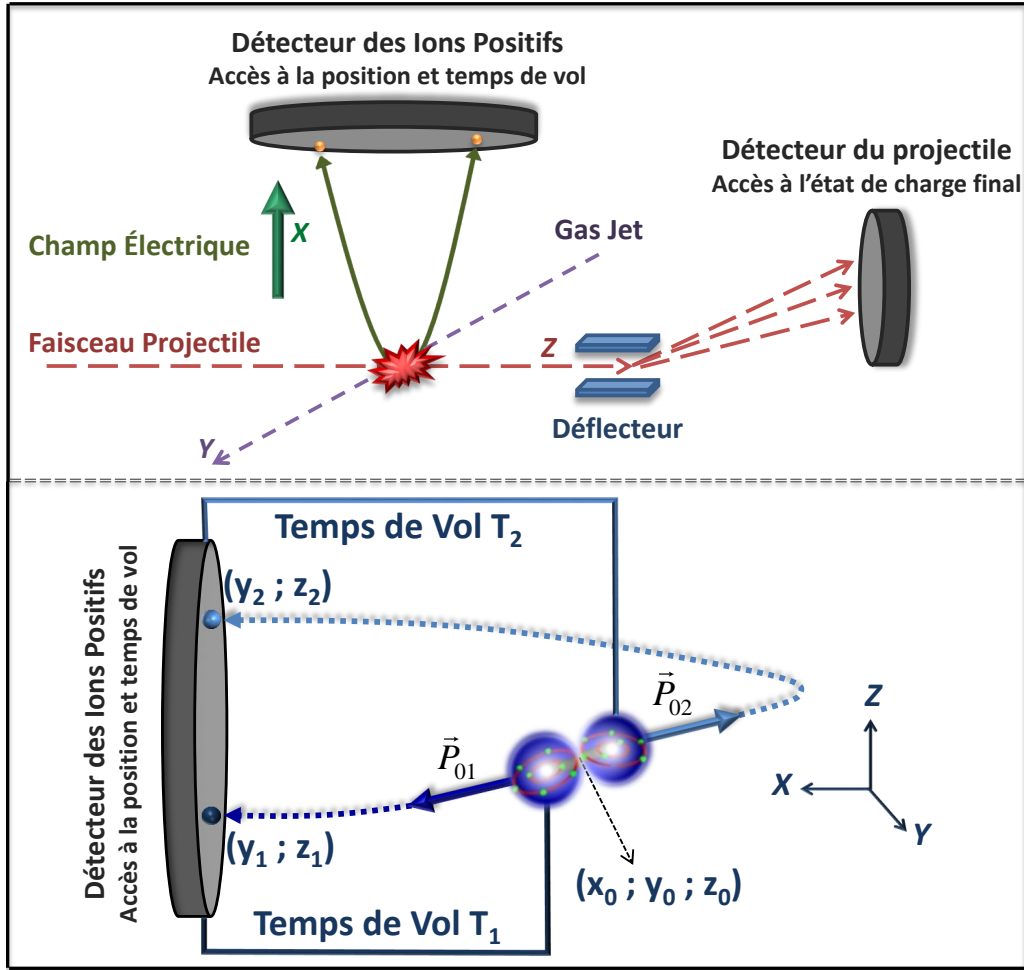


FIGURE A.1 – Schéma illustrant le dispositif expérimental.

Les temps de vol  $T_1$  et  $T_2$  des deux fragments sont estimés en utilisant la relation A.1.4 :

$$T_i = \frac{m_i}{q_i E_x} * (-v_{0ix} + \sqrt{v_{0ix}^2 + \frac{2q_i E_x}{m_i} * L_0}). \quad (\text{A.1.4})$$

La distance parcourue par l'ion pour passer de la région de la collision (CM de la molécule) jusqu'au détecteur peut être déterminée comme suit :

$$L_0 = x_i(T_i) - x_0 = \frac{q_i E_x}{2m_i} * T_i^2 + v_{0ix} * T_i \quad (\text{A.1.5})$$

où  $L_d = x_1(T_1) = x_2(T_2) = 97$  mm est la position du détecteur ions positifs.

Pour une fragmentation moléculaire vers deux ions, la conservation de la quantité de mouvement nous donne les égalités suivantes dans le centre de masse de la molécule :

$$\vec{P}_{01} = -\vec{P}_{02} \quad \Leftrightarrow \quad m_1 * \vec{v}_{01} = -m_2 * \vec{v}_{02} \quad (\text{A.1.6})$$

$$m_1 * v_{01x} = -m_2 * v_{02x}; \quad m_1 * v_{01y} = -m_2 * v_{02y}; \quad m_1 * v_{01z} = -m_2 * v_{02z}.$$

## A.2 Zone de la Collision : référentiel du CM

Pendant l'expérience, on collecte les informations sur le temps d'arrivée et positions des fragments ioniques et du projectile en coïncidence sur le détecteur correspondant. Ces temps d'arrivée permettent de calculer le temps de vol de chacun des deux fragments. En utilisant ce temps de vol et la position des fragments sur le détecteur, on peut reconstruire la position initiale du centre de masse de la molécule pour chaque collision ainsi que le vecteur quantité de mouvement initial d'émission des fragments. Ce vecteur quantité de mouvement contient l'information sur la fragmentation de la molécule et sur le recul du centre de masse de la molécule (due à l'interaction projectile/cible).

La reconstruction de la quantité de mouvement initiale d'émission des fragments est faite en utilisant ces formules :

$$\begin{aligned}
 P_{0ix} &= m_i v_{0ix} = \frac{m_i L_0}{T_i} - 0.5 * q_i T_i E_x \\
 P_{0iy} &= m_i v_{0iy} = m_i \frac{y_i - y_0}{T_i} - m_i v_{jet} \\
 P_{0iz} &= m_i v_{0iz} = m_i \frac{z_i - z_0}{T_i}
 \end{aligned} \tag{A.2.1}$$

où  $(y_i, z_i)$  représente la position de chacun des deux fragments sur le détecteur d'ions positifs et  $(x_0 = L_d - L_0; y_0; z_0)$  représente la position du centre de masse du dimère au moment de l'interaction. La vitesse du jet  $v_{jet}$  est calculée en utilisant la formule 3.3.1 et est orientée suivant la direction  $y$ .

La conservation de la quantité de mouvement nous permet de reconstruire la position initiale du CM de la molécule au moment de la collision :

$$\vec{P}_{01} + \vec{P}_{02} = \vec{0} \Rightarrow \begin{cases} P_{01x} = -P_{02x} \\ P_{01y} = -P_{02y} \\ P_{01z} = -P_{02z} \end{cases} \Rightarrow \begin{cases} L_0 = 0.5 E_x (q_1 T_1 + q_2 T_2) \frac{T_1 T_2}{m_1 T_2 + m_2 T_1} \\ x_0 = L_d - L_0 \\ y_0 = \frac{m_1 y_1 T_2 + m_2 y_2 T_1 - T_1 T_2 (m_1 + m_2) v_{jet}}{m_1 T_2 + m_2 T_1} \\ z_0 = \frac{m_1 z_1 T_2 + m_2 z_2 T_1}{m_1 T_2 + m_2 T_1} \end{cases} \tag{A.2.2}$$

Une fois que l'on a déterminé pour chaque collision la position initiale du centre de masse de la molécule et le vecteur quantité de mouvement d'émission des fragments, l'énergie cinétique totale KER libérée par fragmentation peut être calculée :

$$KER = E_{01} + E_{02} = \frac{P_{01}^2}{2m_1} + \frac{P_{02}^2}{2m_2}. \tag{A.2.3}$$

L'orientation de la molécule en coordonnées sphériques est donnée par :

$$\theta_i = \text{acos}\left(\frac{P_{0iz}}{\sqrt{P_{0ix}^2 + P_{0iy}^2 + P_{0iz}^2}}\right) \tag{A.2.4}$$

$$\Phi_i = \text{acos}\left(\frac{P_{0ix}}{\sqrt{P_{0ix}^2 + P_{0iy}^2}}\right) \tag{A.2.5}$$

où  $\theta_i$  est l'angle par rapport à l'axe z et  $\Phi_i$  est l'angle par rapport à l'axe x dans le plan transverse (x,y).

### A.3 Zone de la Collision : référentiel du laboratoire

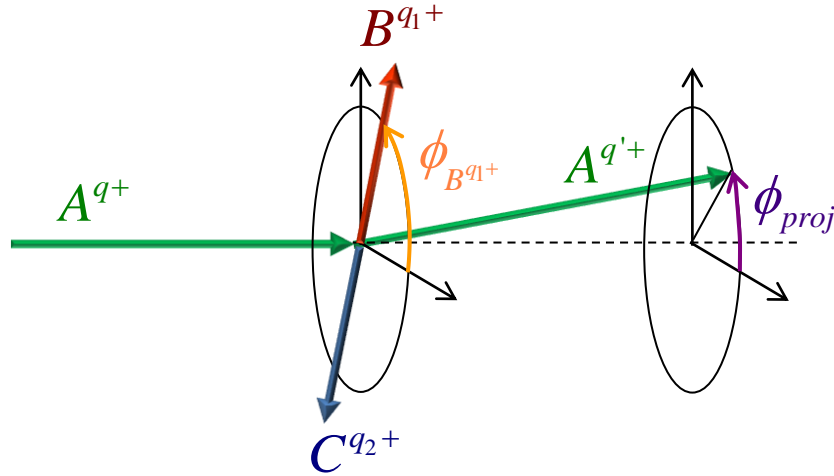


FIGURE A.2 – Illustration pour présenter la diffusion du projectile.  $A^{q+}$  et  $A^{q'+}$  représente l'état initial et l'état final du projectile incident.  $B^{q1+}$  et  $C^{q2+}$  sont les deux ions produites après fragmentation de la cible.  $\Phi_{proj}$  est l'angle de diffusion du projectile après collision et  $\Phi_{B^{q1+}}$  est l'angle d'émission du fragment  $B^{q1+}$ .

Le calcul de la position  $(x_0, y_0, z_0)$  pour tous les événements appartenant à une voie de fragmentation nous montre une structure approximativement gaussienne autour de la position maximale correspondante au centre de la région de collision (croisement du projectile avec la cible). La largeur de la gaussienne provient de la taille de la zone de collision (recouvrement projectile/cible) et du transfert d'impulsion. La position la plus probable (centroïde de la gaussienne) notée  $(x_{0c}=L_d-L_{0c}, y_{0c}, z_{0c})$  nous permet de calculer l'échange de la quantité de mouvement entre le projectile et la cible durant la collision  $\vec{P}_{CM}$ . Cette information nous permet aussi de remonter à l'angle de recul de la cible  $\Phi_{CM}$  ainsi qu'à l'angle de diffusion du projectile  $\Phi_{proj}$  dans le plan transverse (x,y) (Fig.A.2).

$$P_{xCM} = -(L_0 - L_{0c}) \frac{m_1 T_2 + m_2 T_1}{T_1 T_2}$$

$$P_{yCM} = \frac{m_1 (y_1 - y_{0c})}{T_1} + \frac{m_2 (y_2 - y_{0c})}{T_2} + (m_1 + m_2) v_{jet} \quad (\text{A.3.1a})$$

$$P_{zCM} = \frac{m_1 (z_1 - z_{0c})}{T_1} + \frac{m_2 (z_2 - z_{0c})}{T_2}$$

$$\Phi_{CM} = \text{acos}\left(\frac{P_{xCM}}{\sqrt{P_{xCM}^2 + P_{yCM}^2}}\right) \quad (\text{A.3.1b})$$

$$\Phi_{proj} = \Phi_{CM} + \Pi. \quad (\text{A.3.1c})$$

En tenant compte du vecteur quantité de mouvement échangé entre le projectile et la

cible  $\vec{P}_{CM}$  et du vecteur quantité de mouvement d'émission des deux fragments  $\vec{P}_{01}$  et  $\vec{P}_{02}$ , on peut calculer l'énergie cinétique totale  $KER_{tot}$  comme suit :

$$KER_{tot} = \frac{(\vec{P}_{01} + \frac{m_1 \vec{P}_{CM}}{m_1 + m_2})^2}{2m_1} + \frac{(\vec{P}_{02} + \frac{m_2 \vec{P}_{CM}}{m_1 + m_2})^2}{2m_2}. \quad (\text{A.3.2})$$



# Bibliographie

- [1] L. Adoui *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* **245**, 94 (2006).
- [2] R. Ali *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2491 (1992).
- [3] E. Alizadeh, A. G. Sanz, G. Garcia, and L. Sanche, *J. Phys. Chem. Lett* **4**, 820 (2013).
- [4] U. Amaldi and G. Kraft, *Europhys. News* **36**, 114 (2005).
- [5] V. Averbukh *et al.*, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **183**, 36 (2011).
- [6] A. Bande, K. Gokhberg, and L. S. Cederbaum, *J. Chem. Phys.* **135**, 144112 (2011).
- [7] A. Bande, *J. Chem. Phys.* **138**, 214104 (2013).
- [8] A. Bárány *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **9**, 397 (1985).
- [9] D. R. Bates and A.E. Kingston, *Adv. Atom. Molec. Phys.* **6**, 269 (1970).
- [10] I. Ben-Itzhak, S. G. Ginther, and K. D. Carnes, *Phys. Rev. A* **47**, 2827 (1993).
- [11] A. Bordenave-Montesquieu, P. Moretto-Capelle and D. Bordenave-Montesquieu, *J. Phys. B* **36**, 47 (2002).
- [12] B. Boudaiffa, P. Cloutier, D. Hunting, M. A. Huels, and L. Sanche, *Science* **287**, 1658 (2000).
- [13] U. Brinkmann *et al.*, *Physica Scripta* **1999**, 171 (1999).
- [14] A. Burgess and I. C. Percival, *Adv. Atom. Molec. Phys.* **4**, 109 (1968).
- [15] R. Campargue, *J. Phys. Chem.* **88**, 4466 (1984).
- [16] C. Caraby, A. Cassimi, L. Adoui, and J. P. Grandin, *Phys. Rev. A* **55**, 2450 (1997).
- [17] A. Cassimi *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3679 (1996).
- [18] A. Cassimi *et al.*, *Many-Particle Quantum Dynamics in Atomic and Molecular Fragmentation* **35**, 429 (2003).
- [19] L. S. Cederbaum, J. Zobeley, and F. Tarantelli, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 4778 (1997).
- [20] H. Cederquist, *Supplement to Z. Phys. D* **21**, S99 (1991).



- 
- [21] H. Cederquist *et al.*, *Phys. Rev. A* **46**, 2592 (1992).
- [22] K. Codling, *Rep. Progr. Phys.* **36**, 541 (1973).
- [23] I. Cherkes and N. Moiseyev, *Phys. Rev. B* **11**, 113303 (2011).
- [24] C. L. Cocke, *Phys. Rev. A* **20**, 749 (1979).
- [25] C. L. Cocke and R. E. Olson, *Phys. Rep.* **205**, 153 (1991).
- [26] E. U. Condon, *Phys. Rev.* **32**, 858 (1928).
- [27] K. Dennerl, *Space Sci. Rev.* **157**, 57 (2010).
- [28] R. Dorner *et al.*, *Physics Reports* **330**, 95 (2000).
- [29] A. K. Edwards and R. M. Wood, *J. Chem. Phys.* **76**, 2938 (1982).
- [30] M. Ehrich *et al.*, *Phys. Rev. A* **65**, 030702(R) (2002).
- [31] M. Ehrich *et al.*, *Radiat. Phys. Chem.* **68**, 127 (2003).
- [32] L. F. Errea *et al.*, *Appl. Radiat. Isot.* **83**, 86 (2013).
- [33] H. O. Folkerts, R. Hoekstra, and R. Morgenstern, *Phys. Rev. A* **77**, 3339 (1996).
- [34] J. Franck, *Trans. Faraday Soc.* **21**, 536 (1926).
- [35] F. Frémont *et al.*, *J. Phys. B* **33**, L249 (2000).
- [36] W. Fritsch and C. D. Lin, *Phys. Rep.* **202**, 1 (2002).
- [37] H. Geissel, G. Munzenberg and K. Riisager, *Annu. Rev. Nucl. Part. Sci.* **45**, 163 (1995).
- [38] H. Geissel, H. Weick, C. Scheidenberger, R. Bimbot and D. Gardès, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **195**, 3 (2002).
- [39] K. Gokhberg, P. Kolorenc, A. I. Kuleff, and L. S. Cederbaum, *Nature (London)* **505**, 661 (2014).
- [40] M. Gryzinski, *Phys. Rep.* **115**, 374 (1959).
- [41] M. Gryzinski, *Phys. Rep.* **138**, A336 (1965).
- [42] L. Guillemot, P. Roncin, M. N. Gaboriaud, H. Laurent and M. Barat, *J. Phys. B* **23**, 4293 (1990).
- [43] O. F. Hagen and W. Obert, *J. Chem. Phys.* **56**, 1793 (1972).
- [44] O. F. Hagen, *Z. Phys. D* **4**, 291 (1987).
- [45] G. Hanel *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 188104 (2003).

- 
- [46] P. H. P. Harbach, M. Schneider, S. Faraji, and A. Dreuw, *J. Phys. Chem. Lett.* **4**, 943 (2013).
- [47] T. Havermeier *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 133401 (2010).
- [48] U. Hergenhahn, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **184**, 78 (2011).
- [49] R. L. Hickok, *Rev. Sci. Instrum.* **38**, 142 (1967).
- [50] K. R. Hoffman *et al.*, *Phys. Rev. A* **25**, 1393 (1982).
- [51] V. Horvat, O. Heber, R. L. Watson, R. Parameswaran, and J. M. Blackadar, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **99**, 94 (1995).
- [52] K. Ishii, K. Okuno and N. Kobayashi, *Physica Scripta* **1999**, 176 (2014).
- [53] W. Iskandar *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 143201 (2014).
- [54] W. Iskandar *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 033201 (2015).
- [55] R. C. Isler, *Plasma Phys. Control. Fusion* **36**, 171 (1994).
- [56] T. Jahnke *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 163401 (2004).
- [57] T. Jahnke *et al.*, *J. Phys. B* **40**, 2597 (2007).
- [58] T. Jahnke *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 153401 (2007).
- [59] T. Jahnke *et al.*, *Nature Physics* **6**, 139 (2010).
- [60] T. Jahnke, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **48**, 082001 (2015).
- [61] R. K. Janev, W. D. Langer, D. E. Post Jr., and K. Evans Jr., *Elementary Processes in Hydrogen-Helium Plasmas* (Springer Series on Atoms+Plasmas, Vol. 4) (Berlin: Springer-Verlag, 1987).
- [62] R. Johnsen and M. A. Biondi, *Phys. Rev. A* **18**, 996 (1978).
- [63] P. Jardin *et al.*, *AIP Conf. Proc.* **274**, 291 (1993).
- [64] N. M. Kabachnik, V. N. Kondratyev, Z. Roller-Lutz and H. O. Lutz, *Phys. Rev. A* **56**, 2848 (1997).
- [65] N. M. Kabachnik, V. N. Kondratyev, Z. Roller-Lutz and H. O. Lutz, *Phys. Rev. A* **57**, 990 (1998).
- [66] T. Kaneyasu, T. Azuma, M. Ehrich, M. Yoshino and K. Okuno, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., Sect. B* **205**, 624 (2003).
- [67] T. Kaneyasu, T. Azuma and K. Okuno, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., Sect. B* **235**, 352 (2005).
- [68] T. Kaneyasu, T. Azuma and K. Okuno, *J. Phys. B* **38**, 1341 (2005).

- [69] H.-K. Kim *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **108**, 11821 (2011).
- [70] H.-K. Kim *et al.*, *Phys. Rev. A* **88**, 042707 (2013).
- [71] H.-K. Kim *et al.*, *Phys. Rev. A* **89**, 022704 (2014).
- [72] M. Kimura *et al.*, *Phys. Rev. A* **87**, 043414 (2013).
- [73] H. Kleinpoppen, J. S. Briggs and H. O. Lutz, *Fundamental Processes in Atomic Collision Physics*, NATO ASI Series **134** (1985).
- [74] D. W. Koppenaal *et al.*, *Anal. Chem.* **77**, 418A (2005).
- [75] K. Kreidi *et al.*, *Phys. Rev. A* **78**, 043422 (2008).
- [76] P. Lablanquie *et al.*, *J. Chem. Phys.* **127**, 154323 (2007).
- [77] B. G. Logan, L. J. Perkins and J. J. Barnard, *Phys. Plasmas* **15**, 072701 (2008).
- [78] J. T. McDaniels, R. E. Continetti and D. R. Miller, *AIP Conf. Proc.* **663**, 670 (2003).
- [79] R. J. McNeal and J. H. Birely, *Rev. Geophys. Space Phys.* **11**, 633 (1973).
- [80] S. Marburger, O. Kugeler, U. Hergenbahn, and T. Moller, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 203401 (2003).
- [81] J. Matsumoto *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 263202 (2010).
- [82] J. Matsumoto *et al.*, *Phys. Scr.* **2011**, 014016 (2011).
- [83] R. Moshhammer, M. Unverzagt, W. Schmitt, J. Ullrich and H. Schmidt-Bocking, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., Sect. B* **108**, 425 (1995).
- [84] M. Mucke *et al.*, *Nature Physics* **6**, 143 (2010).
- [85] N. Nakamura *et al.*, *J. Phys. B* **28**, 2959 (1995).
- [86] A. Niehaus, *J. Phys. B* **19**, 2925 (1986).
- [87] A. Niehaus, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., Sect. B* **31**, 359 (1988).
- [88] A. Niehaus, *Physics Reports*, **186**, 149 (1990).
- [89] A. Nikoghosyan *et al.*, *Int. J. Radiat. Oncology Biol. Phys.* **58**, 89 (2004).
- [90] G. Ohrwall *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 173401 (2004).
- [91] R. E. Olson and A. Salop *Phys. Rev. A* **16**, 631 (1977).
- [92] R. E. Olson, *Phys. Rev. A* **27**, 1871 (1983).
- [93] R. E. Olson, J. Ullrich and H. Schmidt-Bocking, *Phys. Rev. A* **39**, 5572 (1989).

- 
- [94] C. Omet, P. Spiller, J. Stadlmann, and D. H. H. Hoffmann, *New J. Phys.* **8**, 284 (2006).
- [95] Patrick O’Keeffe *et al.*, *J. Phys. Chem. Lett.* **4**, 1797 (2013).
- [96] S. Yu. Ovchinnikov, G. N. Ogurtsov, J. H. Macek, and Yu. S. Gordeev, *Physics Reports* **389**, 119 (2004).
- [97] J. T. Park, *Advances in Atomic and Molecular Physics* **19**, 67 (1983).
- [98] R. Lu *et al.*, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., Sect. B* **268**, 2592 (2010).
- [99] H. Rothard and B. Gervais, *Electron emission from solids irradiated with swift ion beams*, *Matematisk-fysiske Meddelelser*, ed P. Sigmund, **52** 497 (2006).
- [100] H. Ryufuku, K. Sasaki, and T. Watanabe, *Phys. Rev. A* **21**, 745 (1980).
- [101] H. A. Sakaue *et al.*, *Phys. Scr.* **1997**, 182 (1997).
- [102] R. Santra, J. Zobeley, L. S. Cederbaum, and N. Moiseyev, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 4490 (2000).
- [103] S. Scheit *et al.*, *J. Chem. Phys.* **121**, 8393 (2004).
- [104] T. Schlatholter, F. Alvarado, and R. Hoekstra, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., Sect. B* **233**, 62 (2005).
- [105] B. Siegmann *et al.*, *Aust. J. Phys.* **52**, 545 (1999).
- [106] N. Sisourat *et al.*, *Nature Physics* **6**, 508 (2010).
- [107] S. D. Stoychev, A. I. Kuleff, F. Tarantelli, and L. S. Cederbaum, *J. Chem. Phys.* **128**, 014307 (2008).
- [108] S. D. Stoychev, A. I. Kuleff, F. Tarantelli, and L. S. Cederbaum, *J. Chem. Phys.* **129**, 074307 (2008).
- [109] J.J. Thomson, *Philosophical Magazine* **23**, 449 (1912).
- [110] S. Thürmer *et al.*, *Nature Chemistry* **5**, 590 (2013).
- [111] J. Titze *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 033201 (2011).
- [112] I. Yu Tolstikhina, and V. P. Shevelko, *Phys.-Usp.* **56**, 213 (2013).
- [113] J. Ullrich and H. Schmidt-Bocking, *Phys. Lett. A* **125**, 193 (1987).
- [114] J. Ullrich *et al.*, *Rep. Prog. Phys.* **66**, 1463 (2003).
- [115] U. Werner, N. M. Kabachnik, V. N. Kondratyev, and H. O. Lutz, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1662 (1997).
- [116] K. Wohrer and R. L. Watson, *Phys. Rev. A* **48**, 4784 (1993).

- 
- [117] J. Wormer, V. Guzielski, J. Stapelfeldt and T. Moller, *Chem. Phys. Lett.* **159**, 321 (1989).
- [118] T. Ohyama-Yamaguchi and A. Ichimura, *J. Phys.: Conf. Ser.* **163**, 012047 (2009).
- [119] T. Ohyama-Yamaguchi and A. Ichimura, *Phys. Scr.* **2011**, 014028 (2011).
- [120] T. Ohyama-Yamaguchi and A. Ichimura, *Phys. Scr.* **2013**, 014043 (2013).
- [121] T. Ohyama-Yamaguchi and A. Ichimura, *J. Phys.: Conf. Ser.* **635**, 032101 (2015).
- [122] Y. Yamazaki *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 992 (1986).
- [123] J. Zobeley, R. Santra and L. S. Cederbaum, *J. Chem. Phys.* **115**, 5076 (2001).
- [124] <http://webbook.nist.gov>.
- [125] <https://root.cern.ch>.
- [126] <http://wiki.ganil.fr/gap/wiki/Documentation>.



## Étude des Collisions à Basse Énergie entre Ions Multichargés et Dimères de Gaz Rare

**Résumé** – Ce projet doctoral consiste en l'étude de la dynamique de l'interaction entre des ions multichargés et des dimères de gaz rare dans des collisions à basse énergie. Après capture d'un ou plusieurs électrons de la cible par le projectile, plusieurs états moléculaires ioniques peuvent être produits. Ces états vont ensuite relaxer en fragments chargés via plusieurs processus de dissociation. Expérimentalement, cette étude est réalisée en utilisant la technique COLTRIMS, particulièrement efficace puisqu'elle permet la détection en multi-coïncidence des fragments moléculaires et du projectile. Théoriquement, la dynamique de la collision est interprétée à l'aide d'un calcul classique basé sur le modèle de la barrière coulombienne mais adapté au traitement des cibles moléculaires tels que les dimères de gaz rares. Ce modèle s'est montré en bon accord avec les résultats expérimentaux, que ce soit en termes de production relative des différents processus de dissociation, ou en termes de dépendance angulaire entre l'orientation de la molécule et la direction de projectile diffusé. L'ensemble de ce travail a finalement permis d'établir une cartographie des processus dans le repère de la molécule cible et de mettre en évidence un nouveau processus de relaxation de l'ion moléculaire. Ce processus de relaxation est émetteur d'électrons de très basse énergie et pourrait avoir un rôle non négligeable dans l'estimation des dommages causés par impact d'ion.

---

## Study of Collisions between Low-Energy Multi-Charged Ions and Van-der-Waals Dimers

**Abstract** – Within this thesis, the dynamics of collisions between low energy multi-charged ions and Van-der-Waals dimers is investigated theoretically and experimentally. During the interaction ion/dimer, electrons from the target can be captured by the projectile and produce ionic states of the dimer. These states will then relax into charged fragments via multiple dissociation processes. Experimentally, this study is performed by means of Cold-Target Recoil-Ion Momentum Spectroscopy, a powerful technique which allows the multi-coincidence detection of target ionic fragments and the projectile. Theoretically, the collision dynamics is investigated using a classical calculation based on the Coulombic Over-Barrier Model and adapted to treat diatomic molecules such as dimers. This model has shown good agreement with the experimental results, both in terms of relative production of the different dissociation processes, and in terms of angular dependence of the molecular orientation in respect with the scattered projectile direction. All of this work has finally enabled to provide, for the different processes, the two-dimensional probability maps  $p(\vec{b})$  in the molecular frame and to highlight a new relaxation mechanism of the molecular ion named Interatomic Coulombic Decay. This relaxation process is electron emitter of very low energy and could have a significant role in the assessment of damage caused by ion impact.

**Keywords** – Van-der-Waals dimers, COLTRIMS, electrons capture, interatomic coulombic decay, charge transfer, autoionisation, coulomb explosion, electron mobility, low energy electrons, ion dimer collisions, coulombic over-barrier model.

---

## Laboratoire

Centre de recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique

CIMAP - GANIL

CEA/CNRS/ENSICAEN/Université de Caen Normandie

Boulevard Henri Becquerel, BP 5133, 14070 CAEN Cedex 5 - France