



**HAL**  
open science

# Métrologie rayon X pour l'astrophysique et la physique fondamentale

Louis Duval

► **To cite this version:**

Louis Duval. Métrologie rayon X pour l'astrophysique et la physique fondamentale. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Sorbonne Université, 2024. Français. NNT : 2024SORUS320 . tel-04871962

**HAL Id: tel-04871962**

**<https://theses.hal.science/tel-04871962v1>**

Submitted on 7 Jan 2025

**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



THÈSE DE DOCTORAT  
de Sorbonne Université

Spécialité : Physique

École doctorale n°564: Physique en Île-de-France

réalisée

au Laboratoire Kastler-Brossel  
et à L'Institut des NanoSciences de Paris

sous la direction de :  
Paul INDELICATO  
Martino TRASSINELLI  
Nancy PAUL

présentée par

Louis DUVAL

Sujet de la thèse :

Métrieologie Rayon X pour applications  
astrophysiques et fondamentales

soutenue le 12 novembre 2024

devant le jury composé de :

M <sup>me</sup>	REZEAU Laurence,	Sorbonne Université	Présidente
M <sup>me</sup>	LEPY Marie-Christine,	CEA	Rapporteuse
M.	PAJOT François,	IRAP	Rapporteur
M.	PALMERI Patrick,	Université de Mons	Examineur
M.	INDELICATO Paul,	LKB	Directeur de Thèse
M.	TRASSINELLI Martino,	INSPIRE	Co-directeur de Thèse
M <sup>me</sup>	PAUL Nancy,	LKB	Co-encadrante



# Table des matières

<b>Financement</b>	xiii
<b>Remerciements</b>	xv
<b>I Introduction</b>	1
I.1 État de l'art des étalons en énergie X . . . . .	1
I.2 Contexte Astrophysique . . . . .	2
I.3 Tests de QED . . . . .	2
I.4 Mesure des ions très chargés . . . . .	4
I.5 Spectrométrie X . . . . .	4
Présentation de la thèse . . . . .	5
<b>A Étude de l'Uranium Très Chargé</b>	7
<b>II Étude de l'uranium à deux, trois et quatre électrons</b>	9
II.1 Introduction . . . . .	9
II.2 Dispositif expérimental . . . . .	11
II.2.1 La ligne d'accélérateur . . . . .	12
II.2.2 Les spectromètres de Bragg à Bras Jumeaux . . . . .	14
II.2.3 Production des raies spectrales . . . . .	16
II.2.4 Effet Doppler relativiste . . . . .	16
II.2.5 Taux de production . . . . .	19
II.2.6 Mesure parallèle de l'uranium lithiumoïde et l'uranium bérylliumoïde . . . . .	21
II.2.7 Prise de données . . . . .	22
II.3 Analyse de données . . . . .	24
II.3.1 Analyse non paramétrique . . . . .	24
II.3.1.1 Principe de l'algorithme . . . . .	24
II.3.1.2 Résultat des ajustements . . . . .	25
II.3.2 Déduction de l'énergie . . . . .	27
II.4 Conclusion . . . . .	30

<b>B</b>	<b>Étude du Soufre et de l'Argon Boronoïde</b>	<b>33</b>
<b>III</b>	<b>La source d'ions et le spectromètre X</b>	<b>35</b>
III.1	Introduction historique à la diffraction de Bragg . . . . .	35
III.2	La Source SIMPA . . . . .	40
III.3	Le Spectromètre à Double Cristal . . . . .	42
III.3.1	Les Cristaux du DCS . . . . .	47
III.3.2	La Diffraction par des Cristaux . . . . .	48
III.3.3	Système de Détection et Électronique . . . . .	49
III.3.4	Préparation du détecteur . . . . .	51
III.3.5	Stabilisation en température . . . . .	54
III.3.6	Procédure d'alignement . . . . .	55
III.3.7	Prise de données . . . . .	58
III.4	Développements sur le DCS . . . . .	61
<b>IV</b>	<b>Étude de l'argon et du soufre boronoïdes</b>	<b>63</b>
IV.1	Introduction . . . . .	63
IV.1.1	Contexte . . . . .	63
IV.1.2	Spectres de S et Ar boronoïdes . . . . .	64
IV.2	Analyse de données . . . . .	66
IV.2.1	Analyse Bayésienne . . . . .	67
IV.2.2	Modélisation des contributions . . . . .	69
IV.2.2.1	Profil de Voigt . . . . .	70
IV.2.2.2	Simulation <i>ab initio</i> . . . . .	71
IV.2.2.3	Utilisation de ces modèles . . . . .	72
IV.2.2.4	Étude simultanée des spectres . . . . .	72
IV.3	Détermination du nombre de contributions . . . . .	73
IV.3.1	Méthode naïve et limites . . . . .	73
IV.3.2	Étude pic par pic . . . . .	74
IV.4	Identification des transitions . . . . .	79
IV.5	Détermination des largeurs naturelles . . . . .	82
IV.6	Détermination de l'énergie . . . . .	83
IV.6.1	Correction de la température . . . . .	84
IV.6.2	Moyenne Bayésienne . . . . .	86
IV.6.3	Mesure de l'écart des niveaux . . . . .	88
IV.7	Cas des transitions $^2D_{3/2} \rightarrow ^2P_{1/2}$ et $^2P_{1/2} \rightarrow ^2P_{3/2}$ de l'argon . . . . .	90
IV.7.1	Détermination des largeurs naturelles . . . . .	90
IV.7.2	Détermination de l'énergie . . . . .	92
IV.8	Comparaison à la théorie . . . . .	95
IV.9	Détermination des niveaux de Ritz . . . . .	96
IV.10	Conclusion . . . . .	97
	<b>Conclusion</b>	<b>99</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>103</b>

# Table des figures

I.1	Diagramme de Feynman au premier ordre en $\alpha$ . Ces diagrammes permettent de calculer les corrections d'électrodynamique quantique (QED). De gauche à droite : Interaction électron-électron, self-énergie et polarisation du vide. La double ligne représente un électron lié, dans le champ du noyau. . . . .	3
II.1	Sensibilité expérimentale aux contributions théoriques. Contributions théoriques à la transition intracouche $1s_{1/2}2p_{3/2} J = 2 \rightarrow 1s_{1/2}2s_{1/2} J = 1$ de l'uranium héliumoïde ( <b>a</b> ), à la différence d'énergie entre les transitions héliumoïdes et lithiuoïdes( <b>b</b> ) et la différence d'énergie entre les transitions lithiuoïdes et bérylliuoïdes ( <b>c</b> ). Pour ( <b>b</b> ) et ( <b>c</b> ), la barre bleue inclue également les contributions QED non radiatives. Certains des diagrammes de Feynman correspondants sont également représentés. Les labels $1e$ et $2e$ représentent respectivement les contributions d'un et de deux électrons. Figure et légende adaptées de la réf. [56] © nature.com 2024. . . . .	10
II.2	Diagramme de niveaux partiel de l'uranium héliumoïde ainsi que la décroissance majoritaire. La transition étudiée est indiquée en gras. . . . .	11
II.3	Complexe d'accélérateurs du GSI-FAIR de Darmstadt, avec l'accélérateur linéaire (UNILAC), le synchrotron pour le stockage des ions (SIS18), et l'anneau de stockage (ESR) où l'expérience a eu lieu. Le second anneau de stockage (CRYRING) pour les expériences de physique est également indiqué. . . . .	13
II.4	Schéma de l'ESR, avec ses différents composants, points d'interactions et expériences possibles. Image issue de la page web de l'ESR [116]. . . . .	13
II.5	Nombre d'ions stockés dans l'ESR lors d'un cycle de mesure. . . . .	14
II.6	Schéma du spectromètre et du point d'interaction [Trassinelli 2021, communication privée] . . . . .	15
II.7	Schéma du spectromètre. Deux rayons venant de la source sont représentés. Ils sont décalés, par effet Doppler, et diffractent sur le cristal, jusqu'au CCD. Leur angle de diffraction diffère à cause de la différence d'énergie due à l'effet Doppler. . . . .	17
II.8	Position théorique de la raie sur le CCD, pour la raie d'uranium lithiuoïde et la raie d'uranium héliumoïde. La position de la raie de calibration est donnée par l'axe $x = 0$ . Les axes sont ceux du CCD, avec des axes en mm. . . . .	19

II.9	Angle de la tangente à la raie en fonction de l'angle incident ( $\theta_0$ ) depuis la source. La valeur de l'angle varie d'environ $0.001^\circ$ sur la totalité du CCD, ce qui est en dessous de notre sensibilité. . . . .	20
II.10	Image brute obtenue de la raie d'uranium lithiumoïde obtenue avec le CCD <i>Great Eyes</i> . Les points blancs sont les pixels morts, c'est-à-dire les pixels n'ayant pas pu être utilisés pour la mesure. . . . .	23
II.11	Centroïdes et ajustement des centroïdes obtenus avec l'algorithme de détermination des centroïdes en utilisant comme paramètres d'entrée $\epsilon = 1, 3$ et 20 tranches pour l'image de l'uranium héliumoïde. Les incertitudes tracées correspondent à $2\sigma$ , les tranches sont représentées dans l'arrière-plan. . .	25
II.12	Position de la raie (à gauche) et angle de la raie (à droite) pour le bras droit en fonction des paramètres d'entrée de l'algorithme, pour l'uranium héliumoïde. L'ajustement (rouge) est réalisé avec une méthode $\chi^2$ . L'incertitude de la valeur finale est la moyenne de tous les écarts types dans le graphique. . . . .	26
II.13	Sensibilité expérimentale aux contributions théoriques et précision expérimentale obtenue. Contributions théoriques à la transition intracouche $1s_{1/2}2p_{3/2} J = 2 \rightarrow 1s_{1/2}2s_{1/2} J = 1$ de l'uranium héliumoïde ( <b>a</b> ), à la différence d'énergie entre les transitions héliumoïdes et lithiumoïdes ( <b>b</b> ) et la différence d'énergie entre les transitions lithiumoïdes et bérylliumoïdes ( <b>c</b> ). Pour ( <b>b</b> ) et ( <b>c</b> ), la barre bleue inclut également les contributions QED non radiatives. Certains des diagrammes de Feynman correspondants sont également représentés. Les labels 1e et 2e représentent respectivement les contributions d'un et de deux électrons. Figure et légende adaptées de la réf. [56] © nature.com 2024. . . . .	30
III.1	Tube à Rayons X, <i>circa</i> 1915. Source : <b>Museum of Radiation and Radioactivity</b> . . . . .	35
III.2	Radiographie X de la main d'Anna Bertha Ludwig, présentée au Pr. Ludwig Zehnder, le 1 <sup>er</sup> janvier 1896. Source : National Aeronautics and Space Administration (NASA) Domaine public. . . . .	36
III.3	Figure de diffraction d'un cristal de ZnS blende, obtenu par Friedrich et Knipping [138]. ©WILEY-VCH . . . . .	37
III.4	Schéma du spectromètre à doubles cristaux, conçu par Compton [153]. Les deux cristaux sont notés A et B. L représente le tube à rayons X pouvant tourner autour des cristaux. . . . .	39
III.5	Configuration d'une source d'ions ECR. Les électrons du plasma sont piégés dans une structure à champ minimum B et sont chauffés par des microondes en résonance avec la surface magnétique du cyclotron électronique. Image et légende tirées de la Ref. [38] ©2002 Springer. . . . .	41

III.6	Vue globale de l'ECRIS SIMPA, avec le spectromètre à double cristal (DCS) installé sur le côté gauche pour effectuer la spectroscopie rayons X. Sur le côté droit, une partie du plasma peut être extraite et un état de charge spécifique peut être sélectionné pour réaliser des expériences ou pour analyser la présence d'un état de charge spécifique dans le plasma. Dans la partie zoomée, la distance entre le DCS et le plasma ainsi que la fenêtre de béryllium sont visibles. Figure et légende tirées de la Ref. [171] ©Jorge Felizardo Dias Cunha Machado, Faculté des sciences et de la technologie, Université NOVA de Lisbonne et Université Pierre et Marie Curie.	42
III.7	Processus d'ionisation par impact électronique. Un électron incident énergétique arrive dans la couche électronique d'un atome. L'électron percute un électron de la couche électronique et l'éjecte en repartant. Ici, cette ionisation laisse un trou en couche interne, comblé par un électron externe qui émet un photon X. . . . .	43
III.8	Principe de fonctionnement du DCS. La configuration non dispersive est en haut, et la configuration dispersive en bas. La différence d'angle du second cristal est égale à $180^\circ - 2\Theta_{\text{Bragg}}$ . . . . .	45
III.9	Configuration du spectromètre : (1) chambre à vide ; (2) axe #1 (premier support de cristal avec plateau de rotation et encodeur angulaire) ; (3) axe #2 (deuxième support de cristal, plateau de rotation, encodeur) ; (4) plateau de rotation du détecteur de rayons X ; (5) cristal sur le deuxième axe ; (6) support de cristal du premier axe ; (7) détecteur de rayons X ; (8) table du spectromètre ; (9) plateau de rotation de la table du spectromètre ; (10) roues coniques ; (11) rails pour les roues ; (12) pieds anti-vibration de la chambre à vide avec positionnement vertical ; (13) étages de translation ; (14) table de support du spectromètre ; (15) pieds anti-vibration avec positionnement vertical ; (16) vis de positionnement ; (17) entrée des rayons X ; (18) soufflet ; (19) fenêtre de béryllium ; (20) SIMPA ECRIS ; (21) fenêtre optique ; (22) raccordement du soufflet à la pompe à vide ; (23) manomètre et vanne ; (24) pompe à vide primaire ; (25) brides a et b équipées de passages pour les câbles et l'eau de refroidissement. Image et légende tirées de Ref. [165]. . . . .	46
III.10	Photo de la table DCS. Le détail de l'installation est légendé sur la photo. L'axe tournant manuel a été remplacé par un moteur (voir sec III.4). . .	47
III.11	Profils de réflectivité de $1s2s^22p^2 J \rightarrow 1s^22s^22p J'$ pour le soufre boronoïde (à gauche) et l'argon boronoïde (à droite). Le profil est calculé grâce à la bibliothèque Python XOPPY [188, 190, 191]. Le profil de réflectivité prend en compte l'absorption à l'intérieur du cristal. La différence d'absorption pour la polarisation p modifie la forme de la réponse du cristal. . . . .	49
III.12	Absorption de silicium, pour une épaisseur de 40 $\mu\text{m}$ . En dessous de 4 keV, l'absorption est presque de 100%. . . . .	50

III.13	Le système de détection DCS. Lorsqu'un photon de rayons X dépose une charge dans le détecteur, celle-ci est collectée grâce à la polarisation appliquée au détecteur. Le signal résultant, dont la surface est proportionnelle à l'énergie, est ensuite traité par un préamplificateur à faible bruit qui l'amplifie et l'intègre. Le signal devient un signal gaussien, dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie. Ce signal est encore amplifié et envoyé sur deux voies. Le premier chemin est une ligne de sélection : le signal est envoyé à un analyseur simple canal temporel (Timing SCA), qui produit une impulsion TTL si l'amplitude du signal est comprise entre deux seuils prédéfinis. Cette impulsion TTL est ensuite envoyée à un générateur de porte et de délai, qui produit un signal de porte dont la longueur et la tension sont réglables. Dans le second chemin, le signal provenant du préamplificateur est retardé et envoyé à un étireur de porte linéaire. Ce dernier génère une impulsion carrée de même tension que le signal d'entrée. Tous les retards sont ajustés pour garantir la synchronisation des deux signaux. L'analyseur multicanal (MCA) est réglé sur le mode coïncidence, ce qui permet de créer un spectre filtré pour le bruit et l'énergie. . . . .	52
III.14	Exemple d'un spectre enregistré par le DCS à l'aide du logiciel d'acquisition Labview™. Le spectre est composé du temps passé dans chaque classe (à gauche), du nombre de coups (au milieu) et du spectre normalisé (à droite).	53
III.15	Processus de capture de l'électron 1s. L'électron est capturé par l'intermédiaire d'une interaction faible. L'électron converti laisse un trou à l'intérieur de la couche électronique, ce qui permet l'émission de rayons X, dans ce cas, un $K_{\alpha}$ (électron 2p allant dans la couche 1s). Dans environ 10% des captures électronique, l'électron 2s peut être capturé. . . . .	53
III.16	Ajustement et calibration des données LAAPD de $^{55}\text{Fe}$ , prises en 2022 (à gauche) et 2024 (à droite). On peut voir l'influence de la température sur la queue de bruit à basse énergie et sur la résolution du pic. La valeur 5.9 keV a été ajustée avec une gaussienne et un polynôme du second ordre. Le bruit de faible énergie a été coupé pour l'ajustement. Le numéro de canal correspond à la position du pic de $^{55}\text{Fe}$ en fonction du canal. Le spectre a été calibré linéairement. . . . .	54
III.17	Vue rapprochée du second cristal (a) et du détecteur (b). Les détails du système sont indiqués. La thermistance Pt100 est placée entre la plaque de cuivre et le cristal. Le flexible et la vis micrométrique permettent d'ajuster la verticalité du cristal. Le détecteur est placé dans un boîtier en cuivre. Un boîtier supplémentaire a été ajouté pour réduire le bruit. . . . .	55
III.18	Photo légendée du banc d'alignement. La croix est équipée d'un diaphragme pour limiter la dispersion du faisceau . . . . .	56
III.19	Laser aligné sur le réticule à l'extrémité de la sortie du dipôle (a) et sur la croix du mur (b). Le spot laser a une largeur de quelques mm, ce qui permet un alignement de l'ordre d'un mm sur la croix, sur plus de 10 m. Le spot laser sur la photo (b) semble plus large en raison de la diffraction sur la croix gravée dans la plaque métallique. . . . .	57

III.20	Schéma du positionnement du DCS pour effectuer une mesure. Les étapes des procédures sont exécutées séquentiellement de (a) à (d). Le schéma (e) représente le mode non dispersif et (f) le mode dispersif de l'acquisition. La figure et la légende sont tirées de la Ref. [171] ©Jorge Felizardo Dias Cunha Machado, Faculty of Sciences and Technology, NOVA University of Lisbon and Université Pierre et Marie Curie. . . . .	59
III.21	Nouveau système de contrôle du DCS. Le moteur est contrôlé à l'aide de cartes DRV installées dans un boîtier Newport XPS. Les encodeurs sont lus grâce à un Heidenhain EIB740. Les deux sont connectés au réseau du laboratoire, et contrôlés à l'aide d'un logiciel développé en C++. . . . .	61
IV.1	Spectre expérimental dispersif du soufre de boronoïde, comparée avec des prédictions théoriques. Les transitions ont été calculées dans la Ref. [212]. La hauteur de chaque barre correspond au nombre maximal de coups multiplié par le rendement de la transition attendu. Les transitions sont présentées dans la Tab. IV.1. . . . .	65
IV.2	Spectre du soufre boronoïde, ajusté avec cinq profils de Voigt et un fond linéaire. On peut voir la limitation du profil de Voigt pour modéliser la queue du troisième pic. . . . .	74
IV.3	Densité de probabilité de l'ajustement de huit profils de Voigt de l'argon boronoïde. Les variables indiquées sont la position du troisième Voigt (centré sur le troisième pic) et la position des trois autres Voigt, sans aucune contrainte sur leurs positions. Elles peuvent être remplacées l'une par l'autre, ce qui explique la forme similaire des distributions des trois profils de Voigt libres. L'exécution a été réalisée avec dix essais pour limiter les zones inexplorées. . . . .	75
IV.4	Spectre de soufre et d'argon, avec le découpage pic par pic indiqué. Chaque zone a été ajustée indépendamment. Le meilleur ajustement est montré en noir. La bonne continuité entre les zones ajustées montre la modélisation cohérente entre les différentes zones . . . . .	76
IV.5	Tracé de l'évidence du soufre, pour les deux spectres. Chaque contribution a été ajustée avec un profil de Voigt, à l'exception d'un pic (indiqué en légende), ajusté avec un, deux ou trois Voigt. L'évidence montrée est la différence d'évidence par rapport à l'évidence à un Voigt. Pour tous les pics, l'évidence est plus élevée pour plus qu'une contribution, ce qui indique un effet systématique, car certains pics à faible contribution ne peuvent pas résoudre de multiples contributions. . . . .	76
IV.6	a) Densité de probabilité de l'ajustement du spectre d'argon, pour les positions du troisième Voigt (x03), correspondant au troisième pic, et des deux Voigt ajustés au deuxième pic (x02 et x06). La distribution de probabilité de x02 (ajustant le second pic) tend vers la position du troisième pic, ce qui explique la mauvaise modélisation du pic. Le même comportement est observé pour le soufre. b) Ajustement du spectre d'argon, avec les contributions pour le deuxième pic montrées. La première contribution tend vers le troisième pic. . . . .	78

IV.7	Évidence pour l'ajustement des spectres de soufre, avec différents nombres de contributions, pour chaque série et pour la combinaison. Le graphique combiné est la somme des évidences de chaque spectre. . . . .	79
IV.8	Différence relative entre l'évidence bayésienne logarithmique et son maximum pour chaque pic de l'argon et du soufre. Dans le cas du soufre, le modèle le plus probable est celui à une contribution, pour tous les pics du spectre. Pour l'argon, seul le troisième pic présente deux contributions. Les différences d'évidence pour le troisième pic sont plus grandes que les autres en raison de statistiques plus importantes. . . . .	80
IV.9	Spectres du soufre et de l'argon avec identification. Les calculs théoriques pour le soufre ont été effectués par Palmeri [212] et Costa [214] pour l'argon. Un ajustement a été ajouté pour le confort de l'œil. L'angle a été converti en énergie en utilisant la formule de la Ref. [154, 165]. Les barres sont normalisées à la hauteur du pic le plus élevé, et les hauteurs relatives sont données par les taux de productions. . . . .	80
IV.10	Schéma de transition pour le pic principal et ses deux voisins. La symétrie des deux voisins s'explique par le fait que deux niveaux supérieurs se désexcitent en deux niveaux inférieurs. Comme la division des niveaux supérieurs et inférieurs est à peu près la même, c'est-à-dire $E_1 - E_3 \approx E_2 - E_4$ , le pic central du spectre est mélangé. Avec $E_2 - E_1 = E_4 - E_3$ , les transitions $E_2$ et $E_3$ sont symétriques par rapport aux transitions $E_1$ et $E_4$ . Les transitions identifiées pour le soufre et l'argon sont montrées dans le schéma de niveau. Seule la transition $1s2s^22p^2\ ^2D_{5/2} \rightarrow 1s^22s^22p^2\ ^2P_{3/2}$ du soufre n'apparaît pas dans le spectre. . . . .	81
IV.11	Spectres du soufre et de l'argon avec identification. Un ajustement a été ajouté pour le confort de l'œil. L'angle a été converti en énergie en utilisant la formule de la Réf. [165]. La détermination de l'énergie est discutée en Section IV.6.2 et la comparaison avec la théorie est discutée dans la Section IV.8. . . . .	82
IV.12	a) Évidence en fonction de la largeur des simulations, pour un modèle à deux contributions. Les deux contributions sont différenciées en imposant une contribution plus intense que la seconde. b) Réduction des données pour la seconde contribution. Elle est obtenue par le maximum de l'évidence pour chaque largeur de la seconde contribution. Cette réduction est alors ajustée pour obtenir la largeur naturelle associée à cette contribution. La largeur est associée à la transition selon l'ordre d'énergie prédit par la théorie. . . . .	83
IV.13	Effet de la température sur les spectres non dispersifs et dispersifs simulés. Les simulations ont été effectuées par Daniel Pinheiro. Pour le côté non dispersif, il n'y a pas de décalage si les deux cristaux sont à la même température. Pour le côté dispersif, le décalage causé par l'écart de température des deux cristaux s'additionne. . . . .	86

- IV.14 Effet de la correction de température sur l'énergie des transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p\ ^2P_{3/2}$  de l'argon (gauche),  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p\ ^2P_{1/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p\ ^2P_{3/2}$  du soufre (à droite). Dans le cas du soufre, cette correction réduit la dispersion journalière (chaque spectre pair-impair consécutifs). Dans l'argon, cette correction réduit la dispersion des mesures par rapport à la valeur mesurée. La valeur énergétique est calculée à l'aide d'une méthode de moyenne pondérée. L'incertitude statistique de  $1-\sigma$  est représentée par une bande rouge, tandis que l'incertitude type (type A et type B) de  $1-\sigma$  est indiquée par une ligne orange pointillés. . . . . 87
- IV.15 Moyenne bayésienne de la différence d'énergie entre les transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  dans le soufre (à gauche). Moyenne bayésienne de la différence d'énergie des transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  dans le soufre (droite). Nous pouvons voir que le mélange des transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  déplace l'énergie mesurée de la transition  $1s^22s^22p\ ^2P_{1/2} - ^2P_{3/2}$ , en désaccord avec la valeur de 1.6286 meV provenant de la spectroscopie par réseau. . . . . 89
- IV.16 Moyenne bayésienne de la différence d'énergie entre les transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  dans l'argon (à gauche). Moyenne bayésienne de la différence d'énergie des transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  dans l'argon (droite). On voit que le mélange des transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  déplace l'énergie mesurée de la transition  $1s^22s^22p\ ^2P_{1/2} - ^2P_{3/2}$ . L'autre mesure est en bon accord avec la mesure laser à 2.8090 eV [225]. . . . . 89
- IV.17 Différence d'énergie absolue entre les deux contributions ajustées au troisième pic du soufre boronoïde. Le graphique de droite est une partie zoomée autour de la largeur théorique des transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$ . Nous ne pouvons pas déterminer si l'écart d'énergie entre les deux transitions est non nulle. . . 90
- IV.18 (Gauche) Évidence en fonction de la largeur pour le modèle à une contribution et deux contributions. (Droite) Évidence en fonction de la largeur, avec la largeur de la transition  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow ^2P_{3/2}$  fixée à sa valeur mesurée. . . . . 91
- IV.19 Moyenne bayésienne pour déterminer l'énergie entre les transitions  $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  (gauche) et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  (droite). Les deux transitions ne sont pas résolues, ce qui rend l'incertitude énergétique beaucoup plus importante que pour les autres transitions. . . . . 92

IV.20	Détermination de l'énergie par log-vraisemblance pour le soufre. Pour chaque point de mesure, l'incertitude comprend les incertitudes journalières et l'incertitude statistique. Une fois l'énergie finale et son incertitude déduites, l'incertitude globale est ajoutée. Parmi toutes les mesures, la moyenne pondérée et la moyenne bayésienne sont compatibles, et l'incertitude de la moyenne bayésienne est supérieure à la moyenne pondérée. . . . .	93
IV.21	Détermination de l'énergie par log-vraisemblance pour l'argon. Pour chaque point de mesure, l'incertitude comprend les incertitudes journalières et l'incertitude statistique. Une fois que l'énergie finale et son incertitude sont déduites, l'incertitude globale est ajoutée. Parmi toutes les mesures, la moyenne pondérée et la moyenne bayésienne sont compatibles. Néanmoins, les mesures aberrantes, dues à de faibles statistiques, décalent l'énergie totale mesurée, alors que l'approche bayésienne exclut ces points. L'approche de la moyenne bayésienne permet également d'adapter l'incertitude à la dispersion des points, alors que l'incertitude statistique de la moyenne pondérée ne dépend pas des points eux-mêmes et s'appuie sur des règles empiriques en cas de forte dispersion. . . . .	94
IV.22	Comparaison des résultats entre les méthodes utilisées dans cette analyse pour le soufre boronoïde. J'ai effectué une analyse en largeur, en utilisant une analyse spectre par spectre d'une analyse ensembliste, en ajustant tous les spectres ensemble. J'ai comparé également la différence d'énergie avec et sans la correction de la température du premier cristal. La largeur des transitions et l'énergie de chaque série ont été déduites en utilisant la moyenne pondérée. . . . .	98
IV.23	Identification du spectre X mou du spectre de N132D de XRISM [33], contenant des transitions $n > 2 \rightarrow n = 1$ dans le silicium et le soufre à quelques électrons. Figure et calculs de Paul Indelicato 2024, communication privée. . . . .	100

# Liste des tableaux

II.1	Énergie théorique des transitions intracouche des différents états de charge de l'uranium étudiés dans ce travail. Valeur de la référence [56]. . . . .	10
II.2	Énergies de transitions expérimentales, facteur de Lorentz, vitesse réduite et énergie du faisceau afin de pouvoir observer la transition dans le spectromètre. Ici $E_{\text{transition}} = 8638.51 \text{ eV}$ [1] et $m_{\text{nucleon}} = 931.494 \text{ MeV}/c^2$ . . .	18
II.3	Angle de la raie sur le CCD en fonction de l'énergie du faisceau et de l'espèce mesurée . . . . .	20
II.4	Estimations de sections efficaces et des taux de production par collision ion-gaz. [122–124] . . . . .	21
II.5	Position des raies de l'uranium lithiuoïde et bérylliuoïde par rapport à la référence (au centre du CCD) et la distance de défocalisation. La taille des pixels considérée est de $13.5 \mu\text{m}$ . . . . .	22
II.6	Position pour toutes les images prises lors de l'expérience E125. . . . .	26
II.7	Position et angle des raies pour toutes les images prises lors de l'expérience E125. Les données du CCD <i>Andor</i> ont été retraitées pour que les pixels considérés soient de $27 \mu\text{m}$ . . . . .	27
II.8	Angle et énergie de la raie obtenus en fonction de la position sur le CCD (cf. Table II.6) en fonction des paramètres de l'expérience. . . . .	29
II.9	Résultats de la mesure de l'uranium héliumoïde et bérylliuoïde, en utilisant la transition de l'uranium lithiuoïde comme référence. La mesure différentielle entre l'uranium héliumoïde (bérylliuoïde) par rapport à la transition de l'uranium lithiuoïde sont également présentées. Les calculs théoriques sont le résultat de calculs MCDF de Paul Indelicato [56]. . . . .	29
IV.1	Calculs de Palmeri, <i>et al.</i> [212], pour le soufre de type boronoïde. Ces calculs utilisent la méthode Hartree-Foch Relativiste (HFR) de la suite de codes de Cowan [213]. . . . .	66
IV.2	Largeurs mesurées pour le soufre et l'argon. Toutes les transitions vont de l'état électronique $1s2s^22p^2 \ ^{2S+1}L_J$ à l'état $1s^22s^22p \ ^2P_J$ . Si deux transitions sont mentionnées, la largeur indiquée est la largeur combinée. Les largeurs théoriques ont été obtenues à l'aide de calculs MCDF, effectués par Paul Indelicato. Les trois colonnes de droite contiennent les contributions radiatives et Auger théoriques et les largeurs théoriques totales des transitions. Plus de détails sur les calculs théoriques sont donnés en section IV.8. . . . .	84

IV.3	Liste des incertitudes systématiques pour chaque spectre. Les incertitudes systématiques sont séparées en deux catégories. La première, les incertitudes systématiques quotidiennes, comprend toutes les systématiques qui peuvent changer quotidiennement. Les contributions globales comprennent les incertitudes systématiques qui dépendent de paramètres expérimentaux constants, tels que les paramètres de maille des cristaux, les incertitudes liées aux courbes de réponse des cristaux ou à la géométrie de l'installation.	85
IV.4	Énergie expérimentale des transitions dans le soufre et l'argon. Les transitions $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2}-1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2}$ et $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2}-1s^22s^22p^2\ ^2P_{1/2}$ de l'argon n'ont pas pu être résolues. La transition $1s2s^22p^2\ ^2S_{1/2}-1s^22s^22p^2\ ^2P_{3/2}$ a été analysée avec un profil de Voigt en raison de sa faible statistique, ce qui explique l'incertitude dix fois plus élevée.	95
IV.5	Comparaison entre l'énergie expérimentale et l'énergie théorique des transitions du soufre. Cette différence est comparée à somme des incertitudes théoriques et expérimentales. Toutes les données expérimentales et théoriques sont en bon accord.	96
IV.6	Comparaison entre l'énergie expérimentale et l'énergie théorique des transitions de l'argon. Cette différence est comparée à l'addition des incertitudes théoriques et expérimentales. Toutes les données expérimentales et théoriques sont en bon accord, sauf pour la transition non résolue $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2}-1s^22s^22p^2\ ^2P_{1/2}$ . La transition $1s2s^22p^2\ ^2S_{1/2}-1s^22s^22p^2\ ^2P_{3/2}$ a été analysée avec Voigt en raison de ses faibles statistiques, ce qui explique l'incertitude dix fois plus élevée.	96
IV.7	Énergie de Ritz mesurée dans le soufre et l'argon boronoïdes.	97

# Financement

Cette thèse a été financée par l'Institut de Physique des Infinis (IPI), grâce à l'appel à Projet 2021. Ce financement imposait la création d'un projet commun entre deux équipes de laboratoires différents. Cette opportunité m'a permis d'être présent à la fois à l'Institut des Nanosciences de Paris (INSP), et au Laboratoire Kastler-Brossel (LKB). Elle a conduit à plus de collaborations entre les équipes, et plus spécialement l'équipe Agrégats et Surface sous Excitation Intense (ASUR) de l'INSP, et l'équipe de Métrologie des Systèmes Simples et Tests Fondamentaux, plus particulièrement l'équipe des Ions Lourds et Atomes Exotiques.

Ce financement par l'IPI m'a permis une grande indépendance grâce à la dotation de thèse de 10 k€. Ce financement a financé l'intégralité de mes participations à diverses conférences et écoles d'été. J'ai également pu participer à une semaine de travail sur la ligne GBAR, afin de mettre en place la chambre expérimentale du projet PAX (antiProtonic Atom X ray spectroscopy) mené par Nancy Paul. J'ai également pu visiter pendant cinq jours l'équipe de François Pajot, au sein de l'Institut de Recherche en Astrophysique et Planétologie, au sein de l'Observatoire Midi-Pyrénées, situé sur le campus Paul-Sabatier à Toulouse.

Ce financement m'est d'autant plus cher puisque l'IPI est soutenu par le LaBEX Plas@Par, qui m'avait permis de me familiariser à la physique des plasmas lors d'une école d'été, en 2018 à Banyuls. Je tiens à remercier l'IPI sans qui cette thèse n'aurait pas été possible, permettant mon épanouissement complet comme doctorant.



# Remerciements

Quelques mots sur une feuille blanche ne peuvent rendre hommage à tous ceux qui m'ont soutenu, pour ne pas dire ceux qui m'ont supporté, pendant ces trois années de thèse.

Ces quelques mots ne peuvent également pas exprimer à quel point je suis redevable à mon trio d'encadrants : Paul Indelicato, Martino Trassinelli et Nancy Paul. Je dois d'abord vous remercier de m'avoir donné une chance, malgré un dossier scolaire moyen. Vous avez passé trois longues années à me tirer vers le haut, à nourrir ma curiosité et à développer mon intérêt pour la métrologie des systèmes atomiques. Mon incapacité à exprimer mon profond respect et mon admiration pour vous, à la fois sur le plan scientifique que personnel, n'est pas le résultat d'une pudeur quelconque. Comme le chantaient Les Inconnus, *Je sais pas comment te dire ce que je peux pas écrire*, et je ne connais aucun dictionnaire pouvant m'aider à décrire ce que vous représentez pour moi. Tout le travail présenté n'aurait jamais pu aboutir sans vous, tant j'en ai souvent été le principal obstacle. Je n'aurais pas pu me sentir mieux parmi vous, tant vous avez abreuvé ma curiosité et tant nous avons partagé l'amour de la bonne cuisine et de la convivialité. Je me vois terminer cette thèse, amer de ne pouvoir être aussi brillant que vous, mais je vous promets de donner tout mon possible pour produire une recherche de haut niveau comme vous le faites, et de continuer la collaboration avec toute l'équipe. Ces trois années parmi vous ont été bien trop courtes. Je tiens aussi à remercier l'équipe ASUR de l'Institut des Nanosciences de Paris, qui m'a soutenu durant les longues heures à manipuler la source et le DCS. Un grand merci à Emily, dont la gentillesse et le sourire sont sans égal. Je tiens également à remercier Stéphane et Christophe, qui m'ont aidé à manipuler la source d'ions SIMPA et qui ont essayé de m'apprendre la patience, avec plus ou moins de mal. Je regrette de ne pas avoir passé plus de temps à manipuler la source (et la réparer lorsque je l'ai cassée par négligence) avec vous.

Aos meus colegas e amigos portugueses. Cada uma das vossas visitas foi um raio de sol na minha tese. Quer fosse no DCS, a beber uma cerveja ou a andar de bicicleta, estavam sempre lá para me apoiar. Sentirei a vossa falta. Muito obrigado a ti, Jorge, Mauro, César e Daniel. E prometo que nunca vou perder o groupchat.

Si j'ai pu trouver cet encadrement d'exception, c'est parce que le Laboratoire Kastler-Brossel offre un environnement de travail, exceptionnel, avec des membres dévoués. J'y ai trouvé des collègues, mais aussi des refuges. Dans les moments de doute, j'ai toujours trouvé quelqu'un pour me soutenir au sein du groupe de métrologie. Parmi eux, je me dois de remercier François Nez, Pauline Yzombar et Lucile Julien, qui ont été des véritables soutiens. Je remercie également Jean-Philippe Karr, Laurent Hilico et Pierre Cladé pour les nombreuses discussions intéressantes autour de sujets aussi divers qu'aléatoires

ont égayé mes pauses-café. Enfin, je remercie Saïda Guelatti pour son soutien, ainsi que d'avoir pris le temps de me donner les avertissements nécessaires sur mon travail, et ce, au moment opportun. Sans ses conseils, ce travail n'aurait pas pu aboutir. Au delà du groupe de Métrologie, j'ai trouvé du soutien dans les groupes d'optique quantique et d'opto-mécanique. Un grand merci à Nicolas Treps et Valentina Parigi de m'avoir traité comme l'un des leurs quand je me joignais à leur groupe pour les repas. Sans les services techniques et administratifs, le déroulement de cette thèse aurait été un calvaire. Vous faites un travail admirable. Merci pour votre efficacité et votre gentillesse.

Je tiens à remercier mes amis du Laboratoire, que je ne peux malheureusement tous citer : David Fainsin, Niels Tripier-Mondancin, Johan Henaff, Elyse Gliott, Marianna d'Amato, Paul Martin, Pierre-Édouard Jacquet, Emile Ferreux, Oscar Bouchet... Je tiens encore plus à remercier ceux qui m'ont permis de finaliser ma thèse, grâce à leur soutien inconditionnel : Gonçalo Baptista, Dunstan Becht, Hugo Nogueira, Maen Salman, Quentin Senetaire et Selin Tutan.

Je tiens également à remercier mes coéquipiers de la section Handball de l'USM Malakoff. Pendant ces trois ans d'entraînement, vous m'avez permis d'oublier mes tracas. Ces trois saisons ont été dures, mais vous êtes restés solidaires. Merci Illyes, François, Pierre-Adrien, Olivier, Étienne, Guillaume... Un grand merci à toi, Greg, toujours là pour me conseiller et me rassurer. Tu es rapidement devenu un ami indispensable, je te souhaite le meilleur. Et surtout, bon courage pour ta thèse.

Je dois également de grands remerciements à mes amis de l'ENS Cachan, qui ont toujours aidé. Un grand merci à Alex, Romain et Gaël, qui me soutiennent depuis la L3. Vous êtes des modèles pour moi. Je souhaite aussi remercier Thomas et Léa, sans qui ces années normaliennes auraient été mornes. J'espère que vous vous épanouissez dans vos vies.

Je me dois également de remercier mes vieux compagnons de route, Vincent, Steven, Arnaud et Blaise. Vous ne m'avez jamais abandonné malgré mes absences prolongées.

Un grand merci à ma famille, qui depuis le plus jeune âge a nourri ma curiosité. À mes grands-parents qui ont toujours prêté attention à mon appétit intellectuel. Une pensée à mes sœurs Julie et Charlotte, à qui je n'ai pas toujours rendu la vie facile. Chacha, je te souhaite le même épanouissement que j'ai connu pour ma thèse. C'est une expérience hors du commun.

Pour conclure ces deux pages un peu déstructurées, mes derniers mots iront pour toi, Aurélie. Bien que je t'affuble le plus souvent de sobriquets idiots, mon attachement à toi est sincère. Merci de m'avoir accompagné pendant ces quatre années. Tu me permets d'être une meilleure version de moi-même. Je t'aime

# Chapitre I

## Introduction

### I.1 État de l'art des étalons en énergie X

Les éléments neutres présentant une lacune dans la couche K, créée par bombardement électronique ou photoionisation, sont utilisés depuis un siècle pour fournir des informations sur la structure atomique, sur la composition de matériaux, ainsi que comme étalons de rayons X. Cependant, même avec une précision élevée, atteignant parfois 1 ppm sur certaines raies [1], cela ne garantit pas que ces étalons puissent être utilisés avec une telle exactitude. La complexité des transitions dans les couches internes des systèmes multiélectroniques introduit des incertitudes significatives. La forme et la position des pics de ces raies dépendent de nombreux facteurs tels que l'énergie d'excitation [2–4], la composition chimique et la contamination de surface de l'échantillon. De plus, les processus de shake-off, les effets Auger [5], Coster-Kronig [6] engendrent de nombreuses transitions satellites proches en énergie de la raie principale, qui ne peuvent pas être résolues individuellement et produisent des formes de raies asymétriques [7–9].

Un autre problème inhérent à l'utilisation de ces raies étalons rayons X est leur largeur naturelle relativement grande, typiquement 10 fois plus importante que la résolution des meilleurs spectromètres à rayons X, rendant ces raies inadaptées pour caractériser la fonction de réponse d'un spectromètre à rayons X [10, 11]. L'ensemble des valeurs expérimentales depuis les années 1920, combinées à des calculs atomiques avancés, a conduit à la publication d'une tabulation complète de tous les étalons de rayons X disponibles [1]. Cependant, puisque le centre de gravité de ces raies mesurées expérimentalement ne peut pas être attribué de manière non ambiguë à une transition physique précise, l'ensemble de ce travail considérable ne permet pas de tester les effets relativistes et d'effectuer des tests de théorie avec une précision suffisante.

Ces dernières années, le besoin d'étalons fiables a encouragé la création de nombreuses bases de données, visant la curation de données (des exemples de méthode de curations de données peuvent être trouvées dans les références [12–15]) et la mise à jour des mesures atomiques. Des exemples de base de données peuvent être trouvées dans les références [16–22]. Ce besoin est d'autant plus motivé par le besoin d'étalons atomiques fiables pour la compréhension des spectres astrophysiques [23–25].

## I.2 Contexte Astrophysique

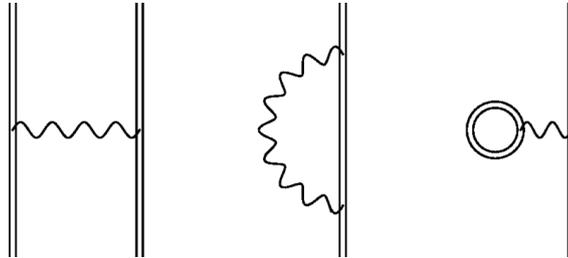
La vaste majorité de l'univers étant ionisée, les rayons X émis par les plasmas stellaires témoignent des événements les plus violents, tels que la production des éléments dans les étoiles, les supernovæ ou encore les fusions d'étoiles à neutrons. Ces thématiques ont conduit à la création de l'étude des rayons X à l'aide de satellites, avec le lancement de UHURU en 1970 [26]. L'observation de ces rayons X cosmiques a valu à Riccardo Giacconi [27] le prix Nobel de 2002, partagé avec Raymond Davis Jr. [28] et Masatoshi Koshiba [29] pour leurs observations des neutrinos solaires. Les quelques systèmes électroniques avec des trous K sont de plus en plus importants pour l'astrophysique, car ils sont témoins des phénomènes les plus violents de l'univers. Ces plasmas sont maintenant fréquemment observés par des spectromètres à rayons X spatiaux, et en particulier par des microcalorimètres à haute résolution (voir e.g., [30]). Une nouvelle ère de spectroscopie de haute précision des plasmas chauds dans l'univers a commencé par le lancement du microcalorimètre à rayons X mous construit dans Hitomi, en 2018 [31]. Cependant, la défaillance du satellite a reporté cette étude de haute précision de l'univers, jusqu'au lancement de XRISM en septembre 2023. La première observation avec ce nouveau satellite du vestige de supernova N132D a déjà été publiée [32, 33]. Les trois éléments les plus intenses observés dans le spectre sont le silicium, le soufre et l'argon. Une bande d'énergie également importante pour l'astrophysique est la bande K du fer (6 keV à 7 keV). En effet, le fer, élément abondant dans l'univers, permet le diagnostic des températures des plasmas astrophysiques [24].

Certaines de ces raies ont été récemment remesurées par Hell, *et al.* [34], à l'aide de pièges à ions à faisceau d'électrons (EBIT) et d'un microcalorimètre, mais la résolution du détecteur et la méthode d'ionisation conduisent toutes deux à des raies non résolues. Dans la partie B de cette thèse, on s'intéresse à une mesure précision de transitions  $n = 2 \rightarrow n = 1$  du soufre et de l'argon à cinq électrons. Cette mesure est d'intérêt astrophysique, permettant de donner un étalon pour les mesures de soufre et d'argon, pour étalonner les spectres astrophysiques. Par exemple, en 2014, un signal non identifié a été détecté à 3.57(3) keV dans des spectres de 73 galaxies [35] par XMM-Newton et à 3.53(3) keV dans d'autres spectres de la galaxie Andromède et de l'amas de galaxie Percée [36]. Un an plus tard, une raie à 3.539(11) keV a été observé dans des données de longue exposition du centre de la Voie lactée. L'hypothèse avancée était une signature de décroissance de matière noire, mais les mesures effectuées à l'aide d'EBIT montrent que cela peut être une série de transitions de soufre très chargées, produites par un mécanisme d'échange de charge [37]. Ce mystère – finalement résolu par la physique atomique – montre la nécessité d'effectuer des mesures dans les ions très chargés, ainsi que des tests théoriques, afin de mieux comprendre la physique atomique et les spectres astrophysiques.

## I.3 Tests de QED

L'électrodynamique quantique (QED) est une théorie des champs quantiques qui décrit les interactions entre les électrons, le noyau et le champ électromagnétique, lequel est quantifié, tout comme les particules massives. Ces interactions sont représentées par des diagrammes élémentaires (voir figure I.1), qui incluent l'échange de photons virtuels

FIG. I.1 Diagramme de Feynman au premier ordre en  $\alpha$ . Ces diagrammes permettent de calculer les corrections d'électrodynamique quantique (QED). De gauche à droite : Interaction électron-électron, self-énergie et polarisation du vide. La double ligne représente un électron lié, dans le champ du noyau.



entre électrons (interaction électron-électron), la self-énergie (émission et réabsorption de photons virtuels par un électron) et la polarisation du vide (création de paires particule-antiparticule dans le champ électrique du noyau) [38]. Ces processus peuvent être combinés pour modéliser des effets de QED à des ordres plus élevés en  $\alpha$ .

Afin de tester la QED, il est possible d'effectuer des mesures précises dans les systèmes atomiques. Pour les systèmes à faible  $Z$ , les corrections de QED sont calculées à l'aide de méthodes perturbatives, avec une double expansion. Tout d'abord, une expansion en  $\alpha$  ( $\alpha \approx \frac{1}{137}$ , appelée constante de structure fine, quantifiant le couplage entre les charges et le champ électromagnétique), laquelle puissance représente l'ordre du processus calculé (i.e., le nombre de diagrammes élémentaires combinés), et d'une seconde expansion en  $Z\alpha$ ,  $Z$  étant la charge du noyau. Pour les systèmes à plus grand  $Z$ , l'expansion perturbative en  $Z\alpha$  n'est plus valable puisque l'hypothèse  $Z\alpha \ll 1$  n'est plus valable, et le calcul est effectué sans expansion en  $Z\alpha$ .

De plus, les différentes contributions ont des comportements différents, l'interaction électron-électron est une fonction de  $Z^3$ , tandis que les corrections à un électron, comme la self-énergie et la polarisation du vide, sont des fonctions de  $Z^4$ . La QED a pu être testée dans l'hydrogène jusqu'au quatrième ordre, grâce à la précision de la spectroscopie laser [39]. Toutefois, pour les systèmes à deux électrons, dont le numéro atomique  $Z$  est faible, les expériences peuvent être beaucoup plus précises, pourtant, les tests de la QED peuvent également être limités, même pour des mesures très précises des transitions vers l'état fondamental de l'hélium [40–42]. Ces limitations sont dues aux grandes magnitudes des corrections liées aux corrélations électroniques et le calcul de l'écrantage du champ du noyau par les électrons [43–47].

À plus haut  $Z$ , la connaissance insuffisante de certains paramètres nucléaires, comme les facteurs de forme et la polarisation [48–51], limitent la précision des calculs atomiques. Toutefois, les incertitudes sur la taille du noyau de l'uranium sont plus faible que les contributions de QED de second ordre [52, 53], permettant des tests d'ordre supérieur, notamment dans les transitions intracouche  $n = 2 \rightarrow n = 2$  [54–56].

## I.4 Mesure des ions très chargés

Afin d'étudier les ions très chargés, il faut les produire et exciter leur cortège électronique. Pour ce faire, l'étude des ions très chargés s'est tout d'abord développée à l'aide de mesures sur accélérateur grâce à l'interaction entre des couches minces et un faisceau d'ions (beam-foil spectroscopy) ainsi qu'à l'aide de sources d'ions [57], ou des plasmas, par exemple, générée par laser [58–60]. La construction du tokamak *Princeton Large Torus* [61] en 1972 et sa mise en route en 1975 a motivé la mesure en laboratoire de nombreuses transitions X dans des ions très chargés (voir les références [62–69] à titre d'exemples). Ces mesures ont été effectuées afin de pouvoir diagnostiquer le plasma, afin d'atteindre la fusion nucléaire. En 1986, la construction de la source d'ion EBIT (Electron Beam Ion Trap) de Livermore [70], dont le design est d'origine russe [71], a permis l'étude des rayons X produits par impact électronique [72, 73].

Les anneaux de stockage d'ions ont également été utilisés [74–79]. Cependant, la spectroscopie de haute précision dans ces mesures est limitée par les effets Doppler, qui affectent les mesures d'énergie et nécessitent une détermination précise de la vitesse des ions et de l'angle d'observation des rayons X émis en vol pour être corrigée, ainsi que par l'élargissement Doppler, qui affecte toute mesure possible de la largeur des raies. Pour résoudre ce problème, la spectroscopie des ions par recul des rayons X [80] et la méthode « accel-decel » [81] ont également été essayées. Des méthodes de spectroscopies utilisant l'effet Doppler dans un anneau de stockage sont présentées en chapitre II.

## I.5 Spectrométrie X

Pour mesurer les transitions X des ions très chargés avec précision, il a été nécessaire de développer des instruments spécialisés. La spectroscopie à cristal a longtemps servi d'outil principal pour établir des étalons en spectroscopie X. Cependant, cette méthode présente des limitations, notamment un faible angle solide couvert par les cristaux et une fenêtre énergétique réduite. Malgré ces inconvénients, les améliorations dans la fabrication de cristaux ultra-purs de germanium et de silicium ont permis d'atteindre des précisions de l'ordre du ppm (voir par exemple [82, 83]). En parallèle, ces cristaux ultra-purs ont conduit à l'essor de détecteurs solides refroidis, plus efficaces et capables de mesurer de larges bandes d'énergie. Les détecteurs SDD (Silicon Drift Detectors), par exemple, offrent une gamme d'énergie allant de quelques centaines d'eV à 30 keV. Les détecteurs à cristal de germanium, quant à eux, peuvent couvrir des énergies allant jusqu'à quelques MeV, avec une résolution plus limitée, de l'ordre de 1 keV pour des photons de 100 keV [84, 85]. Enfin, depuis une trentaine d'années, des détecteurs microcalorimètre sont développés, permettant également de mesurer différentes bandes d'énergie, avec des résolutions bien plus grandes [53]. Par exemple, une résolution de 3.1 eV à une énergie de 6 keV [86]. Ainsi, afin d'effectuer des mesures de précision dans des ions très chargés, j'ai utilisé des spectromètres à cristaux, afin de mesurer des transitions dans l'uranium à deux électrons, ainsi que dans le soufre et l'argon à cinq électrons. Pour l'uranium à deux électrons, les spectromètres à cristal utilisés sont, dans la partie A, un spectromètre en géométrie de Johann [87], et, dans la partie B, un spectromètre à double cristal, permettant d'effectuer des mesures absolues (c'est-à-dire sans référence externe).

## Présentation de la thèse

Ce travail de thèse, mené conjointement au Laboratoire Kastler-Brossel et à l'Institut des Nanosciences de Paris s'est intéressé à la mesure de précision de transitions dans des ions très chargés. Ces mesures ont toutes deux été effectuées à l'aide de spectromètres à cristaux, dont la résolution permet la mesure de précision, afin d'effectuer des tests de QED au second ordre, ainsi que de fournir des étalons en énergie X pour l'astrophysique. Ces deux mesures constituent les deux parties de ce travail, indépendantes entre elles.

Tout d'abord, la partie A s'intéresse à la mesure d'une transition intracouche de l'uranium à deux électrons. Cette transition intracouche  $1s2p\ ^3P_2 \rightarrow 1s2s\ ^3S_1$ , a été mesurée sur un anneau de stockage, situé dans un complexe d'accélérateur à Darmstadt, appelé GSI-FAIR. Cet accélérateur peut produire des faisceaux d'ions lourds, jusqu'à l'uranium nu, à l'aide de la méthode d'ionisation par couche mince (beam-foil spectroscopy). Le faisceau utilisé est un faisceau d'uranium à un électron. À l'aide d'une interaction avec une cible de gaz, le faisceau d'uranium capture un électron. Pour une partie du faisceau, l'électron est capturé dans la couche  $n = 2$ , peuplant ainsi le niveau d'intérêt, permettant l'observation de la transition désirée. La transition est alors observée à l'aide d'un spectromètre de Bragg à bras jumeaux, placé en configuration de Johann. La mesure est étalonnée à l'aide de la raie  $1s^22p\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s\ ^2S_{1/2}$ , produite à l'aide d'un faisceau d'uranium héliumoïde par interaction avec une cible de gaz. J'ai calculé les paramètres du faisceau de l'expérience et analysé les données produites dans l'expérience. Cette mesure, d'une précision de 37 parties par millions, a permis d'effectuer un test de la QED à deux électrons au second ordre.

La partie B de ce travail s'est intéressée à la mesure de transitions  $n = 2 \rightarrow n = 1$  dans le soufre et l'argon à cinq électrons. Les ions ont été produits à l'aide d'une source à résonance électron-cyclotron et les transitions ont été mesurées à l'aide d'un spectromètre à double cristal (Double Cristal Spectrometer). Ce spectromètre permet de mesurer l'énergie absolue de transitions X, dans la gamme d'énergie 2 keV à 5 keV, avec une précision de quelques parties par millions. Les spectres de soufre et d'argon sont complexes, comprenant de multiples contributions. Pour mieux comprendre les transitions présentes dans le spectre, j'ai utilisé des méthodes Bayésiennes, qui m'ont permis de déterminer le nombre de contributions dans chaque pic des spectres. En utilisant à la fois les résultats des calculs théorique et les méthodes Bayésiennes, j'ai pu identifier sept transitions, mesurer leurs largeurs naturelles et leur énergie. La précision obtenue est de 3.8 ppm pour les transitions du soufre et 2.5 ppm pour les transitions de l'argon. Ces mesures précises ont permis de tester la théorie et en particulier le calcul des corrélations électroniques dans la zone où l'augmentation des effets relativistes fait passer du couplage LS au couplage JJ, ce qui change la structure des niveaux. Ce travail permet d'établir de nouveaux étalons d'énergie de rayons X pour les mesures astrophysiques.



Première partie

# Étude de l'Uranium Très Chargé



# Chapitre II

## Étude de l'uranium à deux, trois et quatre électrons

### II.1 Introduction

L'étude des systèmes atomiques simples permet des tests précis de la QED, car la réduction du nombre d'électrons diminue l'incertitude liée à la corrélation électronique. Dans le cas des ions lourds, les champs électriques intenses amplifient les contributions de la QED, permettant d'explorer la théorie en champ fort.

Les mesures de transitions atomiques dans les ions lourds à quelques électrons ont conduit à des avancées théoriques importantes. En effet, les calculs perturbatifs en  $Z\alpha$  ( $Z$  étant le numéro atomique et  $\alpha$  la constante de structure fine) ne sont plus valables lorsque  $Z$  est trop grand, ce qui a permis le développement de calculs de corrections de QED sans approximation, comme la correction radiative à deux électrons [55, 88–93]. Les comparaisons expérimentales ont permis de tester les corrections de QED au premier ordre [54, 93–95].

Toutefois, les corrections de QED au second ordre, d'ordre de magnitude  $\frac{\alpha}{\pi} \approx 2.3 \times 10^{-3}$  plus petite que les corrections du premier ordre, deviennent plus petites que les incertitudes liées à la taille finie du noyau pour les ions les plus lourds [55, 96–102]. En étudiant le noyau le plus lourd dont la correction liée à la taille finie du noyau est plus petite que les corrections de QED au second ordre pour les transitions héliumoïdes  $\Delta n = 0$ , à savoir l'uranium [53], il est possible de tester les corrections au second ordre. De plus, en comparant l'énergie de la même transition entre l'uranium héliumoïde et lithiumoïde, ainsi que l'uranium lithiumoïde et bérylliumoïde, il est possible de tester plus particulièrement la contribution à l'énergie de la correction radiative à deux électrons. En effet, la transition  $1s^2 2p \ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^2 2s \ ^2S_{1/2}$  de l'uranium lithiumoïde a été mesurée précisément [94]. En mesurant la différence d'énergie entre la transition intra couche de l'uranium héliumoïde avec l'uranium lithiumoïde, il est possible d'obtenir une mesure précise de la transition  $1s 2p \ ^3P_2 \rightarrow 1s 2s \ ^3S_1$ , ainsi que l'énergie du niveau  $1s 2s \ ^1S_1$ , grâce à la mesure de transitions  $n = 2 \rightarrow n = 1$  [103, 104]. Les contributions à l'énergie de la transition sont montrées en figure II.1 et les énergies théoriques des transitions de chaque état de charge étudié sont montrées en table II.1.

FIG. II.1 Sensibilité expérimentale aux contributions théoriques. Contributions théoriques à la transition intracouche  $1s_{1/2}2p_{3/2} J = 2 \rightarrow 1s_{1/2}2s_{1/2} J = 1$  de l'uranium héliumoïde (a), à la différence d'énergie entre les transitions héliumoïdes et lithiuoïdes (b) et la différence d'énergie entre les transitions lithiuoïdes et béryllumoïdes (c). Pour (b) et (c), la barre bleue inclue également les contributions QED non radiatives. Certains des diagrammes de Feynman correspondants sont également représentés. Les labels 1e et 2e représentent respectivement les contributions d'un et de deux électrons. Figure et légende adaptées de la réf. [56] © nature.com 2024.

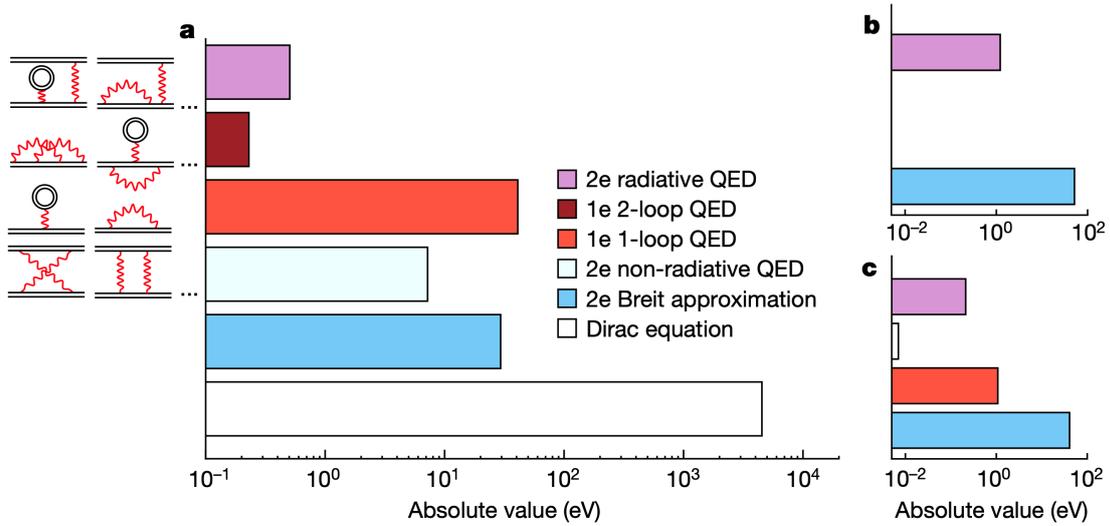


TABLE II.1 – Énergie théorique des transitions intracouche des différents états de charge de l'uranium étudiés dans ce travail. Valeur de la référence [56].

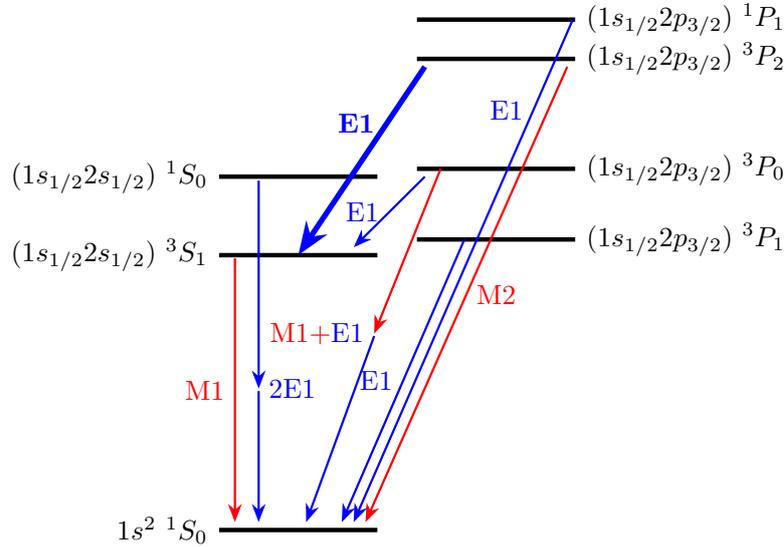
Transition	Énergie
He-like $1s2p \ ^3P_2 \rightarrow 1s2s \ ^3S_1$	4509.716(107) eV
Li-like $1s^22p \ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s \ ^2S_{1/2}$	4459.805(172) eV
Be-like $1s^22s2p \ ^1P_1 \rightarrow 1s^22s^2 \ ^1S_0$	4501.853(124) eV

Enfin, l'étude de la structure électronique de la couche  $n = 2$  des ions héliumoïdes est particulièrement importante pour la recherche de violations de parité atomique [105, 106]. Cet effet serait amplifié par la proximité des niveaux de parité différente, tels que  $1s2p \ ^3P_0$  et  $1s2s \ ^1S_0$ , dont le croisement est prévu pour des ions entre  $Z = 66$  et  $Z = 92$  [107], comme illustré en figure II.2.

La mesure de la transition  $1s2p \ ^3P_2 \rightarrow 1s2s \ ^3S_1$ , a déjà été effectuée en 2007 [54], la précision obtenue (0.99 eV) n'était pas suffisante pour effectuer un test de QED.

Le but de cette expérience est de mesurer la transition  $1s2p \ ^3P_2 \rightarrow 1s2s \ ^3S_1$  de l'uranium à deux électrons. Pour ce faire, nous devons utiliser une source d'ion permet-

FIG. II.2 Diagramme de niveaux partiel de l'uranium héliumoïde ainsi que la décroissance majoritaire. La transition étudiée est indiquée en gras.



tant de produire de l'uranium à deux électrons. De plus, afin de pouvoir comparer avec précision l'énergie de la transition de l'uranium héliumoïde, on a besoin d'une bonne référence ainsi qu'une méthode de mesure d'énergie différentielle. Afin d'effectuer une mesure différentielle de précision, la spectroscopie cristal est adaptée. Pour la référence, comme la transition  $1s^2 2p \ ^2P_{1/2}$  de l'uranium lithiuoïde a été mesurée avec une précision de 0.21 eV [94], incertitude plus faible que la contribution à deux boucles de la QED à un électron, elle permet son utilisation comme référence. Or, l'énergie de cette transition diffère de 50 eV de la transition de l'uranium héliumoïde, différence trop grande pour la mesure avec un cristal. En effectuant la mesure à l'aide d'un accélérateur, il est possible de changer l'énergie du photon émis avec un angle  $\theta_{lab}$  dans le référentiel du laboratoire, donné par la relation :

$$E_{laboratoire} = \frac{E_{transition}}{\gamma (1 + \beta \cos(\theta_{lab}))}, \quad (II.1)$$

avec  $\gamma$  le facteur de Lorentz de l'ion,  $\beta$  la vitesse de l'ion et  $E_{transition}$  l'énergie de la transition. À l'aide d'un anneau de stockage, il est possible ainsi de régler l'énergie dans le référentiel du laboratoire de toutes les transitions mesurées. Pour ce faire, l'expérience (appelée E125) a été menée au GSI-FAIR à Darmstadt.

Dans ce chapitre, je décrirai tout d'abord le dispositif expérimental, puis je présenterai une analyse des données, ainsi que les résultats et leurs conséquences sur la théorie atomique.

## II.2 Dispositif expérimental

Dans cette section, je décris les détails expérimentaux de l'expérience E125. Je commencerai par décrire le complexe d'accélérateur du GSI-FAIR, de la méthode de production des ions très chargés ainsi que l'anneau de stockage où s'est déroulée l'expérience.

Je poursuis par la description du double spectromètre ainsi que du moyen de production de l'uranium excité. Je décris également le rôle essentiel de l'effet Doppler, puis des calculs préparatoires que j'ai effectués afin de prévoir la forme des transitions sur le CCD (Charged Coupled Device). Je décris également une mesure parallèle de l'uranium à trois et quatre électrons et enfin le déroulement de la prise de données.

### II.2.1 La ligne d'accélérateur

Le complexe GSI-FAIR de Darmstadt dispose de plusieurs sources d'ions qui utilisent des techniques variées en fonction du type d'ion à produire. Pour générer des ions d'uranium, on utilise une source d'ions Vacuum ARc Ions Source (VARIS) [108] qui crée des arcs électriques pour arracher des ions d'un solide, produisant dans notre cas des ions d'uranium. Cette source d'ions est une source d'ions pulsée de fréquence 1 Hz. Les ions pulsés, ayant une charge de  $4+$ , sont ensuite injectés dans l'accélérateur linéaire UNILAC [109]. Le courant d'ions produit peut aller jusqu'à 15 mA. Après avoir traversé plusieurs cibles de gaz [110], les ions sont ionisés, par passage dans une couche mince métallique (e.g., béryllium, cuivre), située entre l'accélérateur linéaire universel (UNIversal Linear ACcelerator, UNILAC) et le synchrotron SIS18 [111]. Les paquets d'ions sont alors accumulés dans l'accélérateur, afin d'avoir suffisamment de particules pour l'expérience ( $\approx 10^{10}$  particules). À ce stade, les ions uranium de charge  $73+$  sont sélectionnés à l'aide d'un aimant (appelé kicker), injectés dans l'anneau et accélérés dans le SIS18 (SchwerIonenSynchrotron, synchrotron à ions lourds) jusqu'à une énergie de 300 MeV/u. Ils sont convertis en uranium à quelques électrons avec une autre feuille mince dans la ligne de faisceau reliant SIS18 à l'ESR, et leur état de charge est sélectionné à l'aide de dipôles. Enfin, ces ions sont injectés dans l'anneau de stockage ESR (Experimental Storage Ring [112–114]), pour être préparés, c'est-à-dire décélérés et refroidis, pour la mesure. Le cycle de l'accélérateur était environ de deux minutes. La ligne d'accélérateur est illustrée en figure II.3.

Pour pouvoir effectuer une mesure précise, il est important de limiter l'élargissement Doppler, dû à la vitesse transverse des ions stockés dans l'anneau. Pour ce faire, l'ESR (voir figure II.4) est muni de deux types de refroidissements : le refroidissement stochastique et le refroidissement à électron [113]. Le refroidissement stochastique [39, 115] permet de refroidir le faisceau, grâce à un capteur mesurant la vitesse transverse moyenne. Un signal de correction est alors envoyé à chaque passage du faisceau, profitant de sa vitesse plus rapide, afin de diminuer pas-à-pas la dispersion du faisceau. Le refroidissement à électron utilise l'interaction entre des ions et un faisceau d'électrons froids, dont la vitesse est la même que les ions du faisceau. Lors de l'interaction, le faisceau d'ion se thermalise avec les électrons, ce qui permet de fortement diminuer leur température transverse. Ces refroidissements permettent d'atteindre des températures de l'ordre de  $\frac{\delta p}{p} \approx 10^{-5}$  [113].

Le refroidissement du faisceau se fait en alternance avec des phases de décélération, qui ont pour particularité de dégrader fortement le faisceau, en forme, dispersion transverse, et en dispersion de vitesse. Ces processus entraînent la perte d'ions stockés dans l'anneau (environ 20 %), d'où l'importance d'avoir un maximum d'ions injectés dans l'anneau. Le cycle de l'ESR est montré en figure II.5.

Afin de pouvoir produire des états excités, il est possible d'utiliser le refroidissement à électron pour effectuer des collisions électrons ions. Toutefois, l'installation du spectromètre est incompatible avec l'utilisation du refroidisseur à électron. L'ESR est également

FIG. II.3 Complexe d'accélérateurs du GSI-FAIR de Darmstadt, avec l'accélérateur linéaire (UNILAC), le synchrotron pour le stockage des ions (SIS18), et l'anneau de stockage (ESR) où l'expérience a eu lieu. Le second anneau de stockage (CRYRING) pour les expériences de physique est également indiqué.

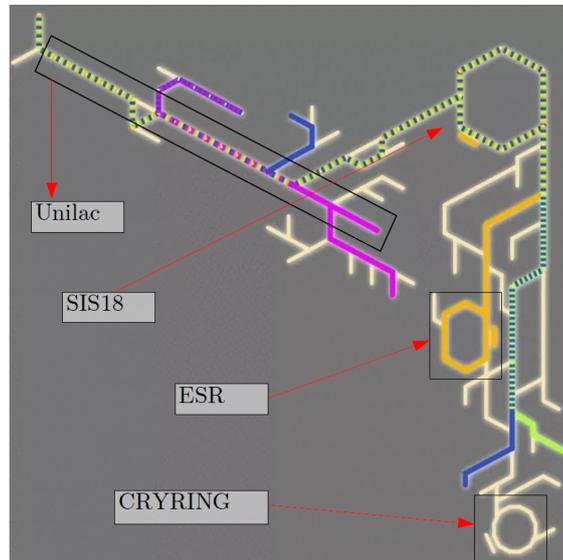
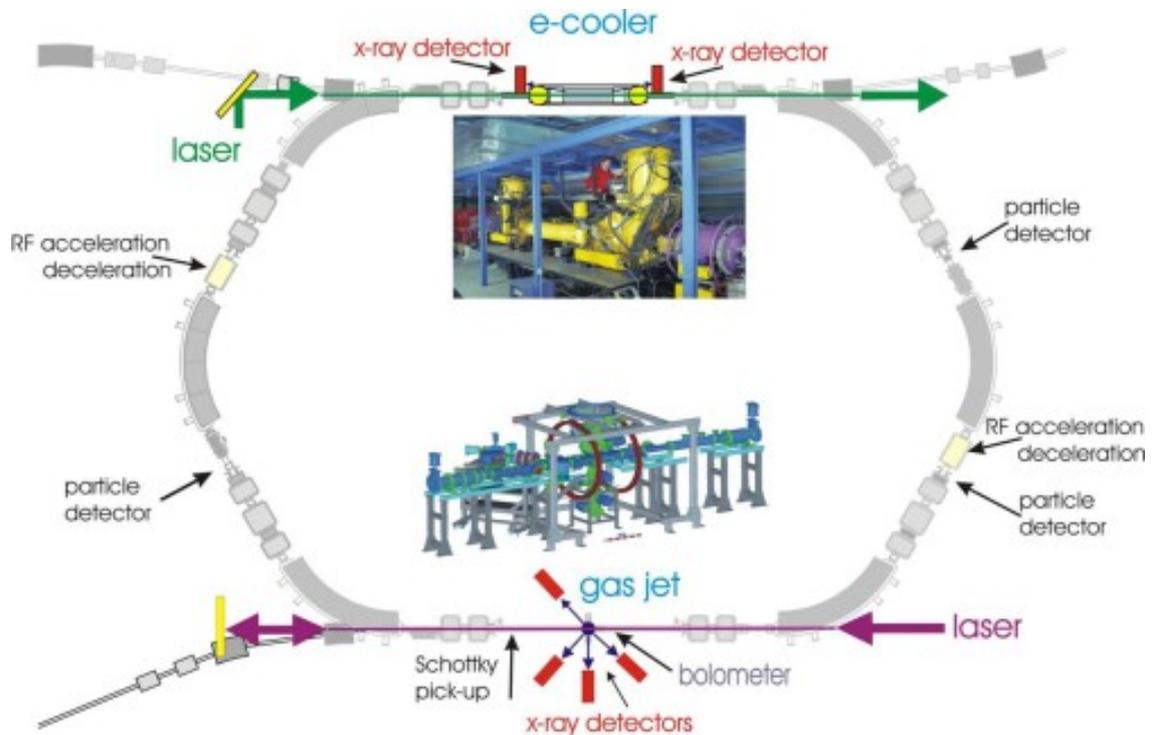
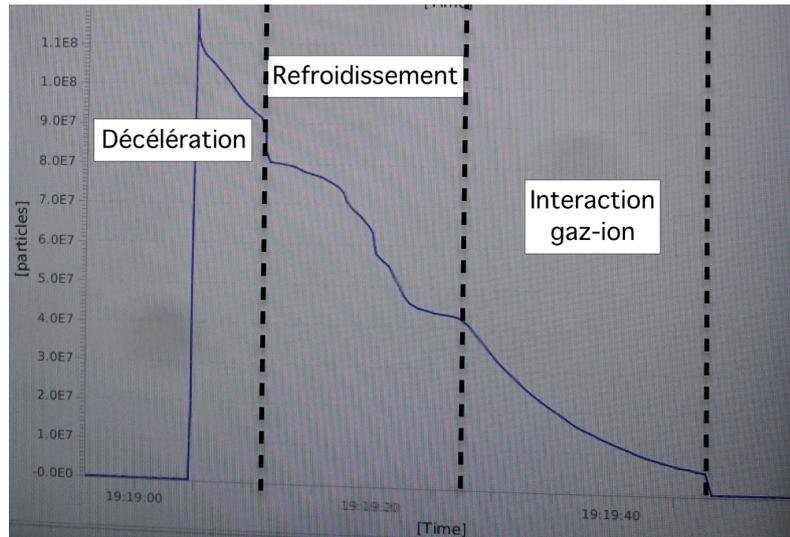


FIG. II.4 Schéma de l'ESR, avec ses différents composants, points d'interactions et expériences possibles. Image issue de la page web de l'ESR [116].



muni d'un jet de gaz froid et supersonique [117], permettant d'effectuer des excitations électroniques ou des captures électroniques depuis un gaz. Le détail de l'ESR est montré en figure II.4. Au niveau de cette cible de gaz, un double spectromètre de Bragg est installé, chaque bras étant composé d'un cristal et d'un CCD. Les spectromètres sont présentés dans la section suivante.

FIG. II.5 Nombre d'ions stockés dans l'ESR lors d'un cycle de mesure.



Un détecteur au germanium, installé à  $35^\circ$  par rapport à la direction du faisceau, permet de vérifier la bonne interaction entre le faisceau et la cible de gaz (voir section II.2.3). Ces détecteurs possèdent une bande d'énergie plus large (de quelques keV à 1 MeV) que la spectroscopie cristal, avec une résolution moins bonne (de l'ordre de 100 eV à 5 keV). De plus, ces détecteurs permettront de déterminer d'éventuels contaminants.

Plus loin dans l'anneau, au niveau du premier aimant de courbure, se trouve un détecteur de particules. Ce détecteur permet la mesure directe du nombre de particules ayant capturé un seul électron pendant l'interaction avec le gaz. Ce détecteur peut être utilisé en coïncidence pour diminuer le bruit dans les détecteurs de photons.

## II.2.2 Les spectromètres de Bragg à Bras Jumeaux

Le spectromètre utilisé est un double spectromètre, appelé le spectromètre de Bragg à bras jumeaux. En effet, il est composé de deux bras identiques, avec un cristal de germanium et un CCD à son bout. La mesure de l'énergie repose sur la diffraction de Bragg [118]. Les rayons X ont une longueur d'onde de l'ordre de grandeur de la distance interatomique. Il y a alors une possibilité d'une diffraction à l'aide des plans cristallins dont l'angle dépend directement de l'énergie du photon.

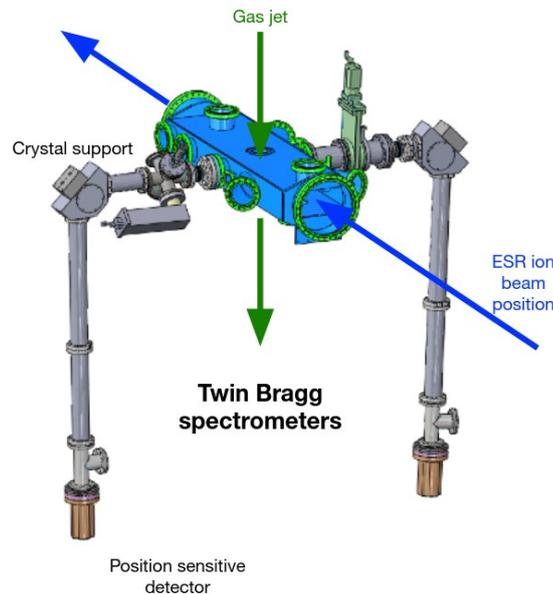
La relation de dispersion de Bragg est donnée par :

$$2d \sin \theta = n\lambda, \quad (\text{II.2})$$

avec  $\lambda$  la longueur d'onde du photon incident,  $n$  l'ordre de la diffraction,  $\theta$  l'angle de Bragg et  $d$  la distance interréticulaire du cristal.

Le spectromètre, utilisant un cristal sphérique, est installé en géométrie de Johann [87, 119]. Les cristaux sphériques ont la propriété de focaliser tous les points du cercle tangent de rayon égal à la moitié de son rayon de courbure, cercle appelé le cercle de Rowland. Cette géométrie, agissant comme un miroir concave focalisant, est donc particulièrement adaptée à l'étude des sources étendues. Le capteur CCD est placé perpendiculairement au plan de diffraction afin de mesurer l'angle de Bragg des raies étudiées. Les cristaux sont orientés d'un angle de  $45.85^\circ$  par rapport au plan normal à la propagation du faisceau, ce qui correspond à l'angle de Bragg de la réflexion au second ordre des transitions  $K_\alpha$  d'une énergie de 8638.51 eV du zinc, produits à l'aide d'un tube à rayons X pour calibrer le spectromètre. Pour une réflexion au premier ordre, l'énergie correspondante est de 4319.46 eV. Un schéma du spectromètre est montré en figure II.6.

FIG. II.6 Schéma du spectromètre et du point d'interaction [Trassinelli 2021, communication privée]



La mesure est effectuée à l'aide d'un accélérateur, avec des ions en mouvement. Les énergies des photons produits sont alors décalés, par effet Doppler. L'énergie observée dépend de l'angle d'observation dans le laboratoire (voir équation (II.1)). Afin de limiter l'effet Doppler, deux spectromètres sont alignés et placés perpendiculairement au faisceau. Toutefois, les cristaux n'étant pas ponctuels, l'énergie observée à l'aide des spectromètres est décalée, en fonction de l'angle d'observation. Deux spectromètres sont utilisés pour pouvoir limiter les incertitudes en couplant les mesures. Ainsi, si les spectromètres ne sont pas exactement perpendiculaires au faisceau, la moyenne des énergies observées sera égale à l'énergie des photons émis à  $90^\circ$ , sans effet Doppler. La vitesse des ions est adaptée afin de correspondre à l'énergie de référence de cette source. La calibration à l'aide d'une transition d'énergie proche de la transition héliumoïde de l'uranium permet de diminuer l'incertitude liée à l'effet Doppler, puisque les deux raies ont un angle (dû au décalage Doppler, comme mentionné avant) proche. Ici, la transition  $1s^2 2p^2 P_{3/2} \rightarrow 1s^2 2s^2 S_{1/2}$  de

l'uranium lithiomoïde est un candidat idéal. L'énergie des transitions est mesurée par la mesure de l'angle de Bragg des photons produits, en la comparant à la position de la calibration, grâce à la position des photons sur le capteur CCD. Chaque bras possède un CCD différent, le premier de la marque *Andor*, le second de la marque *Great Eyes*.

### II.2.3 Production des raies spectrales

Lorsque le faisceau d'uranium arrive dans l'ESR, il a été ionisé plusieurs dizaines de secondes plus tôt. Ce temps est très supérieur au temps de désexcitation électronique : le faisceau est composé uniquement d'uranium dans l'état fondamental. Pour pouvoir étudier des ions uraniums excités, il faut donc pouvoir exciter le paquet d'ion proche du dispositif de mesure. Comme le faisceau doit avoir une énergie d'environ 40 MeV/u, le processus le plus favorable pour ce but est la capture électronique. Ainsi, pour obtenir des transitions des ions  $U^{+q}$ , le faisceau doit être un faisceau d'ions  $U^{+(q+1)}$ . Il entre en collision avec la cible gazeuse, produisant un ion  $U^{+q}$ , dans un état excité. Ces ions excités émettent ensuite des photons lorsqu'ils retournent à leur état fondamental, produisant des raies spectrales caractéristiques.

Il est également possible de créer des états excités par des collisions directes entre les électrons des ions  $U^{+q}$  et les atomes du gaz cible. Cependant, cette méthode est moins efficace que la capture électronique. Néanmoins, cette technique permet d'étudier des raies proches de deux états d'ionisation qui diffèrent uniquement par un seul électron. Cela ouvre la voie à l'étude simultanée de deux espèces ioniques, comme l'uranium avec trois électrons et l'uranium avec quatre électrons. Cette mesure, utilisant un faisceau d'une vitesse unique, permet de mesurer deux transitions, dont le décalage Doppler est constant en fonction de l'angle d'observation, qui permet de limiter les incertitudes liées aux énergies du faisceau. Par exemple, en utilisant l'excitation électronique pour les ions d'uranium à trois électrons et la capture électronique pour ceux à quatre électrons, il est possible d'étudier deux transitions différentes simultanément. L'une correspond à la transition  $1s^2 2p^2 P_{3/2} \rightarrow 1s^2 2s^2 S_{1/2}$  de l'uranium lithiomoïde (à trois électrons) et l'autre à la transition  $1s^2 2s 2p^1 P_1 \rightarrow 1s^2 2s^2 S_0$  de l'uranium béryllioïde (à quatre électrons).

### II.2.4 Effet Doppler relativiste

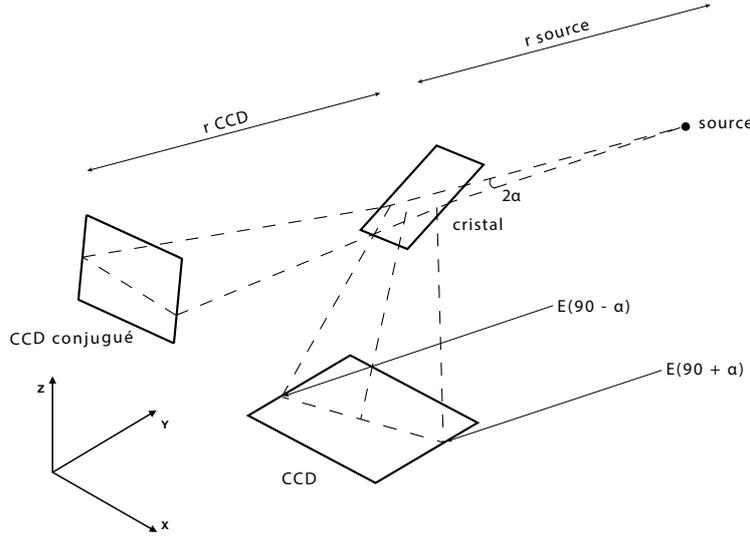
Dans cette partie, je décris les calculs que j'ai menés afin de comprendre quelle sera la position des transitions étudiées sur le capteur CCD, et de l'effet du décalage Doppler sur la mesure de l'énergie.

L'une des clés de voûte de cette expérience est l'effet Doppler relativiste. Une des difficultés des spectromètres de Bragg est leur faible fenêtre de balayage en énergie (75 eV visibles sur les CCD pour une diffraction au premier ordre). Cet effet est utilisé afin de changer l'énergie observée dans le référentiel du laboratoire des transitions mesurées afin que l'angle de Bragg des photons observés corresponde à l'angle de Bragg des photons issus de l'étalonnage du tube à rayons X. L'utilisation d'une seconde calibration mobile est importante, afin de s'assurer que l'angle d'observation est correct.

Pour rappel, l'effet Doppler dans le repère du laboratoire est donné par :

$$E_{\text{laboratoire}} = \frac{E_{\text{transition}}}{\gamma (1 + \beta \cos(\theta_{\text{lab}}))} \quad (\text{II.3})$$

FIG. II.7 Schéma du spectromètre. Deux rayons venant de la source sont représentés. Ils sont décalés, par effet Doppler, et diffractent sur le cristal, jusqu'au CCD. Leur angle de diffraction diffère à cause de la différence d'énergie due à l'effet Doppler.



Ce qui donne à  $90^\circ$  :

$$E_{\text{laboratoire}} = \frac{E_{\text{transition}}}{\gamma}$$

Or, la grandeur  $\gamma$  vérifie  $1 \leq \gamma$ . Ainsi, on a  $E_{\text{laboratoire}} \leq E_{\text{transition}}$ . On a donc la possibilité de diminuer l'énergie observée dans le laboratoire afin de pouvoir l'ajuster sur la raie de calibration dans la fenêtre d'énergie visible du spectromètre [120]. Avec ceci, on peut déduire la vitesse nécessaire aux ions afin d'ajuster l'énergie de transition sur la calibration. Comme la diffraction de Bragg de la calibration est du 2<sup>ème</sup> ordre et que la transition observée est du premier ordre, les photons possèdent le même angle de Bragg avec une énergie différente ( $E_{\text{calibration}} = 2E_{\text{reference}}$ ). On souhaite donc avoir  $E_{\text{laboratoire}} = \frac{E_{\text{calibration}}}{2}$ . On obtient alors  $\gamma$  avec la relation :

$$\gamma = \frac{2E_{\text{transition}}}{E_{\text{calibration}}}$$

On en déduit le coefficient  $\beta = \frac{v}{c}$  et l'énergie par nucléon<sup>1</sup> du faisceau par :

$$\begin{aligned} \beta &= \sqrt{1 - \frac{1}{\gamma^2}} \\ E_{\text{faisceau}} &= m_{\text{nucléon}}(\gamma - 1) \end{aligned} \quad (\text{II.4})$$

avec  $\gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - (\frac{v}{c})^2}}$

1. la masse du nucléon est définie par  $\frac{M}{A}$  avec M la masse de l'uranium et A le nombre de nucléons.  $m_{\text{nucléon}} = 931,494013 \text{ MeV}/c^2$  [121]

Ces relations nous permettent d'obtenir les réglages nécessaires afin de pouvoir observer toutes les raies :

TABLE II.2 – Énergies de transitions expérimentales, facteur de Lorentz, vitesse réduite et énergie du faisceau afin de pouvoir observer la transition dans le spectromètre. Ici  $E_{\text{transition}} = 8638.51 \text{ eV}$  [1] et  $m_{\text{nucleon}} = 931.494 \text{ MeV}/c^2$

Espèce	$E_{\text{transition}}$ (eV)	$\gamma$	$\beta$	Énergie du faisceau (MeV/u)
Héliumoïde [54]	4509,80(99)	1,04407	0,287462	41,04
Lithiumoïde [94]	4459,37(27)	1,03239	0,248533	30,16
Bérylliumoïde [94]	4501,72(21)	1,04220	0,281671	39,29

Les bras sont disposés à  $90^\circ$  du faisceau, ce qui, en principe, donne un effet Doppler lié à l'angle d'observation nul. Or, les cristaux ne sont pas ponctuels, ce qui permet d'observer des photons décalés en énergie par effet Doppler. Pour un faisceau relativiste, le déplacement Doppler dans le référentiel du laboratoire est donné par l'équation (II.3). On peut alors calculer, en prenant en compte la taille du CCD, l'énergie des faisceaux arrivants sur le capteur CCD et, de ce fait, l'angle de la raie sur le capteur CCD comme schématisé sur la figure II.7.

Considérons un photon émis par la source en  $\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}_{(x,y,z)}$ , avec un angle  $\theta_0$  selon  $\begin{pmatrix} \cos(\theta_0) \\ \sin(\theta_0) \\ 0 \end{pmatrix}_{(x,y,z)}$ . Il arrive sur le cristal à la position  $\begin{pmatrix} r_{\text{source}} \cos(\theta_0) \\ r_{\text{source}} \sin(\theta_0) \\ 0 \end{pmatrix}_{(x,y,z)}$ .

Le cristal dévie alors le photon d'un angle  $\theta_b$  correspondant à son angle de Bragg, et  $\theta_{\text{ref}}$  l'angle de la référence :  $\begin{pmatrix} \sin(\theta_b - \theta_{\text{ref}}) \\ 0 \\ \cos(\theta_b - \theta_{\text{ref}}) \end{pmatrix}_{(x,y,z)}$ .

Le photon arrive donc sur le CCD en position  $\begin{pmatrix} r_{\text{source}} \cos(\theta_0) + r_{\text{CCD}} \sin(\theta_b - \theta_{\text{ref}}) \\ (r_{\text{source}} + r_{\text{CCD}}) \sin(\theta_0) \\ r_{\text{CCD}} \cos(\theta_b - \theta_{\text{ref}}) \end{pmatrix}_{(x,y,z)}$ .

Le centre de la CCD est placé en  $\begin{pmatrix} r_{\text{source}} \\ 0 \\ r_{\text{CCD}} \end{pmatrix}_{(x,y,z)}$  (cf. figure II.7), perpendiculairement au faisceau de calibration.

En redéfinissant les axes par projection sur le CCD, avec  $\theta_{\text{ref}}$  l'angle de Bragg de l'énergie de référence et  $\theta_b$  l'angle de Bragg du photon, le photon arrive sur la position :

$$\begin{pmatrix} \Delta x \\ \Delta z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} r_{\text{CCD}} \tan(\theta_b - \theta_{\text{ref}}) \\ (r_{\text{source}} + r_{\text{CCD}}) \cot(\theta_0) \end{pmatrix} \quad (\text{II.5})$$

On obtient alors une expression dépendant uniquement de  $\theta_0$ . On peut alors calculer

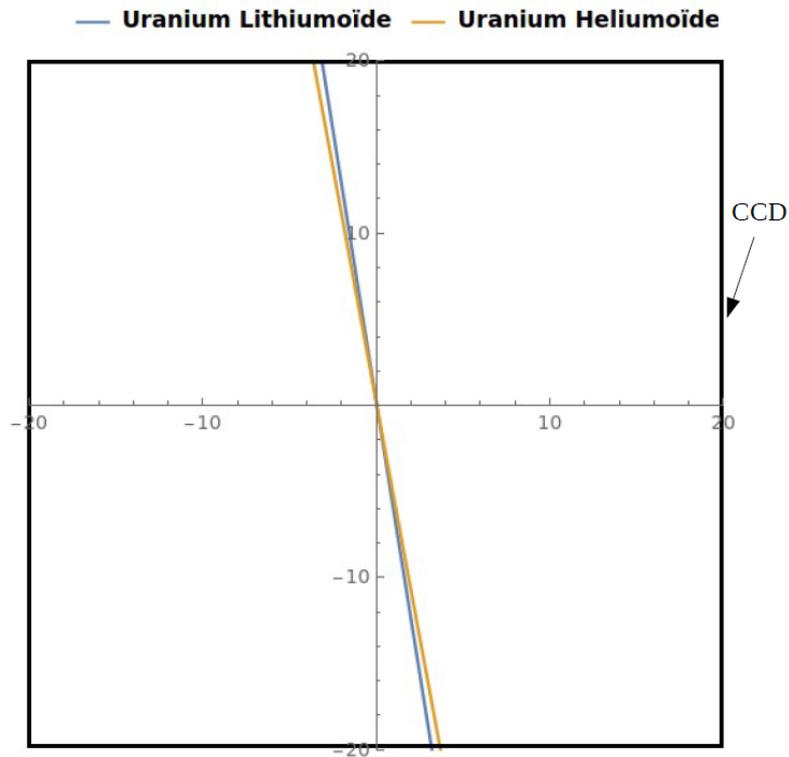
l'angle de la raie par rapport à l'angle de référence :

$$\alpha(\theta_0) = \operatorname{arccot} \left( \frac{\Delta x(\theta_0)}{\Delta z(\theta_0)} \right).$$

Comme  $\Delta z(0) = \Delta x(0) = 0$  l'angle sur le CCD est donné par la fonction :

$$\tilde{\alpha}(\theta_0) = \operatorname{arccot} \left( \frac{\Delta x(\theta_0) - \Delta x(-\theta_0)}{\Delta z(\theta_0) - \Delta z(-\theta_0)} \right).$$

FIG. II.8 Position théorique de la raie sur le CCD, pour la raie d'uranium lithiuoïde et la raie d'uranium héliumoïde. La position de la raie de calibration est donnée par l'axe  $x = 0$ . Les axes sont ceux du CCD, avec des axes en mm.



L'équation (II.5) permet à l'aide d'un tracé paramétrique d'obtenir la position des raies sur le CCD, comme présenté dans la figure II.8. Les énergies des faisceaux sont ajustées pour centrer les raies sur le CCD. Les angles théoriques de chaque raie sont donnés dans la table II.3 :

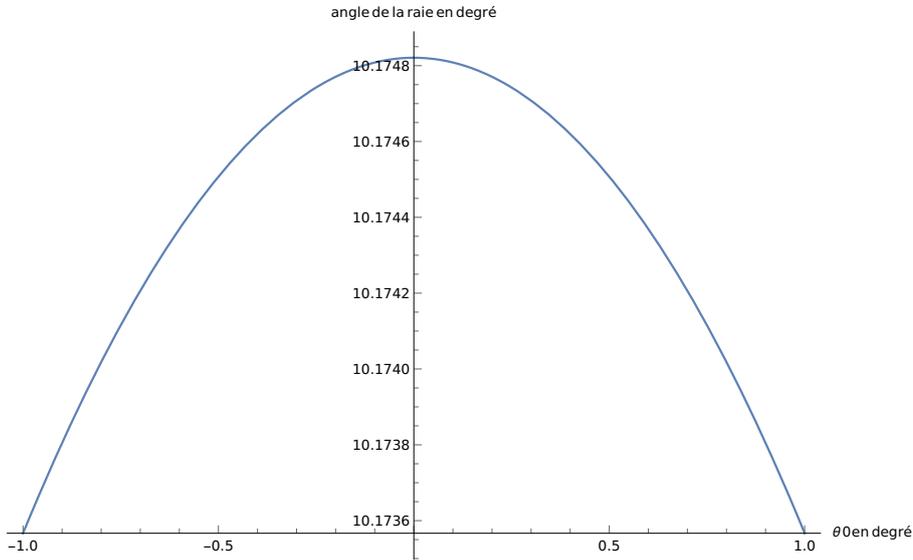
L'angle de la tangente à la raie est considéré constant sur tout le CCD, car l'angle d'ouverture du cristal est faible (de l'ordre de  $2^\circ$ ), comme on peut le constater sur la figure II.9.

### II.2.5 Taux de production

Pour évaluer le taux de production de photons et comparer les différentes méthodes de création des états étudiés, il est essentiel d'estimer ce taux afin de distinguer le signal du

TABLE II.3 – Angle de la raie sur le CCD en fonction de l'énergie du faisceau et de l'espèce mesurée

Espèce	Énergie du faisceau (MeV/u)	Angle (°)
Berylliumoïde	39.29	10.17
Lithiumoïde	30.16	8.83
Héliumoïde	41.04	10.42

FIG. II.9 Angle de la tangente à la raie en fonction de l'angle incident ( $\theta_0$ ) depuis la source. La valeur de l'angle varie d'environ  $0.001^\circ$  sur la totalité du CCD, ce qui est en dessous de notre sensibilité.

bruit. Dans cette sous-section, je décris le calcul que j'ai effectué afin d'estimer les taux de production des transitions, afin de vérifier la faisabilité de l'expérience. Le problème peut être modélisé en considérant un faisceau de particules circulant dans l'anneau de stockage, entrant en collision avec une cible de gaz à une fréquence déterminée.

Le taux de production de photons est exprimé par l'équation suivante :

$$\tau = \sigma \times \rho_{\text{gaz}} \times N_{\text{atomes}} \times \nu_{\text{atomes}},$$

avec  $\sigma$  la section efficace du processus,  $\rho_{\text{gaz}}$  l'épaisseur de la cible gazeuse,  $N_{\text{atomes}}$  le nombre d'atomes dans le faisceau, et  $\nu_{\text{atomes}}$  la fréquence à laquelle les atomes traversent l'anneau de stockage. Les ordres de grandeur typiques sont :  $\nu_{\text{atomes}} \approx 2 \text{ MHz}$ , et  $\rho_{\text{gaz}} \approx 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ . Pour maximiser le taux de photons mesurés, il faut choisir le processus avec la plus grande section efficace. Les sections efficaces des différents processus d'intérêt<sup>2</sup> [122–124] sont indiquées dans la table II.4. L'argon a été rejeté de l'expérience afin de ne pas détériorer le vide au sein de l'anneau de stockage.

2. Alexandre Gumberidze, communication privée

TABLE II.4 – Estimations de sections efficaces et des taux de production par collision ion-gaz. [122–124]

Processus	Énergies	Sections efficaces kbarn		Taux (s <sup>-1</sup> )
		Gaz	N <sub>2</sub>	Ar
Capture Électronique U <sup>90+</sup>	40 MeV/u	115	2438	1.0 × 10 <sup>6</sup>
Excitation Électronique 2s → 2p U <sup>89+</sup>	30 MeV/u	24	60	2.1 × 10 <sup>5</sup>

Si l'on considère le gaz et le faisceau d'ions comme des distributions gaussiennes, les sections efficaces sont magnifiées d'un facteur égal à l'intégrale du produit de convolution des distributions. En considérant le jet de gaz d'une taille de 5 mm et le faisceau d'uranium de 2 mm, on obtient un facteur de 4.43, donnant un taux de production par capture électronique sur le diazote de  $\approx 4.5 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ . L'angle solide de l'expérience étant de l'ordre de  $10^{-6}$ , cela signifie que lorsque le faisceau interagit avec le gaz, on s'attend à mesurer quatre photons par seconde d'interaction, statistique suffisante pour la mesure par capture électronique.

### II.2.6 Mesure parallèle de l'uranium lithiumoïde et l'uranium bérylliumoïde

Le cristal utilisé lors de l'expérience de 2007 [54, 120] avait une réflectivité non uniforme. De nouveaux cristaux ont été produits pour cette nouvelle expérience, et leur réflectivité a été grandement augmentée. Cette amélioration permet d'envisager une mesure plus précise. Les raies  $1s^2 2p \ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^2 2s \ ^2S_{1/2}$  de l'uranium lithiumoïde et  $1s^2 2s 2p \ ^1P_1 \rightarrow 1s^2 2s^2 \ ^1S_0$  de l'uranium bérylliumoïde sont proches en énergie, ce qui permet de les observer simultanément sur les CCD. Cette possibilité, bien que non effectuée à cause des problèmes d'accélérateur, a été préparée.

On souhaite régler l'énergie du faisceau pour que la position moyenne des deux raies soit au centre du capteur CCD. Comme leur écart en énergie est faible, leurs angles de Bragg diffèrent peu. On considère alors que le faisceau doit être réglé en énergie à la moyenne en énergie des deux transitions :

$$\gamma_{\text{faisceau}} = \frac{E_{\text{Li}} + E_{\text{Be}}}{2E_{\text{ref}}}$$

avec  $E_{\text{ref}}$  l'énergie de référence, sur laquelle est réglé le spectromètre.

En utilisant les valeurs de la table II.2 et l'équation (II.4), on en déduit que :

$$E_{\text{faisceau}} = 34.73 \text{ MeV}$$

Il est alors possible de déduire la position de la raie par rapport au centre du capteur CCD ainsi que la défocalisation (distance entre la position de la raie sur le CCD et le croisement du rayon et du cercle de Rowland). Les positions des raies sont montrées en table II.5.

Toutefois, cette configuration n'a pas pu être utilisée. En effet, les sections efficaces d'excitation ont été surestimées, rendant impossible l'observation simultanée de la transition de l'uranium lithiumoïde et bérylliumoïde.

TABLE II.5 – Position des raies de l'uranium lithiuoïde et bérylliuoïde par rapport à la référence (au centre du CCD) et la distance de défocalisation. La taille des pixels considérée est de  $13.5\ \mu\text{m}$

Espèce	Position de la raie (mm)	Position de la raie (pixel)	Défocalisation (mm)
Lithiuoïde	-7.039	521.4	7.264
Bérylliuoïde	6.934	513.7	7.256

### II.2.7 Prise de données

Durant l'expérience E125, un paquet d'ions uranium fortement chargés a été injecté dans l'ESR. Après la décélération et le refroidissement du paquet, le jet de gaz est activé pour l'interaction. Lorsque le jet de gaz est allumé, les CCD commencent à collecter des photons pendant 20 secondes. L'image est ensuite sauvegardée, le paquet est extrait de l'ESR et le processus recommence. Pour analyser la raie, toutes les images prises sont accumulées ensemble. Les images se présentent sous la forme d'une matrice, chaque élément étant le nombre de comptages obtenus dans chaque pixel. Certains pixels du CCD présentaient des défauts et ont donné des faux coups. Ces pixels ont été exclus grâce à la suppression de l'arrière-plan. La suppression de l'arrière-plan a été réalisée en prenant des images sans faisceau. Les pixels supprimés sont ceux qui s'allument plusieurs fois alors qu'il n'y a pas de faisceau. Nous obtenons ainsi des images brutes telles que l'image II.10, la raie de l'uranium lithiuoïde avec le CCD *Great Eyes*. Le fond bleu correspond aux pixels qui n'ont pas été comptés. Les points bleus clairs correspondent aux pixels qui ont reçu 1 ou 2 coups et les points blancs sont les pixels morts.

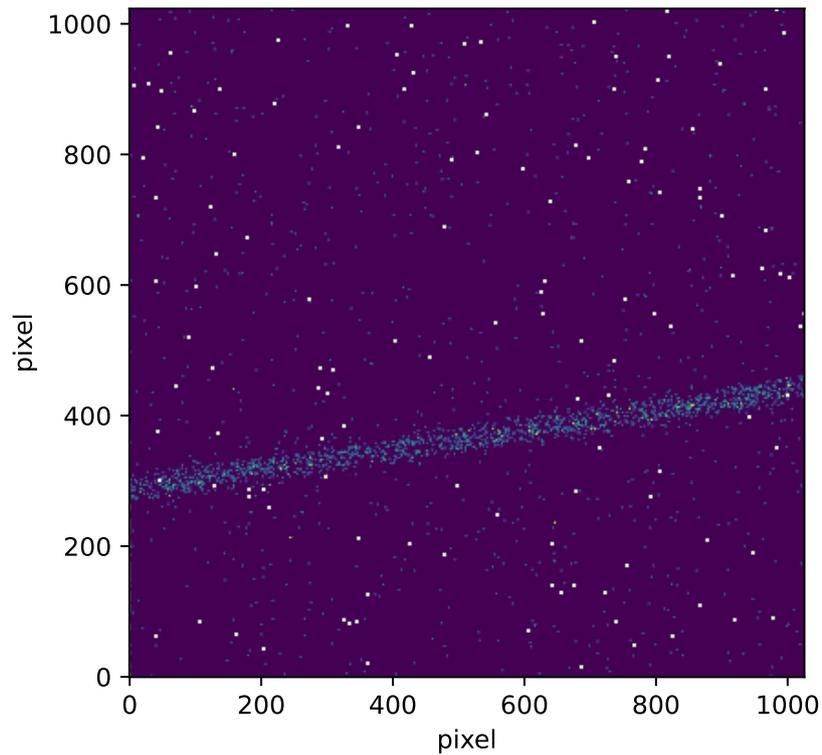
Lors de l'expérience, les données ont été analysées à l'aide d'un logiciel Labview™ développé par Robert Loetsch. Cette analyse consiste en la réduction de l'image à des données unidimensionnelles, en tournant l'image du CCD, puis en la projetant et en ajustant la raie mesurée à l'aide d'une gaussienne et un bruit de fond constant. Lorsque la largeur gaussienne ajustée est minimale, on obtient une estimation du nombre de photons mesurés provenant de la transition, ainsi que sa position sur le capteur CCD.

### Déroulement du temps de faisceau

Le montage de l'expérience a commencé en janvier 2021, avec la mise en place des bras des spectromètres et une première vérification de l'alignement des spectromètres et de la cible de gaz. À mon arrivée au GSI, une nouvelle vérification de l'alignement a été effectuée. Le gaz de la cible a été également choisi : le diazote. Une estimation des taux de production est développée dans la partie II.2.5.

Le début du temps de faisceau a été marqué par des défaillances sur l'accélérateur. Une première phase de prise de données a été effectuée avec un faisceau d'uranium lithiuoïde à  $30\ \text{MeV/u}$ , excitation électronique afin de produire la raie de référence de l'expérience. Cependant, la production de photons était plus basse qu'attendu, forçant un changement de stratégie. Afin de confirmer l'efficacité de la capture électronique par rapport à l'excitation électronique, une nuit de mesure d'uranium bérylliuoïde produite par capture électronique depuis un faisceau d'uranium lithiuoïde a été effectuée. Un total de 14 photons a été mesuré, une faible statistique qui s'explique par la faible intensité du

FIG. II.10 Image brute obtenue de la raie d'uranium lithiumoïde obtenue avec le CCD *Great Eyes*. Les points blancs sont les pixels morts, c'est-à-dire les pixels n'ayant pas pu être utilisés pour la mesure.



faisceau. Un total de 11 heures de mesure pour la raie de l'uranium lithiumoïde, produit par capture électronique depuis un faisceau d'uranium héliumoïde, a été effectué pour une collection totale d'environ 1400 photons.

La raie d'intérêt de l'uranium héliumoïde a été ensuite produite à l'aide de la capture électronique entre la cible de gaz et le faisceau d'uranium hydrogéoïde, et mesurée pendant 86 heures avec la collection totale de 1800 photons, surpassant l'objectif initial de 1200 photons.

Face à ce succès, une dernière raie de calibration a été prise avec l'uranium bérylliumoïde pendant 24 heures pour un total de 700 photons.

Pendant toute la durée de l'expérience, des équipes de deux personnes (à cause des restrictions sanitaires) se sont relayées pendant 8 heures afin de surveiller la qualité du faisceau et les éventuels arrêts et défaillances du système. Les équipes veillaient également au remplissage en azote liquide des détecteurs en germanium pour leur refroidissement ainsi qu'au transfert des données et de l'analyse préliminaire.

## II.3 Analyse de données

Dans cette section, je décris l'analyse que j'ai menée sur les données de l'expérience, puis la dérivation que j'ai menée pour déduire l'énergie, à partir de la position des raies sur le CCD. Pour cette mesure, deux analyses ont été effectuées : une étude non paramétrique, c'est-à-dire n'utilisant aucun modèle pour déduire la position des raies atomiques [125], et une étude paramétrique, en partie contrôlée par moi-même, utilisant, par exemple, un modèle gaussien ou super-Gaussien. L'analyse paramétrique a été effectuée par Martino Trassinelli [126]. Le but de cette analyse est d'obtenir la position de la raie atomique, avec une précision subpixel.

### II.3.1 Analyse non paramétrique

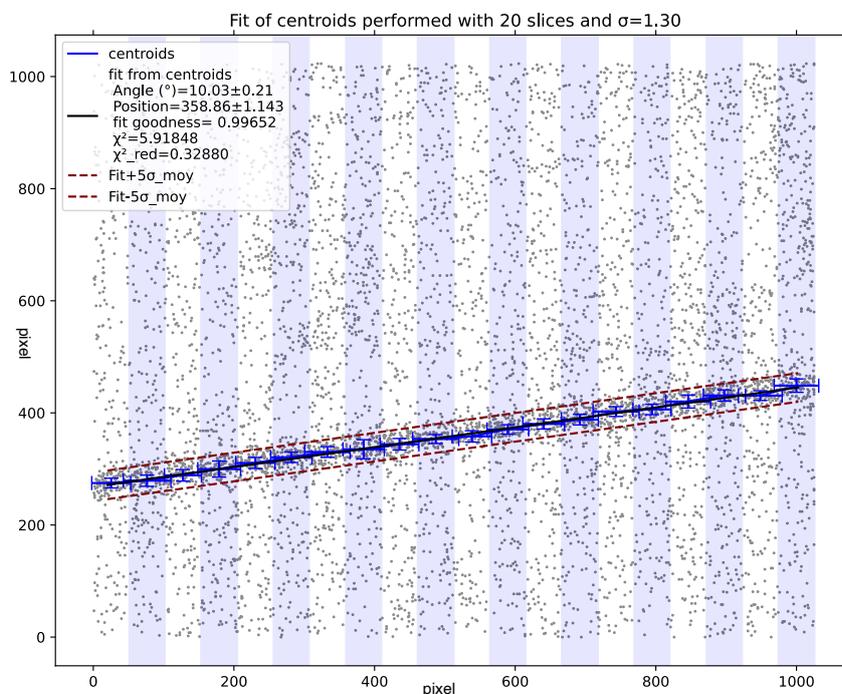
En raison de la présence de bruit sur les images CCD, une méthode de rejet de bruit de fond a dû être utilisée. Il faut choisir entre une approche non paramétrique et un modèle paramétrique de la ligne. Dans cette expérience, les deux approches ont été testées. Seule l'approche non paramétrique est présentée ici. Afin de déterminer la position de la ligne et son angle, une approche centroïde est utilisée. En effet, si la distribution des photons émis par les ions est symétrique, la moyenne de la position des photons correspond à la position de la raie. On essaye alors de calculer la position de la raie à l'aide de la moyenne de la position des photons. Le centroïde de la distribution de photons dans le plan X-Y du CCD, produit par la désintégration, est considéré comme la position de la raie. Or, l'énergie de la raie change en fonction de l'angle d'observation. On découpe alors l'image afin de pouvoir construire la position de la raie en fonction de sa position sur le CCD, comme montré dans la figure II.11. Cette position nous permet d'obtenir l'énergie de la transition grâce à la relation de dispersion de Bragg (voir équation (II.2)).

#### II.3.1.1 Principe de l'algorithme

L'algorithme fonctionne comme suit :

1. Les poids des pixels morts sont fixés à 0.
2. L'image est découpée en tranches verticales, avec un nombre donné de tranches (voir figure II.11).
3. Un centroïde  $(\bar{x}, \bar{y})$  et un calcul de l'écart type  $(\sigma_x, \sigma_y)$  sont effectués dans chaque tranche.
4. Une nouvelle fenêtre verticale est définie dans chaque tranche :  $[\bar{y} - \epsilon \times \sigma_y ; \bar{y} + \epsilon \times \sigma_y]$ , où  $\epsilon$  est choisi pour optimiser en même temps la convergence et la précision.
5. Le calcul du centroïde et de l'écart-type est effectué dans la tranche avec la nouvelle fenêtre verticale.
6. Le calcul du centroïde s'arrête lorsque chaque centroïde change de moins d'un pixel ou que l'écart-type est trop petit. Si l'on impose un critère d'arrêt plus petit d'un pixel, l'algorithme ne converge pas dans de nombreux cas.
7. La liste des centroïdes est ajustée avec une méthode  $\chi^2$ , donnant la position et l'angle de la ligne.

FIG. II.11 Centroides et ajustement des centroides obtenus avec l'algorithme de détermination des centroides en utilisant comme paramètres d'entrée  $\epsilon = 1,3$  et 20 tranches pour l'image de l'uranium héliumoïde. Les incertitudes tracées correspondent à  $2\sigma$ , les tranches sont représentées dans l'arrière-plan.



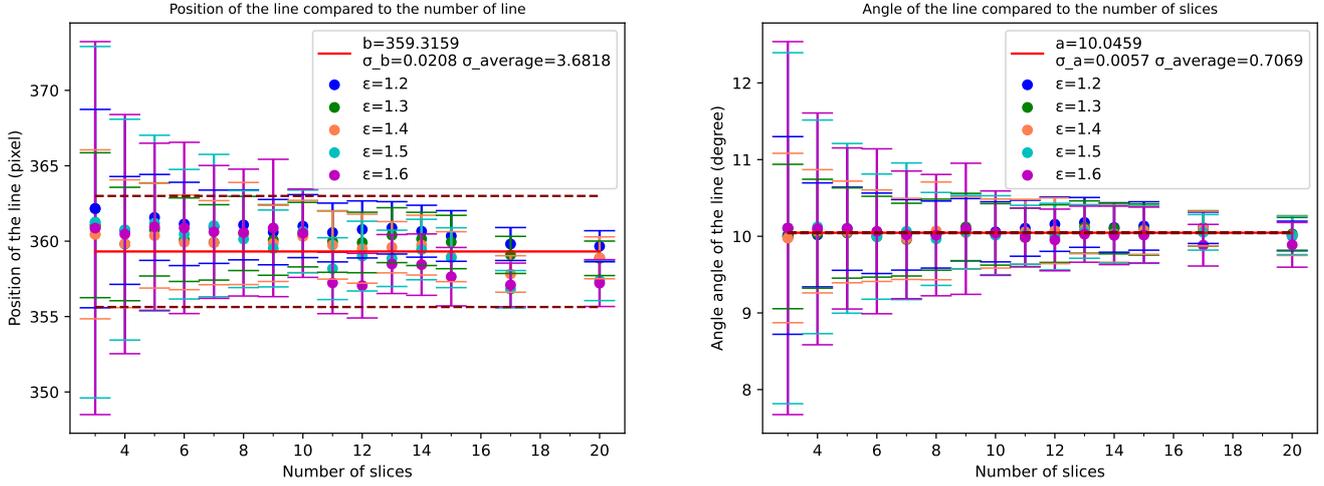
Une fois l'algorithme exécuté, les résultats sont stockés et comparés afin de vérifier si tous les résultats sont compatibles avec les différents paramètres d'entrée de l'algorithme. À partir de là, une moyenne pondérée de la position de la ligne est calculée. La moyenne arithmétique des écarts types est utilisée comme incertitude lors de l'exécution de la moyenne.

Nous pouvons voir des effets systématiques notables pour la position et l'angle de la ligne comme dans la Fig. II.12. En effet, si  $\epsilon$  est choisi trop petit, l'algorithme réduira rapidement la fenêtre et risque de converger hors de la ligne ; trop grand, il en résulterait une nouvelle fenêtre plus grande que la nouvelle image. Si le nombre de tranches est trop grand, le nombre de comptages à l'intérieur de la tranche ne sera pas suffisant pour permettre un calcul correct du centroïde. Ces dépendances peuvent également être comprises par le fait que chaque centroïde calculé est affecté par le bruit, qui n'est pas annulé par la méthode d'ajustement.

### II.3.1.2 Résultat des ajustements

Cette approche non paramétrique, avec un faible rapport signal/bruit, ne peut être utilisée que pour obtenir une première estimation de la position de la ligne. Cependant, l'obtention d'une incertitude inférieure au pixel semble impossible, comme le montre le tableau II.6. En effet, comme l'occupation des coups à l'intérieur de la raie est de 4%, une taille minimale de plusieurs pixels doit être définie pour obtenir au moins 2 comptes

FIG. II.12 Position de la raie (à gauche) et angle de la raie (à droite) pour le bras droit en fonction des paramètres d'entrée de l'algorithme, pour l'uranium héliumoïde. L'ajustement (rouge) est réalisé avec une méthode  $\chi^2$ . L'incertitude de la valeur finale est la moyenne de tous les écarts types dans le graphique.



(minimum nécessaire pour pouvoir calculer la variance autour du centroïde), ce qui rend la dispersion autour du centroïde plus large qu'un pixel. Avec un rapport signal/bruit plus élevé, la dispersion autour du centroïde est plus grande que la variance autour du centroïde.

Avec un rapport signal/bruit plus élevé et un taux de comptage plus important, la méthode est probablement plus efficace, même si les effets systématiques affectent toujours la détermination des paramètres, mais avec une amplitude nettement réduite.

TABLE II.6 – Position pour toutes les images prises lors de l'expérience E125.

CCD	Raie	Position (pixel)	angle (°)
Great Eyes	Zn $K\alpha_1$ Calibration raie héliumoïde	710(1)	-0.7(1)
	Héliumoïde	805(3)	-11.0(3)
	Zn $K\alpha_1$ Calibration raie lithiumoïde	710(1)	-0.7(1)
	Lithiumoïde	792(3)	-9.2(3)
	Zn $K\alpha_1$ Calibration raie béryllumoïde	710(1)	-0.7(1)
	Béryllumoïde	806(3)	-10.7(3)
Andor	Zn $K\alpha_1$ Calibration raie héliumoïde	389(1)	-0.3(2)
	Héliumoïde	359(3)	10.1(6)
	Zn $K\alpha_1$ Calibration raie lithiumoïde	388(1)	-0.3(2)
	Lithiumoïde	364(3)	8.5(6)
	Zn $K\alpha_1$ Calibration raie béryllumoïde	389(1)	-0.3(2)
	Béryllumoïde	360(3)	9.6(5)

Nous avons montré que cette approche détermine la position de la raie avec une précision d'environ 3 pixels, ce qui ne répond pas à l'exigence d'une précision inférieure au pixel.

### II.3.2 Dédution de l'énergie

L'analyse précédemment présentée n'est pas suffisante afin d'obtenir la position des raies avec une précision inférieure au pixel. Afin de confirmer la dérivation de l'énergie à partir des positions des raies, j'ai repris les résultats des ajustements effectués par Martino Trassinelli [126]. Les résultats ainsi que la vitesse du faisceau pour chaque mesure sont données dans la table II.7.

TABLE II.7 – Position et angle des raies pour toutes les images prises lors de l'expérience E125. Les données du CCD *Andor* ont été retraitées pour que les pixels considérés soient de 27  $\mu\text{m}$ .

CCD	Raie	Position (pixel)	Vélocité du faisceau ( $\beta = v/c$ )	
Great Eyes	Zn $K\alpha_1$ Calibration raie héliumoïde	355.57(5)	0.2875	
	Héliumoïde	405.22(49)		
	Zn $K\alpha_1$ Calibration raie lithiumoïde	355.79(10)	0.2486	
	Lithiumoïde	397.62(45)		
Andor	Zn $K\alpha_1$ Calibration raie bérylliumoïde	355.56(5)	0.2817	
	Bérylliumoïde	406.27(61)		
	Zn $K\alpha_1$ Calibration raie héliumoïde	Héliumoïde	388.68(4)	0.2875
		Héliumoïde	361.78(46)	
Zn $K\alpha_1$ Calibration raie lithiumoïde	Lithiumoïde	388.76(10)	0.2486	
	Lithiumoïde	365.26(32)		
Zn $K\alpha_1$ Calibration raie bérylliumoïde	Bérylliumoïde	388.90(4)	0.2817	
	Bérylliumoïde	363.18(49)		

Les énergies peuvent être déduites de la position des raies sur le CCD. Comme la raie  $K\alpha_1$  du zinc est une référence non décalée par effet Doppler, nous pouvons l'utiliser pour déterminer l'angle d'observation en mesurant la différence d'énergie entre la raie du zinc et l'uranium lithiumoïde. L'énergie de l'uranium de héliumoïde et de l'uranium bérylliumoïde peut alors être déduite de la distance de sa raie par rapport à la raie du zinc. En utilisant la loi de Bragg (équation (II.2) et la relation  $E = \frac{hc}{\lambda}$  :

$$E = \frac{hcn}{2d \sin(\theta)}.$$

À cause de l'effet Doppler, l'énergie de la transition  $E_{\text{transition}}$  est décalée. Ce décalage change en fonction de l'angle d'émission du photon  $\theta_{\text{lab}}$  :

$$E(\theta_{\text{lab}}) = \frac{E_{\text{transition}}}{\gamma(1 - \beta \cos(\theta_{\text{lab}}))}.$$

On peut alors déduire l'énergie de la transition :

$$E_{\text{transition}} = \frac{hcn}{2d \sin(\theta)} \gamma(1 - \beta \cos(\theta_{\text{lab}})).$$

Comme la raie du zinc n'est pas décalée par effet Doppler, nous avons :

$$E_{\text{ref}} = \frac{hcn_{\text{ref}}}{2d \sin(\theta_{\text{ref}})}.$$

En considérant  $n$  l'ordre de la diffraction du photon sur le cristal et  $n_{\text{ref}}$  l'ordre de la diffraction de la raie de référence :

$$E_{\text{transition}} = \frac{n}{n_{\text{ref}}} E_{\text{ref}} \frac{\sin(\theta_{\text{ref}})}{\sin(\theta)} \gamma (1 - \beta \cos(\theta_{\text{lab}}))$$

En appliquant la formule précédente pour la raie héliumoïde et lithiuoïde de l'uranium, on obtient un système à deux équations. Ce système est à deux inconnues si l'on considère l'énergie  $E_{\text{Li}}$  de la raie lithiuoïde connue :

$$\begin{cases} E_{\text{Li}} &= \frac{n_{\text{Li}}}{n_{\text{ref}}} E_{\text{Zn}} \frac{\sin(\theta_{\text{Zn}})}{\sin(\theta_{\text{Li}})} \gamma_{\text{Li}} (1 - \beta \cos(\theta_{\text{lab}})) \\ E_{\text{He}} &= \frac{n_{\text{He}}}{n_{\text{ref}}} E_{\text{Zn}} \frac{\sin(\theta_{\text{Zn}})}{\sin(\theta_{\text{He}})} \gamma_{\text{He}} (1 - \beta \cos(\theta_{\text{lab}})) . \end{cases}$$

En résolvant ce système, on obtient :

$$\begin{cases} \theta_{\text{lab}} &= \arccos \left( \frac{(E_{\text{Zn}} \gamma_{\text{Li}} n_{\text{Li}} \sin(\theta_{\text{ref}}) - E_{\text{Li}} n_{\text{Zn}} \sin(\Delta\theta_{\text{Li}} + \theta_{\text{ref}}))}{\beta_{\text{Li}} E_{\text{Zn}} \gamma_{\text{Li}} n_{\text{Li}}} \right) \\ E_{\text{He}} &= \frac{\gamma_{\text{He}} n_{\text{He}} (\beta_{\text{He}} E_{\text{Li}} n_{\text{Zn}} \sin(\Delta\theta_{\text{Li}} + \theta_{\text{ref}}) - \beta_{\text{He}} E_{\text{Zn}} \gamma_{\text{Li}} n_{\text{Li}} \sin(\theta_{\text{ref}}) + \beta_{\text{Li}} E_{\text{Zn}} \gamma_{\text{Li}} n_{\text{Li}} \sin(\theta_{\text{ref}}))}{\beta_{\text{Li}} \gamma_{\text{Li}} n_{\text{Li}} n_{\text{Zn}} \sin(\theta_{\text{ref}} + \Delta\theta_{\text{He}}} \end{cases}$$

L'angle de Bragg est alors obtenu en prenant la taille d'un pixel  $l_{\text{pixel}}$  (égal à 27  $\mu\text{m}$ ), la différence de position en pixel  $\Delta px$ , la taille du bras  $R_{\text{bras}}$  (égale à 1435 mm) et l'angle de référence  $\theta_{\text{ref}}$  (égal à 45.85°) :

$$\Delta\theta = \theta_{\text{Bragg}} - \theta_{\text{ref}} = \frac{l_{\text{pixel}} \Delta px}{R_{\text{bras}}} .$$

En prenant la raie de l'uranium Lithiumoïde en référence, on obtient les résultats présentés dans la table II.8.

TABLE II.8 – Angle et énergie de la raie obtenus en fonction de la position sur le CCD (cf. Table II.6) en fonction des paramètres de l'expérience.

CCD	Angle (degree)	Energy (eV)
He-like Uranium		
Andor	90.25	4509.96
Great Eyes	90.15	4509.54
Be-like Uranium		
Andor	90.24	4501.79
Great Eyes	90.14	4501.38

Martino Trassinelli a déterminé les incertitudes pour chaque mesure de chaque bras du spectromètre, puis a utilisé des méthodes Bayésiennes (décrites dans la référence [56]) afin de combiner les résultats des différents spectromètres. Il a également calculé la différence d'énergie entre les transitions de l'uranium héliumoïdes et lithiumoïdes ainsi que la différence d'énergie entre les transitions de l'uranium lithiumoïde et bérylliumoïde. Les résultats sont présentés dans la table II.9.

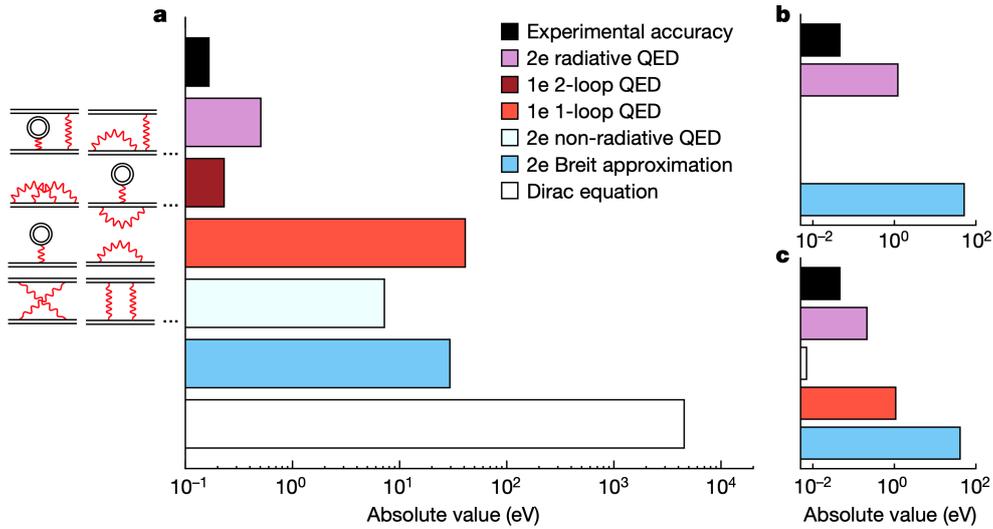
TABLE II.9 – Résultats de la mesure de l'uranium héliumoïde et bérylliumoïde, en utilisant la transition de l'uranium lithiumoïde comme référence. La mesure différentielle entre l'uranium héliumoïde (bérylliumoïde) par rapport à la transition de l'uranium lithiumoïde sont également présentées. Les calculs théoriques sont le résultat de calculs MCDF de Paul Indelicato [56].

He-like		Be-like	
Experiment (eV)	Theory (eV)	Experiment (eV)	Theory (eV)
4509.763 (166)	4509.716 (107)	4501.588 (171)	4501.853 (124)
He–Li		Be–Li	
Experiment (eV)	Theory (eV)	Experiment (eV)	Theory (eV)
50.233 (46)	49.911 (138)	42.072 (46)	42.048 (153)

L'incertitude obtenue sur les différences d'énergie est 20 fois plus faible que l'incertitude sur la mesure précédente [54]. De plus, la précision obtenue est du même ordre de grandeur que les prédictions théoriques. De même que pour l'expérience, l'incertitude sur la différence théorique entre les différents états de charges est plus faible que pour le calcul absolu de l'énergie. L'accord entre la théorie et l'expérience est bon pour les différences d'énergie entre les transitions des différents états de charge.

Dans la figure II.13, l'incertitude obtenue lors de ces mesures est comparée aux contributions théoriques. Pour l'énergie de la transition  $1s2p\ ^3P_2 \rightarrow 1s2s\ ^3S_1$  de l'uranium

FIG. II.13 Sensibilité expérimentale aux contributions théoriques et précision expérimentale obtenue. Contributions théoriques à la transition intracouche  $1s_{1/2}2p_{3/2} J = 2 \rightarrow 1s_{1/2}2s_{1/2} J = 1$  de l'uranium héliumoïde (a), à la différence d'énergie entre les transitions héliumoïdes et lithiuoïdes (b) et la différence d'énergie entre les transitions lithiuoïdes et bérylliuoïdes (c). Pour (b) et (c), la barre bleue inclut également les contributions QED non radiatives. Certains des diagrammes de Feynman correspondants sont également représentés. Les labels 1e et 2e représentent respectivement les contributions d'un et de deux électrons. Figure et légende adaptées de la réf. [56] © nature.com 2024.



héliumoïde, les contributions de QED à deux boucles ainsi que les contributions radiatives à deux électrons sont plus grandes que l'incertitude sur la mesure. Ainsi, notre mesure est sensible à la QED au second ordre. De plus, la comparaison entre l'énergie de transition de l'uranium à deux et trois électrons permet d'effectuer un test précis des calculs de correction de QED radiative à deux électrons. Il en est de même entre la transition lithiuoïde et bérylliuoïde, pour laquelle les contributions de QED à un électron contribuent également à la différence d'énergie.

## II.4 Conclusion

J'ai présenté dans ce chapitre ma participation à l'expérience E125 [56]. Cette expérience, menée au GSI-FAIR à Darmstadt propose d'effectuer une mesure de transition intracouche de l'uranium à deux électrons, afin de tester la QED, au second ordre.

Pour cette expérience, j'ai pu participer à la préparation d'une expérience sur accélérateur de grande envergure, ainsi qu'à la prise de données tout au long du temps de faisceau. J'ai également effectué une analyse préliminaire des images des CCD, ainsi que la détermination de l'énergie des raies mesurées.

Cette expérience a été un franc succès, malgré les difficultés de l'accélérateur (moins d'une semaine de faisceau, comparé aux deux semaines prévues). En effet, l'expérience a

permis un test de la QED au second ordre, par la mesure différentielle d'une transition de l'uranium à deux, trois et quatre électrons, mais également par mesure directe de la transition  $1s2p\ ^3P_2 \rightarrow 1s2s\ ^3S_1$  de l'uranium héliumoïde. La mesure précise de ces niveaux, ainsi que de son état fondamental, permet des tests poussés de la théorie atomique. Lors de mon parcours au GSI, j'ai également participé à une expérience mesurant des transitions  $n = 2 \rightarrow n = 1$  dans l'uranium héliumoïde [127], effectuée après l'expérience E125, permettant de compléter le puzzle des couches K et L de l'uranium héliumoïde.



Deuxième partie

Étude du Soufre et de l'Argon  
Boronoïde



# Chapitre III

## La source d'ions et le spectromètre X

Dans ce chapitre, je présente les méthodes expérimentales utilisées pour la mesure d'ions très chargés moyennement lourds, et plus particulièrement du soufre et de l'argon à cinq électrons. Ce travail a été effectué grâce à la combinaison d'un spectromètre à double cristal et d'une source d'ions à résonance cyclotronique électronique. Afin d'introduire les méthodes expérimentales, je présente tout d'abord un historique de l'étude des rayons X. Je décris le fonctionnement de la source d'ion puis celle du spectromètre à double cristaux.

### III.1 Introduction historique à la diffraction de Bragg

À la fin du XIX<sup>ème</sup> siècle, les physiciens européens tels que Lenard, Thompson et Röntgen étudient le rayonnement émis par des tubes à cathodes. Le rayonnement cathodique, compris par Thompson comme étant un faisceau d'électrons en 1897, était alors étudié par Röntgen. Un exemple de tube à rayon X est présenté en figure III.1.

En 1895, ce dernier observe qu'en allumant la lampe, un écran en platinocyanure de baryum émet une lumière de fluorescence. Or, il était connu que le faisceau d'électrons émis

FIG. III.1 *Tube à Rayons X, circa 1915. Source : [Museum of Radiation and Radioactivity](#).*

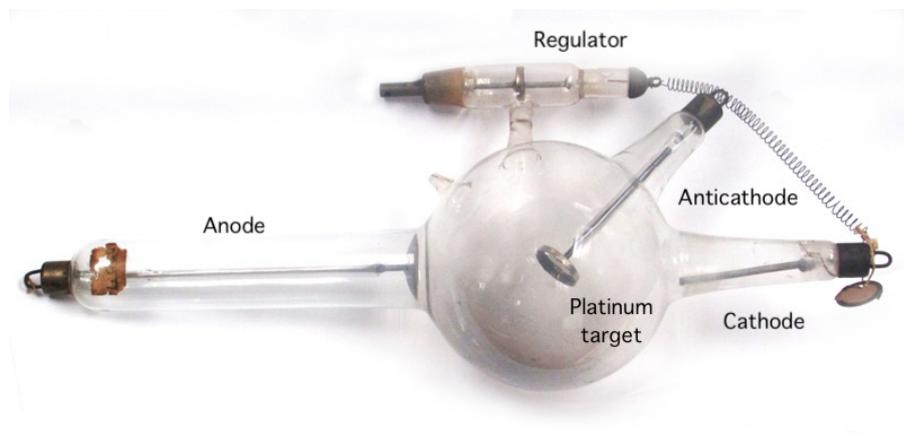


FIG. III.2 Radiographie X de la main d'Anna Bertha Ludwig, présentée au Pr. Ludwig Zehnder, le 1<sup>er</sup> janvier 1896. Source : National Aeronautics and Space Administration (NASA) Domaine public.



par la cathode ne pénétrait pas l'air, le métal ou le bois, ce qui ne pouvait pas expliquer le phénomène. Après de nombreux mois à se convaincre de la véracité de sa découverte, il conclut que cette fluorescence était causée par un rayonnement inconnu – les rayons X – se propageant en ligne droite depuis le tube. Röntgen publie en décembre 1895 une première communication [128] dans lequel il fait part de sa découverte. En étudiant la pénétration de ces rayons à travers différents milieux, dont le corps humain, il effectue la première radiographie, en radiographiant la main de son épouse (voir figure III.2). La découverte des rayons X comme outil de diagnostic révolutionne l'exercice de la médecine. Son étude approfondie des rayons X lui valut le premier prix Nobel, décerné en 1901.

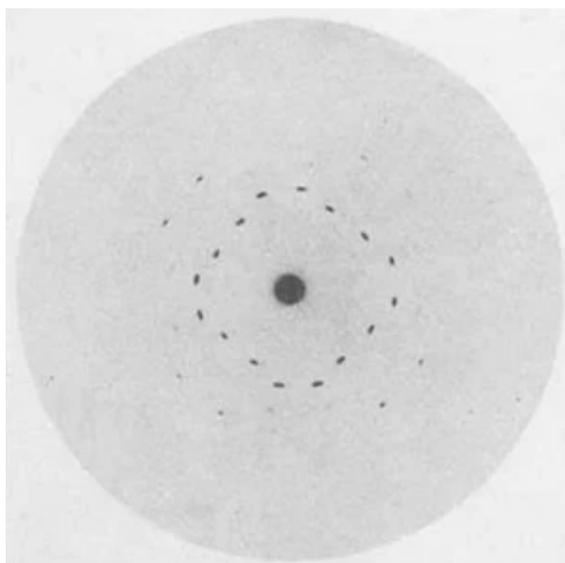
Par la suite, les propriétés des rayons X sont étudiées. Barkla met en évidence la polarisation des rayons X en 1905 [129], puis met en évidence que l'absorption d'un matériau est proportionnelle à la masse atomique du milieu le composant [130]. De plus, il met en évidence que deux types de rayons X sont émis, d'énergies différentes, qu'il nomme fluorescence K et L [131]. En parallèle, les physiciens Haga et Wind [132] essayent de diffracter ces rayons. Ceci ne sera achevé qu'en 1910 par Koch à l'aide de plaques photographiques de Walter et Pohl [133].

Barkla met en évidence, en 1910, l'ionisation de gaz par des rayons X [134]. W.H. Bragg interprète cette ionisation [135] comme l'effet photoélectrique sur une molécule de gaz, qui éjecte un électron qui ionise à son tour le gaz. Ce phénomène l'incite à penser que les rayons X sont des corpuscules. Ces expériences ont mis en avant la dualité onde-corpuscule de ce rayonnement.

Le lien entre l'étude des cristaux et les rayons X se fait en 1912, alors que Paul Ewald

est sur le point de soumettre sa thèse [136]. Il étudie sous la direction de Sommerfeld à Munich, travaillant sur les propriétés optiques de résonateurs isotropes arrangés de manière anisotrope. L'idée de cette thèse est d'expliquer l'existence d'un indice de réfraction, sa dépendance en fréquence ainsi que d'expliquer les phénomènes de réflexion et de réfraction, en supposant le milieu composé de résonateurs, émettant de manière isotrope, également espacés. Jusqu'ici, les travaux sur la théorie de la dispersion menés par Lorentz et Planck supposaient que le milieu était amorphe. Cette hypothèse permet d'expliquer qu'un milieu ait un indice de réfraction unique, quelle que soit la direction de propagation de la lumière. Ewald conclut dans sa thèse que dans le cas d'un cristal semi-infini, l'indice de réfraction du système est déterminé par la vibration libre de l'ensemble du système. Cette conclusion, confirmée par un calcul direct en 1916 [137], pousse Ewald à discuter avec von Laue. L'étude d'Ewald se concentre sur des rayonnements incidents dont la longueur d'onde est visible, soit environ 1000 fois plus grands que la distance entre les résonateurs, estimée par Ewald. Laue a alors l'intuition que lorsque la longueur d'onde devient proche de la distance entre deux résonateurs (comprendre ici entre deux atomes d'un cristal), une diffraction est possible, comme pour un réseau.

FIG. III.3 *Figure de diffraction d'un cristal de ZnS blende, obtenu par Friedrich et Knipping [138]. ©WILEY-VCH*



En juin 1912, cinq mois après sa discussion avec Ewald, il publie conjointement avec Friedrich et Knipping, des résultats théoriques ainsi qu'expérimentaux [138], dans lesquels apparaissent des figures de diffraction X. En envoyant des rayons X à travers un cristal de sulfate de zinc, ils observent une figure de diffraction, autour du faisceau principal (voir figure III.3). Cette expérience est ensuite confirmée par le duo père fils W.H. et W.L. Bragg. Laue et les Bragg comprennent que cette diffraction est due à l'arrangement périodique des atomes, la distance interatomique étant du même ordre de grandeur que la longueur d'onde du rayonnement X. La figure de diffraction a mené à la loi de Bragg :

$$n\lambda = 2d \sin \Theta_B,$$

où  $n$  est l'ordre de réflexion,  $\lambda$  est la longueur d'onde incidente,  $d$  la distance interréticulaire du cristal et  $\Theta_{\text{Bragg}}$  l'angle de Bragg associé. La loi de Bragg dit que des rayons X monochromatiques incidents sont réfléchis seulement à un angle incident spécifique, appelé angle de Bragg  $\Theta_{\text{Bragg}}$ . Cette découverte donne lieu à deux prix Nobel, pour Laue en 1914 et pour les Bragg en 1915.

L'engouement de la recherche pour les rayons X, depuis leur découverte, n'a cessé de croître. En effet, de 1914 à 1924, la moitié des prix Nobel ont été décernés pour l'étude des rayons X. Ces découvertes ont mené à la création de deux nouvelles disciplines, la spectroscopie rayons X et la cristallographie aux rayons X.

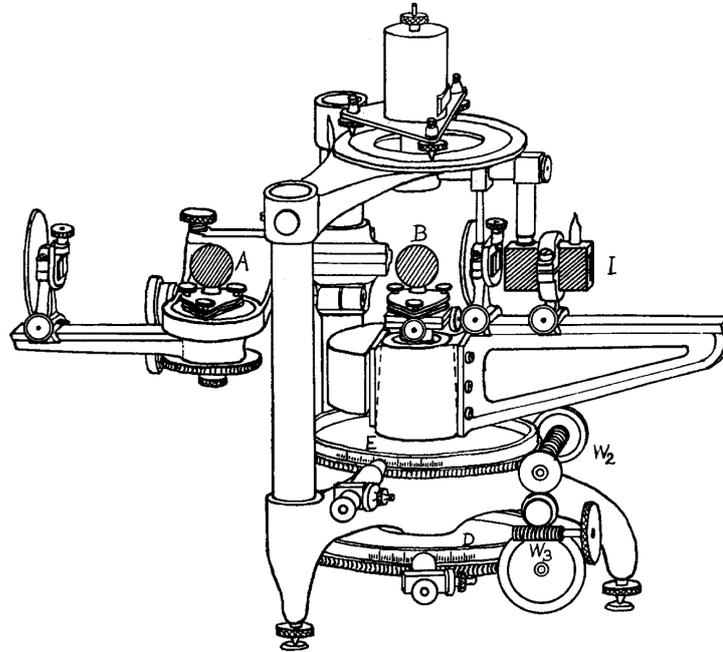
Lors des expériences menant à la loi de Bragg, W.L. Bragg découvre qu'en déformant le cristal de manière sphérique, il est possible de focaliser des faisceaux X provenant d'une source étendue. L'utilisation des cristaux courbes afin de pouvoir mesurer la longueur d'onde des rayons X a été décrit en 1931 par Johann [87] et en 1933 par Johanson [139]. Ces différentes géométries sont compactes et permettent d'augmenter considérablement l'efficacité des spectromètres, et d'effectuer des mesures sur des accélérateurs.

Les spectromètres à double cristaux plans (appelés DCS dans tout le manuscrit) ont tout d'abord été développés avec la mesure de précision rayons X, afin d'étudier les cristaux. Les DCS ont été conçus de manière indépendante en 1917 par Compton [140], en 1921 par Bragg *et al.* [141, 142] et en 1922 par Wagner *et al.* [143], afin de mesurer l'intensité des réflexions des rayons X sur les cristaux. L'utilisation des DCS permet également la caractérisation des profils de réflectivité des cristaux [144]. Le travail de Davis et Purks [145, 146] met en avant la haute résolution du mode dispersif du DCS et a démontré les capacités de l'appareil d'effectuer des mesures spectroscopiques de précision. Les premières mesures des largeurs de raies  $K\alpha$  ont été effectués par Allison *et al.* [147, 148]. La précision des mesures d'énergie s'est améliorée avec la correction de la divergence verticale [149], des mesures absolues de la longueur d'onde des rayons X par Bearden [150, 151] avec la déduction de la distance interréticulaire de la calcite [152]. Une description technique détaillée de l'instrument peut être trouvée dans [147, 153], donnée respectivement par Compton (voir figure III.4) et par Williams et Allison, tandis qu'une description théorique de l'instrument fournie par Schwarzschild peut être trouvée dans la référence [154]. Des informations plus détaillées sur la description et la théorie de l'instrument peuvent également être trouvées dans le livre suivant [155].

Les DCS ont été utilisés tout le long du siècle dernier, bien que sans connaître précisément la distance interréticulaire des cristaux utilisés, la plupart des mesures d'énergie se faisait à l'aide d'une raie étalon. Avec l'arrivée des pousses de cristaux de germanium (l'utilisation d'un cristal de germanium courbe est décrit en chapitre II) et de silicium ultra-purs (dont l'utilisation est décrite dans ce chapitre), de nouvelles méthodes de mesures interférométriques se sont développées afin de mesurer directement la distance interréticulaire des cristaux, par rapport à la longueur d'onde laser, permettant des précisions relatives inférieures à  $10^{-8}$  [156–159]. Le développement d'encodeurs de haute précision pour la mesure des angles a permis d'exploiter l'avancée sur la précision de la mesure des distances interréticulaires des cristaux pour faire des DCS l'outil de mesures absolues d'énergie. La conception et le développement d'un DCS par Deslattes [160] a permis l'établissement de nouveaux étalons X, mesurés avec le DCS [161]. Des exemples de mesures absolues de transitions  $K\alpha$  d'éléments légers et lourds sont présentés dans les références [7, 162, 163].

Plus récemment, le groupe du LKB a développé un DCS en réflexion [82, 164, 165],

FIG. III.4 Schéma du spectromètre à doubles cristaux, conçu par Compton [153]. Les deux cristaux sont notés A et B. L représente le tube à rayons X pouvant tourner autour des cristaux.



couplé à une source d'ions plasma. Ce dispositif expérimental, décrit en section III.3, a permis la première mesure absolue de rayons X d'ions très chargés, avec une précision relative de 2.5 ppm de la transition dipolaire magnétique (M1)  $1s2s\ ^3S_1 \rightarrow\ ^1S_0$  de l'argon héliumoïde ( $\text{Ar}^{16+}$ ) produit par le plasma. Les mesures de précision d'ions très chargés avec un DCS ont également été utilisés afin de tester les différents modèles de réflectivité des cristaux, à l'aide de transitions dipolaires magnétiques [166].

## III.2 La Source d'Ions MultiChargés de PAris

La Source d'Ions MultiChargés de Paris (SIMPA) [167] est une source de plasma ionique, partagée entre l'Institut des NanoSciences de Paris, et le Laboratoire Kastler-Brossel. L'INSP utilise directement le faisceau d'ions de la source [168–170], alors que le LKB s'intéresse au rayonnement X émis par la source. Cette utilisation partagée, introduite en 2004, conduit à des applications en physique du solide, des surfaces, des plasmas et atomique.

SIMPA est une source plasma utilisant une bouteille magnétique, qui piège les électrons dans un minimum de champ magnétique. Afin de chauffer et de maintenir ce plasma, des micro-ondes sont injectés dans la source. La fréquence micro-onde est la même que celle du mouvement cyclotronique des électrons dans le champ magnétique de la source. Pour que l'accélération des électrons se produise, il est nécessaire que les micro-ondes respectent le critère de résonance entre la pulsation cyclotron de l'électron  $\omega_{\text{cyclotron}}$  et la fréquence des micro-ondes  $\omega_{\text{micro-ondes}}$  :

$$\omega_{\text{cyclotron}} = \frac{e}{m_e} |B_{\text{ECR}}| = \omega_{\text{micro-ondes}}$$

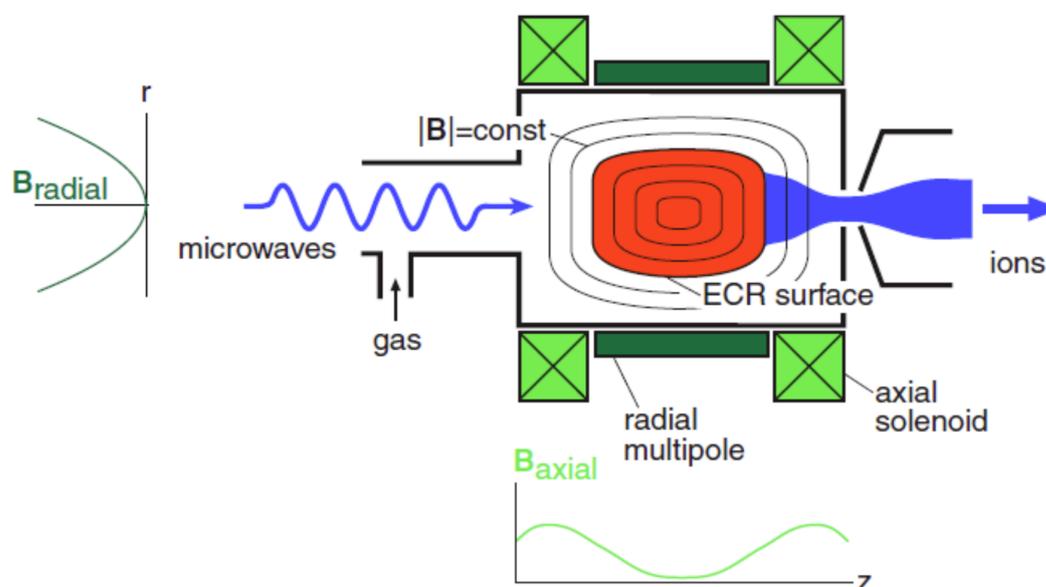
avec  $|B_{\text{ECR}}|$  le champ produit par la bouteille dans une région de la chambre à plasma,  $e$  la charge de l'électron et  $m_e$  sa masse. La chambre à plasma est dans un tube métallique, qui fait également office de cavité micro-onde multimode. Le principe de fonctionnement d'une source ECR est présenté dans la Fig. III.5. Dans le cas de SIMPA, la source a été développée par l'entreprise PANTECHNIK, avec le modèle d'aimants permanents SUPERNANOGAN, qui utilise des micro-ondes d'une fréquence de 14.5 GHz.

Dans la source SIMPA, la puissance micro-onde, qui peut atteindre 2 kW, est injectée dans la chambre à plasma par une fenêtre étanche en quartz transparente aux micro-ondes depuis un klystron par un guide d'onde monofréquentiel. L'aimant permanent de la source produit un champ maximal de 1.3 T. La bouteille magnétique est créée à l'aide de deux aimants, permettant le confinement longitudinal du plasma, à l'aide d'une structure de champs possédant un minimum. Cette structure de champ est appelée structure minimale de champ B. Le confinement radial du plasma est assuré par une structure d'aimants hexapolaire.

Pour la production du plasma, du gaz est injecté initialement, jusqu'à atteindre une pression de quelques  $10^{-5}$  mbar. Deux types de gaz peuvent être injectés : le gaz principal, qui est le gaz d'intérêt, dont on souhaite faire une mesure ; et un gaz de support, plus léger, utilisé pour fournir des électrons pour ioniser les atomes du gaz principal et stabiliser le plasma. Des électrons supplémentaires sont injectés dans la chambre à plasma à l'aide d'un tube en cuivre, sur lequel on applique une tension négative par rapport à la chambre à plasma. Le plasma est allumé par l'injection de micro-ondes du klystron. Pour extraire les ions, la source est polarisée à 10 kV, puis un dipôle permet de faire une sélection en fonction du rapport  $q/m$ , c'est-à-dire du rapport entre la charge et la masse de l'ion extrait.

L'optimisation de la source est un élément clé pour la mesure d'ions très chargés. En effet, il faut s'assurer de produire un maximum d'ions très chargés, dont le cortège électronique n'est pas à l'état fondamental. En effet, dans le cas de l'étude des ions

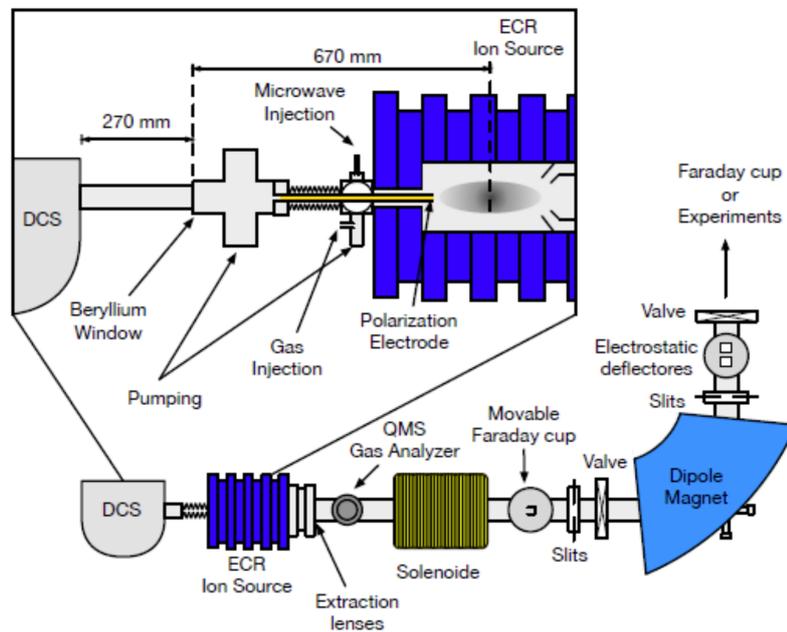
FIG. III.5 Configuration d'une source d'ions ECR. Les électrons du plasma sont piégés dans une structure à champ minimum  $B$  et sont chauffés par des micro-ondes en résonance avec la surface magnétique du cyclotron électronique. Image et légende tirées de la Ref. [38] ©2002 Springer.



boronoïdes, la production principale se fait par l'ionisation en couche interne d'un ion à six électrons dans l'état  $1s^2 2s^2 2p^2$  afin d'obtenir l'état électronique  $1s 2s^2 2p^2$  (illustré en figure III.7). Ainsi, le choix de la fréquence des micro-ondes, la gestion de la puissance injectée et de la pression de gaz sont déterminants dans la manipulation de la source [172].

Dans notre cas, la fréquence des micro-ondes est fixée par le klystron. L'injection de gaz dans la chambre à plasma, ainsi que de la puissance des micro-ondes, visent à optimiser plusieurs paramètres tels que la densité d'ions dans le plasma, l'état de charge moyen ainsi que la température électronique. Pour cette source, nous utilisons le courant extrait de la chambre à plasma comme grandeur à optimiser, à l'aide du dipôle pour la sélection en état de charge, et d'une coupe de Faraday pour en mesurer le courant extrait. On mesure les états de charges extraits à l'aide d'un spectre, effectué en balayant le champ magnétique du dipôle, focalisant sur la coupe de Faraday un faisceau d'ions de ratio  $q/m$  choisi. Cette optimisation vise également à produire un plasma le plus stable possible, afin de limiter les variations d'émission d'ions ou de rayons X pendant les mesures. Ce courant extrait permet également d'estimer la distribution des états de charge des ions produits dans la source, ce qui permet une optimisation par maximisation du courant d'extraction de la source des ions les plus chargés. Pour le soufre et l'argon, la source est généralement optimisée à l'aide des ions à cinq électrons ( $S^{11+}$  et  $Ar^{13+}$ ). En effet, ce rapport  $\frac{q}{m}$  permet de les séparer des contaminants éventuellement présents dans la source. Le courant extrait typique pour cet état de charge est de  $15 \mu A$ . Afin de mesurer les rayons X produits dans la source, un spectromètre est installé sur la source, comme présenté en figure III.6.

FIG. III.6 Vue globale de l'ECRIS SIMPA, avec le spectromètre à double cristal (DCS) installé sur le côté gauche pour effectuer la spectroscopie rayons X. Sur le côté droit, une partie du plasma peut être extraite et un état de charge spécifique peut être sélectionné pour réaliser des expériences ou pour analyser la présence d'un état de charge spécifique dans le plasma. Dans la partie zoomée, la distance entre le DCS et le plasma ainsi que la fenêtre de béryllium sont visibles. Figure et légende tirées de la Ref. [171] ©Jorge Felizardo Dias Cunha Machado, Faculté des sciences et de la technologie, Université NOVA de Lisbonne et Université Pierre et Marie Curie.



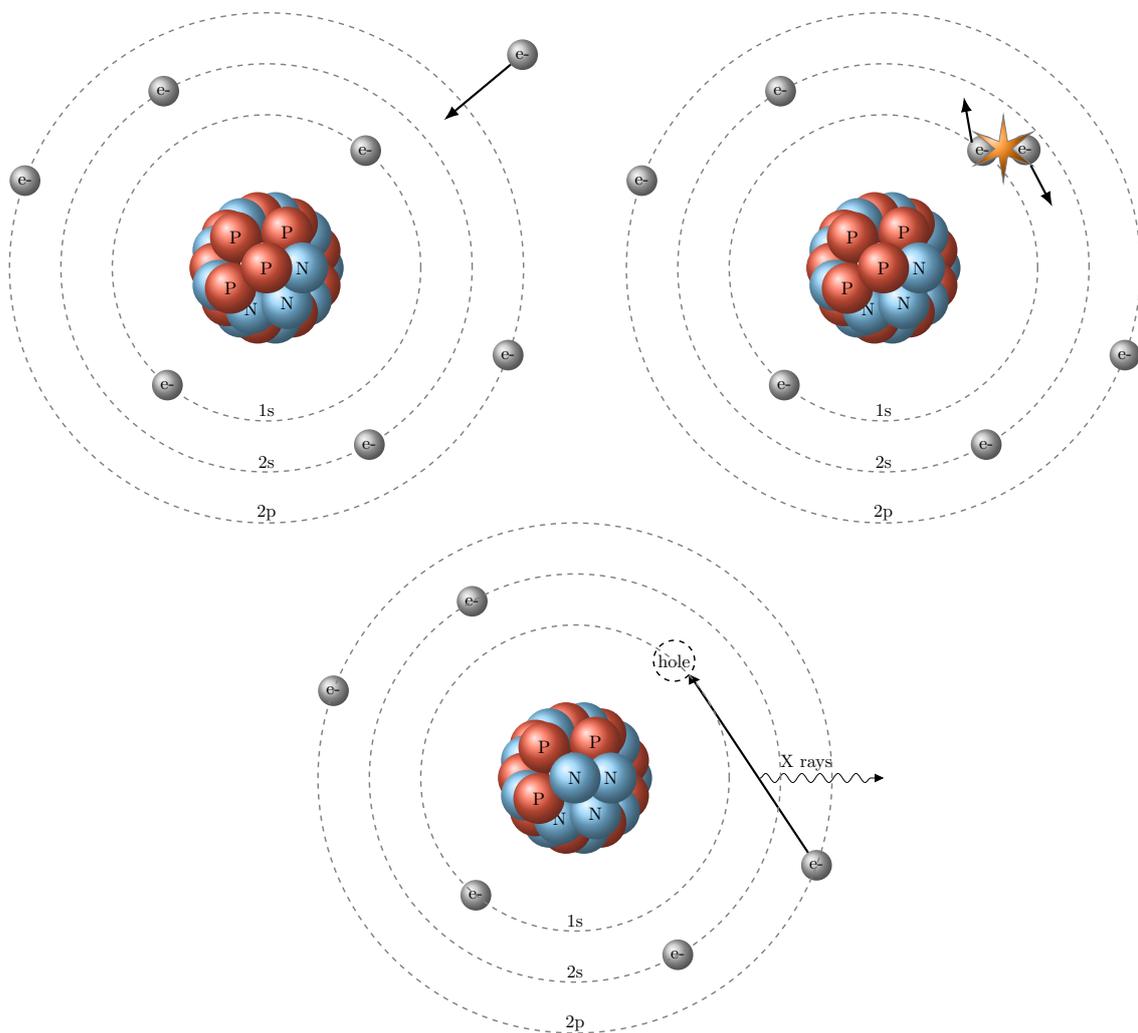
### III.3 Le Spectromètre à Double Cristal

Le spectromètre à doubles cristaux plans (Double Crystal Spectrometer – DCS) est un type de spectromètre à cristal, dont le principe se fonde sur la diffraction de Bragg. La diffraction de Bragg (rappelée à l'Eq. (III.1)) a été découverte par le tandem père fils W.H. et W.L. Bragg [118]. Lorsque la longueur d'onde d'une onde électromagnétique est proche de la distance interréticulaire d'un cristal, l'onde interagit avec les différents plans cristallins. Une interférence constructive entre les ondes diffusées par des atomes des différents plans cristallins se met alors en place, imposant une direction de diffraction pour l'onde :

$$n\lambda = 2d \sin \Theta_B, \quad (\text{III.1})$$

où  $n$  est l'ordre de réflexion,  $\lambda$  est la longueur d'onde incidente,  $d$  la distance interréticulaire du cristal et  $\Theta_{\text{Bragg}}$  l'angle de Bragg associé.

FIG. III.7 *Processus d'ionisation par impact électronique. Un électron incident énergétique arrive dans la couche électronique d'un atome. L'électron percute un électron de la couche électronique et l'éjecte en repartant. Ici, cette ionisation laisse un trou en couche interne, comblé par un électron externe qui émet un photon X.*



Les cristaux ont une distance interréticulaire typique de l'ordre de quelques Å, ce qui se traduit par le fait que les réflexions au premier ordre sur les cristaux ont pour ordre de grandeur quelques keV. Toutefois, il est possible d'utiliser la diffraction de Bragg à de plus hautes énergies, en prenant avantage des réflexions d'ordre supérieur ( $n > 1$ ).

Le DCS est équipé de deux paires de cristaux, ce qui lui permet de couvrir une gamme étendue d'énergie et de réaliser les mêmes mesures avec différents cristaux. La limite inférieure d'énergie  $E_{\min}$ , associée à une longueur d'onde  $\lambda$ , est déterminée par la condition de Bragg avec  $\sin(\Theta_{\text{Bragg}}) = 1$  (Eq. (III.1)) i.e.,  $\lambda = 2d$ . Avec la formule  $E = hc/\lambda$  avec  $h$  la constante de Planck et  $c$  la vitesse de la lumière, on obtient  $E_{\min} = \frac{hc}{2d}$ . Ainsi, en utilisant un cristal de silicium (111) ( $d = 3.135\,601\,047(38)$  Å), voir la section III.3.1 pour le détail sur les cristaux), l'énergie minimale mesurable par le DCS est d'environ 1980 eV. Pour un cristal (220) ( $d = 1.920\,155\,651(23)$  Å), cette limite monte à environ 3230 eV. Pour la diffraction de Bragg, il n'y a pas de limite supérieure d'énergie tant que la condition  $\sin(\Theta_{\text{Bragg}}) = \frac{\lambda}{2d} > 0$  est satisfaite. Cependant, à haute énergie,  $\Theta_{\text{Bragg}} \ll 1$ , donc  $\Theta_{\text{Bragg}} \simeq \lambda/2d$ . En convertissant de nouveau les longueurs d'onde en énergie, on obtient  $\Theta_{\text{Bragg}} \sim \frac{hc}{2dE}$ . Ainsi, la sensibilité en angle  $\frac{\partial \Theta_{\text{Bragg}}}{\partial E} \sim -\frac{hc}{2dE^2}$ , ce qui indique que la dispersion en énergie du DCS diminue lorsque l'énergie augmente. Pour contrer cet effet, il est possible d'utiliser la diffraction de Bragg à un ordre supérieur ( $n > 1$ ). De plus, à mesure que l'énergie des rayons X augmente, les cristaux deviennent plus transparents, diminuant l'efficacité de l'instrument, ce qui nécessite une attention particulière lors de la sélection du cristal pour les mesures à haute énergie [173, 174].

Les deux cristaux, ainsi que d'un détecteur de photons sont montés sur une plaque tournante. Le premier cristal est fixé et positionné pour permettre aux photons d'atteindre le second cristal [147]. L'ajout d'un second cristal permet, pour une onde d'énergie donnée, d'obtenir deux positions auxquelles les photons diffractent sur les deux cristaux. Ces deux positions sont appelées positions non dispersives et dispersives en énergie, comme montré en figure III.8. La position non dispersive est obtenue lorsque les deux cristaux sont parallèles. Dans ce cas, tous les photons qui ont diffracté sur le premier cristal arrivent sur le plan du second cristal [82, 165] avec un angle correspondant à leur angle de Bragg. Comme ceci est vrai pour toutes les énergies, cette configuration des cristaux est non dispersante en énergie, d'où elle tire son nom. Dans la notation d'Allison [175], cette position est notée (n,-n), indiquant que chaque cristal renvoie les photons dans une direction opposée.

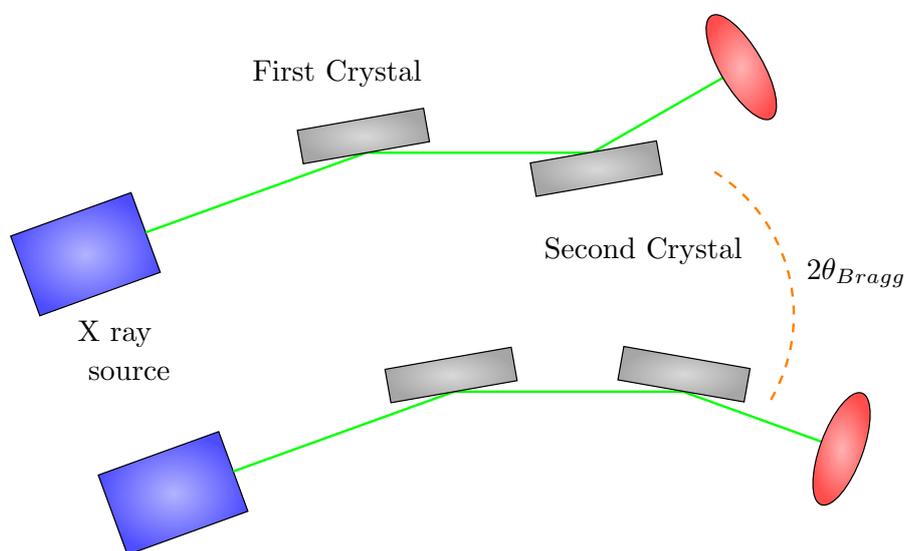
La position dispersive est obtenue en tournant le second cristal de manière que les photons ayant un angle de Bragg choisi arrivent avec un angle égal à leur angle de Bragg par rapport au second cristal. Dans la notation d'Allison, cette configuration est notée (n, n). Les positions exactes de ces deux configurations sont obtenues en balayant la position du second cristal autour de ces deux valeurs.

La différence d'angle entre les positions dispersive et non dispersive du second cristal est de  $2\Theta_{\text{Bragg}}$  (voir figure III.8), ce qui définit l'angle de Bragg pour la géométrie du spectromètre à double cristal plan (DCS) selon l'équation suivante :

$$\Theta_{\text{Bragg}} = 180^\circ - (\theta_{\text{disp}} - \theta_{\text{non disp}})/2, \quad (\text{III.2})$$

où  $\theta_{\text{disp}}$  et  $\theta_{\text{non disp}}$  sont les angles lorsque le second cristal est en position dispersive et en position non dispersive, respectivement. Cette formule [154] est issue d'un modèle simplifié qui ne prend pas en compte la géométrie précise du cristal, la réponse des atomes

FIG. III.8 Principe de fonctionnement du DCS. La configuration non dispersive est en haut, et la configuration dispersive en bas. La différence d'angle du second cristal est égale à  $180^\circ - 2\theta_{\text{Bragg}}$ .



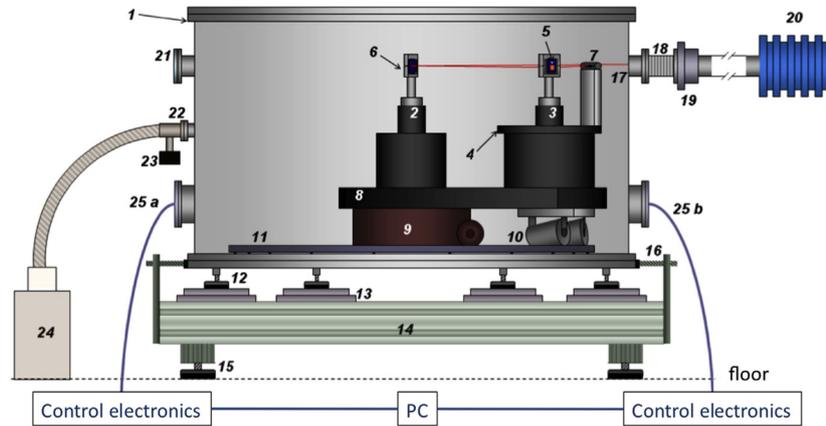
du réseau cristallin, ni la bidimensionnalité du cristal. Ces aspects seront discutés plus en détail dans le manuscrit.

La conception mécanique du DCS est délicate en soi. En effet, la source étant fixe, tout le système doit être capable de se déplacer autour d'un axe tout en assurant un alignement constant de la table et des cristaux. Cette conception est différente de la plupart des spectromètres à double cristaux [153, 176, 177]. Les deux cristaux sont rendus mobiles grâce à une table sur laquelle ils sont montés avec leurs moteurs. La table a une épaisseur de 6 cm et une masse d'environ 180 kg, et son axe de rotation est aligné sur celui du premier cristal. La mise en mouvement de la table est assurée un axe tournant manuel. Pour éviter que la table ne soit en porte-à-faux, l'extrémité de celle-ci repose sur deux roues coniques métalliques qui appuient sur un rail métallique. Pour assurer un contact parfait des roues sans surcharger le moteur et sans qu'une des roues soit en l'air, le rail métallique est ajusté avec précision à l'aide de vis sur toute sa longueur, ajusté à quelques centièmes de millimètre près. La chambre est montée sur une structure en profilé équipée de pieds anti-vibration. Plusieurs étages de translation ont été installés sur cette structure pour aligner le spectromètre sur l'axe de la source.

La stabilité à long terme des éléments mécaniques est essentielle. L'alliage utilisé pour la table et les supports des cristaux est un alliage d'acier inoxydable LK3 (1.8 % Cr, 1 % Al, 0.4 % C, 0.25 % Mo), traité par nitruration pour augmenter sa dureté et sa résistance à l'usure. Ce matériau a été soumis à un traitement thermique à 825 °C pour relâcher ses contraintes mécaniques. Les surfaces des supports et de la table ont été rectifiées à 2  $\mu\text{m}$ .

La chambre doit être maintenue sous vide afin de permettre la transmission des rayons X jusqu'aux cristaux, car une fois sous vide primaire, l'absorption des rayons X est négligeable. Un vide de quelques  $10^{-3}$  mbar est nécessaire au bon fonctionnement de la source et du DCS pour éviter le claquage de Paschen, car le détecteur et la source sont polarisées

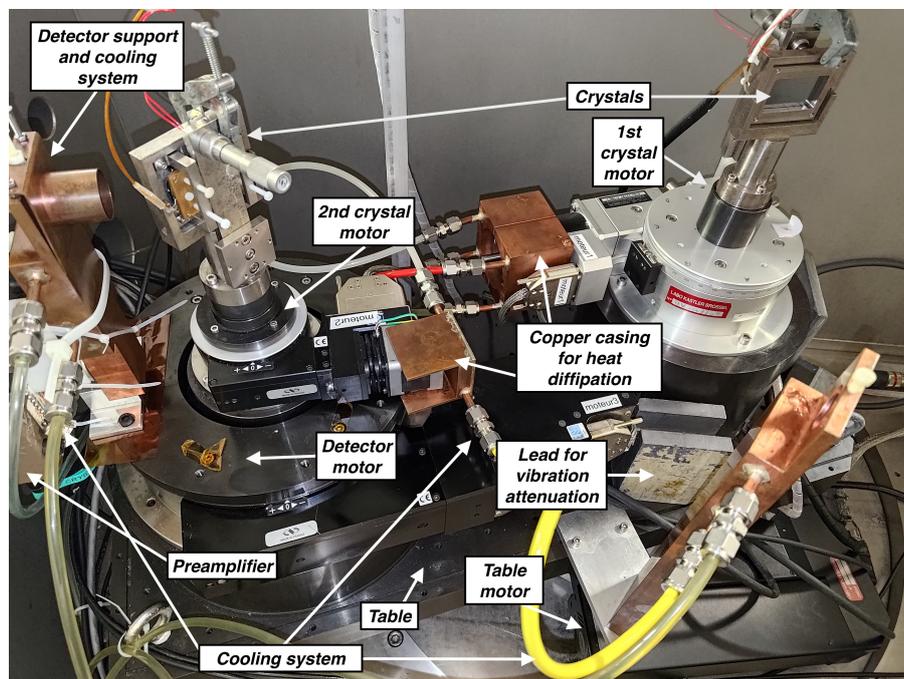
FIG. III.9 Configuration du spectromètre : (1) chambre à vide; (2) axe #1 (premier support de cristal avec plateau de rotation et encodeur angulaire); (3) axe #2 (deuxième support de cristal, plateau de rotation, encodeur); (4) plateau de rotation du détecteur de rayons X; (5) cristal sur le deuxième axe; (6) support de cristal du premier axe; (7) détecteur de rayons X; (8) table du spectromètre; (9) plateau de rotation de la table du spectromètre; (10) roues coniques; (11) rails pour les roues; (12) pieds anti-vibration de la chambre à vide avec positionnement vertical; (13) étages de translation; (14) table de support du spectromètre; (15) pieds anti-vibration avec positionnement vertical; (16) vis de positionnement; (17) entrée des rayons X; (18) soufflet; (19) fenêtre de béryllium; (20) SIMPA ECRIS; (21) fenêtre optique; (22) raccordement du soufflet à la pompe à vide; (23) manomètre et vanne; (24) pompe à vide primaire; (25) brides a et b équipées de passages pour les câbles et l'eau de refroidissement. Image et légende tirées de Ref. [165].



à quelques kV. La table est montée à l'intérieur d'une grande chambre métallique dans laquelle elle peut librement tourner. Un schéma du DCS est montré en figure III.9.

Outre le moteur de la table, les deux cristaux et le détecteur sont montés sur une platine de rotation motorisée, chacun associé à un encodeur. Lors des mesures présentées dans ce manuscrit, les moteurs étaient contrôlés par un Newport ESP-301-3G, capable d'effectuer des micro-pas de  $0.017''$  (environ  $5 \times 10^{-6}^\circ$ ). Le premier cristal est équipé d'un moteur Huber 410/410A, le second d'un Newport RV80 et le détecteur d'un Newport RV240. Les encodeurs mesurent la position absolue du moteur à l'aide de deux verres gradués, éclairés par une diode électro-luminescente (DEL). Ces verres ont deux graduations de période spatiale égale, décalées l'une par rapport à l'autre qui module la luminosité transmise à travers ces verres. La luminosité transmise est alors détectée par une photodiode, et le nombre d'alternances entre franges sombres et franges lumineuses donne le déplacement relatif de l'encodeur. Les verres possèdent une marque de référence qui définit un point zéro pour l'encodeur, à partir duquel le positionnement du moteur est mesuré. L'angle du premier cristal est encodé par un encodeur Heidenhain ROD800, avec une précision de  $1''$  (environ  $2.7 \times 10^{-4}^\circ$ ), lu par une carte Heidenhain IK220 connectée à un ordinateur. L'angle du second cristal est mesuré à l'aide d'un Heidenhain RON905,

FIG. III.10 Photo de la table DCS. Le détail de l'installation est légendé sur la photo. L'axe tournant manuel a été remplacé par un moteur (voir sec III.4).



avec une précision de  $0.2''$  ( $5.6 \times 10^{-5}^\circ$ ), contrôlé par un Heidenhain AWE1024. Ce dernier permet l'utilisation des deux encodeurs du RON905, multipliant ainsi par deux la précision de l'encodage. La description détaillée de ce DCS peut également être trouvée dans les thèses de Schlessler [178], Amaro [179], Guerra [180], Machado [171], dans la Ref. [165], ainsi que dans la Fig. III.10.

### III.3.1 Les Cristaux du DCS

Comme mentionné précédemment, une mesure précise par un DCS nécessite une connaissance exacte de la distance interréticulaire des cristaux. Pour nos mesures, nous avons utilisé deux paires de cristaux, chacun mesurant  $6 \times 4 \text{ cm}^2$  avec une épaisseur de 6 mm. Les premiers cristaux avaient une surface perpendiculaire au plan cristallin avec un indice de Miller (111), tandis que les seconds avaient un indice (220). Tous proviennent de la même pousse de silicium, garantissant une pureté et une absence de défauts inférieure à  $10^{-8}$  [181]. Ils ont été fabriqués pour le DCS de Paris par le NIST à partir d'une boule de silicium de Wacker-Siltronic. Les cristaux ont été découpés et polis à l'aide d'une solution colloïdale, afin que l'angle entre leur surface et les plans cristallins soit inférieur à  $10''$  à  $22.5^\circ\text{C}$ , puis traités à l'acide fluorhydrique pour éliminer les résidus et imperfections de surface.

Une boule de test, appelée « delta- $d$  », a été spécialement préparée pour le spectromètre du NIST [173] à partir de la même pousse de silicium que celle utilisée pour fabriquer les cristaux du DCS. La séparation entre les coupes des cristaux et de la boule de test a été minimisée afin de réduire l'influence des variations de la distance entre les plans

cristallins au sein de la boule sur la détermination de la distance interréticulaire des cristaux. Même si les distances interréticulaires entre les deux coupes sont identiques, une incertitude relative de  $10^{-8}$  est incluse dans la détermination de cette distance pour prendre en compte la fluctuation de densité au sein de la pousse [165, 174]. Le cristal de test a ensuite été comparé à un cristal de référence provenant de la boule WASO04, également produite par Wacker-Siltronic. Cette boule de silicium, presque pure, a été caractérisée dans le cadre du Projet International Avogadro. La comparaison des distances interréticulaires, ainsi que les variations au sein de la boule, a eu lieu du 9 au 23 janvier 2006 [159, 182]. La distance interréticulaire du cristal (220), mesurée dans le vide à  $22.5^\circ\text{C}$ , est de  $d_{(220)} = 1.920\,155\,651(23)\text{ \AA}$ . Celle du cristal (111) est obtenue en multipliant  $d_{(220)}$  par  $\sqrt{8/3}$ , ce qui donne  $d_{(111)} = 3.135\,601\,047(38)\text{ \AA}$ . Cette mesure permet de relier la distance interréticulaire à la définition même du mètre [183], garantissant que les mesures de longueur d'onde effectuées par le DCS ne dépendent d'aucune référence externe.

Toutefois, lors des mesures, la température était fixée à  $22.5^\circ\text{C}$ , sous vide ( $>1\text{ mbar}$ ), sans humidité. Or la mesure de la distance interréticulaire du cristal de référence a été mesurée à  $20^\circ\text{C}$ . La dilatation thermique du cristal peut être corrigée en utilisant :

$$\frac{\Delta d}{d} = \eta_0(T - 20^\circ\text{C}) + \eta_1(T - 20^\circ\text{C})^2, \quad (\text{III.3})$$

où  $T$  est la température du cristal en  $^\circ\text{C}$ ,  $\eta_0 = 2.5554 \times 10^{-6} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$  et  $\eta_1 = 4.58 \times 10^{-9} \text{ }^\circ\text{C}^{-2}$  respectivement les coefficients de dilatation à l'ordre 1 et 2 [184]. La correction dû à la compressibilité des cristaux est :

$$\frac{\delta d}{d} = -\epsilon p,$$

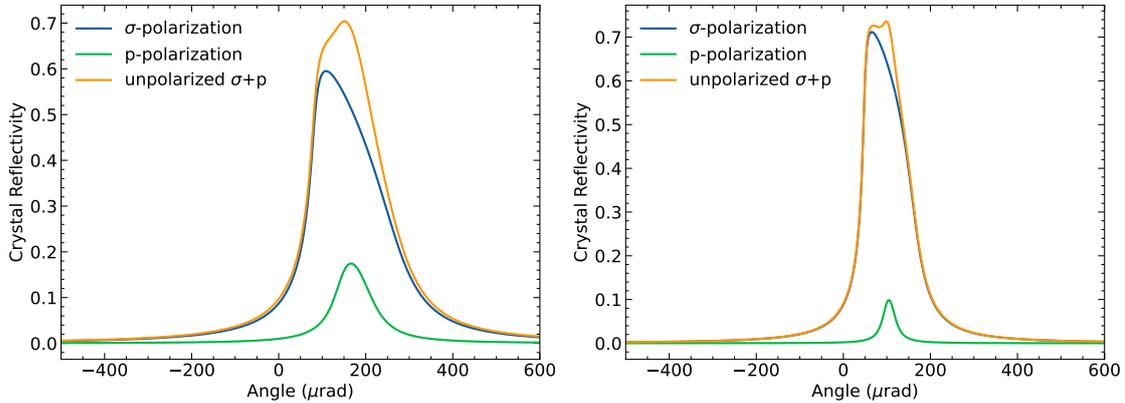
avec  $p$  la pression du laboratoire en atmosphère et  $\epsilon = 3.452 \times 10^{-7} \text{ atm}^{-1}$  [185, 186]. Cette correction est négligeable, dès lors que l'on est en dessous du  $10\text{ mbar}$ .

### III.3.2 La Diffraction par des Cristaux

La diffraction d'un photon par un cristal dépend à la fois de sa composition et de l'énergie du photon. Lorsqu'on considère la diffraction sur une maille cristalline finie, comprenant des atomes de dimensions non négligeables, cela engendre un élargissement de la réponse du cristal autour de l'angle de Bragg. Ce phénomène est décrit de manière approfondie par la théorie dynamique de la diffraction [187]. Les résultats de ces calculs, appelés profils de réflectivité (ou fonctions de réponse), sont essentiels pour analyser les données du spectromètre à double cristal (DCS) et sont généralement obtenus à l'aide du paquet logiciel XOP (*X-ray Oriented Program*). Pour mes propres travaux, j'ai utilisé les interfaces Python XOPPY [188] et xraylib [189], qui sont des ports Python du logiciel XOP [190, 191]. La Fig. III.11 montre un exemple de profil de réflectivité pour un cristal de Si (110), à des énergies de  $2395\text{ eV}$  et  $3065\text{ eV}$ . Ces énergies ont été sélectionnées, car elles correspondent aux transitions calculées pour le soufre et l'argon à cinq électrons, spécifiquement  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$ .

Le calcul de la réponse des cristaux est cruciale pour comprendre comment les propriétés du cristal influencent la détection et l'analyse des rayonnements X dans le DCS. Comme le montre la figure III.11 le profil de réponse du cristal présente une asymétrie.

FIG. III.11 Profils de réflectivité de  $1s2s^22p^2 J \rightarrow 1s^22s^22p J'$  pour le soufre boronoïde (à gauche) et l'argon boronoïde (à droite). Le profil est calculé grâce à la bibliothèque Python XOPPY [188, 190, 191]. Le profil de réflectivité prend en compte l'absorption à l'intérieur du cristal. La différence d'absorption pour la polarisation  $p$  modifie la forme de la réponse du cristal.



Cette asymétrie est principalement due à l'absorption des photons pour une polarisation  $\sigma$ , c'est-à-dire une polarisation verticale alignée sur l'axe de rotation du cristal. Chaque cristal présente ce type de profil asymétrique. Dans le cas du spectre non dispersif, les réponses des deux cristaux se symétrisent, car les rayons sont réfléchis de manière opposée. En revanche, dans le cas du spectre dispersif, la réponse est convoluée dans le même sens, accentuant ainsi l'asymétrie du profil. Cette caractéristique est exploitée pour étudier et comparer les différentes réponses théoriques des cristaux [166].

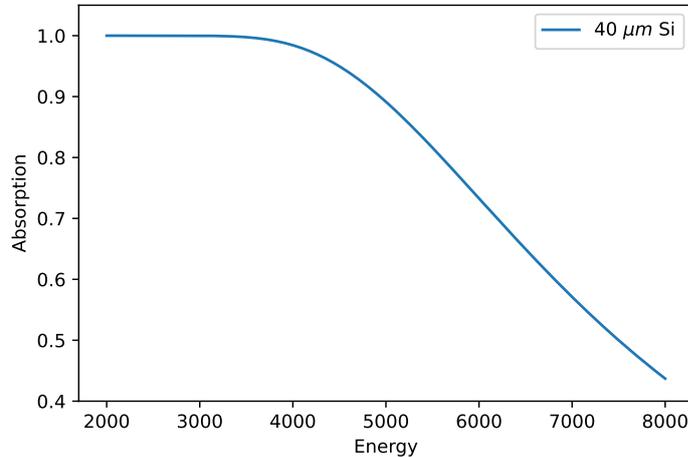
De plus, la réponse du cristal n'est pas centrée exactement sur l'angle de Bragg en raison d'un indice de réfraction non nul du matériau. Ce décalage est inclus dans le calcul de la courbe de réflectivité, en considérant les effets de l'indice de réfraction du silicium pour les énergies étudiées. Comme pour les réseaux, la polarisation  $p$  (polarisation dans le plan d'incidence du rayon) est moins réfléchi par le cristal. Comme la source de rayons X n'offre aucun contrôle sur la polarisation des rayons incidents, on considère que les deux polarisations sont réparties de manière équitable. Les travaux de Guerra [192] ont permis de démontrer que la source génère une lumière non polarisée, avec une incertitude associée autour de 3 keV d'environ 1 meV.

La forme particulière de la réponse du cristal est intégrée dans l'analyse grâce à des simulations *ab initio* développées par Amaro [165]. Ces simulations incluent les paramètres géométriques du DCS, la courbe de réflectivité du cristal et les caractéristiques des rayons X incidents.

### III.3.3 Système de Détection et Électronique

Le détecteur de photon du DCS est monté sur un moteur Newport RV240 pour permettre sa mobilité autour de l'axe de rotation du second cristal (voir figure III.9 pour son placement, et figure III.10 pour l'axe du cristal). Le détecteur consiste en une photodiode à avalanche de grande surface (LAAPD) fabriquée par Advance Photonics. Cette photodiode fonctionne avec une tension de polarisation d'environ 2000 V, contrôlée par un mo-

FIG. III.12 Absorption de silicium, pour une épaisseur de  $40\ \mu\text{m}$ . En dessous de  $4\ \text{keV}$ , l'absorption est presque de  $100\%$ .



dule ORTEC 659. Optimisée pour l'infrarouge, elle est refroidie à environ  $-20\ ^\circ\text{C}$  à l'aide d'un dispositif de réfrigération pour la mesure des rayons X. Fernandes *et al.* [193, 194] a démontré l'efficacité des LAAPD pour les rayons X sous condition de refroidissement, crucial pour obtenir une résolution optimale. La photodiode en silicium est directement exposée à l'air, sans fenêtre, permettant de détecter les plus basses énergies ( $\approx 2\ \text{keV}$ ). Lorsqu'un photon est absorbé, il transfère de l'énergie à des électrons de la bande de valence vers la bande de conduction, générant une charge proportionnelle à l'énergie du photon. L'efficacité quantique des LAAPD est de  $45\%$  à  $8\ \text{keV}$  [194] et  $\approx 100\%$  à  $2\ \text{keV}$ . La courbe d'absorption du silicium est montrée en figure III.12.

Le signal de la photodiode est amplifié par un préamplificateur bas bruit ORTEC 142IH, adapté pour le fonctionnement sous vide afin de minimiser le bruit. Le préamplificateur collecte, amplifie et intègre la charge générée par la photodiode. Ce signal est une tension qui monte rapidement (en quelques ns) et décroît lentement (en quelques ms). Ensuite, le signal est traité par un amplificateur spectroscopique ORTEC 572A, en un pic Gaussien, dont l'amplitude est proportionnelle à l'aire du signal entrant, et donc de la charge déposée dans le détecteur. Ce signal est envoyé à un analyseur à canal temporel simple (TIMING SCA) ORTEC 551. Ce module génère un signal TTL lorsque la tension du signal d'entrée se situe dans une plage de valeur définie. Il est possible de configurer les seuils haut et bas pour sélectionner une fenêtre d'énergie spécifique. En mode fenêtré, une tension jusqu'à  $1\ \text{V}$  au-dessus du niveau bas génère un TTL, permettant de sélectionner avec précision une plage d'énergie correspondant à celle mesurée et améliorant le rapport signal sur bruit. Cette fonctionnalité est cruciale pour éliminer le bruit associé aux LAAPD à basse énergie et au rayonnement de freinage des électrons de la source à haute énergie (bremsstrahlung). Les photons comptés par le TIMING SCA sont ensuite traités par une carte d'acquisition NI 6602 de National Instruments. La chaîne de traitement du signal est illustrée dans la Fig. III.13. L'expérience est contrôlée par un logiciel développé par Le Bigot, utilisant LabVIEW™. Les moteurs sont interfacés à l'aide d'une librairie

LabVIEW™, permettant la lecture de l'encodeur du premier cristal via la carte IK220 et du second cristal via le port GPIB (General Purpose Interface Bus) du contrôleur Heidenhain AWE1024. Pendant la prise de données, le premier cristal reste immobile, avec un algorithme de correction activé en cas de déviation de position. Lorsque le premier cristal est trop loin de la position désirée, l'acquisition s'arrête jusqu'à ce que l'angle soit corrigé. Le second cristal est, lui, manipulé afin de balayer à vitesse constante une plage angulaire prédéterminée. Cette plage est divisée en classes de largeur égale pour construire un histogramme. Pour chaque position du second cristal, le nombre de photons reçus est accumulé dans chaque classe. Pour normaliser les données en fonction du temps passé dans chaque classe, le compte de photons est divisé par le temps effectivement passé dans cette classe. Un exemple de spectre normalisé est présenté dans la Fig. III.14.

### III.3.4 Préparation du détecteur

Pour préparer le détecteur et optimiser la sélection en énergie grâce au Timing SCA (ORTEC 551), un premier étalonnage du détecteur est effectuée à l'aide de sources radioactives. Le détecteur est étalonné à l'aide de deux sources spécifiques :  $^{55}\text{Fe}$  et  $^{109}\text{Cd}$ . Ces sources radioactives sont choisies, dans le cadre de l'étalonnage du LAAPD, non pas pour leur rayonnement  $\gamma$ , mais pour leur émission de rayons X. En effet, les mesures du DCS se faisant autour de quelques keV, les rayons  $\gamma$  des sources étalons radioactives usuelles sont trop énergétiques. Les sources choisies sont des éléments radioactifs dont le mode de décroissance est la capture électronique. Lors de la décroissance, un électron proche du noyau est capturé. Le noyau de numéro atomique  $Z$  décroît ainsi en un noyau de numéro atomique  $Z - 1$ , avec une vacance dans une couche électronique, généralement  $n = 1$  ou  $n = 2$  (voir figure III.15). Le réarrangement électronique entraîne l'émission de raies X. Ces émissions X ont été mesurées de manière systématique dans les 1980 à 1990, et compilées par Deslattes [1].

Le  $^{55}\text{Fe}$  se désintègre en  $^{55}\text{Mn}$ , émettant des raies  $K\alpha$  à 5.9 keV. Le  $^{109}\text{Cd}$  se désintègre en  $^{109}\text{Ag}$ , produisant une cascade de rayons X. Bien que les raies  $K\alpha$  de l'argent soient à 22 keV, cette énergie n'est ni mesurable par le détecteur, ni pertinente pour la calibration. Cependant, dans environ 10 % des désintégrations, l'électron capturé provient du remplissage de la couche électronique  $n = 2$  (couche L), émettant un ensemble de raies X à 3.2 keV. Cette raie, bien que moins intense, est plus proche en énergie des mesures typiques effectuées par le DCS. Elle permet également de vérifier que la limite de bruit du détecteur est inférieure à l'énergie souhaitée pour la mesure. Lorsque le liquide de refroidissement maintient le détecteur à environ  $-20^\circ\text{C}$ , la limite de bruit se situe autour de 2.2 keV. L'importance de la température du détecteur est démontrée dans la Fig. III.16, où l'on peut observer l'évolution de la résolution en fonction de la température.

Pour effectuer la calibration, un analyseur multicanaux (MCA), spécifiquement un Multiport II de Canberra, est utilisé. Le signal de sortie de l'amplificateur est divisé et envoyé dans un générateur de porte linéaire (Linear Gate Stretcher, LGS) ORTEC 542. Ce LGS génère un signal créneau de même tension que l'impulsion d'entrée. Pour filtrer le spectre par énergie, le signal est retardé au niveau de l'amplificateur ORTEC 572A, puis il est acheminé vers le MCA. Simultanément, la sortie du Timing SCA, le TTL, est dirigée vers un générateur de porte et de retard ORTEC 416 (Gate and Delay Generator, GDG). Ce dispositif permet de générer un signal de porte retardé par rapport à l'arrivée

FIG. III.13 Le système de détection DCS. Lorsqu'un photon de rayons X dépose une charge dans le détecteur, celle-ci est collectée grâce à la polarisation appliquée au détecteur. Le signal résultant, dont la surface est proportionnelle à l'énergie, est ensuite traité par un préamplificateur à faible bruit qui l'amplifie et l'intègre. Le signal devient un signal gaussien, dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie. Ce signal est encore amplifié et envoyé sur deux voies. Le premier chemin est une ligne de sélection : le signal est envoyé à un analyseur simple canal temporel (Timing SCA), qui produit une impulsion TTL si l'amplitude du signal est comprise entre deux seuils prédéfinis. Cette impulsion TTL est ensuite envoyée à un générateur de porte et de délai, qui produit un signal de porte dont la longueur et la tension sont réglables. Dans le second chemin, le signal provenant du préamplificateur est retardé et envoyé à un étreur de porte linéaire. Ce dernier génère une impulsion carrée de même tension que le signal d'entrée. Tous les retards sont ajustés pour garantir la synchronisation des deux signaux. L'analyseur multicanal (MCA) est réglé sur le mode coïncidence, ce qui permet de créer un spectre filtré pour le bruit et l'énergie.

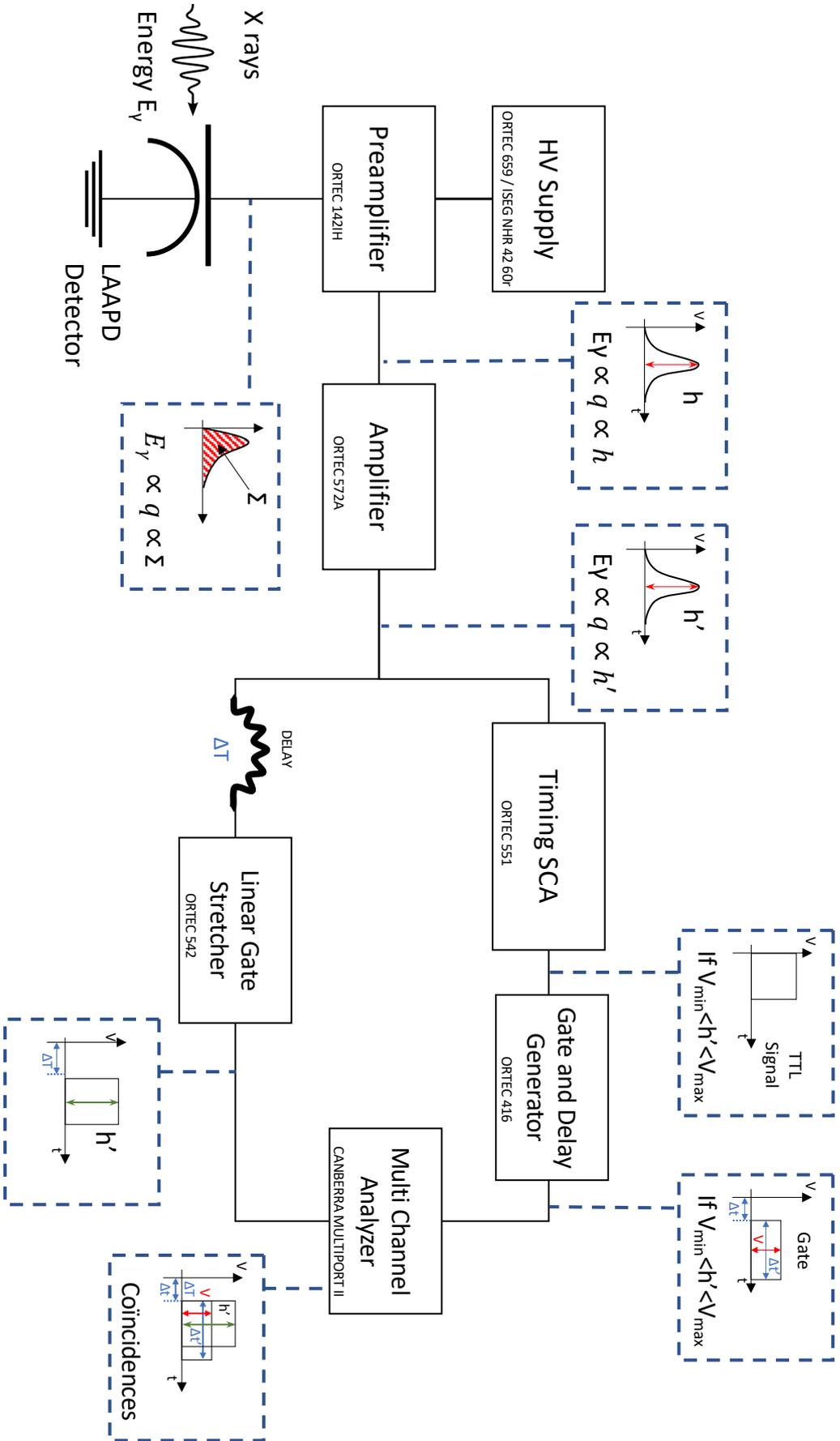
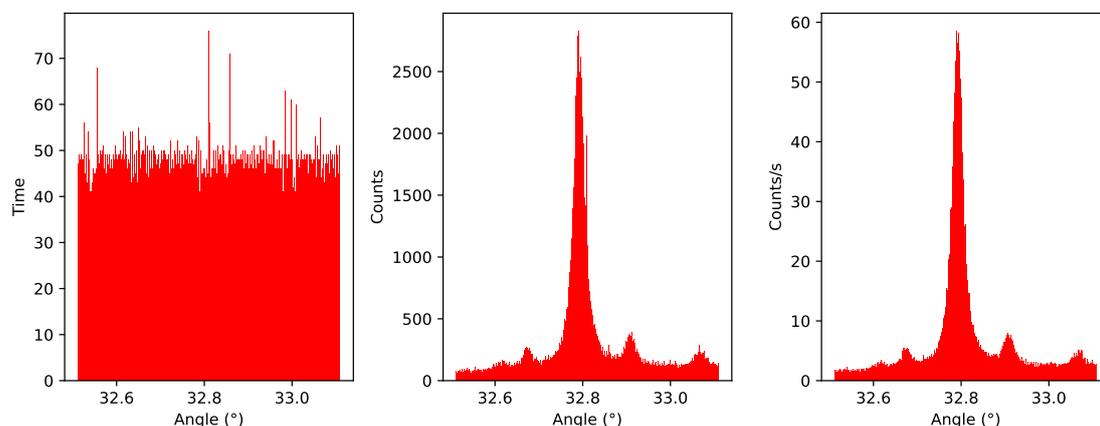


FIG. III.14 Exemple d'un spectre enregistré par le DCS à l'aide du logiciel d'acquisition Labview™. Le spectre est composé du temps passé dans chaque classe (à gauche), du nombre de coups (au milieu) et du spectre normalisé (à droite).



du TTL. La tension et la durée de la porte peuvent être ajustées et retardées à l'aide d'un oscilloscope, afin de synchroniser le signal avec celui provenant du LGS. Le détail de la chaîne d'étalonnage est illustrée en figure III.13.

Le signal provenant du GDG est connecté à l'entrée de déclenchement du MCA, tandis que la sortie du LGS est reliée à l'entrée du MCA. Le spectre est acquis à l'aide du logiciel Genie2000™ (logiciel de l'entreprise Canberra, maintenant Mirion). Le détecteur

FIG. III.15 Processus de capture de l'électron  $1s$ . L'électron est capturé par l'intermédiaire d'une interaction faible. L'électron converti laisse un trou à l'intérieur de la couche électronique, ce qui permet l'émission de rayons X, dans ce cas, un  $K_{\alpha}$  (électron  $2p$  allant dans la couche  $1s$ ). Dans environ 10 % des captures électroniques, l'électron  $2s$  peut être capturé.

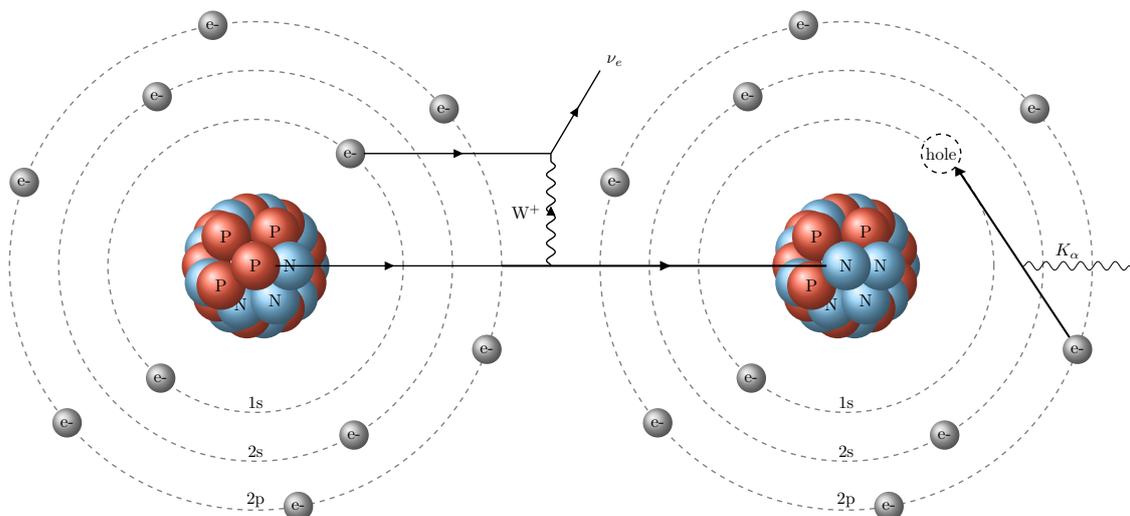
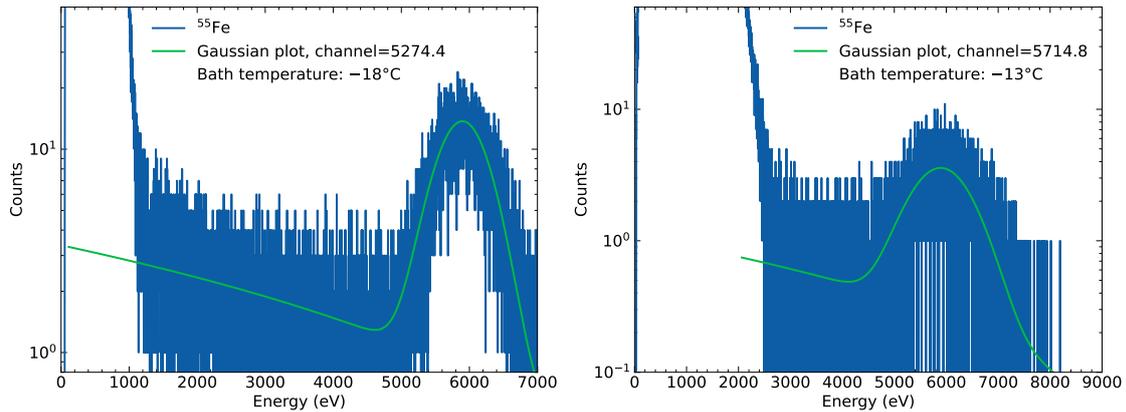


FIG. III.16 Ajustement et calibration des données LAAPD de  $^{55}\text{Fe}$ , prises en 2022 (à gauche) et 2024 (à droite). On peut voir l'influence de la température sur la queue de bruit à basse énergie et sur la résolution du pic. La valeur 5.9 keV a été ajustée avec une gaussienne et un polynôme du second ordre. Le bruit de faible énergie a été coupé pour l'ajustement. Le numéro de canal correspond à la position du pic de  $^{55}\text{Fe}$  en fonction du canal. Le spectre a été calibré linéairement.



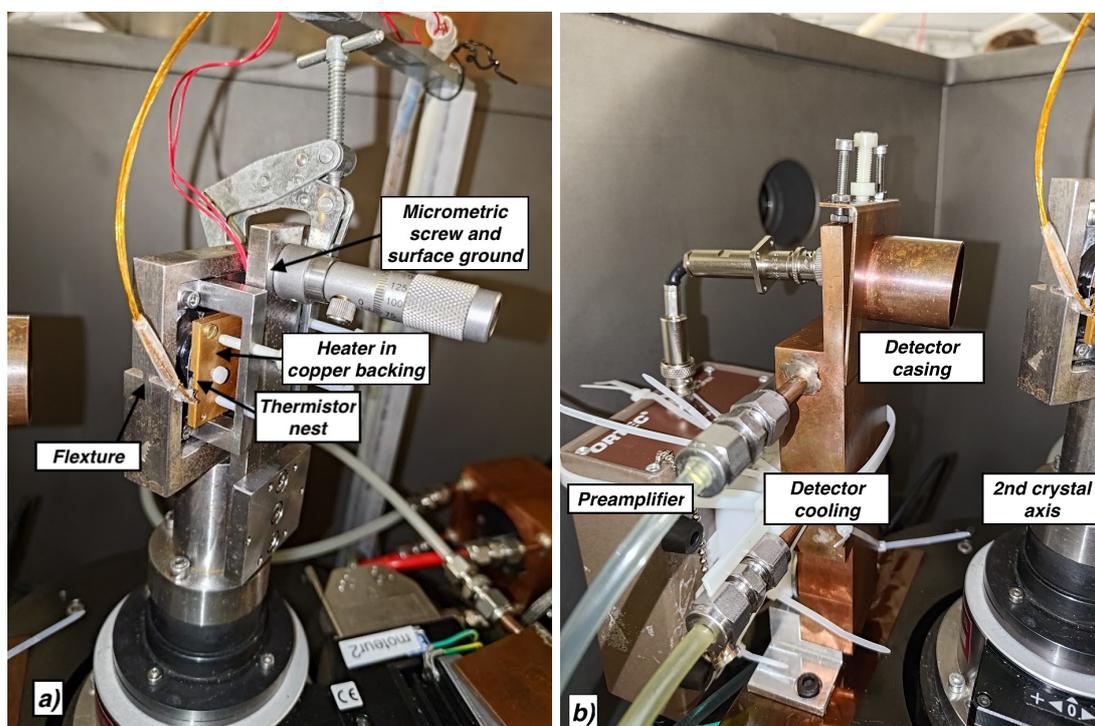
est optimisé pour maximiser la résolution et minimiser le bruit. La source de  $^{55}\text{Fe}$  est utilisée en premier, suivie de celle de  $^{109}\text{Cd}$  pour calibrer détecteur. Lors de l'acquisition de données avec le DCS, un spectre est également enregistré à l'aide du MCA. Cela permet de vérifier le bon fonctionnement de la chaîne de détection et de détecter d'éventuelles dérives du détecteur. Des spectres de calibration sont montrés en figure III.16.

### III.3.5 Stabilisation en température

Comme indiqué en Sec. III.3.1, la mesure précise de l'angle de Bragg dépend directement de la distance interréticulaire des cristaux, laquelle est affectée par la température du cristal. Pour cela, il est crucial de contrôler et de stabiliser la température des cristaux. Dans le DCS, situé sous vide, la dissipation thermique des moteurs et du préamplificateur se fait principalement par conduction à travers les parties métalliques. Cependant, cette dissipation thermique peut entraîner des fluctuations de température dans les cristaux pendant les mesures. De plus, les variations de température dans la salle d'expérience peuvent également influencer la température des cristaux au fil de la journée. Pour garantir des mesures précises et reproductibles, ces paramètres doivent soigneusement être contrôlés et surveillés.

Pour dissiper la chaleur générée par les moteurs, le système de refroidissement du détecteur est aussi utilisé en série pour refroidir les moteurs. Des blocs de cuivre creux, traversés par un liquide de refroidissement (généralement de l'éthanol à 95%), permettent d'évacuer la chaleur produite par les moteurs. Parallèlement, pour maintenir les cristaux à une température constante, ces derniers sont chauffés en continu à l'aide d'une chauffeferette placée entre deux plaques de cuivre. Une thermistance Allectra Pt100, étalonnée avec une précision de  $0.1^\circ\text{C}$ , est utilisée pour mesurer la température des cristaux. Un contact thermique efficace entre les cristaux et les plaques de cuivre est assuré par une feuille de graphite d'une épaisseur de  $100\ \mu\text{m}$ . Une sonde de température est directement

FIG. III.17 Vue rapprochée du second cristal (a) et du détecteur (b). Les détails du système sont indiqués. La thermistance Pt100 est placée entre la plaque de cuivre et le cristal. Le flexible et la vis micrométrique permettent d'ajuster la verticalité du cristal. Le détecteur est placé dans un boîtier en cuivre. Un boîtier supplémentaire a été ajouté pour réduire le bruit.



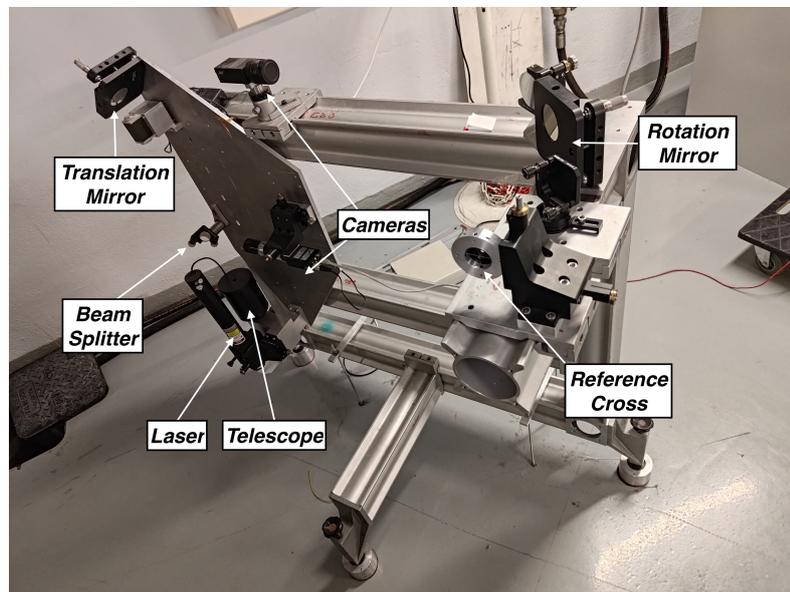
installée en contact avec chaque cristal, fixée par une vis en plastique dans la plaque de cuivre. Le système de contrôle de la température est détaillé dans la Fig. III.17. La sonde de température et la chaufferette sont connectées à un contrôleur Proportionnel-Intégrateur-Dérivateur (PID) Jumo Dicon 500. Le PID ajuste continuellement la puissance de chauffage pour maintenir la température à  $22.5\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Une boucle de rétroaction permet de réguler la puissance de la chaufferette, maintenant ainsi la température dans une plage de  $0.2\text{ }^{\circ}\text{C}$  autour de la valeur cible de  $22.5\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Des mesures de stabilité effectuées par Machado, rapportées dans sa thèse [171], montrent un écart à la consigne moyen de  $0.0005\text{ }^{\circ}\text{C}$  avec un écart-type de  $0.0346\text{ }^{\circ}\text{C}$  pour la température des cristaux. Le laboratoire est climatisé pour maintenir une température ambiante autour de  $21\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Cependant, lors des mesures pour le soufre et l'argon à cinq électrons, l'installation était dans une salle non climatisée, entraînant des fluctuations de température plus importantes sur les cristaux. Cette variabilité sera discutée en détail dans la suite du manuscrit.

### III.3.6 Procédure d'alignement

Avant chaque mesure, un alignement précis du DCS par rapport à l'axe de SIMPA est essentiel pour maximiser le flux de photons atteignant les cristaux, ainsi que d'éviter les aberrations dans la réponse instrumentale. Cet alignement prépare également les positions

de chaque composant du spectromètre afin de cibler spécifiquement une raie atomique donnée. Pour réaliser cet alignement, un théodolite équipé d'encodeurs de haute précision à l'ordre de l'arcseconde est utilisé, combiné à des mesures d'inclinaison verticale et à un banc laser, illustré en détail dans la Fig. III.18. Des croix sont disposées à plusieurs endroits le long de la ligne SIMPA et du DCS. Le laser est aligné sur deux croix fixées aux murs de la salle, représentant l'axe d'alignement de la source et du spectromètre. À l'aide de croix intégrées dans la source et le spectromètre, le laser est ajusté pour aligner précisément ces composants sur son axe. Le banc laser lui-même est aligné grâce à ces croix murales comme référence. Il est équipé de deux miroirs de haute qualité qui permettent son ajustement en rotation ou en translation par rapport à la source. Le banc comprend également une lame 50/50, un diaphragme, une croix de référence pour l'axe de la source et deux caméras dédiées : l'une pour aligner le laser par rapport à la croix de référence du banc, et l'autre pour aligner les positions absolues des moteurs des cristaux. La caméra située à côté du laser permet de contrôler l'alignement avec le faisceau réfléchi, à l'aide de la lame semi-réfléchissante, alors que la seconde caméra utilise un second miroir pour contrôler l'alignement. Les positions absolues des cristaux sont référencées à partir d'une position «0», définie lorsque les cristaux sont perpendiculaires à l'axe de la table de montage. Ce processus d'alignement minutieux garantit que le spectromètre est parfaitement positionné pour chaque mesure, assurant ainsi des résultats de haute précision.

FIG. III.18 Photo légendée du banc d'alignement. La croix est équipée d'un diaphragme pour limiter la dispersion du faisceau

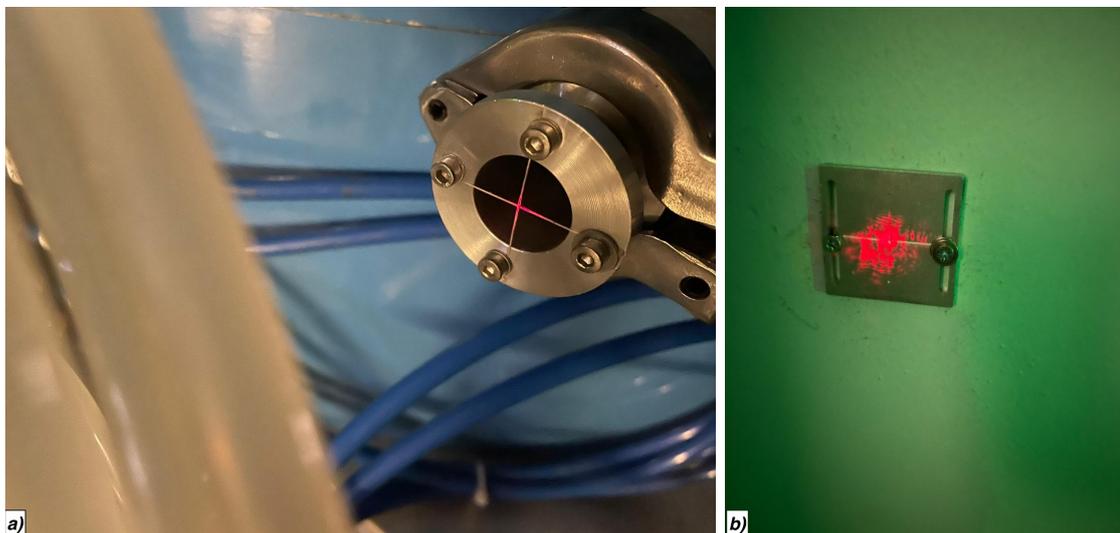


L'alignement du DCS est réalisé de la manière suivante :

- La ligne SIMPA est mise à l'air, et deux croix d'alignement sont placées : une au niveau du dipôle et l'autre au niveau de l'électrode de polarisation. L'alignement préalable de la source garantit que ces deux croix sont bien sur l'axe de la source.
- Le théodolite est positionné au niveau de la bride de sortie du DCS, pour qu'il soit

- aligné sur les mires.
- Des cibles en plastique sont insérées dans les supports des cristaux, avec deux mires supplémentaires placées dans les brides d'entrée et de sortie du spectromètre. Les cristaux sont initialement perpendiculaires à la table, et la table est ajustée pour que les mires des brides du DCS et des supports des cristaux soient alignés. Éventuellement, la position du DCS est corrigée pour assurer cet alignement.
  - Le banc laser est aligné sur la source grâce à deux miroirs présents sur le banc. Le faisceau laser est aligné sur les deux mires à l'entrée et à la sortie du DCS, puis plus précisément sur la mire à la sortie du dipôle de la ligne SIMPA et sur la croix murale (cf. Fig. III.19).
  - Les cibles en plastique sont retirées des supports des cristaux, et un miroir de haute qualité est installé dans le support du premier cristal. Ce miroir est positionné perpendiculairement à l'axe de la table. L'angle vertical de réflexion du laser sur ce miroir est ajusté à l'aide d'une pince et d'un système flexible. L'angle du moteur est également ajusté pour permettre au faisceau de retourner jusqu'au laser. L'alignement est vérifié et ajusté au besoin avec une caméra positionnée au niveau de la lame 50/50. Comme le miroir est fixé sur le support du cristal avec une précision de  $2\ \mu\text{m}$ , il peut être remplacé par le cristal sans perte d'alignement.

FIG. III.19 Laser aligné sur le réticule à l'extrémité de la sortie du dipôle (a) et sur la croix du mur (b). Le spot laser a une largeur de quelques mm, ce qui permet un alignement de l'ordre d'un mm sur la croix, sur plus de 10 m. Le spot laser sur la photo (b) semble plus large en raison de la diffraction sur la croix gravée dans la plaque métallique.



Cet alignement préliminaire permet de préparer le DCS aux mesures. Comme l'axe de rotation de la table n'est pas référencé, une étape d'alignement supplémentaire est nécessaire. Pour pouvoir faire une mesure de rayons X, il faut s'assurer que les photons qui diffractent sur le premier cristal puissent arriver sur le second cristal. Pour ce faire, la table doit être placée à  $2\Theta_{\text{Bragg}}$  par rapport à l'axe du DCS. Cette position est atteinte à l'aide de la procédure suivante, entièrement schématisée en Fig. III.20 :

- La table est placée dans l'axe de la source, avec la méthode décrite précédemment. Un miroir est placé dans le premier support de cristal, et le laser est allumé (voir figure III.20.a). Cette position définit le 0 de la table.
- Le premier cristal, initialement perpendiculaire à la table, est tourné de  $180^\circ - 2\Theta_{\text{Bragg}}$  (figure III.20.b). Cette position va permettre de mettre la table correctement, puisque sa position n'est pas mesurée. C'est la précision de l'alignement laser qui définira la précision de l'alignement de la table.
- La table est tournée jusqu'à ce que le faisceau du laser revienne sur l'optique du banc laser. Elle est désormais à la position  $2\Theta_{\text{Bragg}}$ . Cette position assure le bon positionnement dans la table pour la mesure de rayons X d'angle de Bragg  $\Theta_{\text{Bragg}}$  (figure III.20.c).
- Le miroir est ensuite placé à l'angle  $90^\circ - \Theta_{\text{Bragg}}$ . Le miroir est ainsi placé à  $\Theta_{\text{Bragg}}$  par rapport au banc laser.
- Un miroir est installé dans le second support de cristal. Le miroir est ajusté en hauteur, et son angle absolu est vérifié avec le faisceau du laser réfléchi vers le banc. Cette étape permet d'obtenir l'angle "0" du second cristal et n'est effectuée qu'une seule fois, au moment de l'installation du DCS.
- Les miroirs sont remplacés par les cristaux. La verticalité des cristaux est vérifiée à l'aide d'un clinomètre Wyler Clino 2000. Il permet d'assurer que les cristaux sont verticaux, avec une précision de l'ordre d'une dizaine de millidegré. Un mauvais alignement vertical provoque un décalage de la mesure.
- Le premier cristal est placé à un angle absolu de  $90^\circ + \Theta_{\text{Bragg}}$ . Le premier cristal est alors positionné avec un angle de  $\Theta_{\text{Bragg}}$  par rapport à l'axe de la source.
- Le second cristal est alors positionné à un angle absolu de  $-\Theta_{\text{Bragg}}$  pour être parallèle au premier cristal et le détecteur est ensuite placé à un angle absolu de  $-4\Theta_{\text{Bragg}}$ . Cette position constitue la position non dispersive du spectromètre (figure III.20.e). Le second cristal peut être ensuite tourné de  $2\Theta_{\text{Bragg}}$ , et le détecteur à un angle absolu de  $4\Theta_{\text{Bragg}}$ . Cette position constitue la configuration dispersive du spectromètre (figure III.20.f).

### III.3.7 Prise de données

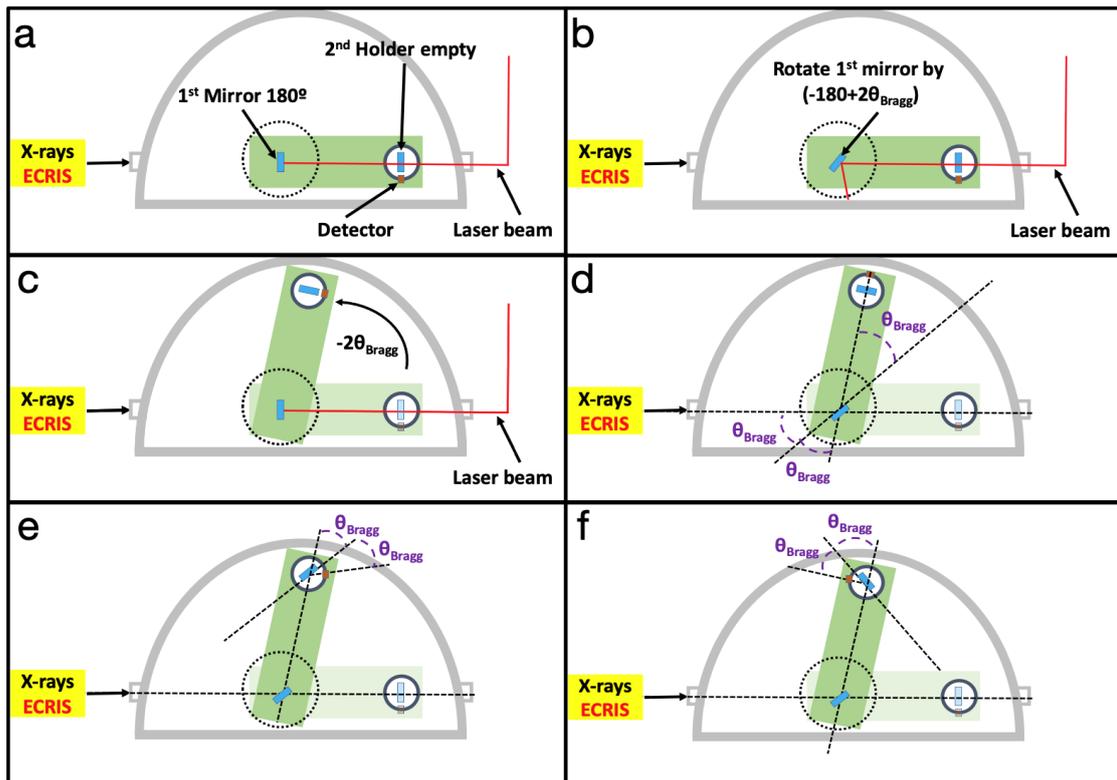
La prise de donnée comporte deux volets importants : le démarrage de la source et la mise en place du spectromètre. Cette description suit la mise en place chronologique d'une mesure. Une fois que le spectromètre est bien aligné, une transition est choisie pour une mesure. Il peut s'agir d'une transition bien connue, pour la remise en place du DCS (par exemple, une transition de l'argon à quatre électrons  $1s2s^22p\ ^1P_1 \rightarrow 1s^22s^2\ ^1S_0$ ) ou d'une nouvelle transition à étudier (par exemple, sur des transitions de l'argon à cinq électrons).

### Manipulation de la source

L'allumage et la manipulation de la source se fait comme suit :

**Allumage de la source** La mise en route de la source commence par la mise en route des éléments de la source et de son système de refroidissement. La source est

FIG. III.20 Schéma du positionnement du DCS pour effectuer une mesure. Les étapes des procédures sont exécutées séquentiellement de (a) à (d). Le schéma (e) représente le mode non dispersif et (f) le mode dispersif de l'acquisition. La figure et la légende sont tirées de la Ref. [171] ©Jorge Felizardo Dias Cunha Machado, Faculty of Sciences and Technology, NOVA University of Lisbon and Université Pierre et Marie Curie.



mise doucement sous 10 kV. Le courant de fuite de cette tension est surveillé, afin d'éviter un claquage dans la source.

**Injection du gaz** Les vannes de gaz sont ouvertes pour maintenir une pression de quelques  $10^{-5}$  mbar, qui est la pression nominale de la source.

**Injection des micro-ondes** Le klystron est ensuite mis sous tension. Une fois sa tension nominale atteinte, il est allumé et produit 1 W de micro-ondes, ce qui crée un plasma. La puissance micro-onde est augmentée graduellement pour chauffer le plasma. Le courant de fuite et le courant d'ions extrait au niveau de la chambre à plasma sont surveillés pour s'assurer du bon fonctionnement de la source.

**Optimisation par état de charge** Le faisceau est ensuite envoyé à travers le dipôle, sur une coupelle de Faraday. La focalisation est ajustée pour maximiser le courant sur la coupe de Faraday. Un spectre en rapport  $q/m$  est ensuite pris pour estimer les états de charge produit dans la source. Les paramètres de la source sont ensuite graduellement ajustés pour augmenter la production de l'état de charge désirée.

**Stabilisation de la source** Une fois la source optimisée, elle est surveillée afin que ses paramètres restent stables. Une fois cette étape franchie, le spectromètre peut être utilisé.

## Manipulation du spectromètre

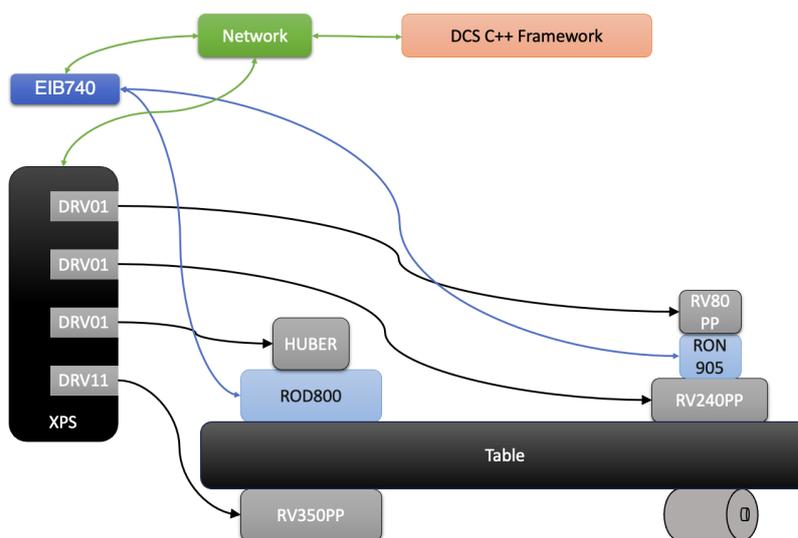
La collecte de données avec le DCS s'effectue à travers des spectres angulaires. Ces spectres sont construits en balayant l'angle du second cristal autour de l'angle de Bragg spécifique à la transition étudiée. Le cristal est déplacé de manière continue par un moteur pas-à-pas entre deux positions angulaires prédéfinies, tandis que le premier cristal reste fixe. En cas de déviation du premier cristal par rapport à l'angle défini, l'acquisition est interrompue jusqu'à ce que sa position soit corrigée. Une fois corrigée, l'acquisition reprend normalement. Les angles des cristaux sont mesurés en temps réel à l'aide des encodeurs Heidenhain. Le programme LabView™ enregistre le nombre de photons détectés à chaque instant en fonction de l'angle du second cristal, et les organise dans des histogrammes normalisés en coups par seconde. Pendant toute la durée de l'acquisition du spectre, les valeurs moyennes et les écarts-types des positions du premier cristal ainsi que des températures des deux cristaux sont conservés. Pour garantir des mesures sans références externes, nous devons effectuer des acquisitions de spectres dispersifs et non dispersifs. Habituellement, les spectres non dispersifs, de statistique plus élevée, sont obtenus en balayant une fenêtre angulaire de  $0.15^\circ$ , avec un temps d'acquisition de 10 minutes par balayage. En général, trois à quatre balayages de 10 minutes sont réalisés pour constituer un spectre non dispersif, totalisant une acquisition de 30 à 40 minutes. En revanche, les spectres dispersifs, avec une statistique moindre, nécessitent de balayer une fenêtre angulaire plus large de  $0.2^\circ$ , avec des acquisitions de 20 minutes chacun, comprenant généralement 20 à 25 balayages. Cela permet de limiter l'impact de la fluctuation de l'intensité lumineuse de la source au cours de la journée. Pour les éléments comme le soufre et l'argon à cinq électrons, les spectres dispersifs peuvent atteindre jusqu'à  $0.7^\circ$  pour le soufre et  $0.4^\circ$  pour l'argon, afin de pouvoir mesurer le bruit de fond du spectre. Cet aspect est critique, car la forme naturelle des raies atomiques est une Lorentzienne. La Lorentzienne est une distribution sans moyenne, ni écart-type, possédant des "ailes" qui décroissent lentement. Ainsi, si la fenêtre de mesure n'est pas assez large, le bruit de fond est mal estimé et peut causer des désaccords entre la mesure de l'amplitude et la théorie [195].

Une journée typique de mesure avec le DCS comprend alternativement un spectre non dispersif, suivi d'un spectre dispersif, puis à nouveau un spectre non dispersif. Cette séquence permet de compenser d'éventuelles dérives temporelles. Chaque jour de mesure permet d'obtenir deux valeurs semi-indépendantes de l'angle de Bragg. Pour garantir des statistiques adéquates, les mesures sont répétées sur une période de deux à trois semaines. Les campagnes expérimentales ont été menées durant les étés 2017 et 2018 et se sont concentrées sur les transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} - 1s^22s^22p^2\ ^2P_{1/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} - 1s^22s^22p^2\ ^2P_{3/2}$  dans le soufre et l'argon boronoïdes.

### III.4 Développements sur le DCS

Durant ma thèse, plusieurs développements ont été réalisés en équipe sur le spectromètre, et ma contribution personnelle comprend plusieurs aspects importants. Tout d'abord, le remplacement de la table de rotation manuelle du spectromètre par un moteur Newport RV350 a été réalisé. Ce nouveau moteur a nécessité la conception d'un système de commande adapté, puisque le contrôleur ESP-301-3G intégrait uniquement trois axes. Ce changement a également conduit à une évolution du logiciel de contrôle, avec l'abandon du logiciel propriétaire LabView™ pour un logiciel C++ développé au sein du groupe par César Godinho. Le nouveau système de contrôle est schématisé dans la Fig. III.21.

FIG. III.21 Nouveau système de contrôle du DCS. Le moteur est contrôlé à l'aide de cartes DRV installées dans un boîtier Newport XPS. Les encodeurs sont lus grâce à un Heidenhain EIB740. Les deux sont connectés au réseau du laboratoire, et contrôlés à l'aide d'un logiciel développé en C++.



#### Changement de Plaque Tournante

Le remplacement de la plaque tournante manuelle a exigé un démontage complet du spectromètre et de sa table. L'atelier mécanique du LKB a fabriqué une plaque d'adaptation rectifiée sur mesure pour intégrer le nouveau moteur. En parallèle, la table supportant les rails a été réajustée pour permettre aux roues du moteur de s'aligner parfaitement sur les rails, sans aucune contrainte. Ce processus a été réalisé en étroite collaboration avec KENZA El-Asri, stagiaire de M1 que j'ai encadré durant l'été 2023. Le rail de support a été ajusté en hauteur à l'aide de vis pour s'adapter à chaque position possible de la table. Nous avons soigneusement mesuré les angles de la table dans les sens parallèle et perpendiculaire à son axe, ainsi que l'inclinaison du rail à différents points et la différence de hauteur entre la table et le rail. Par une série d'ajustements progressifs, en veillant à minimiser l'inclinaison du rail et l'écart de hauteur sur toute la course, nous avons réussi à

placer les roues de la table en contact avec le rail sans entraver le mouvement du moteur. Cette méthode a permis de réduire l'écart de hauteur entre la table et le rail à moins d'un dixième de millimètre sur toute la longueur de la course.

### **Système de contrôle du DCS**

L'ajout d'un quatrième axe s'est avéré incompatible avec le contrôleur ESP-301-3G existant. En conséquence, le système de contrôle et de lecture du DCS a été entièrement repensé. Un boîtier Newport XPS a été installé, capable d'accueillir quatre cartes — trois DRV01 et une DRV11 de Newport. L'utilisation d'une carte DRV11 était nécessaire, car il était impossible d'installer quatre cartes DRV01 dans ce boîtier.

Les encodeurs ont été connectés à un boîtier Heidenhain EIB740. Ces deux boîtiers sont intégrés au réseau de la salle SIMPA et communiquent avec un ordinateur dédié. Parallèlement, César Godinho de l'université Nova de Lisbonne a développé un programme en C++ pour contrôler les moteurs, calibrer et lire les encodeurs, ainsi que pour acquérir des spectres. Cette évolution a permis de se libérer du logiciel propriétaire LabView™, tout en procurant une meilleure maintenance et une évolutivité accrue du système de contrôle.

# Chapitre IV

## Mesure de transitions $2p \rightarrow 1s$ dans le soufre et l'argon à cinq électrons

Lors des analyses précédentes, les mesures du groupe s'intéressaient aux mesures de systèmes atomiques les plus simples. Une série de mesures du soufre et de l'argon, de 2 à 4 électrons ont été publiées [82, 83, 165, 166, 196, 197]. Ces mesures s'étaient principalement intéressées aux tests de l'électrodynamique quantique en état lié (Bound State Quantum ElectroDynamic, BSQED). Dans ce chapitre, je décris la méthode que j'ai mise en place afin d'étudier des spectres de soufre et d'argon à cinq électrons, ainsi que les difficultés rencontrées. L'objectif de cette analyse est double. Le but de cette étude est de comprendre la structure du soufre et de l'argon à cinq électrons, afin de la comparer à la théorie pour améliorer la compréhension de la contribution des corrélations électroniques à l'énergie des niveaux électroniques. Le second objectif est de déterminer la largeur naturelle, l'énergie, et, éventuellement, l'intensité relative de ces transitions.

### IV.1 Introduction

#### IV.1.1 Contexte

L'étude des ions à cinq électrons, dits boronoïdes, est d'importance grandissante. Récemment, l'étude de l'argon boronoïde a été mis en avant par l'étude de sa structure fine, tout d'abord par la spectroscopie du niveau  $1s^2 2s^2 2p \ ^2P_{1/2} - \ ^2P_{3/2}$  [198] de l' $\text{Ar}^{13+}$ , puis par la détermination de son facteur de Landé [199]. Ces études de hautes précisions, permises grâce à la spectroscopie laser, permettent des tests de BSQED. De plus, la transition intracouche  $\ ^2P_{3/2} - \ ^2P_{1/2}$  est une transition quadrupolaire magnétique interdite (M1). Comme les autres couches sont remplies, il s'agit de la seule transition autorisée. Ainsi le temps de vie de cette transition est long, uniquement 17 Hz pour une transition de 679 THz, soit un rapport de  $2.50 \times 10^{-14}$ . Ce temps de vie permet le design d'une horloge ionique à l'aide de cette transition.

Toutefois, l'étude de la couche interne des espèces boronoïdes est très incomplète. Dans la base du NIST [200], des transitions  $2p \rightarrow 1s$  sont listées uniquement pour quatre éléments : le bore [201], le carbone [202], le chrome [203] et le fer [204, 205]. Plus récemment,

le silicium et le soufre ont été mesurés par le groupe de Livermore [34]. Des études sur des ions boronoïdes ont été également effectués pour le tungstène [206], le thorium [207] et l'uranium [94, 208], mais, dans ces cas, seule la transition  ${}^2P_{3/2} - {}^2P_{1/2}$  a été mesurée. L'étude des couches K de ces derniers rend leur étude difficile, puisque très énergétique ( $>60$  keV).

L'étude des éléments boronoïdes à couche K ouverte reste accessible pour les éléments à plus bas  $Z$ . Pour les éléments autour de l'argon, à moyen  $Z$  (i.e.,  $Z \approx 14 - 22$ ), le couplage électronique change, passant d'un couplage LS à un couplage JJ, ce qui peut engendrer de nombreux croisements de niveaux. Ainsi, la comparaison à la théorie est importante. De plus, le nombre élevé d'électrons rend l'inclusion des corrélations jusqu'à une couche élevée indispensable. L'inclusion de ces corrélations impose le calcul d'un très grand nombre de niveaux, pouvant engendrer des problèmes de convergences. De plus, l'effet Auger est prédominant dans les systèmes à couche interne ouverte, et contribue pour une grande partie à la largeur naturelle des niveaux (voir section IV.5).

Enfin, au-delà des tests de théorie, les ions boronoïdes à moyen  $Z$ , et plus particulièrement les éléments de numéro atomique pairs, sont très présents dans les plasmas astrophysiques [209]. Le lancement réussi de XRISM [210], en septembre 2023, montre des spectres dans lesquels le soufre et l'argon sont très abondants [32], avec la présence d'états électroniques allant du néon à l'hydrogène. Mesurer expérimentalement ces transitions à cœur excité permet ainsi de compléter notre connaissance de la physique atomique, mais permet aussi de mieux comprendre les phénomènes astrophysiques. En produisant des références de haute précision en laboratoire, on permet de mieux comprendre les spectres astrophysiques [211].

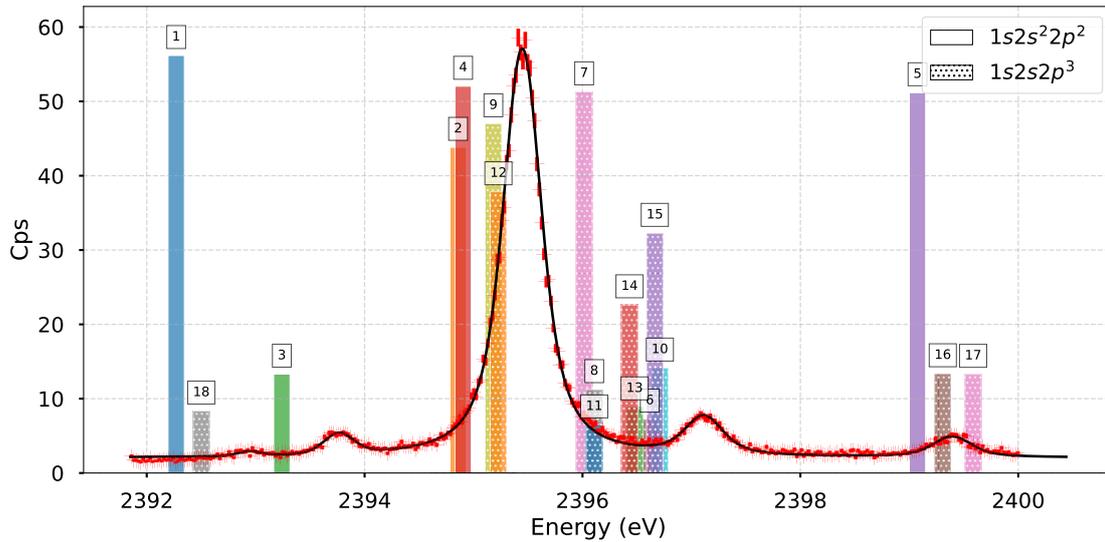
### IV.1.2 Les données du soufre et de l'argon Boronoïde

Les spectres du soufre et de l'argon avec cinq électrons ont été enregistrés pendant deux campagnes de prise de données. L'argon boronoïde a été mesuré du 7 au 13 juillet 2017, et du 6 au 13 juin 2018. Le spectre du 6 juin 2018 a servi à la mise en place de la mesure, et n'a pas été utilisé pour l'analyse. Le soufre a été ensuite mesuré les 26 et 27 juillet 2018. Ces spectres sont tout d'abord remarquables par leur grande intensité. Les spectres du soufre montrent, à son maximum, 60 coups/s et l'argon 30 coups/s. Ces statistiques sont un atout pour l'analyse des spectres et permettent une sensibilité à la forme de la raie. Cet aspect sera discuté plus loin dans cette section.

Les spectres présentent cinq pics (voir figure IV.1), que l'on numérote de gauche à droite. Certains, d'une forme aplatie et large (e.g., le deuxième pic de l'argon) ou asymétrique (e.g., le troisième pic de l'argon), suggèrent que plusieurs transitions atomiques non résolues sont observées. Ce spectre, de  $0.4^\circ$ , est plus large que la largeur de  $0.2^\circ$  mentionnée plus tôt, dû au nombre de contributions élevées dans ce spectre. Le spectre semble également montrer une symétrie par rapport au pic principal. Le second et le quatrième pic semblent équidistants par rapport au troisième.

La complexité de ce spectre pose la question de l'identification des transitions observées (voir figure IV.1 et tableau IV.1) ainsi que de leurs énergies et leurs largeurs. Des mesures du soufre et de l'argon ont déjà été effectuées, dans le soufre à l'aide d'EBIT et d'un détecteur microcalorimètre [34], et dans l'argon à l'aide plasma laser, d'un cristal courbe et d'une plaque photographique [60]. Toutefois, ces méthodes produisent efficace-

FIG. IV.1 Spectre expérimental dispersif du soufre de boronoïde, comparée avec des prédictions théoriques. Les transitions ont été calculées dans la Ref. [212]. La hauteur de chaque barre correspond au nombre maximal de coups multiplié par le rendement de la transition attendu. Les transitions sont présentées dans la Tab. IV.1.



ment des triples excitation (trois électrons qui ne sont pas au niveau fondamental). Ces spectres sont peu résolus, avec de nombreuses transitions mélangées et rendent l'identification des transitions difficiles. La température électronique de SIMPA est très élevée ( $\approx 40$  keV [164]) comparée à l'énergie d'ionisation des ions du plasma (environ 3.2 keV pour le  $S^{11+}$  et 4.2 keV pour l' $Ar^{13+}$ ). La probabilité qu'un électron périphérique soit excité lors d'une ionisation par impact électronique est réduite par cette grande différence d'énergie. De plus, la résolution d'un spectromètre à double cristal est plus haute que celle d'un microcalorimètre ou que d'un cristal courbe. Ces deux avantages permettent de mesurer des transitions de manière plus précise, tout en fournissant une meilleure identification. Les mesures publiées par Schlessler et Machado étudient des excitations simples et doubles ( $1s2s^22p^2$  et  $1s2s2p^3$ ). En considérant les transitions les plus intenses des calculs de Costa [214], on recense 15 transitions possibles pour l'argon boronoïde. Dans le cas du soufre, les transitions sont listées en Tab. IV.1. Les transitions sont comparées au spectre dispersif en Fig. IV.1.

Cette analyse révèle de multiples défis. Pour mieux comprendre les contributions atomiques au sein des spectres de soufre et d'argon boronoïdes, il est nécessaire de mettre en place une analyse sensible à la forme de raie et au nombre de contributions atomiques. En effet, si une raie est déformée ou asymétrique, cela peut s'expliquer par l'existence de plusieurs transitions qui ne sont pas résolues au sein du spectre. Pour ce faire, il faut attentivement choisir la modélisation de la raie atomique et des effets de notre installation expérimentale. Ce choix peut faire varier l'énergie mesurée de plusieurs meV [165]. Ensuite, il faudra utiliser des modèles à plusieurs contributions, en choisissant correctement le modèle de la contribution.

TABLE IV.1 – Calculs de Palmeri, *et al.* [212], pour le soufre de type boronoïde. Ces calculs utilisent la méthode Hartree-Foch Relativiste (HFR) de la suite de codes de Cowan [213].

Transition	Niveau Initial	Niveau final	J	Énergie (eV)	Rendement	
1	$1s2s^22p^2$	${}^2D_{3/2}$	$1s^22s^22p$	${}^2P_{1/2}$	2392.2704	0.959
2		${}^2P_{1/2}$		${}^2P_{1/2}$	2394.8581	0.748
3		${}^2P_{1/2}$		${}^2P_{3/2}$	2393.2401	0.227
4		${}^2P_{3/2}$		${}^2P_{3/2}$	2394.9044	0.888
5		${}^2S_{1/2}$		${}^2P_{3/2}$	2399.0750	0.873
6	$1s({}^2S)2s2p^3({}^3P)$	${}^4P_{1/2}$	$1s^22s2p^2$	${}^4P_{1/2}$	2396.6172	0.124
7		${}^4P_{1/2}$		${}^4P_{3/2}$	2396.0151	0.875
8		${}^4P_{5/2}$		${}^4P_{3/2}$	2396.1077	0.192
9		${}^4P_{5/2}$		${}^4P_{5/2}$	2395.1819	0.802
10		${}^4P_{3/2}$		${}^4P_{1/2}$	2396.7099	0.241
11		${}^4P_{3/2}$		${}^4P_{3/2}$	2396.1077	0.111
12		${}^4P_{3/2}$		${}^4P_{5/2}$	2395.2282	0.646
13		${}^2P_{3/2}$		${}^2D_{3/2}$	2396.4782	0.152
14		${}^2P_{3/2}$		${}^2D_{5/2}$	2396.4319	0.386
15		${}^2P_{1/2}$		${}^2D_{3/2}$	2396.6635	0.550
16	$1s({}^2S)2s2p^3({}^1D)$	${}^2D_{5/2}$		${}^2D_{5/2}$	2399.3072	0.228
17		${}^2D_{3/2}$		${}^2D_{5/2}$	2399.5858	0.227
18	$1s({}^2S)2s2p^3({}^1P)$	${}^2P_{3/2}$		${}^2P_{1/2}$	2392.5012	0.142

Pour des fins de clarté, dans ce chapitre, on définit un spectre comme le résultat d'un scan effectué par le DCS, comme décrit en section III.3.7. On définit comme mesure l'ensemble des spectres non dispersifs et dispersifs effectués. Pour la mesure de l'énergie, chaque série<sup>1</sup> de mesure est une paire de spectres non dispersif – dispersif (deux spectres non-dispersifs par jour, avec un seul spectre dispersif), comme décrit en chapitre III.3.7.

## IV.2 Analyse de données

Jusqu'à présent, chaque mesure publiée par notre groupe concernait des systèmes de 2 à 4 électrons, possédant un trou K, i.e., un électron manquant dans la couche  $n = 1$ . Le nombre réduit d'électrons, et le nombre réduit de transitions possibles, a permis une identification non ambiguë de chaque raie. Au contraire, à cause de la présence de cinq électrons et de la couche  $2p$  remplie à moitié, les données du soufre et de l'argon boronoïdes sont bien plus complexes. Déjà présentées dans la thèse de Machado en 2018, les données du soufre et de l'argon boronoïdes n'avaient toujours pas été analysées. La complexité des spectres a nécessité l'utilisation de nouvelles techniques d'analyse Bayésiennes, pour déterminer le nombre de transitions visibles.

1. Traduit par *run* dans les figures

### IV.2.1 Analyse Bayésienne

Devant la possibilité d'un grand nombre de transitions non résolues, il a été nécessaire d'utiliser une approche Bayésienne pour l'analyse de ces spectres. L'analyse Bayésienne offre la possibilité d'obtenir d'éventuelles transitions non résolues dans le spectre. Dans la suite de la section, je décris brièvement le principe essentiel de l'analyse bayésienne utilisé dans ce travail d'analyse.

Chaque canal de mesure des spectres est associé à une incertitude, dépendant du nombre de coups enregistrés. Lorsqu'on cherche à modéliser une observation avec un modèle donné, il est essentiel d'évaluer dans quelle mesure ce modèle décrit les données observées. Ici, on suppose que les incertitudes suivent une distribution Gaussienne. En effet, les spectres possèdent plus de 100 "coups" par canal, ce qui permet d'approximer correctement la distribution de Poisson du bruit de photons, par une distribution Gaussienne. La probabilité qu'un modèle  $M$  de paramètres  $\theta$  explique les données  $\{x_i, y_i\}$  avec des incertitudes  $\sigma_i$  sur  $y_i$  est alors proportionnelle à :

$$P(x_i, y_i | \theta) \propto \exp \left( - \sum_i \frac{(y_i - M(x_i, \theta))^2}{2\sigma_i^2} \right) = \exp \left( - \frac{1}{2} \chi^2 \right).$$

Cette probabilité est appelée fonction de vraisemblance, c'est-à-dire la probabilité d'observer les données  $\{x_i, y_i\}$  sous les hypothèses du modèle. En minimisant le  $\chi^2$ , on maximise cette vraisemblance, une approche couramment utilisée en statistique fréquentiste, sous le nom de méthodes des moindres carrés, ou  $\chi^2$ . Cependant, cette méthode ne permet pas de comparer directement différents modèles entre eux.

Pour comparer les modèles, il faut calculer la probabilité qu'un modèle  $M$  explique les données,  $P(M | \{x_i, y_i, \sigma_i\})$ . Selon le théorème de Bayes, cette probabilité s'exprime comme suit :

$$P(M | \{x_i, y_i, \sigma_i\}) = \frac{P(\{x_i, y_i, \sigma_i\} | M) P(M)}{P(\{x_i, y_i, \sigma_i\})},$$

où  $P(\{x_i, y_i, \sigma_i\} | M)$  est l'évidence bayésienne,  $P(M)$  représente la connaissance a priori du modèle – considérée comme constante pour les modèles considérés – et  $P(\{x_i, y_i, \sigma_i\})$  est la probabilité totale des données, qui joue le rôle d'un facteur de normalisation, aussi appelée vraisemblance marginale. La connaissance a priori que l'on peut avoir d'un modèle peut influencer sur le résultat de l'analyse [215].

L'évidence bayésienne  $P(\{x_i, y_i, \sigma_i\} | M)$  se calcule en intégrant sur l'ensemble des paramètres du modèle :

$$P(\{x_i, y_i, \sigma_i\} | M) = \int P(\{x_i, y_i, \sigma_i\}, \theta | M) d\theta = \int P(\{x_i, y_i, \sigma_i\} | \theta, M) P(\theta | M) d\theta.$$

Dans cette intégrale, il faut considérer deux quantités : la fonction de vraisemblance  $P(\{x_i, y_i, \sigma_i\} | \theta, M)$  et la distribution a priori des paramètres  $P(\theta | M)$ . Le défi principal de ce calcul réside dans la dimension de l'intégrale, qui correspond au nombre de paramètres du modèle, pouvant être très grand. Plus le nombre de paramètres est élevé, plus l'intégrale devient complexe à évaluer numériquement.

Pour résoudre ce problème, John Skilling a proposé, en 2004, une méthode innovante appelée le "nested sampling". Cette méthode consiste à explorer progressivement l'espace des paramètres, par l'intermédiaire d'un ensemble d'échantillons qui évolue, en se concentrant de plus en plus sur les régions où le modèle semble le mieux correspondre aux données, en transformant l'intégrale multidimensionnelle en une intégrale unidimensionnelle [216].

L'algorithme commence par échantillonner l'espace des paramètres selon la distribution a priori que l'on a de la solution sur les paramètres (la distribution a priori). Pour chaque point, on calcule la vraisemblance associée à ce jeu de paramètres. À chaque étape, on identifie et remplace l'échantillon de l'ensemble considéré qui correspond à la plus petite vraisemblance par un nouvel échantillon, choisi dans une région de l'espace des paramètres dans laquelle la correspondance avec les données est meilleure (i.e., la vraisemblance est la plus grande). En prenant en compte la taille estimée des portions de l'espace des paramètres (notées  $V_i$  pour un volume total de l'espace  $V$ ) de même évidence (notées  $L_i$ ), il est possible de calculer l'évidence bayésienne  $Z$  à l'aide d'une somme à une dimension :

$$Z = \frac{1}{V} \sum_i L_i V_i$$

Cette méthode est particulièrement efficace pour les problèmes avec un nombre élevé de paramètres. Elle permet aussi de comparer les modèles de manière rigoureuse en privilégiant ceux qui procurent un bon compromis entre complexité et adéquation aux données. La force de l'analyse Bayésienne réside dans le calcul de l'évidence, c'est-à-dire l'intégrale de la vraisemblance sur l'espace des paramètres, là où l'approche fréquentiste ne s'appuie que sur le maximum de vraisemblance.

### Le programme *nested\_fit*

Le programme *nested\_fit* est basé sur l'algorithme de *nested sampling* développé en FORTRAN par Martino Trassinelli [217]. Le programme permet d'ajouter des fonctions dans un fichier dédié, afin d'implémenter des modèles adaptés au problème. Le programme est piloté par l'intermédiaire d'un fichier d'entrée présenté en liste IV.1. Ce fichier d'entrée permet de paramétrer l'analyse de données, en choisissant notamment le nombre de points d'échantillon, la méthode de recherche, la méthode de convergence, le modèle et la distribution a priori des paramètres du modèle. Le nombre de points utilisés affecte la précision de l'échantillonnage. Dans cette étude, j'en ai utilisé 2000. La méthode de recherche est la méthode utilisée pour déterminer le tirage des échantillons. Une méthode de recherche efficace permet de converger plus rapidement. Les résultats présentés ici ont été obtenus avec la méthode du *slice sampling* [218]. Pour le critère de la fin de l'algorithme, j'ai utilisé l'option permettant l'arrêt lorsque l'évidence calculée et l'évidence estimée est inférieure à une certaine valeur (généralement  $10^{-5}$ ). Le nombre d'essais est une ancienne méthode d'estimation de l'incertitude utilisée par l'algorithme. L'incertitude était obtenue par écart-type de l'évidence obtenue à chaque essai. Ici, j'ai utilisé l'incertitude estimée par *nested\_fit*. La bonne convergence de l'algorithme est assurée par la capacité de l'algorithme à trouver de nouveaux points. En effet, si les paramètres sont mal

ajustés, ou si des clusters sont présents, l'algorithme peine à trouver des échantillons avec une meilleure vraisemblance. On peut également s'assurer de la bonne convergence en regardant les probabilités de distribution des paramètres. Une distribution de probabilité dont le maximum est en dehors de la limite du paramètre est signe qu'il est surcontraint. Enfin, une différence faible entre les données et le meilleur ajustement rend compte de la qualité de l'ajustement. L'algorithme *nested\_fit* inclut également un algorithme de partitionnement, utile en cas de distributions de probabilités multimodales, et qui permet d'améliorer la vitesse de convergence. J'ai utilisé la méthode de partitionnement non paramétrique *mean shift* [218].

Listing IV.1 – Exemple d'un fichier d'entrée de *nested\_fit*.

```

1 4.4      # Program version
2 he-histo.dat # Name of the (first) data file
3 n        # Set of files (y/n)
4 1c      # Type of data: error bars or not and dimensions (1c,1e,2c,2s,2e
   )
5 GAUSSIAN # Type of probability model for error bars
6 1000     # Number of live points
7 LIKE_ACC # Method used for convergence
8 1.E-05  0.01 # Evidence final accuracy and additional convergence
   parameters
9 SLICE_SAMPLING # Type of search of live points
10 1 3 100 10 # Param. search algo. (2), max n. tries, max of max tries
11 n f 0.5 0.2 # cluster analysis or not (y/n), method (f/g/d/s/k), param.
   cluster algo. (2)
12 1 100000 # Number of tries and maximum of steps
13 GAUSS_BG # Name of the function
14 L        # Additional data: left/right (l/r)
15 500      20 # Additional data: npoint, nwidth for convolution
16 1 1024 0 0 # xmin, xmax (ymin, ymax)
17 4        # number of parameters
18 # npar  name  value  step  min  max  fixed
19 1 'bg'  0.11 -1  0.  0.5  0
20 2 'x0'  454.6 -1  400 600  0
21 3 'amp' 296 -1  20  1000  0
22 4 'sigma' 20.0 -1  0  100  0

```

## IV.2.2 Modélisation des contributions

Comme expliqué dans la section précédente, le calcul de l'évidence, fournie par l'analyse Bayésienne, permet la comparaison entre les modèles. Pour l'analyse des spectres, la question du choix de la modélisation est double. Tout d'abord, quel est la forme d'un spectre composé d'une unique transition atomique. La seconde, est celle de la modélisation d'un spectre de plusieurs transitions. Toutefois, le choix du modèle de raie pour chaque composante spectrale est fondamental, puisqu'il influence directement l'évidence du modèle à plusieurs raies. Pour le modèle de raie, deux choix s'offrent à nous pour ce travail : le modèle de Voigt et le modèle issu de la simulation.

### IV.2.2.1 Profil de Voigt

Le profil de Voigt est une modélisation standard pour les données atomiques. En effet, si l'on considère l'émission d'un photon par un atome, la forme naturelle de la raie est :

$$L(E, A, E_0, \Gamma) = A \times \frac{2}{\pi\Gamma} \frac{1}{\left(\frac{E-E_0}{\Gamma/2}\right)^2 + 1}.$$

Pour cette distribution,  $A$  représente le nombre de photons émis,  $E_0$  l'énergie de la raie,  $\Gamma$  représente la largeur naturelle de la raie. Cette modélisation ne se révèle cependant pas suffisamment précise, puisque d'autres phénomènes interviennent. En effet, dans la source SIMPA, les ions sont à une température non nulle. Cette température engendre un élargissement, proportionnel à la distribution en vitesse des ions dans la source. Cette distribution est Gaussienne :

$$G(E, E_k) = \frac{1}{E_k \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{E^2}{2E_k^2}},$$

avec  $E_k$  la température multipliée par la constante de Boltzmann  $k_B$ . La prise en compte de la température n'est pas suffisante puisque la méthode de mesure engendre également un élargissement  $\sigma_{\text{instr}}$ , dû à la réponse des cristaux et de la géométrie du spectromètre. Cet élargissement peut également être modélisé par un élargissement Gaussien. La largeur résultante  $\sigma$  est la somme quadratique de ces deux composantes  $\sigma = \sqrt{E_k^2 + \sigma_{\text{instr}}^2}$ . Par la composition de ces distributions, à l'aide du produit de convolution, on obtient :

$$V(E, A, E_0, \Gamma, \sigma) = \int A \times \frac{2}{\pi\Gamma\sigma\sqrt{2\pi}} \frac{1}{\left(\frac{E-E_0}{\Gamma/2}\right)^2 + 1} e^{-\frac{(E-t)^2}{2\sigma^2}} dt.$$

Ce modèle est appelé la distribution de Voigt [219]. Comme vu à la Sec. III.3.2, le profil de Voigt ne rend pas compte du profil de diffraction de raie et des possibles asymétries. Toutefois, ce profil se révèle efficace pour l'analyse de contributions de faible statistique. Dans cette analyse, le profil de Voigt a été utilisé pour appréhender le spectre du soufre et de l'argon boronoïdes.

Il est possible d'obtenir l'angle de Bragg en ajustant chaque spectre dispersif et non dispersif en fonction de leur position et de l'Eq. (III.2). L'énergie est alors obtenue par la relation :

$$E(T, \Theta_{\text{Bragg}}) = \frac{hcn}{\underbrace{2d(1 + \eta_0(T - T_0) + \eta_1(T - T_0)^2)}_{d(T)}} \frac{1}{\sin(\Theta_{\text{Bragg}} + \chi \tan \Theta_{\text{Bragg}}) \left(1 - \frac{\delta}{\sin^2(\Theta_{\text{Bragg}})}\right)},$$

où  $n$  est l'ordre de réfraction,  $\delta$  est la différence à l'indice de réfraction  $i$  :  $\delta = i - 1$ . le facteur  $hc$  est le facteur de conversion longueur d'onde - énergie égal à  $\approx 12.4 \text{ keV } \text{Å}^2$  [220]. Les termes  $\eta$  sont les facteurs de dilatation du cristal de silicium, mentionné en Sec. III.3.1 à l'Eq. (III.3), qui correspond à la grandeur  $d(T)$ , la distance interréticulaire du cristal, à la température  $T$ . Le coefficient  $\chi$  est le coefficient de divergence verticale [154] :

2. Sans incertitude depuis la révision du système international d'unité par le Comité International des Poids et Mesures [220]

$$\chi = \frac{a^2 + b^2}{24L^2},$$

avec  $a$  et  $b$  les dimensions verticales et horizontales du faisceau, définies par l'électrode de polarisation et la taille du détecteur et  $L$  la distance entre l'électrode de polarisation et le détecteur. Ici, on a le facteur  $\chi \approx 10^{-5}$ .

Ce modèle est d'un usage pratique, puisqu'il ne requiert aucune entrée pour son utilisation. En effet, il s'ajuste de lui-même aux largeurs de la contribution. Cet avantage peut se retrouver contre-productif si l'on n'impose pas de limites aux largeurs, et peut cacher plusieurs contributions, proches.

#### IV.2.2.2 Simulation *ab initio*

Des simulations *ab initio* ont été développées au sein du groupe par Amaro [165]. Ces simulations donnent en sortie les résultats d'une mesure complète, en fournissant le spectre simulé dispersif et non dispersif. Ces simulations considèrent les effets de la géométrie et de la diffraction du spectromètre. Afin de produire des simulations le plus proche de la réalité, les simulations incluent les caractéristiques géométriques de la source, des deux cristaux et du détecteur. Tout d'abord, les simulations incluent la forme de raie d'émission de photon dans un plasma chaud, comme mentionné précédemment. Pour implémenter le profil de Voigt dans la simulation, une énergie moyenne, une largeur Gaussienne (pour la température des ions) et une largeur Lorentzienne (dite largeur naturelle) sont données en entrée. Ce profil est utilisé, selon un processus Monte-Carlo, pour générer aléatoirement une énergie afin de correspondre au profil d'émission d'un photon. Cette énergie  $E$  est convertie en une longueur d'onde  $\lambda$  par la relation  $hc = E\lambda$ , avec  $h$  la constante de Planck et  $c$  la vitesse de la lumière. La réflexion sur un cristal est incluse grâce à la théorie de la diffraction dynamique. La réflectivité des cristaux est calculée à l'aide de la librairie python XOPPY [191], qui est un portage du logiciel XOP (*X-ray Oriented Program*). XOPPY utilise également la librairie xraylib [189] qui calcule la section efficace de fluorescence induite par les rayons X. Les profils sont générés en supposant que la lumière émise par la source soit non polarisée, i.e., une réflexion avec une polarisation  $\sigma$  et  $p$ . Un exemple de profil est montré en section III.3.2 en Fig. III.11. Le profil de réflectivité est donné en entrée de la simulation, puis est interpolé à l'aide de splines cubiques. Les courbes sont évaluées à l'angle de Bragg  $\Theta_{\text{Bragg}}$ , correspondant à la longueur d'onde  $\lambda$  et à l'angle  $\theta$  qui correspond à l'angle entre le photon incident et les plans cristallins du cristal. Le profil dépend des coefficients de réfractifs du cristal et d'absorption, qui dépendent de l'énergie. Des rayons X sont générés aléatoirement depuis la source plasma, jusqu'aux cristaux. La dépendance en température de la distance interréticulaire du cristal est incluse avec la correction linéaire en température

$$d(T) = d_{22.5}(1 + \eta_0(T - 22.5)),$$

avec  $d_{22.5}$  la distance interréticulaire à 22.5 °C et  $T$  la température en degrés Celsius.  $d_{22.5}$  est obtenu à l'aide de l'équation (III.3) à la section III.3.1.

Pour l'analyse des spectres de soufre et argon, l'élargissement Doppler doit être déterminé depuis la mesure de l'élargissement Doppler de raies M1, lesquelles ont une largeur

naturelle négligeable comparée à la résolution du détecteur. L'élargissement Doppler du soufre a été mesurée dans les références [83, 166] (93(7) meV pour la référence [166]) et la référence [83] pour l'argon (81(5) meV), dans des conditions similaires de mesure. L'élargissement Doppler a été mesuré pour du soufre et de l'argon à deux et quatre électrons. Comme l'énergie de l'ion de charge  $q$  dans le piège électrostatique de potentiel  $V$  est proportionnelle à la charge, l'énergie cinétique  $E_c$  est égale à  $E_c = qV$ . Ainsi, entre deux ions de charge  $q_1$  et  $q_2$ , le ratio de vitesse entre les deux ions est  $v_1/v_2 = \sqrt{q_1/q_2}$ . Ainsi, l'élargissement Doppler pour les espèces à cinq électrons peuvent être obtenues par la relation :

$$T(q) = \sqrt{\frac{q}{q_{M1}}} T(q_{M1}),$$

avec  $T(q)$  la température des ions de charge  $q$ ,  $q_{M1}$  la charge de l'ion produisant la raie M1 mesurée. Ainsi, on obtient des élargissements Doppler pour le soufre de 82(6) meV et de 73(5) meV pour l'argon.

À l'aide de ces ingrédients, les simulations sont capables de produire un profil sensible à la température des ions dans la source, de la largeur naturelle des transitions et de la forme de raie. Toutefois, chaque simulation demande en entrée de donner une température d'ion, une largeur naturelle et une énergie. Il est nécessaire d'ajuster chacun de ces paramètres un à un, afin de déterminer l'énergie des transitions.

### IV.2.2.3 Utilisation de ces modèles

Une fois les modèles de raies définis, ils peuvent être utilisés pour modéliser les pics présents dans nos spectres. Il faut alors combiner ces modèles de raies, avec un modèle de bruit de fond :

$$S(\theta, \theta_i, I_i, \sigma, \gamma_i, \vec{p}) = \sum_{i=1}^{c_{\max}} I_i * M((\theta - \theta_i), \sigma, \gamma_i) + P(\theta, \vec{p}_j), \quad (\text{IV.1})$$

avec  $c_{\max}$  le nombre de raies,  $S$  le modèle complet pour le spectre,  $I_i$  l'intensité de la raie,  $M$  le modèle utilisé pour la raie et  $P$  un polynôme, représentant le bruit de fond, de coefficients  $\vec{p}$ . En général,  $P$  est d'ordre 0 ou 1. Le modèle  $M$  est le modèle comparé successivement à l'aide de l'analyse Bayésienne, en fonction du nombre  $c_{\max}$  de raies.

### IV.2.2.4 Étude simultanée des spectres

Les précédents modèles sont adaptés à l'étude de chaque spectre indépendamment. Or, les propriétés physiques, comme les différences d'énergie ou les intensités relatives, de tous les complexes de transitions sont communes à tous les spectres. Ainsi, on peut utiliser ces propriétés pour définir un modèle décrivant tous les spectres simultanément. Pour chaque spectre, numéroté  $j$ , je modélise chaque contribution à partir de la contribution la plus intense :

$$S_j(\theta, \theta_j, d\theta_i, I_j, dI_i, \sigma, \gamma_i, \vec{p}_j) = I_j * M((\theta - \theta_j), \sigma, \gamma_1) + \sum_{i=2}^{c_{\max}} dI_i * I_j * M((\theta - \theta_j - d\theta_i), \sigma, \gamma_i) + P(\theta, \vec{p}_j),$$

avec  $S$  le modèle pour le spectre  $j$ ,  $dI_i$  l'intensité relative de la contribution  $i$ , par rapport à l'intensité  $I_j$  de la contribution la plus intense,  $d\theta_i$  la position relative à la position  $\theta_j$  de la contribution la plus intense, et  $P$  un polynôme, représentant le bruit de fond du spectre  $j$ , de coefficients  $\vec{p}_j$ . La largeur  $\sigma$ , représentant l'élargissement Doppler (et instrumental dans le cadre du modèle de Voigt), est commune à tous les spectres. Le calcul de la vraisemblance pour l'ensemble des spectres est la somme de la vraisemblance de chaque spectre.

### IV.3 Détermination du nombre de contributions

Dans cette section, je décris la méthode développée pour déterminer le nombre de contributions dans les spectres de soufre et d'argon à cinq électrons. Afin de déterminer le nombre de contributions dans chaque pic, l'idée principale est de venir les étudier un à un afin de déterminer le nombre de contributions.

L'objectif est de comparer la description des données par un nombre de contributions différents en utilisant l'analyse Bayésienne et le calcul de l'évidence. Dans le modèle décrit dans l'équation (IV.1), on fixe le modèle de raie  $M$  et on fait changer le nombre  $c_{\max}$  de contributions. Le but est de comparer l'évidence bayésienne (BE) en fonction de  $c_{\max}$ . Les méthodes testées visent à utiliser la comparaison Bayésienne de manière la plus efficace.

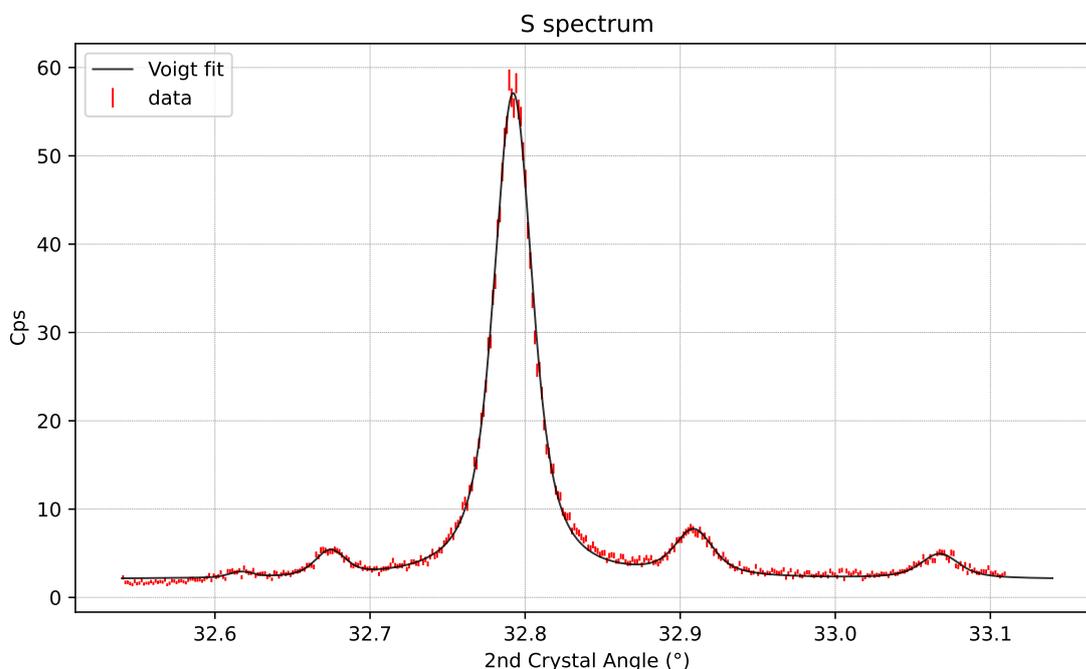
#### IV.3.1 Méthode naïve et limites

Une manière naïve d'appréhender les spectres est d'ajuster le spectre directement, en ajustant tout d'abord avec cinq contributions, comme montré en Fig. IV.2, et de rajouter des contributions une à une par la suite.

Toutefois, comme mentionné en section IV.2.1, la méthode du *nested sampling* perd en efficacité lorsqu'il s'agit de traiter un espace de paramètre de haute dimensionnalité [221]. Le *nested sampling* se trouve plus efficace dans des problèmes à basse dimension ( $n_{\text{dim}} < 20$ ). L'autre problème de cette méthode est la haute symétrie de la modélisation. En effet, on sait qu'il y a au moins cinq contributions, que l'on peut assigner, une pour chaque pic, en contraignant la position des contributions. Ne connaissant a priori pas les transitions mesurées dans le spectre, on ne peut poser aucun a priori sur la position des contributions additionnelles.

Or, la modélisation est identique par permutation des paramètres. Ainsi, le *nested sampling* va reconstruire les différentes densités de probabilité des paramètres, avec tous les paramètres des contributions libres identiques. Ainsi, plus l'on ajoute des profils dans notre modèle de spectre, plus on augmente la symétrie de notre analyse. Ce phénomène se perçoit tout particulièrement lorsque l'on souhaite construire les distributions de probabilité de chaque paramètre. Pour compenser cet effet, il faut augmenter le nombre de

FIG. IV.2 Spectre du soufre boronoïde, ajusté avec cinq profils de Voigt et un fond linéaire. On peut voir la limitation du profil de Voigt pour modéliser la queue du troisième pic.



points utilisés pour échantillonner l'espace des paramètres, ce qui augmente considérablement le temps d'analyse, en plus d'affecter la convergence. Les densités de probabilité des positions de trois contributions d'un modèle contenant huit profils de Voigt sont indiquées dans la figure IV.3. Cinq de ces huit contributions ont été contraintes sur chaque pic visible du spectre. Les trois autres contributions ont été laissées libres, pour étudier la présence de raies atomiques dans le spectre. Comme ces trois contributions jouent le même rôle, les distributions de probabilité sont les mêmes. L'ajustement des données avec ce modèle est le même si l'on permute leurs paramètres. Toutefois, chaque maximum local donne la position d'une raie probable, sans pour autant prouver son existence.

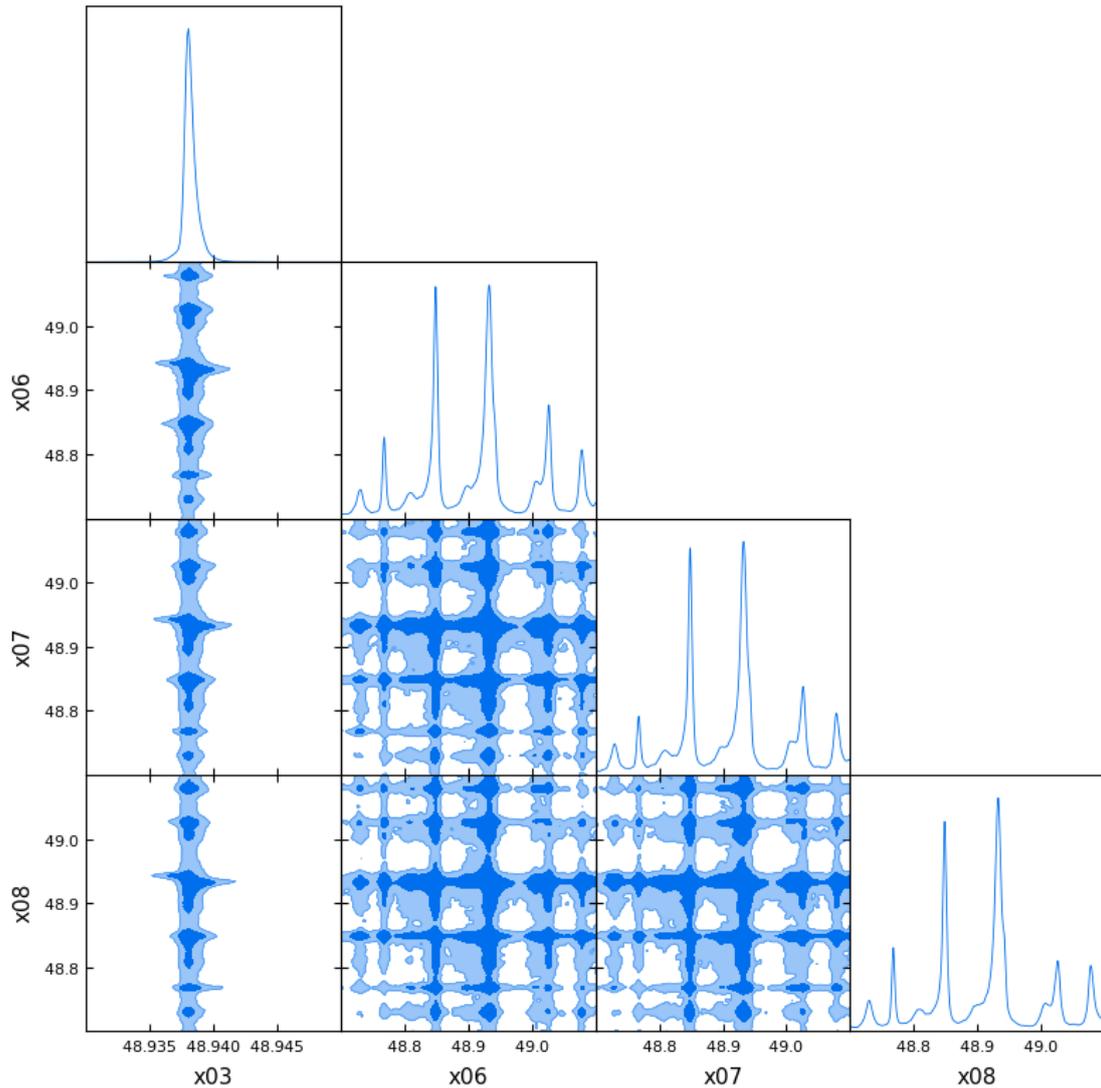
Ces limitations incitent à la segmentation du problème, afin de limiter la taille de l'espace des paramètres étudiés pour pouvoir étudier plus efficacement chaque contribution.

### IV.3.2 Étude pic par pic

Pour éviter les problèmes de symétrie entre les paramètres du modèle de la méthode précédente, on effectue un découpage de notre problème. Pour ce faire, on définit un découpage des données entre chaque pic. Chaque zone définie est la zone d'étude de chaque pic, afin d'étudier chaque contribution séparément, tout en considérant les pics voisins. Le découpage par spectre est présenté en figure IV.4.

Ensuite, pour chaque zone définie, on applique un modèle avec un nombre variable de raies et l'on compare l'évidence pour chaque modèle. Afin d'analyser les résultats,

FIG. IV.3 Densité de probabilité de l'ajustement de huit profils de Voigt de l'argon boronoïde. Les variables indiquées sont la position du troisième Voigt (centré sur le troisième pic) et la position des trois autres Voigt, sans aucune contrainte sur leurs positions. Elles peuvent être remplacées l'une par l'autre, ce qui explique la forme similaire des distributions des trois profils de Voigt libres. L'exécution a été réalisée avec dix essais pour limiter les zones inexplorées.



on analyse la mesure en étudiant les spectres indépendamment les uns des autres. Ces spectres mesurent des complexes de transitions, dont les intensités relatives et les différences d'énergie sont les mêmes. On compile alors, spectre par spectre, les résultats du meilleur ajustement. Lorsque l'on regarde l'évidence spectre par spectre, les résultats ne sont pas homogènes. Un exemple dans le spectre de soufre, comportant deux spectres non dispersif, est montré en figure IV.5.

FIG. IV.4 Spectre de soufre et d'argon, avec le découpage pic par pic indiqué. Chaque zone a été ajustée indépendamment. Le meilleur ajustement est montré en noir. La bonne continuité entre les zones ajustées montre la modélisation cohérente entre les différentes zones

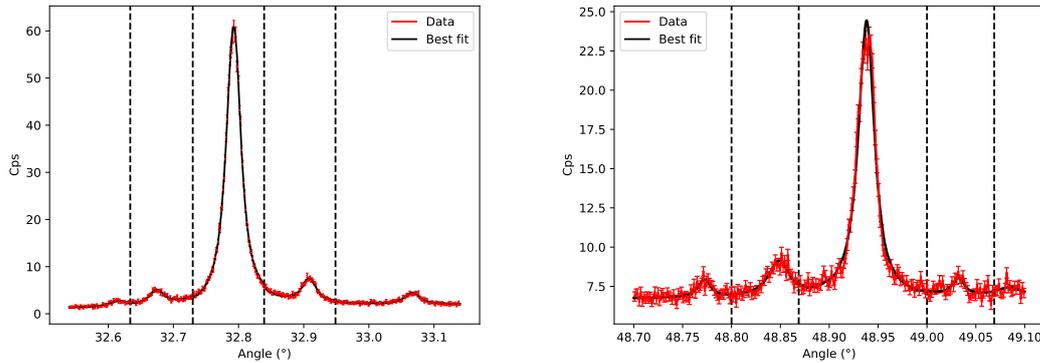
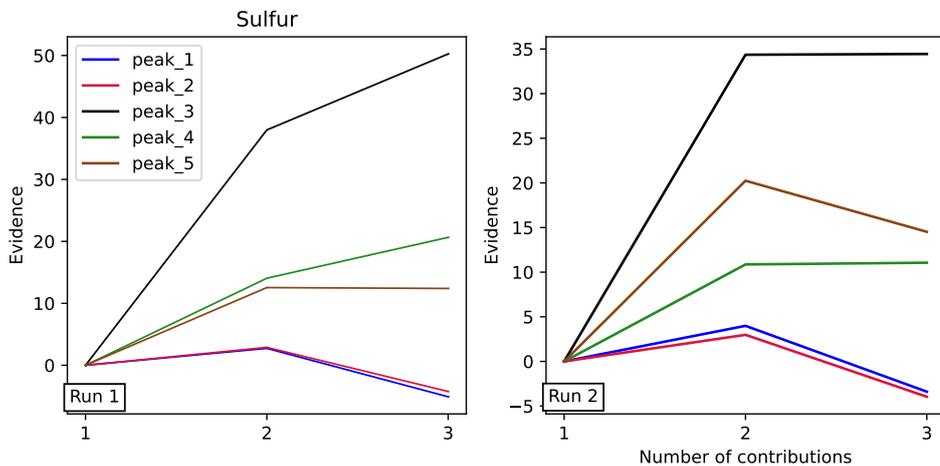


FIG. IV.5 Tracé de l'évidence du soufre, pour les deux spectres. Chaque contribution a été ajustée avec un profil de Voigt, à l'exception d'un pic (indiqué en légende), ajusté avec un, deux ou trois Voigt. L'évidence montrée est la différence d'évidence par rapport à l'évidence à un Voigt. Pour tous les pics, l'évidence est plus élevée pour plus qu'une contribution, ce qui indique un effet systématique, car certains pics à faible contribution ne peuvent pas résoudre de multiples contributions.



Une limitation de cette méthode est que l'évidence est calculée sur tout le spectre. Ainsi, on n'ajuste pas simplement un pic, mais tous. Ici, comme le troisième pic est de plus grande intensité que les autres, sa mauvaise modélisation est compensée avec les contributions ajoutées pour modéliser ses voisins. Un exemple de cet effet est montré en figure IV.6. La densité de probabilité de la position d'un des Voigt vient compenser la queue du troisième pic. Il est donc nécessaire d'exclure la zone non étudiée afin de déter-

miner le nombre de contributions dans chaque pic.

Pour éviter de faire peser les contributions des autres pics, on ne considère plus que les pics un à un, en gardant les mêmes coupes. On étudie de la même manière chaque spectre dispersif indépendamment, à l'aide de Voigt. Les contributions voisines peuvent affecter l'ajustement, donc les profils de Voigt obtenus à l'étape précédente sont utilisés pour modéliser leurs queues. Afin de limiter les problèmes de symétries lors de l'analyse, on impose à la première contribution d'être la plus intense (i.e., de contenir le plus de photons). La position des autres contributions est obtenue de manière relative à la contribution principale.

Dans le cadre du soufre, cette méthode donne un modèle à une contribution plus probable pour chaque pic, à l'exception du troisième, comme montré dans la figure IV.7. Selon le spectre, l'évidence n'est pas forcément maximale pour le même nombre de contributions.

Toutefois, dans ce cas, pour chaque spectre, chaque contribution supplémentaire augmente le nombre de variables utilisées par spectre de trois : une pour la position de contribution, une pour son amplitude et une pour la largeur naturelle par spectre. Cette augmentation du nombre de variables pénalise plus fortement les modèles complexes lors du calcul de l'évidence.

Or, *nested\_fit* permet d'effectuer une analyse de tous les spectres simultanément, à l'aide du modèle décrit en section IV.2.2.4. Cette approche permet de faire jouer plus de statistiques, ce qui peut révéler des contributions cachées. De plus, le pic principal ne peut pas être étudié sans inclure la forme de raie liée à la diffraction sur des cristaux, comme évoqué dans la section III.3.2.

Pour étudier le pic central avec les simulations, j'ai produit un ensemble de simulations, d'énergie proche à l'énergie théorique des raies. Comme la largeur naturelle est fixée pour chaque simulation, on effectue un ensemble de simulations de largeurs naturelles différentes. On ajuste ensuite ces simulations une à une afin de tester la modélisation de notre pic. Pour étudier deux contributions en même temps, il faut tester toutes les combinaisons de deux simulations. Pour cette analyse, nous nous limitons à des simulations avec des largeurs naturelles de 0 meV à 600 meV. L'évidence du modèle pour un nombre de contributions donné est le maximum d'évidence de tous les ajustements effectués.

Comme montré en figure IV.8, cette analyse confirme la déduction précédente pour le nombre de contributions présente dans les pics 1, 2, 4 et 5 du soufre et de l'argon. Pour le pic central, le résultat diffère selon l'élément. En effet, dans le cas de l'argon, l'évidence est plus élevée pour un modèle à deux contributions, tandis que pour le soufre, l'évidence est plus élevée pour le modèle à une contribution unique.

FIG. IV.6 a) Densité de probabilité de l'ajustement du spectre d'argon, pour les positions du troisième Voigt ( $x03$ ), correspondant au troisième pic, et des deux Voigt ajustés au deuxième pic ( $x02$  et  $x06$ ). La distribution de probabilité de  $x02$  (ajustant le second pic) tend vers la position du troisième pic, ce qui explique la mauvaise modélisation du pic. Le même comportement est observé pour le soufre. b) Ajustement du spectre d'argon, avec les contributions pour le deuxième pic montrées. La première contribution tend vers le troisième pic.

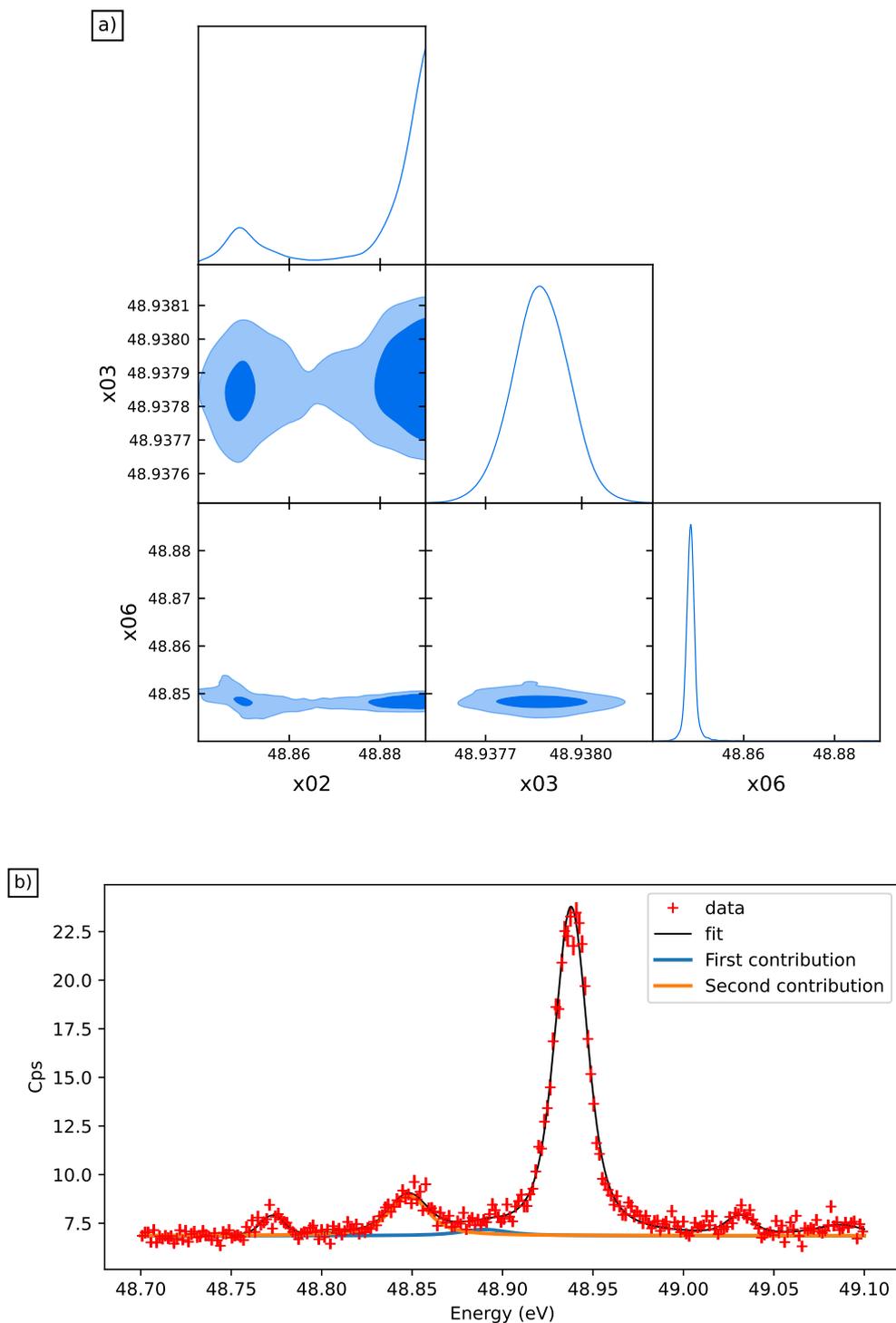
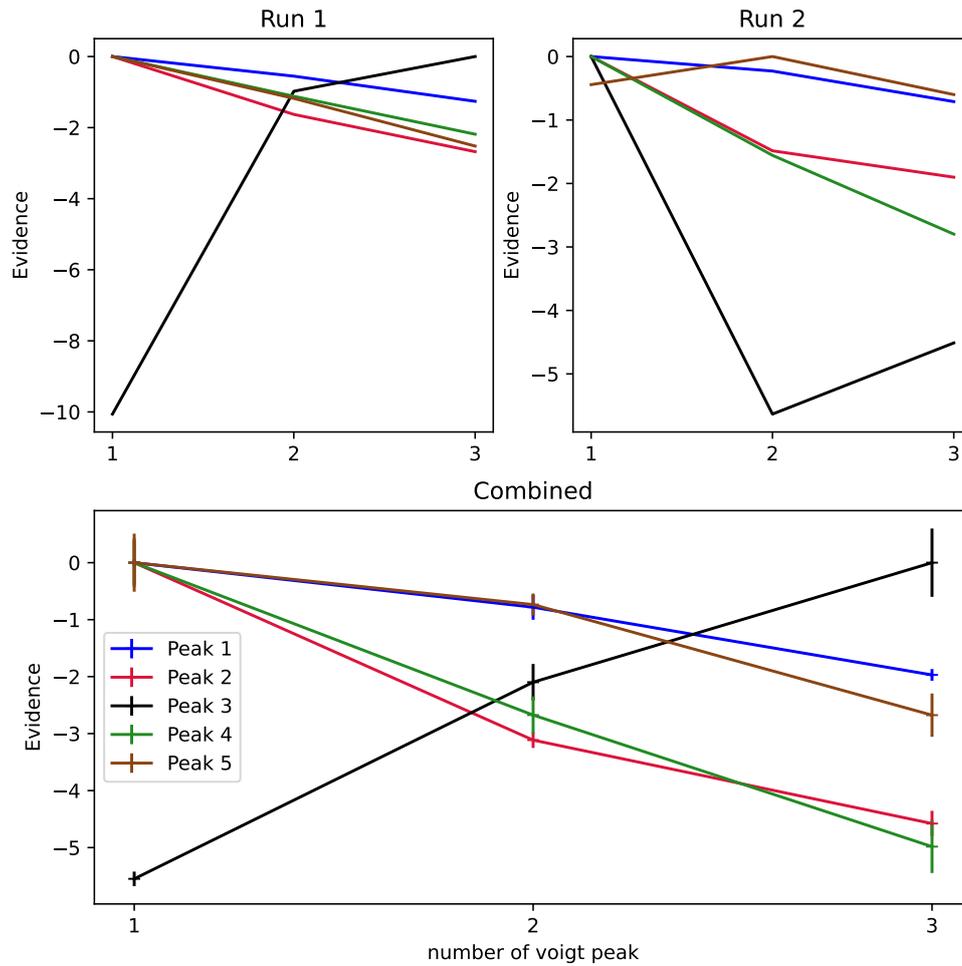


FIG. IV.7 Évidence pour l'ajustement des spectres de soufre, avec différents nombres de contributions, pour chaque série et pour la combinaison. Le graphique combiné est la somme des évidences de chaque spectre.



## IV.4 Identification des transitions

Le mécanisme principal de production d'ions boronoïdes, avec un électron manquant en couche K (i.e., dans la couche de nombre quantique principal  $n=1$ ), est une ionisation d'un ion carbonoïde (à six électrons) dans l'état fondamental ( $1s^2 2s^2 2p^2 \ ^3P_0$ ). L'énergie de l'électron incident étant grand comparé à l'énergie d'ionisation de l'ion, la probabilité d'une excitation d'un électron lors de l'ionisation est très faible. Ainsi, on s'attend à ce que la population majoritaire d'ions boronoïdes avec un trou K soient dans l'état  $1s2s^22p^2 \ ^2P_{1/2}, \ ^2P_{3/2}$ . Pour une première tentative d'identification, nous nous in-

FIG. IV.8 Différence relative entre l'évidence bayésienne logarithmique et son maximum pour chaque pic de l'argon et du soufre. Dans le cas du soufre, le modèle le plus probable est celui à une contribution, pour tous les pics du spectre. Pour l'argon, seul le troisième pic présente deux contributions. Les différences d'évidence pour le troisième pic sont plus grandes que les autres en raison de statistiques plus importantes.

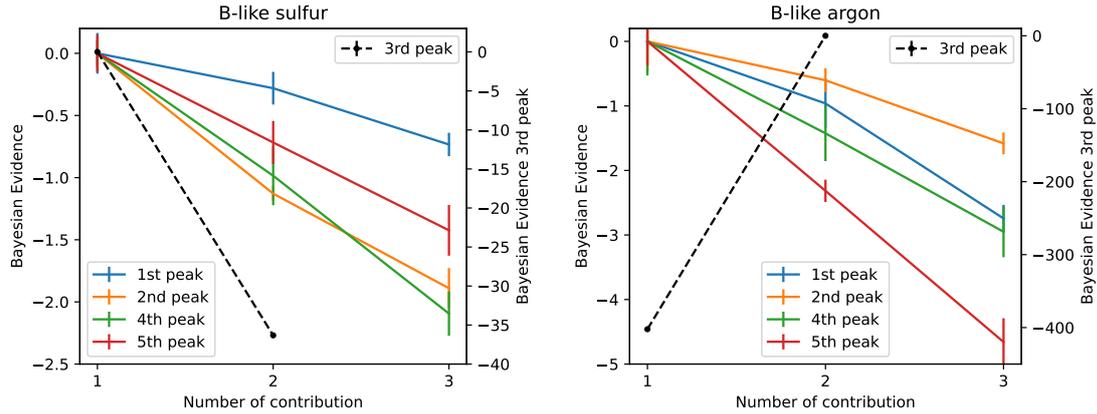
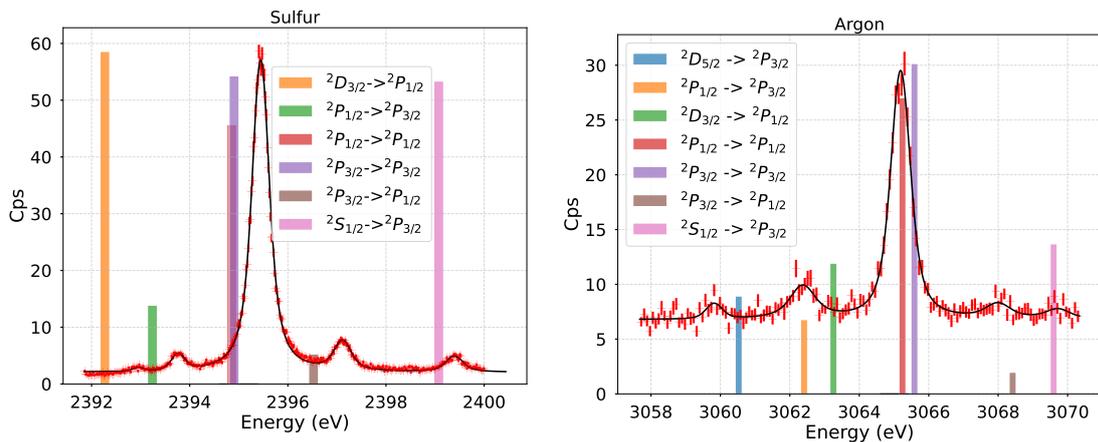


FIG. IV.9 Spectres du soufre et de l'argon avec identification. Les calculs théoriques pour le soufre ont été effectués par Palmeri [212] et Costa [214] pour l'argon. Un ajustement a été ajouté pour le confort de l'œil. L'angle a été converti en énergie en utilisant la formule de la Ref. [154, 165]. Les barres sont normalisées à la hauteur du pic le plus élevé, et les hauteurs relatives sont données par les taux de productions.

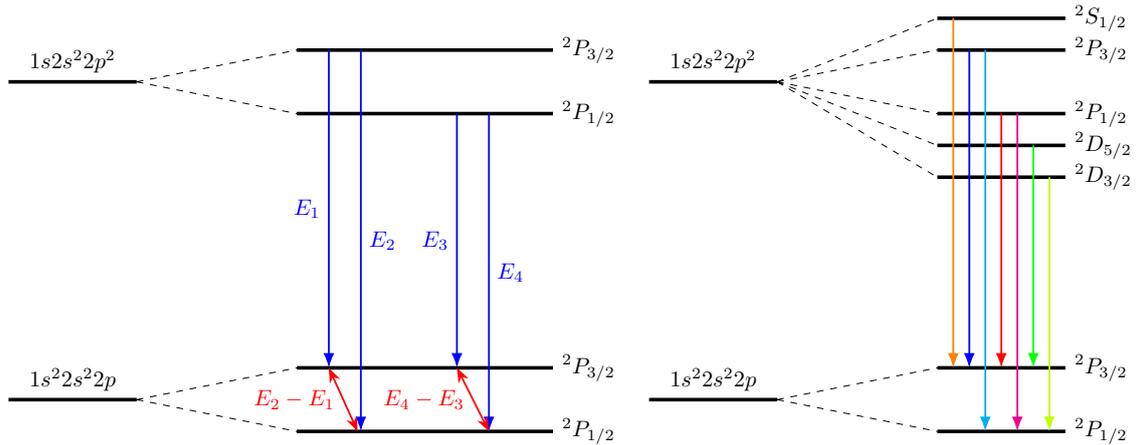


téresserons aux transitions dont l'état électronique est  $1s2s^22p^2$ . On s'attend également au processus de second ordre d'ionisation et d'excitation [123]. En traçant les positions des transitions calculées dont l'état électronique initial est  $1s2s^22p^2$ , avec un rapport de branchement suffisant (ici  $>0.01$ ), on obtient la figure IV.9.

De plus, la différence d'énergie  ${}^2P_{1/2} - {}^2P_{3/2}$  est presque la même pour l'état initial

$1s2s^22p^2$  et l'état final  $1s^22s^22p$ . Par conséquent, les deux transitions  $1s2s^22p^2 \ ^2P_J - 1s^22s^22p \ ^2P_J$ ,  $J \in [1/2, 3/2]$  auront presque la même énergie, et seront entourées par les deux  $1s2s^22p^2 \ ^2P_J - 1s^22s^22p \ ^2P_{J'}$ ,  $(J, J') \in [1/2, 3/2]$ ,  $J \neq J'$ , dont l'énergie diffère de celle des transitions  $1s2s^22p^2 \ ^2P_i - 1s^22s^22p \ ^2P_i$ ,  $i \in [1/2, 3/2]$  par la structure fine de l'état fondamental. Ceci conduit à un spectre attendu au sein d'un pic intense, contenant deux raies, entouré de deux raies faibles, symétriques autour du pic principal, comme observé expérimentalement (voir la section IV.6.3 pour la mesure des écarts de niveaux). Le schéma de transition est présenté dans la Fig. IV.10.

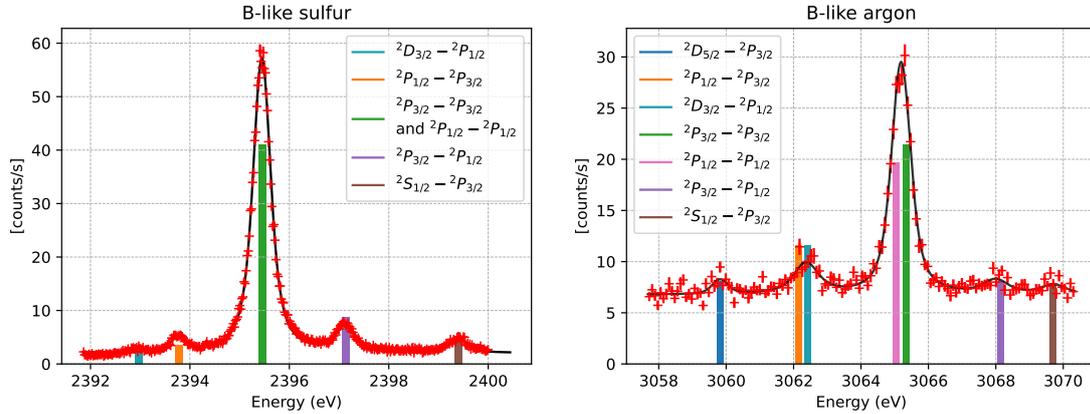
FIG. IV.10 Schéma de transition pour le pic principal et ses deux voisins. La symétrie des deux voisins s'explique par le fait que deux niveaux supérieurs se désexcitent en deux niveaux inférieurs. Comme la division des niveaux supérieurs et inférieurs est à peu près la même, c'est-à-dire  $E_1 - E_3 \approx E_2 - E_4$ , le pic central du spectre est mélangé. Avec  $E_2 - E_1 = E_4 - E_3$ , les transitions  $E_2$  et  $E_3$  sont symétriques par rapport aux transitions  $E_1$  et  $E_4$ . Les transitions identifiées pour le soufre et l'argon sont montrées dans le schéma de niveau. Seule la transition  $1s2s^22p^2 \ ^2D_{5/2} \rightarrow 1s^22s^22p \ ^2P_{3/2}$  du soufre n'apparaît pas dans le spectre.



Comme décrit ci-dessus, le deuxième pic de l'argon présente une largeur de raie plus importante que les autres pics, ce qui indique la présence possible d'une transition supplémentaire dans ce pic. Cette transition supplémentaire est identifiée comme  $1s2s^22p^2 \ ^2D_{3/2} - 1s^22s^22p \ ^2P_{1/2}$ , ce qui est attendu de la population de niveaux  $1s2s^22p^2 \ ^2D_{3/2}$ , ainsi que de la transition  $1s2s^22p^2 \ ^2D_{5/2} - 1s^22s^22p \ ^2P_{3/2}$ . Dans le soufre, le niveau  $^2D$  diminue en énergie, poussant le niveau  $^2D_{5/2}$  au-delà de la plage de mesure et séparant la transition  $1s2s^22p^2 \ ^2D_{3/2} - 1s^22s^22p \ ^2P_{1/2}$  de la transition  $1s2s^22p^2 \ ^2P_{1/2} - 1s^22s^22p \ ^2P_{3/2}$ . Enfin, le cinquième pic observé dans les spectres est identifié comme  $1s2s^22p^2 \ ^2S_{1/2} - 1s^22s^22p \ ^2P_{3/2}$  pour l'argon et le soufre. Les identifications complètes des pics pour l'argon et le soufre sont présentées dans la Fig. IV.11.

Afin de pouvoir étayer l'identification des spectres, j'ai déterminé les largeurs naturelles des transitions. Les largeurs naturelles, comparées au calcul théorique de ces transitions permettent de tester l'identification.

FIG. IV.11 Spectres du soufre et de l'argon avec identification. Un ajustement a été ajouté pour le confort de l'œil. L'angle a été converti en énergie en utilisant la formule de la Réf. [165]. La détermination de l'énergie est discutée en Section IV.6.2 et la comparaison avec la théorie est discutée dans la Section IV.8.



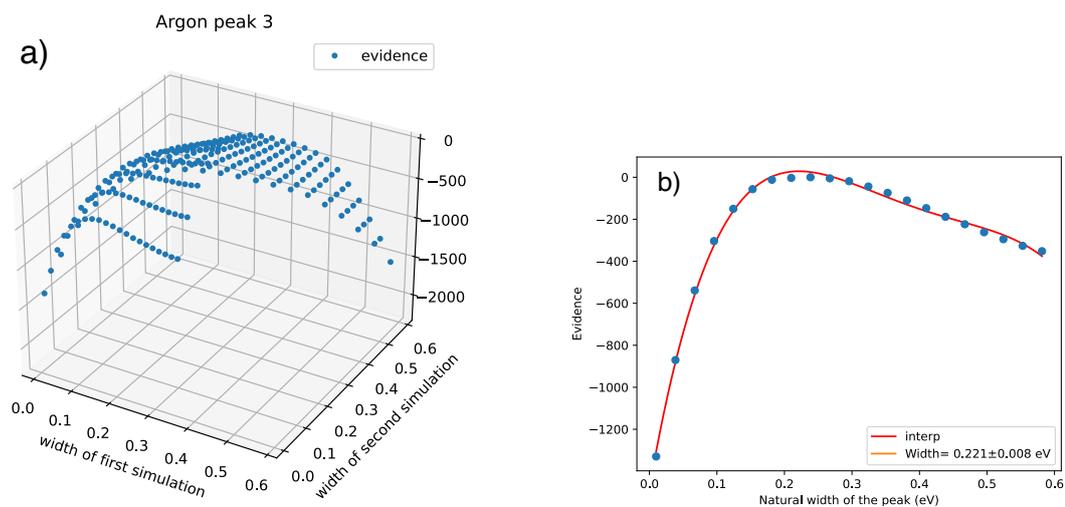
## IV.5 Détermination des largeurs naturelles

La détermination de la largeur est une étape clé de l'analyse. En effet, nous avons besoin de la largeur naturelle correcte comme paramètre d'entrée de la simulation pour extraire les valeurs finales de l'énergie de transition. Comme la largeur n'est pas un paramètre d'ajustement libre en raison du processus de simulation, je dois effectuer plusieurs analyses, chacune avec une valeur de largeur simulée différente.

Pour ce faire, j'ai effectué une série de simulations pour le soufre et l'argon. J'ai choisi une énergie de 2395 eV pour le soufre et 3065 eV pour l'argon. Ces énergies ont été choisies, car proches de l'énergie du pic principal, en l'absence de valeur théorique fiable. Ensuite, j'ai effectué un ensemble de 21 simulations, régulièrement espacées de 0 meV à 600 meV. Pour l'étude du second pic de l'argon, j'ai effectué 21 simulations de 0 meV à 800 meV, car sa largeur dépassait les 600 meV. J'ai utilisé ensuite l'approche de l'évidence maximale pour déterminer la largeur la plus probable. Lors de cette procédure, les deux (huit) spectres non dispersifs du soufre (argon) sont analysés simultanément, en utilisant la même simulation pour tous, selon la méthode décrite en section IV.2.2.4. Cette méthode réduit considérablement l'incertitude statistique de la mesure de la largeur par rapport à une analyse spectre par spectre. Ce point sera discuté dans la conclusion (section IV.10).

Pour les pics à une seule composante, la valeur de largeur la plus probable et l'incertitude associée sont déterminées en trouvant le maximum d'un polynôme du 4<sup>ème</sup> degré utilisé pour ajuster l'évidence Bayésienne (BE) en fonction de la largeur. Le maximum donne la largeur naturelle mesurée de la ligne, tandis que le maximum de la valeur du logarithme du BE moins 0,96 correspond à l'incertitude de  $2\sigma$  [222]. Pour les pics à deux contributions (dans l'argon uniquement), l'évidence est une fonction de deux largeurs différentes. Pour obtenir la largeur des deux contributions, j'ai projeté la fonction de l'évidence 2D sur la largeur d'une contribution en calculant le maximum de l'évidence par rapport à cette contribution :  $BE(w_i) = \max_j(BE(w_i, w_j))$ , comme montré en figure IV.12.

FIG. IV.12 a) Évidence en fonction de la largeur des simulations, pour un modèle à deux contributions. Les deux contributions sont différenciées en imposant une contribution plus intense que la seconde. b) Réduction des données pour la seconde contribution. Elle est obtenue par le maximum de l'évidence pour chaque largeur de la seconde contribution. Cette réduction est alors ajustée pour obtenir la largeur naturelle associée à cette contribution. La largeur est associée à la transition selon l'ordre d'énergie prédit par la théorie.



Toutes les largeurs obtenues par cette méthode sont indiquées dans le Tableau IV.2 pour l'argon et le soufre. Les résultats sont mis en perspective avec les calculs théoriques effectués par Indelicato [223]. Les calculs sont en bon accord avec les largeurs mesurées. La largeur de ces niveaux est largement dominée par l'effet Auger. En effet, lorsque la couche K est ouverte, l'effet Auger devient dominant, puisque l'énergie d'ionisation devient plus faible que l'énergie de transition. L'effet Auger prend le pas sur les phénomènes radiatifs et diminue l'intensité des transitions étudiées. Je n'ai pas pu extraire de largeur pour les contributions non résolues  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} - 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} - 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  dans le soufre. Sa largeur est plus large que la prédiction théorique d'environ 50 meV (cf. Tab. IV.2), appuyant la présence de ces deux transitions dans le pic principal du soufre. De même, pour les transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} - 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p\ ^2P_{1/2}$  dans l'argon. L'étude à une contribution donne une largeur de 617(41) meV loin des 183 meV prédit par la théorie pour le niveau  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2}$  (calculé pour la transition  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} - 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$ ). En raison de sa faible statistique, la largeur de la transition  $1s2s^22p^2\ ^2S_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  n'a pas pu être étudiée.

## IV.6 Détermination de l'énergie

Une fois la largeur de chaque contribution déterminée, je peux déduire l'énergie de chaque transition. L'angle de Bragg dépend de la température des cristaux. Cependant,

TABLE IV.2 – Largeurs mesurées pour le soufre et l'argon. Toutes les transitions vont de l'état électronique  $1s2s^22p^2\ ^{2S+1}L_J$  à l'état  $1s^22s^22p\ ^2P_J$ . Si deux transitions sont mentionnées, la largeur indiquée est la largeur combinée. Les largeurs théoriques ont été obtenues à l'aide de calculs MCDF, effectués par Paul Indelicato. Les trois colonnes de droite contiennent les contributions radiatives et Auger théoriques et les largeurs théoriques totales des transitions. Plus de détails sur les calculs théoriques sont donnés en section IV.8.

Transition	Exp. (meV)	Radiat. (meV)	Auger (meV)	Total (meV)
Soufre				
$^2D_{3/2} - ^2P_{1/2}$	256 (63)	21	196	217
$^2P_{1/2} - ^2P_{3/2}$	154 (30)	58	87	145
$^2P_{3/2} - ^2P_{3/2}$ et $^2P_{1/2} - ^2P_{1/2}$	192 (3)			
$^2P_{3/2} - ^2P_{1/2}$	140 (18)	57	89	145
$^2S_{1/2} - ^2P_{3/2}$	208 (27)	24	172	196
Argon				
$^2D_{5/2} - ^2P_{3/2}$	248 (41)	19	209	228
$^2P_{1/2} - ^2P_{1/2}$ et $^2D_{3/2} - ^2P_{1/2}$	617 (41)			
$^2P_{1/2} - ^2P_{1/2}$	221 (8)	90	93	183
$^2P_{3/2} - ^2P_{3/2}$	182 (9)	88	89	177
$^2P_{3/2} - ^2P_{1/2}$	277 (74)	88	89	177

la mauvaise stabilisation de la température des cristaux, causée par la chaleur de l'été, et l'absence d'un système de stabilisation de la température ambiante, a provoqué une dérive de la température des cristaux tout au long de la journée. Cet écart est d'environ 1 °C et est utilisé pour calculer l'incertitude dans le tableau IV.3. Les incertitudes de type B sont obtenues par les mêmes méthodes que celles décrites dans les Refs. [82, 83, 165]. Comme la largeur de la transition  $1s2s^22p^2\ ^2S_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  de l'argon n'a pas pu être déterminée, l'énergie a été déterminée par un ajustement de Voigt.

#### IV.6.1 Correction de la température

Avec la largeur de raie naturelle déterminée ci-dessus, de nouvelles séries de simulations de spectres dispersifs et non dispersifs sont effectuées, en utilisant la largeur de raie correspondante pour différentes transitions, énergies, et températures de cristal. Nous utilisons cinq énergies différentes  $E_k = E + k\Delta E$ , avec  $\Delta E \approx 10$  meV,  $E$  étant l'énergie déduite dans la Sec. IV.5 dans l'analyse de la largeur et dix températures de 22.5 °C à 27 °C pour chaque raie. Les simulations ont été effectuées en utilisant la même température pour les deux cristaux. Nous ajustons de nouveau en appliquant la coupure entre les pics et la modélisation du voisinage. Cependant, les cristaux ont des températures différentes qui changent lors de la journée. Les simulations utilisent une température identique pour les deux cristaux, puisque la différence entre ces deux est généralement négligeable ( $>0.001$  °C, voir Réf. [171] et section III.3.5). La différence d'angle est due à la dilatation des deux cristaux, causée par le changement de température, qui modifie l'espacement

du réseau des cristaux. Cette dilatation est décrite en section III.3.2, et montrée en figure IV.13. On observe que, lorsque l'on effectue un spectre non dispersif, un décalage se produit uniquement si les deux cristaux sont de température différente. Lors du spectre dispersif, deux décalages se produisent. Le premier est dû à la température du second cristal, qui explique le décalage entre les simulations avec des températures des deux cristaux identiques. Un second décalage est présent sur le spectre dispersif, entre la simulation avec les deux cristaux à une température de 30°, et la simulation avec la température du premier cristal à 40° et le second à 30°.

Pour comprendre ce décalage, j'ai utilisé l'équation (III.3) pour l'angle de Bragg, qui peut être écrit comme suit :

$$\Theta_{\text{Bragg}}(E, T) = \arcsin\left(\frac{n\lambda(1 - \delta(E))}{2d(T)}\right), \quad (\text{IV.2})$$

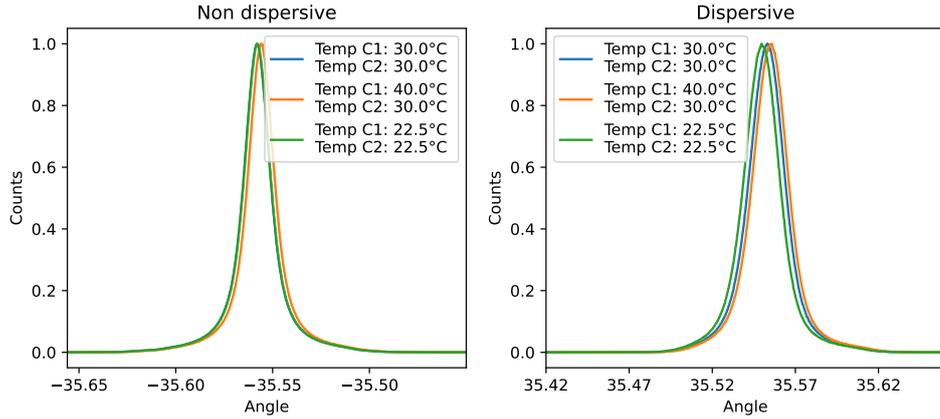
avec  $n$  l'ordre de diffraction,  $\lambda$  la longueur d'onde des photons,  $d(T)$  l'espacement du réseau du cristal à la température  $T$ ,  $\delta(E)$  la correction de l'indice de réfraction et  $\Theta_{\text{Bragg}}$  l'angle de Bragg d'un photon d'énergie  $E$ . La différence d'angle induite par le changement de l'espacement du réseau du premier cristal dû à la différence de température entre les deux cristaux peut être bien approximée en utilisant l'Eq. (IV.2) :

$$\Delta\theta = \Theta_{\text{Bragg}}(E, T_{\text{cryst 1}}) - \Theta_{\text{Bragg}}(E, T_{\text{cryst 2}}).$$

TABLE IV.3 – Liste des incertitudes systématiques pour chaque spectre. Les incertitudes systématiques sont séparées en deux catégories. La première, les incertitudes systématiques quotidiennes, comprend toutes les systématiques qui peuvent changer quotidiennement. Les contributions globales comprennent les incertitudes systématiques qui dépendent de paramètres expérimentaux constants, tels que les paramètres de maille des cristaux, les incertitudes liées aux courbes de réponse des cristaux ou à la géométrie de l'installation.

Contributions Journalières (eV)	Valeur (S)	Valeur (Ar)
Précision de l'encodeur angulaire (0.2'')	0.0016	0.0035
Stabilisation en température du 2 <sup>nd</sup> cristal (1.0 °C)	0.0062	0.0079
Variation de la taille de la source rayon x de 6 mm à 12 mm	0.00462	0.0013
Total (eV)	0.0124	0.0127
Contributions globales (eV)	Value (S)	Value (Ar)
Lecture de la température (0.5 °C)	0.0031	0.0040
Inclinaison verticale des cristaux ( $\pm 0.01^\circ$ pour chaque cristal)	0.00085	0.0002
divergence verticale du faisceau (1 mm)	0.00102	0.0002
Facteur de forme atomique du cristal de Si	0.003	0.002
Polarisation des rayons X	0.006	0.0014
Erreur sur la distance interréticulaire	0.0000287	0.000037
Indice de réfraction	0.00055	0.0016
Expansion thermique	0.00015	0.00019
Total (eV)	0.0075	0.0069

FIG. IV.13 Effet de la température sur les spectres non dispersifs et dispersifs simulés. Les simulations ont été effectuées par Daniel Pinheiro. Pour le côté non dispersif, il n'y a pas de décalage si les deux cristaux sont à la même température. Pour le côté dispersif, le décalage causé par l'écart de température des deux cristaux s'additionne.



Cette correction est appliquée à chaque spectre, dispersif et non dispersif. La déviation à la température est étudiée grâce à l'ajustement de l'écart entre la position des deux spectres simulés dispersif et non dispersifs, et des spectres mesurés :

$$\Delta\theta_{\text{Expt-simul}}(E_{\text{Expt}}, T_{\text{Expt}}) = 0,$$

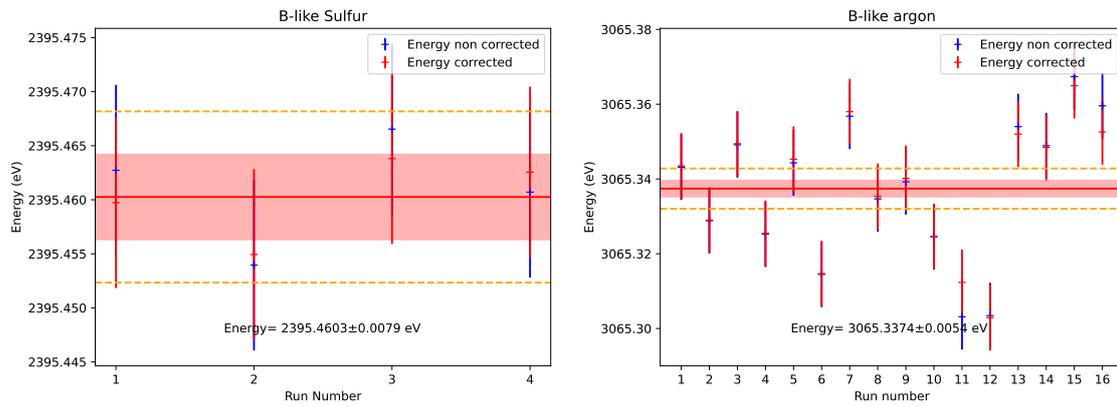
où  $T_{\text{Expt}}$  est la température du second cristal du spectre dispersif. L'effet correction en température sur l'énergie est montré en figure IV.14.

## IV.6.2 Moyenne Bayésienne

Les énergies déduites de chaque passage peuvent maintenant être traitées pour obtenir la valeur finale de l'énergie et son incertitude. La façon habituelle de traiter les données consiste à effectuer une moyenne pondérée par l'inverse de la variance. Cette méthode repose sur l'évaluation précise des incertitudes des points de données pour la détermination correcte de la valeur moyenne pondérée globale [121]. Toutefois, lorsque des données incohérentes doivent être analysées (avec une dispersion beaucoup plus importante que la taille typique des barres d'incertitude attribuées), l'incertitude finale de la moyenne pondérée ne dépend pas de la dispersion des points, ce qui risque de la sous-estimer. Nos données sont beaucoup plus dispersées que les mesures précédentes [83, 165, 166, 197], à cause des fluctuations de température des cristaux. Cette dispersion rend l'utilisation de la moyenne pondérée standard inappropriée.

Pour résoudre ce problème, j'ai effectué une moyenne bayésienne (BAv) [224], où l'incertitude liée à chaque point de données est considérée comme une limite inférieure de l'incertitude réelle, y compris les incertitudes systématiques inconnues. Cette méthode a été développée sous python par Trassinelli et Maxton [15]. Pour chaque mesure, les incertitudes systématiques dépendantes du jour sont ajoutées à chaque point de données, avant

FIG. IV.14 Effet de la correction de température sur l'énergie des transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p\ ^2P_{3/2}$  de l'argon (gauche),  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p\ ^2P_{1/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p\ ^2P_{3/2}$  du soufre (à droite). Dans le cas du soufre, cette correction réduit la dispersion journalière (chaque spectre pair-impair consécutifs). Dans l'argon, cette correction réduit la dispersion des mesures par rapport à la valeur mesurée. La valeur énergétique est calculée à l'aide d'une méthode de moyenne pondérée. L'incertitude statistique de  $1-\sigma$  est représentée par une bande rouge, tandis que l'incertitude type (type A et type B) de  $1-\sigma$  est indiquée par une ligne orange pointillés.



d'effectuer la procédure de log-vraisemblance. Pour obtenir l'incertitude finale, les incertitudes systématiques qui ne dépendent pas de conditions de mesure quotidiennes sont ajoutées à l'incertitude de la log-vraisemblance. Dans cette analyse, en particulier pour les spectres d'argon où les mesures présentent des valeurs aberrantes et une forte diffusion, la BAv permet d'estimer de façon robuste l'incertitude statistique due à la dispersion des données et minimiser l'effet d'éventuelle de valeurs aberrantes, qui modifie l'énergie mesurée. La différence entre la méthode des moindres carrés et la moyenne Bayésienne est présentée en figure IV.20 et figure IV.21. Des valeurs aberrantes ont été observées dans les spectres de l'argon, en particulier pour l'argon  $1s2s^22p^2\ ^2D_{5/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p\ ^2P_{3/2}$  (cf. figure. IV.21a) et  $1s2s^22p^2\ ^2S_{1/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p\ ^2P_{3/2}$  (cf. Fig. IV.21f). Comme seuls deux spectres dispersifs ont été enregistrés pour le soufre, aucune valeur aberrante n'existe (cf. Fig. IV.20).

### IV.6.3 Mesure de l'écart des niveaux

La relative symétrie du spectre est, comme expliqué dans ce chapitre, liée au fait que l'on mesure deux fois deux transitions séparées par la même énergie. Or, deux des quatre transitions mesurées sont mélangées, et, dans le cas du soufre, sont non résolues. Regarder l'écart entre les transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$ , ainsi que  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$ , permet d'estimer l'énergie des niveaux  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2}$ .

Contrairement à l'analyse absolue de l'énergie, où une mesure se compose d'un spectre non dispersif et d'un spectre dispersif, une mesure relative se compose uniquement des spectres dispersifs. Pour cette analyse, j'ai comparé l'énergie des transitions obtenue à l'étape précédente pour chaque spectre. J'ai ensuite appliqué la moyenne bayésienne pour chaque différence. Les moyennes pour chaque élément et pour chaque transition sont montrées dans les figures IV.15 et IV.16.

Pour le soufre, la différence d'énergie entre le pic principal et les transitions voisines sont toutes les deux d'environ 1.68 eV (voir Figure IV.15). Or la transition  $1s^22s^22p\ ^2P_{3/2} - ^2P_{1/2}$  a été mesurée à 1.6286 eV [226]. Le fait que chaque différence soit supérieure à la valeur mesurée indique que la transition  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  est de plus haute énergie que la transition  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$ , contrairement à l'argon. Si l'on suppose les deux transitions d'intensité comparable, on peut estimer l'écart entre ces deux transitions autour de 30 meV. Cet écart, faible comparé à la résolution de notre spectromètre, peut expliquer notre incapacité à résoudre les transitions.

En effectuant l'analyse en largeur pour deux contributions, j'ai regardé l'écart en énergie en fonction de la largeur de la première contribution. Cette analyse a été effectuée spectre par spectre. J'ai calculé la différence d'énergie en utilisant la différence d'angle de Bragg entre les deux contributions. On peut voir que la différence d'énergie entre les deux contributions change fortement en fonction des largeurs. On a mesuré les largeurs des niveaux  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2}$ ,  $^2P_{3/2}$  respectivement à 154(30) meV et 130(18) meV à l'aide des transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  (deuxième pic) et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  (quatrième pic). En imposant la largeur de la première contribution, il est impossible de déduire la différence en énergie des transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_i \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_i, i \in \{1/2; 3/2\}$ , comme montré en figure IV.17. En effet, en fonction de la largeur de la première contribution, l'écart d'énergie entre les deux contributions varie fortement. Lorsque la largeur de la première contribution est proche de la valeur mesurée, la seconde contribution est rejetée en dehors du pic. Inversement, lorsque la valeur de la largeur naturelle de la première contribution est proche de la valeur théorique des niveaux  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2}$  et  $^2P_{3/2}$ , on est incapable de les séparer.

FIG. IV.15 Moyenne bayésienne de la différence d'énergie entre les transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  dans le soufre (à gauche). Moyenne bayésienne de la différence d'énergie des transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  dans le soufre (droite). Nous pouvons voir que le mélange des transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  déplace l'énergie mesurée de la transition  $1s^22s^22p\ ^2P_{1/2} - ^2P_{3/2}$ , en désaccord avec la valeur de 1.6286 meV provenant de la spectroscopie par réseau.

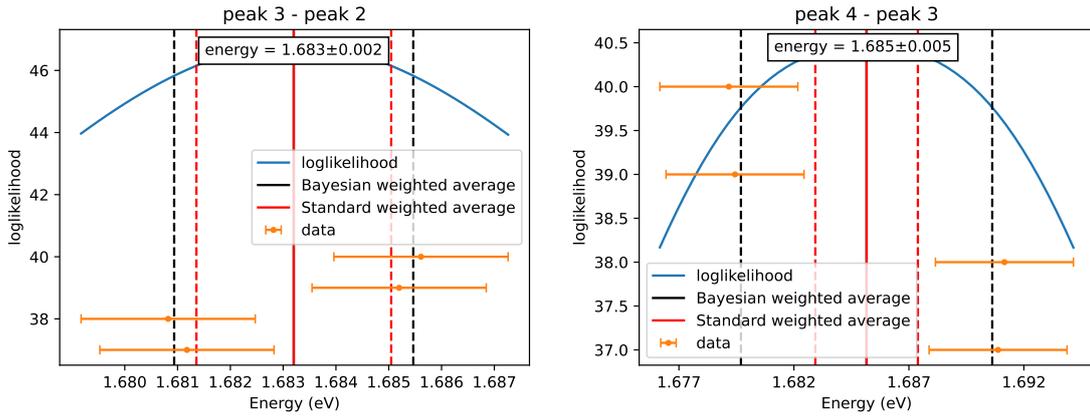


FIG. IV.16 Moyenne bayésienne de la différence d'énergie entre les transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  dans l'argon (à gauche). Moyenne bayésienne de la différence d'énergie des transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  dans l'argon (droite). On voit que le mélange des transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  déplace l'énergie mesurée de la transition  $1s^22s^22p\ ^2P_{1/2} - ^2P_{3/2}$ . L'autre mesure est en bon accord avec la mesure laser à 2.8090 eV [225].

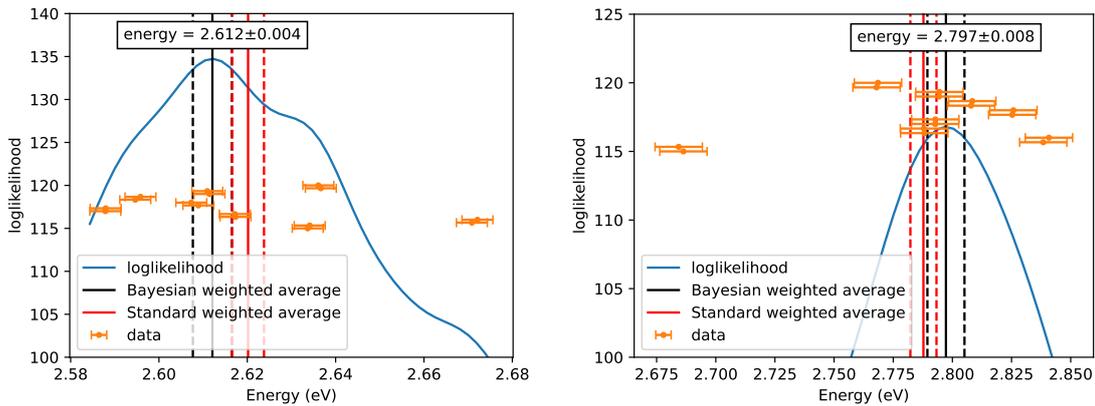
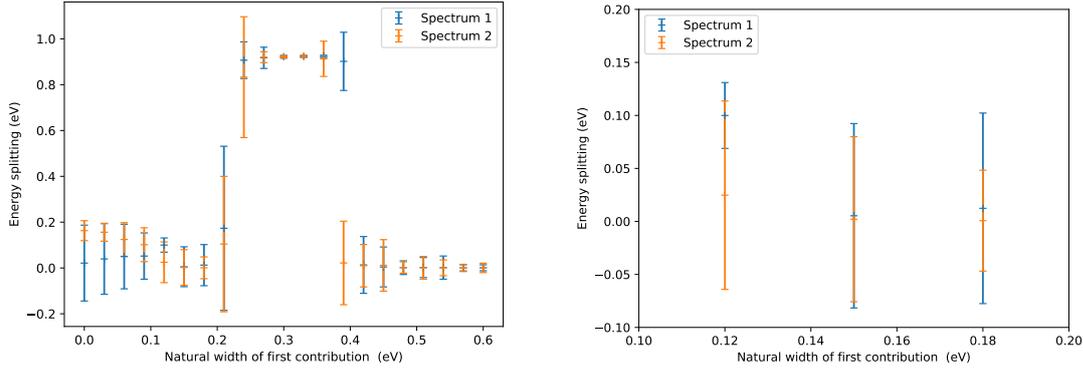


FIG. IV.17 Différence d'énergie absolue entre les deux contributions ajustées au troisième pic du soufre boronoïde. Le graphique de droite est une partie zoomée autour de la largeur théorique des transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$ . Nous ne pouvons pas déterminer si l'écart d'énergie entre les deux transitions est non nulle.



## IV.7 Cas des transitions $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$ et $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$ de l'argon

Dans les sections précédentes, j'ai présenté l'analyse principale, qui a mené à la mesure de plusieurs raies  $1s2s^22p^2\ J \rightarrow 1s^22s^22p\ J'$ . Toutefois, d'autres diagnostics ont été menés, afin de consolider l'identification des transitions présentes dans le second pic de l'argon. Comme identifié en section IV.4, deux transitions pouvaient être présentes dans le deuxième pic de l'argon, à savoir les transitions  $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$ .

Dans cette section, je présente une analyse visant à utiliser les connaissances a priori que l'on a de la transition  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$ , afin de pouvoir déterminer, éventuellement, la largeur naturelle et l'énergie de la transition  $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$ .

### IV.7.1 Détermination des largeurs naturelles

L'analyse de la largeur naturelle du second pic de l'argon indique que, si l'on considère uniquement une contribution pour ce pic, la largeur naturelle est très grande comparée aux largeurs calculées (617(41) meV comparé à des valeurs théoriques  $\leq 400$  meV). Ceci suggère la présence de plusieurs transitions non résolues. De plus, l'identification de la transition  $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  dans le spectre du soufre, ainsi que le calcul théorique de cette transition dans l'argon soulignent la présence dans le second pic, mélangée avec la transition  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$ , dont la présence est imposée par la population du niveau  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2}$ . Afin d'essayer d'étudier la largeur d'éventuelles contributions, j'ai étudié la largeur de ce pic, en supposant deux transitions présentes. Pour cette analyse, j'ai imposé dans mon modèle que la première contribution soit de plus faible énergie que la seconde. Ceci me permet de m'assurer que la première contribution

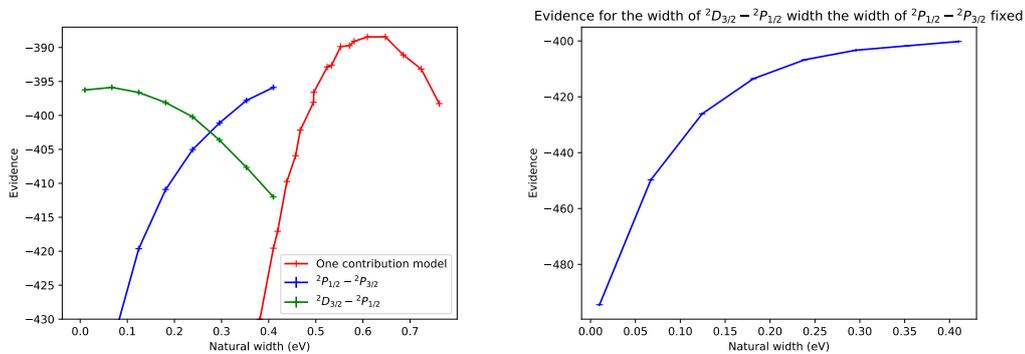
modélise la transition  $1s2s^22p^2 {}^2D_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p {}^2P_{1/2}$  et que la seconde modélise la transition  $1s2s^22p^2 {}^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p {}^2P_{3/2}$ .

L'évidence pour le modèle avec deux contributions est plus faible que pour le modèle à une contribution. Ceci signifie que, statistiquement, la présence d'une seconde contribution n'est pas significative. Or, ici, notre a priori est que deux contributions sont présentes, ce qui semble rentrer en contradiction avec le résultat de l'analyse Bayésienne. Cette contradiction n'en est pas une, puisque notre connaissance a priori du problème prime : au moins deux transitions sont présentes ici.

J'ai appliqué ici la même méthode que pour la mesure des largeurs naturelles des transitions  $1s2s^22p^2 {}^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p {}^2P_{3/2}$  et  $1s2s^22p^2 {}^2D_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p {}^2P_{1/2}$  de l'argon. À partir de l'évidence obtenue en regardant la largeur des contributions obtenue par l'analyse Bayésienne, on voit que l'évidence est maximale si la transition  $1s2s^22p^2 {}^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p {}^2P_{3/2}$  a une largeur naturelle inférieure à 100 meV et que la transition  $1s2s^22p^2 {}^2D_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p {}^2P_{1/2}$  a une largeur naturelle supérieure à 400 meV. Ces deux largeurs sont respectivement trop faible et trop grande pour être physique. Ainsi, on ne peut pas obtenir la largeur naturelle de ces transitions de cette manière.

Grâce à l'analyse de la largeur de la transition  $1s2s^22p^2 {}^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p {}^2P_{1/2}$ , on sait que la largeur du niveau  $1s2s^22p^2 {}^2P_{1/2}$  est de 221(8) meV. On peut alors fixer la largeur de la contribution modélisant la transition  $1s2s^22p^2 {}^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p {}^2P_{3/2}$  par la valeur de la largeur naturelle du niveau  $1s2s^22p^2 {}^2P_{1/2}$ , mesurée grâce à la transition  $1s2s^22p^2 {}^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p {}^2P_{1/2}$ , à savoir 221 meV. Toutefois, même cette approche ne permet pas d'obtenir une valeur pour la largeur du niveau  $1s2s^22p^2 {}^2D_{3/2}$ , puisque l'évidence Bayésienne est maximale pour une largeur naturelle supérieure à 600 meV. L'évidence obtenue avec un modèle à deux contributions est comparée à l'évidence obtenue pour un modèle à une contribution en figure IV.18. Dans cette figure, l'évidence en fonction de la largeur simulée de la transition  $1s2s^22p^2 {}^2D_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p {}^2P_{1/2}$  est également montrée.

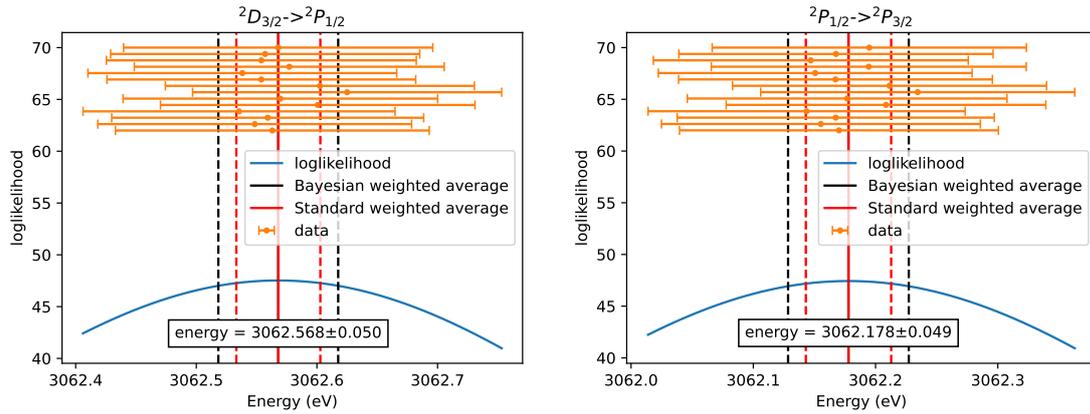
FIG. IV.18 (Gauche) Évidence en fonction de la largeur pour le modèle à une contribution et deux contributions. (Droite) Évidence en fonction de la largeur, avec la largeur de la transition  $1s2s^22p^2 {}^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$  fixée à sa valeur mesurée.



### IV.7.2 Détermination de l'énergie

Pour l'argon, la même analyse a été menée pour le second pic où les deux transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  sont non résolues. J'ai calculé l'énergie en utilisant l'analyse en largeur. Pour ce faire, j'ai imposé la largeur de la transition  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  proche de la valeur mesurée. La largeur de la transition  $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  n'a pas pu être déduite par le maximum d'évidence. Toutefois, l'évidence Bayésienne possède un maximum, En regardant l'écart à l'énergie de la simulation pour chaque spectre, on obtient deux énergies, cohérente par rapport aux prédictions théorique. En effet, cette analyse préliminaire donne 3062.178(49) eV pour la transition  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$ , en bon accord avec les calculs MCDF le prévoyant à 3062.260(62) eV (voir figure IV.19). L'accord est également bon pour la transition  $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$ , avec une énergie mesurée à 3062.568(50) eV pour une énergie calculée à 3062.725(24) eV.

FIG. IV.19 Moyenne bayésienne pour déterminer l'énergie entre les transitions  $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$  (gauche) et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  (droite). Les deux transitions ne sont pas résolues, ce qui rend l'incertitude énergétique beaucoup plus importante que pour les autres transitions.

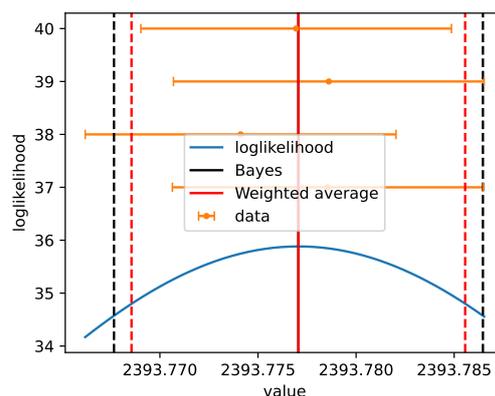
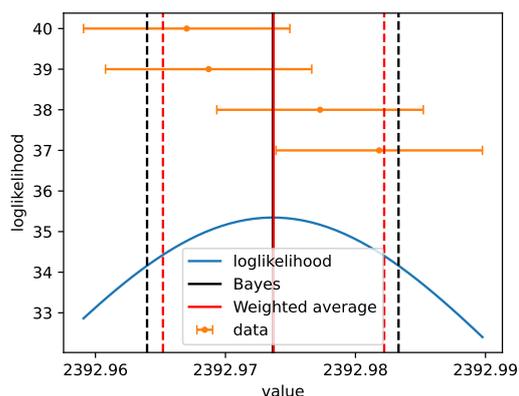


L'énergie de la transition  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  mesurée par cette méthode peut également être testée à l'aide de la différence entre l'énergie des transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{3/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$ . Pour ce faire, je détermine les énergies de Ritz des transitions mesurées. Ceci complète la mesure expérimentale des transitions  $2p \rightarrow 1s$  du soufre et de l'argon. Les résultats sont présentés en figure IV.4. Pour mieux comprendre ces mesures, il est nécessaire de les comparer avec des calculs théoriques.

FIG. IV.20 Détermination de l'énergie par log-vraisemblance pour le soufre. Pour chaque point de mesure, l'incertitude comprend les incertitudes journalières et l'incertitude statistique. Une fois l'énergie finale et son incertitude déduites, l'incertitude globale est ajoutée. Parmi toutes les mesures, la moyenne pondérée et la moyenne bayésienne sont compatibles, et l'incertitude de la moyenne bayésienne est supérieure à la moyenne pondérée.

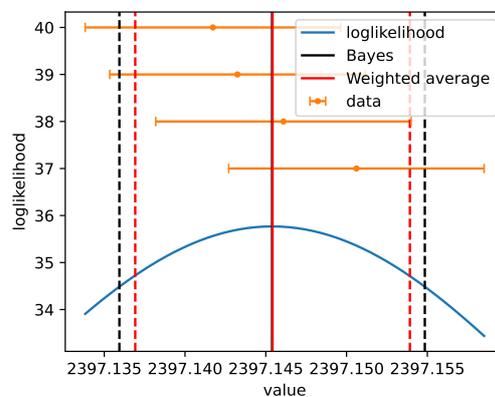
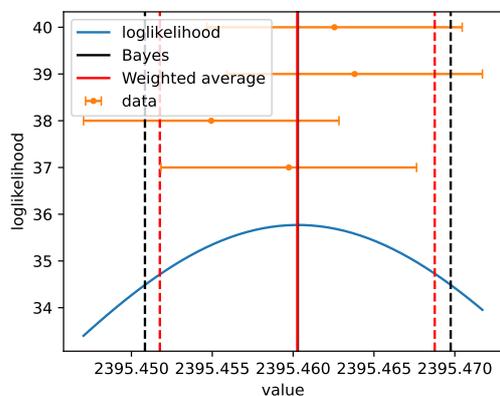
(a)  $1s2s^22p^2 {}^2D_{3/2} - 1s^22s^22p {}^2P_{1/2}$

(b)  $1s2s^22p^2 {}^2P_{1/2} - 1s^22s^22p {}^2P_{3/2}$



(c)  $1s2s^22p^2 {}^2P_{1/2} - 1s^22s^22p {}^2P_{1/2}$  et  $1s2s^22p^2 {}^2P_{3/2} - 1s^22s^22p {}^2P_{3/2}$

(d)  $1s2s^22p^2 {}^2P_{3/2} - 1s^22s^22p {}^2P_{1/2}$



(e)  $1s2s^22p^2 {}^2S_{1/2} - 1s^22s^22p {}^2P_{3/2}$

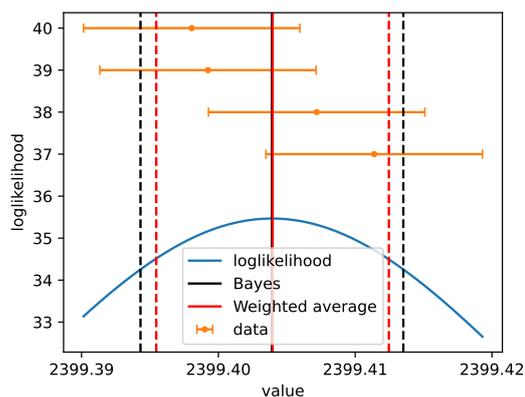


FIG. IV.21 Détermination de l'énergie par log-vraisemblance pour l'argon. Pour chaque point de mesure, l'incertitude comprend les incertitudes journalières et l'incertitude statistique. Une fois que l'énergie finale et son incertitude sont déduites, l'incertitude globale est ajoutée. Parmi toutes les mesures, la moyenne pondérée et la moyenne bayésienne sont compatibles. Néanmoins, les mesures aberrantes, dues à de faibles statistiques, décalent l'énergie totale mesurée, alors que l'approche bayésienne exclut ces points. L'approche de la moyenne bayésienne permet également d'adapter l'incertitude à la dispersion des points, alors que l'incertitude statistique de la moyenne pondérée ne dépend pas des points eux-mêmes et s'appuie sur des règles empiriques en cas de forte dispersion.

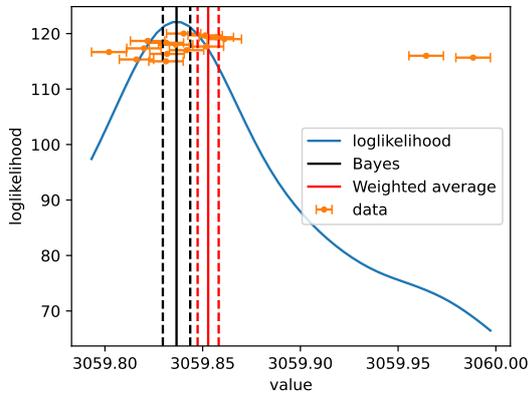
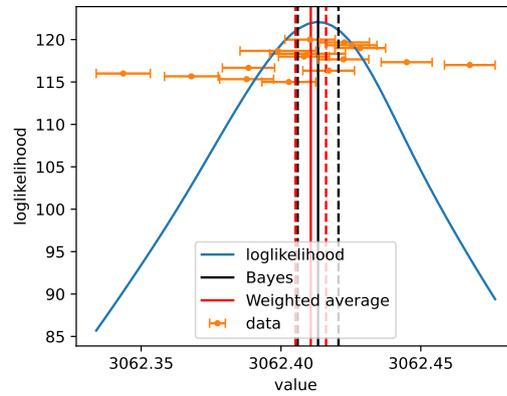
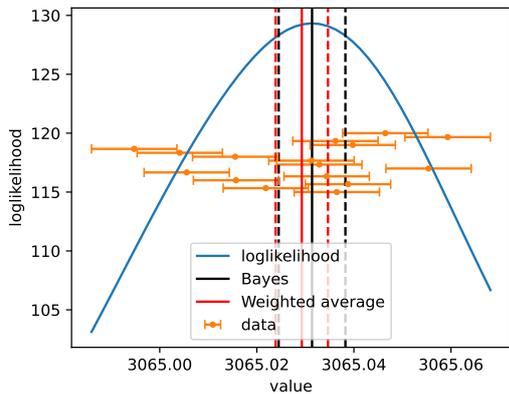
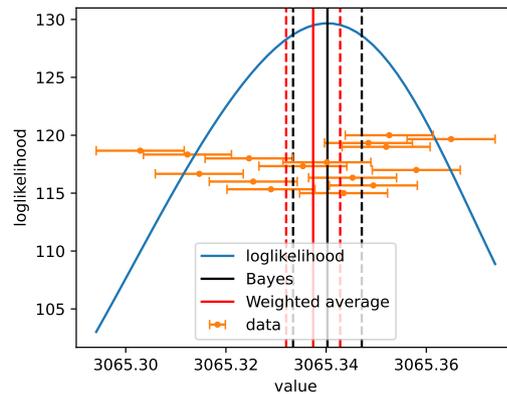
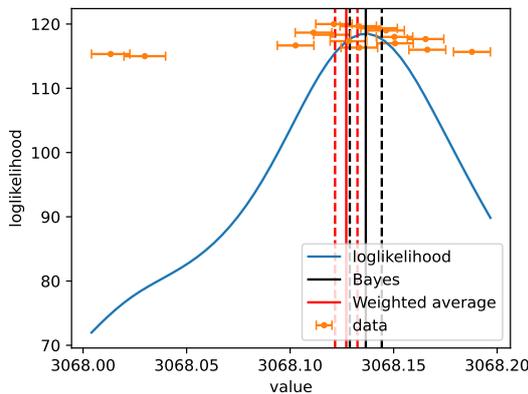
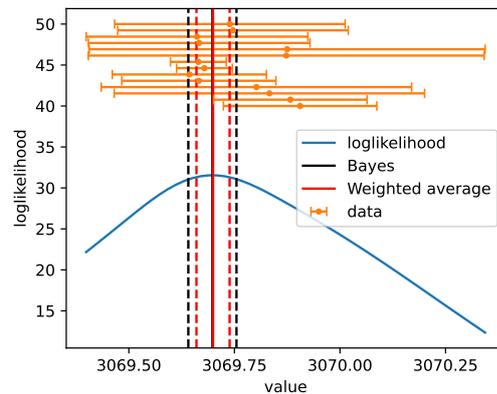
(a)  $1s\ 2s^2\ 2p^2\ ^2D_{5/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p^2\ ^2P_{3/2}$ (b)  $1s\ 2s^2\ 2p^2\ ^2D_{3/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p^2\ ^2P_{1/2}$  et  $1s\ 2s^2\ 2p^2\ ^2P_{1/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p^2\ ^2P_{3/2}$ (c)  $1s\ 2s^2\ 2p^2\ ^2P_{1/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p^2\ ^2P_{1/2}$ (d)  $1s\ 2s^2\ 2p^2\ ^2P_{3/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p^2\ ^2P_{3/2}$ (e)  $1s\ 2s^2\ 2p^2\ ^2P_{3/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p^2\ ^2P_{1/2}$ (f)  $1s\ 2s^2\ 2p^2\ ^2S_{1/2} - 1s^2\ 2s^2\ 2p^2\ ^2P_{3/2}$

TABLE IV.4 – Énergie expérimentale des transitions dans le soufre et l'argon. Les transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} - 1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} - 1s^22s^22p^2\ ^2P_{1/2}$  de l'argon n'ont pas pu être résolues. La transition  $1s2s^22p^2\ ^2S_{1/2} - 1s^22s^22p^2\ ^2P_{3/2}$  a été analysée avec un profil de Voigt en raison de sa faible statistique, ce qui explique l'incertitude dix fois plus élevée.

Transition	Energy (eV)	
	Soufre	Argon
$1s2s^22p^2\ ^2D_{5/2} - 1s^22s^22p^2\ ^2P_{3/2}$	...	3059.8366 (70)
$1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} - 1s^22s^22p^2\ ^2P_{1/2}$	2392.9736 (92)	3062.568 (50)*
$1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} - 1s^22s^22p^2\ ^2P_{3/2}$	2393.7771 (89)	3062.178 (49)*
$1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2} - 1s^22s^22p^2\ ^2P_{1/2}$	2395.4603 (89)*	3065.0314 (69)
$1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} - 1s^22s^22p^2\ ^2P_{3/2}$	2395.4603 (89)*	3065.3403 (69)
$1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} - 1s2s^22p^2\ ^2P_{1/2}$	2397.1454 (89)	3068.1366 (77)
$1s2s^22p^2\ ^2S_{1/2} - 1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2}$	2399.4039 (91)	3069.698 (57)

\* Unresolved.

## IV.8 Comparaison à la théorie

Selon la base de données du NIST [19], la plupart des transitions identifiées dans le présent travail n'ont pas encore été mesurées, à l'exception de deux transitions dans l'argon. Pour les transitions  $1s2s^22p^2\ ^2P_{3/2} - 1s^22s^22p^2\ ^2P_{3/2}$  et  $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} - 1s^22s^22p^2\ ^2P_{1/2}$  dans l'argon, notre mesure est en accord avec celle de Magunov [60] caractérisé par une incertitude de 0.4 eV. Une mesure avec l'EBIT pour le soufre boronoïde a été réalisée par Hell [34], mais les niveaux n'étaient pas suffisamment séparés pour permettre une identification. La comparaison avec la théorie est donc cruciale pour garantir la bonne identification des niveaux.

J'ai comparé les résultats avec les calculs MCDF (MultiConfigurational Dirac Fock) effectués par Paul Indelicato. Ses calculs ont été effectués avec le code MDFGME [227], une implémentation de la méthode MCDF. L'approche multiconfigurationnelle permet de considérer un plus grand nombre de corrélations électroniques en incluant un nombre limité de configurations électroniques. Ici, tous les états singulièrement et doublement excités jusqu'aux orbitales 4f ont été inclus. Les calculs des états triplement excités étaient instables et des croisements de niveaux se produisaient, déplaçant l'énergie du niveau. Les résultats des calculs et leur comparaison avec les données expérimentales sont présentés dans le Tableau IV.5 pour le soufre et le Tableau IV.6 pour l'argon. Ces résultats sont particulièrement intéressants à comparer à la théorie, car le couplage passe du couplage LS au couplage JJ dans cette région. Le bon accord expérience-théorie, jusqu'à 41 meV, permet de confirmer l'identification des transitions observées dans les spectres. La mesure expérimentale a permis d'améliorer considérablement la théorie, poussant leur précision de quelques centaines de meV

TABLE IV.5 – Comparaison entre l'énergie expérimentale et l'énergie théorique des transitions du soufre. Cette différence est comparée à somme des incertitudes théoriques et expérimentales. Toutes les données expérimentales et théoriques sont en bon accord.

Initial Level	Final level	Exp. energy	MCDF (This Work)	$E_{\text{Exp.}} - E_{\text{Theo.}}$
$1s2s^22p^2 \ ^2D_{3/2}$	$1s^22s^22p^1 \ ^2P_{1/2}$	2392.9736 (92)	2393.053 (20)	-0.079 (22)
$1s2s^22p^2 \ ^2P_{1/2}$	$1s^22s^22p^1 \ ^2P_{3/2}$	2393.7770 (89)	2393.825 (48)	-0.048 (49)
$1s2s^22p^2 \ ^2P_{1/2}$	$1s^22s^22p^1 \ ^2P_{1/2}$	2395.4603 (89)*	2395.475 (20)	-0.014 (22)
$1s2s^22p^2 \ ^2P_{3/2}$	$1s^22s^22p^1 \ ^2P_{3/2}$	2395.4603 (89)*	2395.561 (55)	-0.101 (55)
$1s2s^22p^2 \ ^2P_{3/2}$	$1s^22s^22p^1 \ ^2P_{1/2}$	2397.1454 (89)	2397.210 (55)	-0.065 (56)
$1s2s^22p^2 \ ^2S_{1/2}$	$1s^22s^22p^1 \ ^2P_{3/2}$	2399.4039 (91)	2399.541 (15)	-0.137 (18)

\* Non résolue.

TABLE IV.6 – Comparaison entre l'énergie expérimentale et l'énergie théorique des transitions de l'argon. Cette différence est comparée à l'addition des incertitudes théoriques et expérimentales. Toutes les données expérimentales et théoriques sont en bon accord, sauf pour la transition non résolue  $1s2s^22p^2 \ ^2D_{3/2} - 1s^22s^22p \ ^2P_{1/2}$ . La transition  $1s2s^22p^2 \ ^2S_{1/2} - 1s^22s^22p \ ^2P_{3/2}$  a été analysée avec Voigt en raison de ses faibles statistiques, ce qui explique l'incertitude dix fois plus élevée.

Initial Level	Final level	Exp. energy	MCDF (This Work)	$E_{\text{Exp.}} - E_{\text{Theo.}}$
$1s2s^22p^2 \ ^2D_{5/2}$	$1s^22s^22p \ ^2P_{3/2}$	3059.8366 (70)	3059.50 (45)	0.34 (46)
$1s2s^22p^2 \ ^2P_{1/2}$	$1s^22s^22p \ ^2P_{3/2}$	3062.3014 (69)* <sup>1</sup>	3062.260 (62)	0.041 (62)
$1s2s^22p^2 \ ^2D_{3/2}$	$1s^22s^22p \ ^2P_{1/2}$	3062.568 (50)*	3062.725 (24)	-0.157 (55)
$1s2s^22p^2 \ ^2P_{1/2}$	$1s^22s^22p \ ^2P_{1/2}$	3065.0314 (69)	3065.090 (62)	-0.058 (63)
$1s2s^22p^2 \ ^2P_{3/2}$	$1s^22s^22p \ ^2P_{3/2}$	3065.3403 (69)	3065.19 (11)	0.15 (11)
$1s2s^22p^2 \ ^2P_{3/2}$	$1s^22s^22p \ ^2P_{1/2}$	3068.1366 (77)	3068.02 (11)	0.11 (11)
$1s2s^22p^2 \ ^2S_{1/2}$	$1s^22s^22p \ ^2P_{3/2}$	3069.698 (57)	3069.833 (75)	-0.135 (94)

\* Non résolue

<sup>1</sup> Valeur calculée  $1s2s^22p^2 \ ^2P_{1/2} - 1s^22s^22p \ ^2P_{1/2}$  moins la valeur de l'énergie de la transition  $1s^22s^22p^2 \ ^2P_{1/2} - 1s^22s^22p \ ^2P_{1/2}$  prise de la base de données du NIST [19].

## IV.9 Détermination des niveaux de Ritz

Les énergies de Ritz sont définies comme l'énergie du niveau par rapport au niveau fondamental. Le calcul des niveaux de Ritz permettent également de déduire l'énergie de certaines transitions, par l'agrégation de plusieurs transitions. Le niveau fondamental des systèmes boronoïdes est  $1s^22s^22p \ ^2P_{1/2}$ . J'ai calculé les niveaux de Ritz à l'aide des transitions mesurées ici. Les résultats sont présentés en table IV.7.

On peut alors utiliser ces énergies afin de déterminer les dernières transitions qui n'ont pas été résolues, à savoir pour le soufre les transitions  $1s2s^22p^2 \ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p \ ^2P_{3/2}$  et  $1s2s^22p^2 \ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p \ ^2P_{1/2}$ . On obtient alors pour la transition  $1s2s^22p^2 \ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^22s^22p \ ^2P_{1/2}$  une énergie de 3065.0150(69) eV et une énergie de 3065.3292(89) eV pour la transition  $1s2s^22p^2 \ ^2P_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p \ ^2P_{3/2}$ . L'écart entre les deux transitions est ainsi

TABLE IV.7 – Énergie de Ritz mesurée dans le soufre et l'argon boronoïdes.

Niveau	Énergie de Ritz (eV)	
$1s^2 2s^2 2p$	Argon	Soufre
$^2P_{1/2}$	0	0
$^2P_{3/2}$	2.8090	1.6286
$1s 2s^2 2p^2$		
$^2D_{5/2}$	3059.8568(45)	...
$^2D_{3/2}$	3062.568(50)	2392.9736(92)
$^2P_{1/2}$	3065.0150(69)	2395.4056(73)
$^2P_{3/2}$	3068.1383(89)	2397.1454(89)
$^2S_{1/2}$	3066.889(57)	2397.7753(91)

de 111(13) meV. On peut également vérifier la mesure de la transition  $1s 2s^2 2p^2 \ ^2P_{1/2} \rightarrow 1s^2 2s^2 2p \ ^2P_{3/2}$  de l'argon. En calculant l'énergie de cette transition à l'aide des niveaux de Ritz, on obtient 3062.2060(69) eV, en bon accord avec la mesure à 3062.126(50) eV. Ces énergies sont appelées les énergies de Ritz [13]. Cet accord permet de confirmer la mesure du niveau  $1s 2s^2 2p^2 \ ^2D_{3/2}$  de l'argon.

On remarque également que l'on a des croisements des niveaux  $1s 2s^2 2p^2 \ ^2S_{1/2}$  et  $1s 2s^2 2p^2 \ ^2P_{3/2}$  entre le soufre et l'argon.

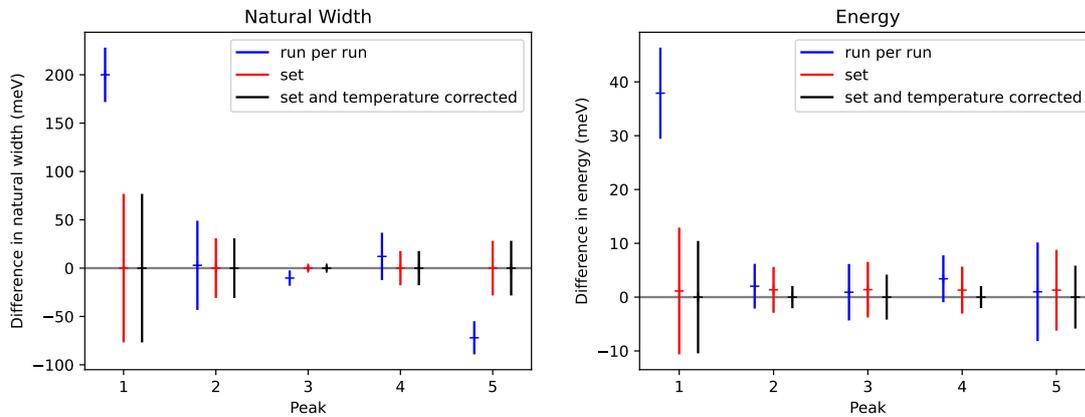
## IV.10 Conclusion

J'ai présenté dans ce chapitre la mesure de plusieurs transitions  $2p \rightarrow 1s$  à cœur excité, dans le soufre et l'argon à cinq électrons. J'ai utilisé des méthodes Bayésiennes afin de pouvoir étudier d'éventuelles contributions non résolues dans des spectres de soufre et d'argon à cinq électrons. Lors de cette étude, j'ai essayé tout d'abord de mener une analyse agnostique, ne prenant pas en compte les calculs théoriques pour identifier les contributions. Cette approche a permis de déterminer certaines transitions non résolues, mais n'a pas permis de toutes les déterminer. Cette analyse a mis en exergue l'importance de la connaissance a priori que l'on avait des spectres. En effet, l'utilisation de la connaissance a priori de nos spectres, nous a permis d'obtenir l'énergie de la transition  $1s 2s^2 2p^2 \ ^2D_{3/2} \rightarrow 1s^2 2s^2 2p \ ^2P_{1/2}$ , inaccessible autrement.

J'ai également pu tester différentes méthodes d'analyses, notamment en considérant les spectres un à un ou encore tous ensemble, ce qui a permis une diminution de l'incertitude sur les largeurs de raie. Cette analyse a été également l'occasion de développer une correction en température pour les spectres, afin de palier les variations en température des cristaux. Ces développements se sont révélés indispensables pour l'étude de ces spectres. Les effets de ces méthodes sont montrés en figure IV.22. L'utilisation de tous les spectres en même temps permet de contraindre mieux le calcul des largeurs, et de réduire les incertitudes sur la largeur. En effet, pour la mesure de la transition  $1s 2s^2 2p^2 \ ^2D_{3/2} \rightarrow 1s^2 2s^2 2p \ ^2P_{3/2}$  du soufre, l'analyse spectre par spectre ne convergerait pas correctement, avec une largeur naturelle mesurée large comparée à la largeur de la

transition. L'analyse de tous les spectres simultanément a permis la réduction des barres d'erreurs de plusieurs meV. Les corrections en températures ont également eu un impact positif sur les barres d'erreurs de l'énergie mesurée, la diminuant de quelques meV également. Cette correction s'est révélée non négligeable à cause du manque de stabilité de température des cristaux. Toutes les méthodes utilisées ont donné des résultats compatibles entre elles.

FIG. IV.22 Comparaison des résultats entre les méthodes utilisées dans cette analyse pour le soufre boronoïde. J'ai effectué une analyse en largeur, en utilisant une analyse spectre par spectre d'une analyse ensembliste, en ajustant tous les spectres ensemble. J'ai comparé également la différence d'énergie avec et sans la correction de la température du premier cristal. La largeur des transitions et l'énergie de chaque série ont été déduites en utilisant la moyenne pondérée.



Enfin, j'ai pu utiliser les méthodes de moyennes bayésiennes, développées en parallèle par Trassinelli et Maxton [15], qui ont permis de traiter des données très dispersées.

Cette étude a été possible grâce au travail conjoint entre la théorie, et les calculs effectués par Paul Indelicato et l'analyse expérimentale. De plus, avoir des spectres de deux éléments a permis de faciliter l'identification des transitions présentes. Toutefois, lors de cette analyse, je n'ai pas pu comparer les intensités relatives par rapport aux calculs théoriques. Je n'ai également pas pu pousser la recherche de pics satellites cachés, identifiables une fois les caractéristiques principales des spectres ajustés. Une analyse plus poussée pourrait montrer la présence de transitions avec un trou K, mais également L (i.e., un trou dans la couche  $n=2$ ).

# Conclusion

Ce travail de thèse, conclut trois ans et demi de travail au Laboratoire Kastler-Brossel et à l’Institut des Nanosciences de Paris. Mon travail, présenté dans cette thèse, s’intéresse à la spectroscopie de précisions des rayons X, dans les ions très chargés. Dans les conclusions du chapitre II et du chapitre IV, j’ai présenté les résultats des expériences menées lors de mon stage de master et ma thèse.

Dans le chapitre II, j’ai tout d’abord présenté la mesure à l’aide d’un double spectromètre cristal de la transition de l’uranium héliumoïde  $1s2p\ ^3P_2 \rightarrow 1s2s\ ^3S_1$  d’une énergie de 4509.763(166) eV. Cette expérience nous a permis d’effectuer un test de QED, en testant les corrections à deux boucles dans un système à deux boucles, ainsi que tester les effets de QED à deux électrons, en mesurant la différence d’énergie entre les transitions de différents états de charge de l’uranium. Cette mesure à haut  $Z$  permet également de donner un point de comparaison afin de déterminer s’il existe une déviation entre la théorie et l’expérience [228–230] – déviation qui à ce jour n’est pas significative<sup>3</sup> [83, 171]. Cette expérience offre des perspectives d’amélioration. En effet, notre mesure est dominée par deux incertitudes, la première la précision de la transition de référence, la seconde l’incertitude sur la position de la mesure, dû à la taille de la cible de gaz (voir référence [56] pour le détail sur les incertitudes). En maîtrisant ces incertitudes, il est possible d’effectuer un test des contributions QED à trois boucles, estimées à 17 meV [231]. Ce test nécessite que les incertitudes sur la taille du noyau d’uranium, actuellement estimées à 0.11 eV [56], se réduisent. Des expériences de mesure du rayon de l’uranium muonique offrent la possibilité de réduire cette incertitude [232].

La seconde partie de mon travail s’est intéressée à la mesure de transition  $2p \rightarrow 1s$  dans le soufre et l’argon boronoïde. Des spectres de soufre et d’argon à cinq électrons ont été effectués en 2018, à l’aide d’un dispositif expérimental unique, mêlant à la fois une source d’ions à résonance cyclotron (ECRIS) et un spectromètre à double cristal (DCS). La source ECR permet l’émission d’un flux de photons X intense, pouvant être mesuré avec un spectromètre double cristal possédant une faible efficacité. Cependant, le DCS permet la mesure absolue de transitions atomiques, c’est-à-dire des mesures ne dépendant d’aucune référence externe. Les spectres de soufre et d’argon à cinq électrons enregistrés à l’aide de ce dispositif, montraient une structure complexe, comprenant plusieurs transitions non résolues. Ces transitions, précédemment mesurées par Hell *et al.* [34] pour le soufre, et Magunov *et al.* [60] pour l’argon n’étaient pas résolues. Afin d’identifier les transitions présentes dans ces spectres, j’ai utilisé des méthodes Bayésiennes, ainsi que des calculs théoriques de pointe. Cette méthode m’a permis d’identifier sept transitions diffé-

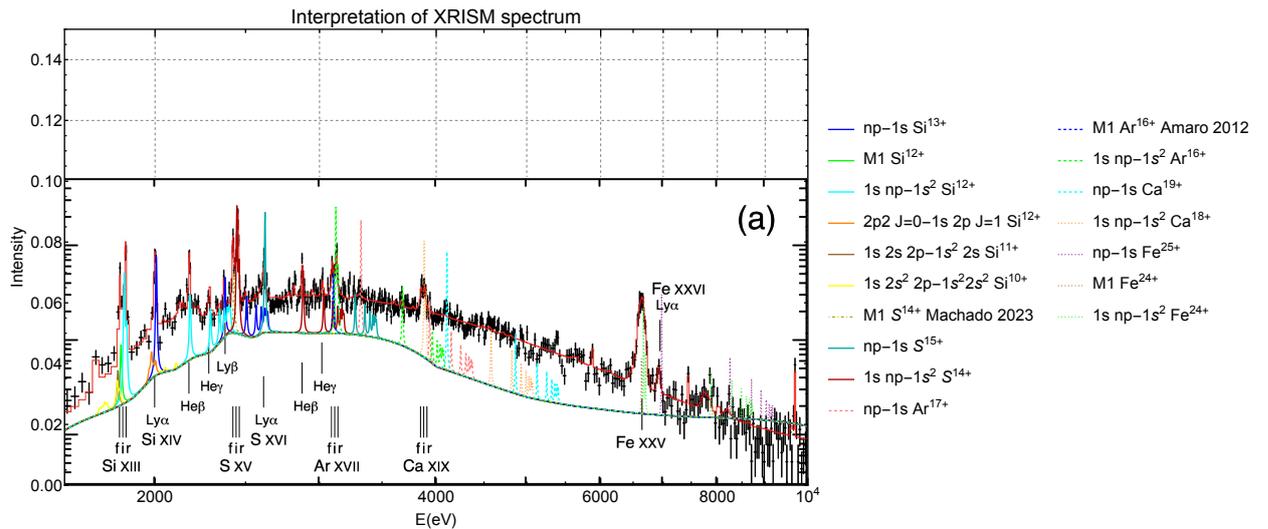
---

3. C. Godinho *et al.*, en préparation.

rentes, résolues pour la première fois. Avec la haute précision de ces mesures, de l'ordre de 3 ppm, il a été permis de tester les calculs des corrélations électroniques et d'améliorer la précision de la mesure de ces transitions d'un facteur 50. Toutefois, je n'ai pas pu effectuer l'étude des rapports d'intensité, que je souhaite effectuer à la suite de ma thèse. Ces transitions ont été observées dans des spectres astrophysiques [33, 233]. La mesure précise de ces transitions permet une meilleure compréhension des spectres astrophysiques en fournissant des transitions mesurées précisément, pouvant être utilisées comme référence. Ces mesures peuvent être étendues aux différents états de charges du soufre de l'argon, de six à dix électrons (dix électrons correspondant à la fermeture de la couche électronique  $n = 2$ ), permettant d'étudier la couche électronique L. Ces systèmes présentent à la fois des complexes de transitions nécessitant une analyse approfondie (voir la référence [34] pour un exemple dans le soufre). En effet, plus l'on diminue l'état de charge, plus les transitions se rapprochent du seuil d'ionisation, ce qui augmente la densité de transitions, pouvant être non résolues. Enfin, plus le nombre d'électrons est élevé, plus le calcul des corrélations électroniques est complexe. Des mesures précises permettent ainsi de tester la théorie et le calcul de corrélations électroniques.

Comme développé par Kramida [14], il est possible d'effectuer une analyse testant la cohérence des données atomiques. La moyenne Bayésienne, développée en python par Maxton et Trassinelli [15], peut être utilisée afin de contraindre plus fortement certaines transitions, en calculant les énergies de Ritz, et de combiner l'énergie mesurée directement et l'énergie de Ritz de la transition. Cette méthode est couramment utilisée pour la spectroscopie IR à UV [234] et m'a permis de déterminer l'énergie de la transition  $1s2s^22p^2\ ^2D_{3/2} \rightarrow 1s^22s^22p\ ^2P_{1/2}$ .

FIG. IV.23 Identification du spectre X mou du spectre de N132D de XRISM [33], contenant des transitions  $n > 2 \rightarrow n = 1$  dans le silicium et le soufre à quelques électrons. Figure et calculs de Paul Indelicato 2024, communication privée.



La technique d'analyse utilisée lors de cette thèse peut s'étendre à de nombreuses mesures de physique atomique. En effet, en étudiant la réponse instrumentale, puis en

convoluant la forme naturelle de l'émission (dans notre cas une lorentzienne, mais cela peut être un profil de Fano [14]), il est possible d'étudier d'autres mesures de transitions atomiques. Cette technique peut se révéler efficace, notamment pour la spectroscopie UV.

Les perspectives offertes par les mesures de transitions dans les ions très chargés, notamment ceux dont le numéro atomique est proche de celui du fer ( $Z = 26$ ), sont essentielles pour approfondir la compréhension des spectres X astrophysiques. Par exemple, les récentes mesures en cours de publication par XRISM [33] des vestiges de la supernova N132D, montrent la mesure d'un plasma très chaud, dont seuls les états de charge les plus élevés du soufre et du silicium ont été observés. Leur identification montre la présence d'hypersatellites du silicium et du soufre. Leur identification reste cependant lacunaire, montrant la nécessité de compléter la mesure de transition de tous les états de charges des éléments pairs du tableau périodique (voir figure IV.23).

À l'avenir, le défi s'annonce plus grand encore avec la mission Athéna X-IFU. Le microcalorimètre permettra de descendre en énergie, avec une résolution prévue de 2.2 eV à 400 eV. Dans ces gammes d'énergie, le nombre de transitions est encore plus élevé, relevant encore la difficulté de l'identification des raies. Un travail systématique de calcul et de mesure doit être mené, main dans la main, afin de permettre la compréhension des spectres astrophysiques, et ainsi, de mieux comprendre les dynamiques de formation des éléments et les dynamiques célestes.



# Bibliographie

- [1] R. DESLATTES, E. K. JR., P. INDELICATO, L. DE BILLY, E. LINDROTH & J. ANTON ; «X-Ray Transition Energies : New Approach to a Comprehensive Evaluation» ; Rev. Mod. Phys. **75**, p. 35 (2003)<http://www.physics.nist.gov/PhysRefData/XrayTrans/index.html><http://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.75.35>. xi, 1, 18, 51
- [2] R. D. DESLATTES, P. L. COWAN & R. E. LAVILLA ; «Multi-Vacancy Effects in Argon K-Spectra» ; AIP Conference Proceedings. no. **94**, p. 100–4 (1982)<http://aip.scitation.org/doi/abs/10.1063/1.2948723>. 1
- [3] R. D. DESLATTES, R. E. LAVILLA, P. L. COWAN & A. HENINS ; «Threshold Studies of a Multivacancy Process in the Kb Region of Argon» ; Physical Review A **27**, p. 923–33 (1983)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.27.923>.
- [4] M. DEUTSCH, O. GANG, K. HÄMÄLÄINEN & C. C. KAO ; «Onset and near Threshold Evolution of the Cu K $\alpha$  X-Ray Satellites» ; Physical Review Letters **76**, p. 2424 (1996)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.76.2424>. 1
- [5] P. AUGER ; «Sur l'effet photoélectrique composé» ; J. Phys. Radium **6**, p. 205–208 (1925). 1
- [6] D. COSTER & R. D. L. KRONIG ; «New Type of Auger Effect and Its Influence on the X-Ray Spectrum» ; Physica **2**, p. 13–24 (1935)<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S003189143590060X>. 1
- [7] M. DEUTSCH, G. HÖLZER, J. HÄRTWIG, J. WOLF, M. FRITSCH & E. FÖRSTER ; «Ka and Kb Emission Spectra of Copper» ; Physical Review A **51**, p. 283–296 (1995). 1, 38
- [8] G. HÖLZER, M. FRITSCH, M. DEUTSCH, J. HÄRTWIG & E. FÖRSTER ; «Ka<sub>1,2</sub> and Kb<sub>1,3</sub> X-Ray Emission Lines of the 3d Transition Metals» ; Physical Review A **56**, p. 4554–4568 (1997).
- [9] M. DEUTSCH, E. FÖRSTER, G. HÖLZER, J. HÄRTWIG, K. HÄMÄLÄINEN, C.-C. KAO, S. HUOTARI & R. DIAMANT ; «X-Ray Spectrometry of Copper : New Results on an Old Subject» ; Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology **109**, p. 75 – 98 (2004). 1

- [10] D. ANAGNOSTOPOULOS, D. GOTTA, P. INDELICATO & L. SIMONS; «Low-energy X-ray standards from hydrogenlike pionic atoms»; *Physical Review Letters* **91**, p. 240 801 (2003)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.91.240801>. 1
- [11] D. ANAGNOSTOPOULOS, S. BIRI, D. GOTTA, A. GRUBER, P. INDELICATO, B. LEONI, H. FUHRMANN, L. M. SIMONS, L. STINGELIN, A. WASSER & J. ZMESKAL; «On the Characterisation of a Bragg Spectrometer with X-Rays from an ECR Source»; *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, Section A (Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment)* **545**, p. 217 (2005). 1
- [12] G. DEL ZANNA, K. BERRINGTON & H. MASON; «Benchmarking atomic data for astrophysics»; *Astronomy & Astrophysics* **422**, p. 731–749 (2004). 1
- [13] A. KRAMIDA; «Critical Evaluation of Data on Atomic Energy Levels, Wavelengths, and Transition Probabilities»; *Fusion Science and Technology* **63**, p. 313–323 (2013). <https://doi.org/10.13182/FST13-A16437>; <https://doi.org/10.13182/FST13-A16437>. 97
- [14] A. KRAMIDA; «Evaluation of uncertainties in atomic data on spectral lines and transition probabilities»; *The European Physical Journal D* **78**, p. 36 (2024). 100, 101
- [15] M. TRASSINELLI & M. MAXTON; «A minimalistic and general weighted average for inconsistent data. In preparation»; <https://pypi.org/project/bayesian-average/>. 1, 86, 98, 100
- [16] D. ALBERT, B. K. ANTONY, Y. A. BA, Y. L. BABIKOV, P. BOLLARD, V. BOUDON, F. DELAHAYE, G. DEL ZANNA, M. S. DIMITRIJEVIĆ, B. J. DROUIN *et al.*; «A decade with VAMDC : Results and ambitions»; *Atoms* **8**, p. 76 (2020). 1
- [17] C. MENDOZA; «Atomic Databases : Four of a Kind»; *Atoms* **8** (2020). ISSN 2218-2004. <https://www.mdpi.com/2218-2004/8/2/30>.
- [18] C. MENDOZA, M. A. BAUTISTA, J. DEPRINCE, J. A. GARCÍA, E. GATUZZ, T. W. GORCZYCA, T. R. KALLMAN, P. PALMERI, P. QUINET & M. C. WITTHOEF; «The XSTAR atomic database»; *Atoms* **9**, p. 12 (2021).
- [19] A. KRAMIDA, Y. RALCHENKO, J. READER & NIST ASD TEAM; «NIST Atomic Spectra Database (Version 5.11),»; (2023). <https://physics.nist.gov/asd>. 95, 96
- [20] M. LEPEPERS, O. DULIEU & J.-F. WYART; «FitAik : A package to calculate least-square fitted atomic transitions probabilities»; *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **297**, p. 108 470 (2023).
- [21] G. BAPTISTA, D. PINHEIRO, J. MACHADO, M. GUERRA, P. AMARO & J. P. SANTOS; «Lisbon Atomic Database (Lisa) : A Compilation of Calculated Fundamental Atomic Parameters»; *The European Physical Journal D* **78**, p. 18 (2024)<https://doi.org/10.1140/epjd/s10053-023-00794-3><https://link.springer.com/content/pdf/10.1140/epjd/s10053-023-00794-3.pdf>.

- [22] ZWÖLF, CARLO MARIA & MOREAU, NICOLAS; «The VAMDC species database»; *Eur. Phys. J. D* **78**, p. 83 (2024). <https://doi.org/10.1140/epjd/s10053-024-00863-1>. 1
- [23] R. L. KURUCZ; «Atomic and molecular data needs for astrophysics»; dans «AIP Conference Proceedings», , tome 636p. 134–143 (American Institute of Physics) (2002). 1
- [24] R. K. SMITH & N. S. BRICKHOUSE; «Atomic data needs for understanding x-ray astrophysical plasmas»; dans «Advances in atomic, molecular, and optical physics», , tome 63p. 271–321 (Elsevier) (2014). 2
- [25] G. NAVE, P. BARKLEM, M. T. BELMONTE, N. BRICKHOUSE, P. BUTLER, F. CASHMAN, M. CHATZIKOS, C. R. COWLEY, E. DEN HARTOG, S. FEDERMAN *et al.*; «Atomic data for astrophysics : Needs and challenges»; *Bulletin of the AAS* **51**, p. 9 (2019). 1
- [26] R. GIACCONI, H. GURSKY, E. KELLOGG, E. SCHREIER & H. TANANBAUM; «Discovery of Periodic X-Ray Pulsations in Centaurus X-3 from UHURU»; *Ap. J.* **167**, p. L67 (1971). 2
- [27] R. GIACCONI; «Nobel Lecture : The dawn of x-ray astronomy»; *Rev. Mod. Phys.* **75**, p. 995–1010 (2003). <https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.75.995>. 2
- [28] R. DAVIS; «Nobel Lecture : A half-century with solar neutrinos»; *Rev. Mod. Phys.* **75**, p. 985–994 (2003). <https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.75.985>. 2
- [29] M. KOSHIBA; «Nobel Lecture : Birth of neutrino astrophysics»; *Rev. Mod. Phys.* **75**, p. 1011–1020 (2003). <https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.75.1011>. 2
- [30] S. LOTTI, D. CEA, C. MACCULI, T. MINEO, L. NATALUCCI, E. PERINATI, L. PIRO, M. FEDERICI & B. MARTINO; «In-Orbit Background of X-Ray Microcalorimeters and Its Effects on Observations»; *A&A* **569**, p. A54 (2014)<https://doi.org/10.1051/0004-6361/201323307>. 2
- [31] HITOMI COLLABORATION; *The Astro-H (Hitomi) X-Ray Astronomy Satellite*; *Spie Astronomical Telescopes + Instrumentation*, tome 9905 (SPIE) (2016). <https://doi.org/10.1117/12.2232379>. 2
- [32] «XRISM First Light and Operational Update»; <https://www.xrism.jaxa.jp/en/topics/news/980/>; accessed : 2024-04-30. 2, 64
- [33] X. COLLABORATION; «The XRISM First Light Observation : Velocity Structure and Thermal Properties of the Supernova Remnant N132D»; (2024). <https://arxiv.org/abs/2408.14301>; 2408.14301. x, 2, 100, 101

- [34] N. HELL, G. V. BROWN, J. WILMS, V. GRINBERG, J. CLEMENTSON, D. LIEDAHL, F. S. PORTER, R. L. KELLEY, C. A. KILBOURNE & P. BEIERSDORFER ; «Laboratory Measurements of the K-Shell Transition Energies in L-Shell Ions of Si and S» ; ApJ **830**, p. 26 (2016)<https://dx.doi.org/10.3847/0004-637X/830/1/26>. 2, 64, 95, 99, 100
- [35] E. BULBUL, M. MARKEVITCH, A. FOSTER, R. K. SMITH, M. LOEWENSTEIN & W. R. SCOTT ; «Detection of an Unidentified Emission Line in the Stacked X-Ray Spectrum of Galaxy Clusters» ; The Astrophysical Journal **789**, p. 13 (2014)<http://stacks.iop.org/0004-637X/789/i=1/a=13>. 2
- [36] A. BOYARSKY, O. RUCHAYSKIY, D. IAKUBOVSKIY & J. FRANSE ; «Unidentified Line in X-Ray Spectra of the Andromeda Galaxy and Perseus Galaxy Cluster» ; Phys. Rev. Lett. **113**, p. 251 301 (2014)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.113.251301>. 2
- [37] C. SHAH, S. DOBRODEY, S. BERNITT, R. STEINBRÜGGE, J. R. CRESPO LÓPEZ-URRUTIA, L. GU & J. KAASTRA ; «Laboratory Measurements Compellingly Support a Charge-exchange Mechanism for the 'Dark Matter' 3.5 keV X-Ray Line» ; The Astrophysical Journal **833**, p. 52 (2016)<http://stacks.iop.org/0004-637X/833/i=1/a=52>. 2
- [38] H. F. BEYER & V. P. SHEVELKO ; *Introduction to the physics of highly charged ions* ; tome 500 (CRC Press) (2002) ; ISBN 9781420034097. iv, 3, 41
- [39] F. NOLDEN, K. BECKERT, F. CASPERS, B. FRANZAK, B. FRANZKE, R. MENGES, A. SCHWINN & M. STECK ; «Stochastic cooling at the ESR» ; *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **441**, p. 219–222 (2000). ISSN 0168-9002. <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900299011365>. 3, 12
- [40] K. S. E. EIKEMA, W. UBACHS, W. VASSEN & W. HOGERVORST ; «Precision Measurements in Helium at 58 nm : Ground state Lamb Shift and the 1 1S-2 1P transition isotope shift» ; Phys. Rev. Lett. **76**, p. 1216 (1996)<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.76.1216>. 3
- [41] K. S. E. EIKEMA, W. UBACHS, W. VASSEN & W. HOGERVORST ; «Lamb shift measurement in the 1 1S ground state of helium» ; Phys. Rev. A **55**, p. 1866 (1997)<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.55.1866>.
- [42] D. Z. KANDULA, C. GOHLE, T. J. PINKERT, W. UBACHS & K. S. E. EIKEMA ; «Xuv Frequency-Comb Metrology on the Ground State of Helium» ; Phys. Rev. A **84**, p. 062 512 (2011)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.84.062512>. 3
- [43] K. PACHUCKI ; «Effective Hamiltonian approach to the bound state : energy of helium  $n^3S_1$ -states in the order  $m\alpha^6$ » ; J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **31**, p. 2489 (1998)<http://stacks.iop.org/0953-4075/31/i=11/a=012>. 3

- [44] K. PACHUCKI; «Quantum electrodynamics effects on singlet S-states of helium of order  $m\alpha^6$ »; J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **31**, p. 3547 (1998)<http://stacks.iop.org/0953-4075/31/i=16/a=008>.
- [45] K. PACHUCKI; « $\alpha^4\mathcal{R}$  corrections to singlet states of helium»; Phys. Rev. A **74**, p. 022 512 (2006)<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.74.022512>.
- [46] K. PACHUCKI; «Helium energy levels including  $m\alpha^6$  corrections»; Phys. Rev. A **74**, p. 062 510 (2006)<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.74.062510>.
- [47] V. A. YEROKHIN & K. PACHUCKI; «Theoretical energies of low-lying states of light helium-like ions»; Phys. Rev. A **81**, p. 022 507 (2010)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.81.022507>. 3
- [48] R. POHL, A. ANTOGNINI, F. NEZ, F. D. AMARO, F. BIRABEN, J. M. R. CARDOSO, D. S. COVITA, A. DAX, S. DHAWAN, L. M. P. FERNANDES, A. GIESEN, T. GRAF, T. W. HÄNSCH, P. INDELICATO, L. JULIEN, C.-Y. KAO, P. KNOWLES, E. O. L. BIGOT, Y.-W. LIU, J. A. M. LOPES, L. LUDHOVA, C. M. B. MONTEIRO, F. MULHAUSER, T. NEBEL, P. RABINOWITZ, J. M. F. DOS SANTOS, L. A. SCHALLER, K. SCHUHMANN, C. SCHWOB, D. TAQQU, J. F. C. A. VELOSO & F. KOTTMANN; «The size of the proton»; Nature **466**, p. 213 (2010)<http://www.nature.com/doifinder/10.1038/nature09250>. 3
- [49] A. ANTOGNINI, F. NEZ, K. SCHUHMANN, F. D. AMARO, F. BIRABEN, J. M. R. CARDOSO, D. S. COVITA, A. DAX, S. DHAWAN, M. DIEPOLD, L. M. P. FERNANDES, A. GIESEN, A. L. GOUVEA, T. GRAF, T. W. HÄNSCH, P. INDELICATO, L. JULIEN, C.-Y. KAO, P. KNOWLES, F. KOTTMANN, E. O. LE BIGOT, Y.-W. LIU, J. A. M. LOPES, L. LUDHOVA, C. M. B. MONTEIRO, F. MULHAUSER, T. NEBEL, P. RABINOWITZ, J. M. F. DOS SANTOS, L. A. SCHALLER, C. SCHWOB, D. TAQQU, J. F. C. A. VELOSO, J. VOGELSANG & R. POHL; «Proton Structure from the Measurement of 2S-2P Transition Frequencies of Muonic Hydrogen»; Science **339**, p. 417 (2013)<http://www.sciencemag.org/content/339/6118/417.abstract>.
- [50] R. POHL, F. NEZ, L. M. P. FERNANDES, F. D. AMARO, F. BIRABEN, J. M. R. CARDOSO, D. S. COVITA, A. DAX, S. DHAWAN, M. DIEPOLD, A. GIESEN, A. L. GOUVEA, T. GRAF, T. W. HÄNSCH, P. INDELICATO, L. JULIEN, P. KNOWLES, F. KOTTMANN, E. O. LE BIGOT, Y.-W. LIU, J. A. M. LOPES, L. LUDHOVA, C. M. B. MONTEIRO, F. MULHAUSER, T. NEBEL, P. RABINOWITZ, J. M. F. DOS SANTOS, L. A. SCHALLER, K. SCHUHMANN, C. SCHWOB, D. TAQQU, J. F. C. A. VELOSO & A. ANTOGNINI; «Laser spectroscopy of muonic deuterium»; Science **353**, p. 669 (2016)<http://science.sciencemag.org/content/sci/353/6300/669.full.pdf>.
- [51] A. N. ARTEMYEV, V. M. SHABAEV, V. A. YEROKHIN, G. PLUNIEN & G. SOFF; «QED calculation of the  $n = 1$  and  $n = 2$  energy levels in He-like ions»; Phys. Rev. A **71**, p. 062 104 (2005)<http://link.aps.org/abstract/PRA/v71/e062104>. 3
- [52] I. ANGELI & K. P. MARINOVA; «Table of experimental nuclear ground state charge radii : An update»; At. Data Nucl. Data Tables **99**, p. 69 (2013)<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0092640X12000265>. 3

- [53] N. PAUL, G. BIAN, T. AZUMA, S. OKADA & P. INDELICATO; «Testing Quantum Electrodynamics with Exotic Atoms»; *Physical Review Letters* **126**, p. 173 001 (2021)<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.126.173001><https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-03007179>. 3, 4, 9
- [54] M. TRASSINELLI, A. KUMAR, H. BEYER, P. INDELICATO, R. MÄRTIN, R. REUSCHL, Y. KOZHEDUB, C. BRANDAU, H. BRÄUNING, S. GEYER, A. GUMBERIDZE, S. HESS, P. JAGODZINSKI, C. KOZHUHAROV, D. LIESEN, S. TROTSSENKO, G. WEBER, D. WINTERS & T. STÖHLKER; «Observation of the  $2p_{3/2} \rightarrow 2s_{1/2}$  Intra-Shell Transition in He-Like Uranium»; *Europhysics Letters* **87**, p. 63 001 (2009)<http://www.iop.org/EJ/abstract/0295-5075/87/6/63001>. 3, 9, 10, 18, 21, 29
- [55] P. INDELICATO; «Topical Review : QED tests with highly-charged ions»; *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **52**, p. 232 001 (2019)<https://doi.org/10.1088/1361-6455/ab42c9>. 9
- [56] R. LOETZSCH, H. F. BEYER, L. DUVAL, U. SPILLMANN, D. BANAŚ, P. DERGHAM, F. M. KRÖGER, J. GLORIUS, R. E. GRISENTI, M. GUERRA, A. GUMBERIDZE, R. HESS, P. M. HILLENBRAND, P. INDELICATO, P. JAGODZINSKI, E. LAMOUR, B. LORENTZ, S. LITVINOV, Y. A. LITVINOV, J. MACHADO, N. PAUL, G. G. PAULUS, N. PETRIDIS, J. P. SANTOS, M. SCHEIDEL, R. S. SIDHU, M. STECK, S. STEYDLI, K. SZARY, S. TROTSSENKO, I. USCHMANN, G. WEBER, T. STÖHLKER & M. TRASSINELLI; «Testing Quantum Electrodynamics in Extreme Fields Using Helium-Like Uranium»; *Nature* **625**, p. 673–678 (2024)<https://doi.org/10.1038/s41586-023-06910-y>. iii, iv, xi, 3, 10, 29, 30, 99
- [57] J. BENNETT; «Ion sources for multiply charged heavy ions»; dans «Proceedings of the International Cyclotron Conference, Oxford, England, September 1969», (1969). 4
- [58] E. V. AGLITSKII, V. A. BOIKO, S. M. ZAKHAROV, S. A. PIKUZ & A. Y. FAENOV; «Observation in laser plasmas and identification of dielectron satellites of spectral lines of hydrogen- and helium-like ions of elements in the Na–V range»; *Soviet Journal of Quantum Electronics* **4**, p. 500 (1974)<http://stacks.iop.org/0049-1748/4/i=4/a=R16>. 4
- [59] E. AGLITSKII, V. BOIKO, O. N. KROKHIN, S. PIKUZ & A. Y. FAENOV; «Observation of ions of  $\sim 30$ –50 charge in a laser plasma»; *Soviet Journal of Quantum Electronics* **4**, p. 1152 (1975).
- [60] A. I. MAGUNOV, A. Y. FAENOV, I. Y. SKOBELEV, T. A. PIKUZ, E. BIÉMONT, P. QUINET, F. BLASCO, C. BONTE, F. DORCHIES, T. CAILLAUD, F. SALIN & C. STENZ; «Observation of dielectronic satellites in the K-spectrum of argon ions in plasma produced by femtosecond laser pulses»; *JOURNAL OF EXPERIMENTAL AND THEORETICAL PHYSICS* **95**, p. 998 (2002). 4, 64, 95, 99
- [61] B. COPPI & J. REM; «The Tokamak approach in fusion research»; *Scientific American* **227**, p. 65–75 (1972). 4

- [62] S. VON GOELER, W. STODIEK, H. EUBANK, H. FISHMAN, S. GREBENSHCHIKOV & E. HINNOV ; «Thermal X-ray spectra and impurities in the ST Tokamak» ; Nuclear Fusion **15**, p. 301 (1975). 4
- [63] K. HILL, S. VON GOELER, M. BITTER, L. CAMPBELL, R. COWAN, B. FRAENKEL, A. GREENBERGER, R. HORTON, J. HOVEY, W. RONEY *et al.* ; «Determination of Fe charge-state distributions in the Princeton large torus by Bragg crystal x-ray spectroscopy» ; Physical Review A **19**, p. 1770 (1979).
- [64] K. BRAU, S. VON GOELER, M. BITTER, R. COWAN, D. EAMES, K. HILL, N. SAUTHOFF, E. SILVER & W. STODIEK ; «Observations of giant recombination edges on the Princeton Large Torus tokamak induced by particle transport» ; Physical Review A **22**, p. 2769 (1980).
- [65] H. MOOS & L. ARMSTRONG JR ; «Extreme ultraviolet and soft x-ray diagnostics of high-temperature plasmas. Annual progress report» ; Rapport technique ; Johns Hopkins Univ., Baltimore, MD (United States) (1980).
- [66] P. BEIERSDORFER, M. BITTER, S. VON GOELER, S. COHEN, K. W. HILL, J. TIMBERLAKE, R. S. WALLING, M. H. CHEN, P. L. HAGELSTEIN & J. H. SCOFIELD ; «High-resolution n=3 to n=2 spectra of neonlike silver» ; *Phys. Rev. A* **34**, p. 1297–1315 (1986). <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.34.1297>.
- [67] J. SCHWOB, A. WOUTERS, S. SUCKEWER, S. COHEN & M. FINKENTHAL ; «Emission in the 50–80-Å region from highly ionized silver in Princeton Large Torus tokamak plasmas» ; JOSA B **3**, p. 68–71 (1986).
- [68] P. BEIERSDORFER, S. VON GOELER, M. BITTER, E. HINNOV, R. BELL, S. BARNABEI, J. FELT, K. HILL, R. HULSE, J. STEVENS, S. SUKEWER, J. TIMBERLAKE, A. WOUTERS, M. CHEN, J. SCOFIELD, D. DIETRICH, M. GERASSIMENKO, E. SILVER & R. WALLING ; «X-Ray Transitions in Highly Charged Neonlike Ions» ; Physical Review A **37**, p. 4153–4162 (1988)<https://journals.aps.org/pr/abstract/10.1103/PhysRevA.37.4153>.
- [69] P. BEIERSDORFER, M. BITTER, S. VON GOELER & K. W. HILL ; «Experimental study of the x-ray transitions in the heliumlike isoelectronic sequence» ; Phys. Rev. A **40**, p. 150 (1989)<http://journals.aps.org/pr/abstract/10.1103/PhysRevA.40.150>. 4
- [70] M. A. LEVINE, R. MARRS, J. HENDERSON, D. KNAPP & M. B. SCHNEIDER ; «The electron beam ion trap : A new instrument for atomic physics measurements» ; Physica Scripta **1988**, p. 157 (1988). 4
- [71] E. D. DONETZ, V. I. ILYUSCHENKO & V. A. ALPERT ; dans «First International Conference on Ion Sources», p. 635 (Institute Nationale des Sciences et Techniques Nucleaires, Saclay, France,) (1969). 4
- [72] P. BEIERSDORFER ; «X-ray spectroscopy of high-z ions» ; dans «AIP Conference Proceedings (American Institute of Physics) ;(United States)», CONF-900757-215 (1990). 4

- [73] P. BEIERSDORFER ; «A “brief” history of spectroscopy on EBIT » ; Canadian journal of physics **86**, p. 1–10 (2008). 4
- [74] J. BRIAND, P. INDELICATO, M. TAVERNIER, O. GORCEIX, D. LIESEN, H. BEYER, B. LIU, A. WARCZAK & J. DESCLAUX ; «Observation of Hydrogenlike and Heliumlike Krypton Spectra.» ; Zeitschrift für Physik A **318**, p. 1 (1984)<https://link.springer.com/article/10.1007%2FBF02117207>. 4
- [75] A. SIMIONOVICI, P. INDELICATO, J. P. BRIAND, V. S. VICENTE, D. LIESEN & D. DIETRICH ; «Hydrogenlike and Heliumlike Xenon Ion Production and Excitation at Medium Energies» ; dans J. GEDDES, H. B. GILBODY, A. E. KINGSTON, C. J. LATIMER & H. R. J. WALTERS (rédacteurs), «Electronic and Atomic Collisions. XV ICPEAC», p. lxxvi+848 (Lab. de Phys. Atomique et Nucl. Univ. Pierre et Marie Curie Paris France Abstracts of Contributed Papers. Fifteenth International Conference (papers in summary form only received). Queen’s Univ Belfast UK, Brighton) (1987).
- [76] T. STÖHLKER, H. GEISSEL, H. IRNICH, T. KANDLER, C. KOZHUHAROV, P. MOKLER, G. MÜNZENBERG, F. NICKEL, C. SCHEIDENBERGER, T. SUZUKI, M. KUCHARSKI, A. WARCZAK, P. RYMUZA, Z. STACHURA, A. KRIESSBACH, D. DAUVERGNE, B. DUNFORD, J. EICHLER, A. ICHIHARA & T. SHIRAI ; «L-Subshell Resolved Photon Angular Distribution of Radiative Electron Capture into He-Like Uranium» ; Physical Review Letters **73**, p. 3520–3523 (1994).
- [77] T. STÖHLKER, P. H. MOKLER, K. BECKERT, F. BOSCH, H. EICKHOFF, B. FRANZKE, H. GEISSEL, M. JUNG, T. KANDLER, O. KLEPPER, C. KOZHUHAROV, R. MOHAMMER, Z. STACHURA, M. STECK & A. WARCZAK ; «X-ray emission from very-heavy H- and He-like ions in collisions with gaseous and solid targets» ; Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B **87**, p. 64 (1994)<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0168583X9495237X>.
- [78] T. STÖHLKER, P. H. MOKLER, F. BOSCH, R. W. DUNFORD, F. FRANZKE, O. KLEPPER, C. KOZHUHAROV, T. LUDZIEJEWSKI, F. NOLDEN, H. REICH, P. RYMUZA, Z. STACHURA, M. STECK, P. SWIAT & A. WARCZAK ; «1s Lamb Shift in Hydrogenlike Uranium Measured on Cooled, Decelerated Ion Beams» ; Phys. Rev. Lett. **85**, p. 3109 (2000)<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.85.3109>.
- [79] A. GUMBERIDZE, T. STÖHLKER, D. BANAŚ, K. BECKERT, P. BELLER, H. BEYER, F. BOSCH, S. HAGMANN, C. KOZHUHAROV, D. LIESEN, F. NOLDEN, X. MA, P. MOKLER, M. STECK, D. SIERPOWSKI & S. TASHENOV ; «Quantum Electrodynamics at Strong Electric Fields : The Ground State Lamb Shift in Hydrogenlike Uranium» ; Phys. Rev. Lett. **94**, p. 223001 (2005)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.94.223001>. 4
- [80] R. D. DESLATTES, H. F. BEYER & F. FOLKMANN ; «Precision x-ray wavelength measurements in heliumlike argon recoil ions» ; J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **17**, p. L689 (1984)<http://dx.doi.org/10.1088/0022-3700/17/21/001>. 4

- [81] H. BEYER, P. INDELICATO, K. FINLAYSON, D. LIESEN & R. DESLATTES; «Measurement of the 1s Lamb-Shift in Hydrogenlike Nickel»; *Phys. Rev. A* **43**, p. 223 (1991)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.43.223>. 4
- [82] P. AMARO, S. SCHLESSER, M. GUERRA, E. O. LE BIGOT, J.-M. ISAC, P. TRAVERS, J. P. SANTOS, C. I. SZABO, A. GUMBERIDZE & P. INDELICATO; «Absolute Measurement of the Relativistic Magnetic Dipole Transition Energy in Heliumlike Argon»; *Phys. Rev. Lett.* **109**, p. 043005 (2012)<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.109.043005>. 4, 38, 44, 63, 84
- [83] J. MACHADO, C. I. SZABO, J. P. SANTOS, P. AMARO, M. GUERRA, A. GUMBERIDZE, G. BIAN, J. M. ISAC & P. INDELICATO; «High-Precision Measurements of  $n = 2 \rightarrow n = 1$  Transition Energies and Level Widths in He- and Be-Like Argon Ions»; *Phys. Rev. A* **97**, p. 032517 (2018)<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.97.032517>. 4, 63, 72, 84, 86, 99
- [84] D. ROHMANN, H. BARTH, A. D. HANCOCK, H. KOCH, T. KÖHLER, A. KREISSL, H. POTH, U. RAICH, A. WOLF, L. TAUSCHER, M. SUFFERT, M. CHARDALAS, S. DE-DOUSSIS, A. NILSSON, W. KANERT, T. VON EGIDY, F. J. HARTMANN, G. SCHMIDT & J. J. REIDY; «Measurement of the 4f Strong Interaction Level Width in Light Antiprotonic Atoms»; *Zeitschrift für Physik A Atomic Nuclei* **325**, p. 261–265 (1986)<https://doi.org/10.1007/BF01294606>. 4
- [85] C. E. COX, B. G. LOWE & R. A. SAREEN; «Small Area High Purity Germanium Detectors for Use in the Energy Range 100 eV to 100 keV»; *IEEE Transactions on Nuclear Science* **35**, p. 28–32 (1988). 4
- [86] E. SILVER, G. AUSTIN, J. BEEMAN, F. GOULDING, E. HALLER, D. LANDIS & N. MADDEN; «An NTD Germanium-Based Microcalorimeter with 3.1 eV Energy Resolution at 6 keV»; *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **545**, p. 683–689 (2005)<http://www.sciencedirect.com/science/article/B6TJM-4G0DB29-2/2/4f8e4bb73b0291a72a77706cfd5a9acd>. 4
- [87] H. H. JOHANN; «Die Erzeugung lichtstarker Röntgenspektren mit Hilfe von Konkavkristallen»; *Zeitschrift für Physik* **69**, p. 185–206 (1931). ISSN 14346001. <https://link.springer.com/article/10.1007/BF01798121>. 4, 15, 38
- [88] P. INDELICATO, O. GORCEIX & J. P. DESCLAUX; «MCDF studies of two electron ions II : Radiative corrections and comparison with experiment.»; *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **20**, p. 651 (1987)<http://dx.doi.org/10.1088/0022-3700/20/4/007>. 9
- [89] K. CHENG, W. JOHNSON & J. SAPIRSTEIN; «Screened Lamb Shift Calculations for Lithiumlike Uranium, Sodiumlike Platinum and Copperlike Gold»; *Phys. Rev. Lett.* **66**, p. 2960 (1991)<https://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.66.2960>.

- [90] M. H. CHEN, K. T. CHENG, W. R. JOHNSON & J. SAPIRSTEIN; «Relativistic Configuration-Interaction Calculations for the  $\langle I \rangle N \langle I \rangle = 2$  States of Lithium-like Ions»; Phys. Rev. A **52**, p. 266 (1995)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.52.266>.
- [91] H. PERSSON, S. SALOMONSON, P. SUNNERGREN & I. LINDGREN; «Two-Electron Lamb-Shift Calculations on Heliumlike Ions»; Phys. Rev. Lett. **76**, p. 204 (1996)<https://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.76.204>.
- [92] V. YEROKHIN, A. ARTEMYEV & V. SHABAEV; «Two-Electron Self-Energy Contribution to the Ground State Energy of Helium-Like Ions»; Phys. Lett. A **234**, p. 361 (1997).
- [93] A. GUMBERIDZE, T. STÖHLKER, D. BANAS, K. BECKERT, P. BELLER, H. F. BEYER, F. BOSCH, X. CAI, S. HAGMANN, C. KOZHUHAROV, D. LIESEN, F. NOLDEN, X. MA, P. H. MOKLER, A. ORSIC-MUTHIG, M. STECK, D. SIERPOWSKI, S. TASHENOV, A. WARCZAK & Y. ZOU; «Electron-Electron Interaction in Strong Electromagnetic Fields: The Two-Electron Contribution to the Ground-State Energy in He-Like Uranium»; Phys. Rev. Lett. **92**, p. 203004 (2004)<http://link.aps.org/abstract/PRL/v92/e203004>. 9
- [94] P. BEIERSDORFER, D. KNAPP, R. E. MARRS, S. R. ELLIOT & M. H. CHEN; «Structure and Lamb-Shift of  $2s_{1/2} - 2p_{3/2}$  levels in Lithiumlike  $U^{89+}$  through Neonlike  $U^{82+}$ »; Phys. Rev. Lett. **71**, p. 3939 (1993). 9, 11, 18, 64
- [95] P. BEIERSDORFER, A. L. OSTERHELD & S. R. ELLIOTT; «Measurements and modeling of electric-dipole-forbidden  $2p_{1/2} - 2p_{3/2}$  transitions in fluorinelike  $U^{81+}$  through berylliumlike  $U^{88+}$ »; Phys. Rev. A **58**, p. 1944 (1998). 9
- [96] G. PLUNIEN, B. MÜLLER, W. GREINER & G. SOFF; «Nuclear polarization contribution to the Lamb shift in heavy atoms»; Phys. Rev. A **39**, p. 5428 (1989)<http://journals.aps.org/pra/abstract/10.1103/PhysRevA.39.5428>. 9
- [97] G. PLUNIEN, B. MÜLLER, W. GREINER & G. SOFF; «Nuclear Polarization in Heavy Atoms and Superheavy Quasiatoms»; Phys. Rev. A **43**, p. 5853 (1991)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.43.5853>.
- [98] G. PLUNIEN & G. SOFF; «Nuclear-Polarization contribution to the Lamb Shift in actinide nuclei»; Phys. Rev. A **51**, p. 1119 (1995)<http://journals.aps.org/pra/abstract/10.1103/PhysRevA.51.1119>.
- [99] G. PLUNIEN & G. SOFF; «Erratum: Nuclear-polarization contribution to the Lamb shift in actinide nuclei»; Phys. Rev. A **53**, p. 4614 (1996)<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.53.4614.2>.
- [100] A. V. NEFIODOV, L. N. LABZOWSKY, G. PLUNIEN & G. SOFF; «Nuclear Polarization Effects in Spectra of Multicharged Ions»; Physics Letters A **222**, p. 227 (1996)<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0375960196006500>.

- [101] A. V. VOLOTKA & G. PLUNIEN ; «Nuclear Polarization Study : New Frontiers for Tests of QED in Heavy Highly Charged Ions» ; Phys. Rev. Lett. **113**, p. 023 002 (2014)<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.113.023002>.
- [102] N. PAUL, G. BIAN, T. AZUMA, S. OKADA & P. INDELICATO ; «Testing Quantum Electrodynamics with Exotic Atoms» ; Physical Review Letters **126**, p. 173 001 (2021)<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.126.173001><https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-03007179>. 9
- [103] R. MARRS, S. ELLIOT & T. STÖHLKER ; «Measurement of Two-Electron Contributions to the Ground-State Energy of Heliumlike Ions» ; Phys. Rev. A **52**, p. 3577 (1995)<http://journals.aps.org/pr/abstract/10.1103/PhysRevA.52.3577>. 9
- [104] T. STÖHLKER, S. R. ELLIOTT & R. E. MARRS ; «Direct Measurement of Two-Electron Contributions to the Ground State Energy of Heliumlike High-Z Ions» ; Hyperfine Interactions **99**, p. 217 (1996)<https://doi.org/10.1007/BF02274924>. 9
- [105] A. SCHÄFER, G. SOFF, P. INDELICATO, B. MÜLLER & W. GREINER ; «Prospects for an atomic parity-violation experiment in U90+» ; Phys. Rev. A **40**, p. 7362 (1989)<http://journals.aps.org/pr/abstract/10.1103/PhysRevA.40.7362>. 10
- [106] L. N. LABZOWSKY, A. V. NEFIODOV, G. PLUNIEN, G. SOFF, R. MARRUS & D. LIESEN ; «Parity-Violation Effect in Heliumlike Gadolinium and Europium» ; Physical Review A **63**, p. 054 105 (4) (2001). 10
- [107] M. MAUL, A. SCHÄFER, W. GREINER & P. INDELICATO ; «Prospects for parity-nonconservation experiments with highly charged heavy ions» ; Phys. Rev. A **53**, p. 3915–3925 (1996). <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.53.3915>. 10
- [108] A. ADONIN & R. HOLLINGER ; «Progress on MEVVA source VARIS at GSI» ; Review of Scientific Instruments **89**, p. 052 304 (2018). ISSN 0034-6748. <https://doi.org/10.1063/1.5017137> ; [https://pubs.aip.org/aip/rsi/article-pdf/doi/10.1063/1.5017137/16710810/052304\\_1\\_online.pdf](https://pubs.aip.org/aip/rsi/article-pdf/doi/10.1063/1.5017137/16710810/052304_1_online.pdf). 12
- [109] «UNILAC web page» ; <https://www.gsi.de/work/beschleunigerbetrieb/beschleuniger/unilac/unilac>. 12
- [110] M. STECK & Y. A. LITVINOV ; «Heavy-ion storage rings and their use in precision experiments with highly charged ions» ; Progress in Particle and Nuclear Physics **115**, p. 103 811 (2020). ISSN 0146-6410. <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0146641020300582>. 12
- [111] «SSIS18 web page» ; [https://www.gsi.de/en/work/project\\_management\\_fair/sis100sis18\\_sis/heavy\\_ion\\_synchrotron\\_sis18](https://www.gsi.de/en/work/project_management_fair/sis100sis18_sis/heavy_ion_synchrotron_sis18). 12
- [112] B. FRANZKE ; «The Heavy Ion Storage and Cooler Ring Project ESR at GSI» ; Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms **24-25**, p. 18–25 (1987)<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0168583X87905830>. 12

- [113] M. STECK, P. BELLER, K. BECKERT, B. FRANZKE & F. NOLDEN ; «Electron cooling experiments at the ESR» ; *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **532**, p. 357–365 (2004). ISSN 0168-9002. <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900204012689> ; international Workshop on Beam Cooling and Related Topics. 12
- [114] H. GEISSEL, Y. A. LITVINOV, K. BECKERT, P. BELLER, F. BOSCH, D. BOUTIN, C. BRANDAU, L. CHEN, M. HAUSMANN, O. KLEPPER, R. KNÖBEL, C. KOZHUHAROV, J. KURCEWICZ, S. A. LITVINOV, M. MAZZOCCO, G. MÜNZENBERG, C. NOCIFORO, F. NOLDEN, Z. PATYK, M. PFÜTZNER, W. PLASS, C. SCHEIDENBERGER, M. STECK, B. SUN, K. TAKAHASHI, H. WEICK, N. WINCKLER & M. WINKLER ; «Present and future experiments with stored exotic nuclei at the FRS-ESR facility» ; *The European Physical Journal Special Topics* **150**, p. 109–115 (2007). <https://doi.org/10.1140/epjst/e2007-00280-x>. 12
- [115] D. MÖHL, G. PETRUCCI, L. THORNDahl & S. VAN DER MEER ; «Physics and technique of stochastic cooling» ; *Physics Reports* **58**, p. 73–102 (1980). ISSN 0370-1573. <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0370157380901404>. 12
- [116] «ESR web page» ; [https://www.gsi.de/en/work/research/appamml/atomic\\_physics/experimental\\_facilities/esr](https://www.gsi.de/en/work/research/appamml/atomic_physics/experimental_facilities/esr). iii, 13
- [117] N. PETRIDIS, R. E. GRISENTI, Y. A. LITVINOV & T. STÖHLKER ; «Prototype Internal Target Design for Storage Ring Experiments» ; *Physica Scripta* **T166**, p. 014051 (2015) <http://dx.doi.org/10.1088/0031-8949/2015/T166/014051>. 14
- [118] W. H. BRAGG & W. L. BRAGG ; «The Reflection of X-Rays by Crystals» ; *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* **88**, p. 428–438 (1913) <https://royalsocietypublishing.org/doi/abs/10.1098/rspa.1913.0040>. 14, 42
- [119] P. JAGODZIŃSKI, M. PAJEK, D. BANAŚ, H. F. BEYER, M. TRASSINELLI & T. STÖHLKER ; «Ray-tracing simulations of spherical Johann diffraction spectrometer for in-beam X-ray experiments» ; *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **753**, p. 121–130 (2014). ISSN 01689002. 15
- [120] A. KUMAR, M. TRASSINELLI, R. MÄRTIN, D. BANAŚ, P. JAGODZIŃSKI, H. BEYER & T. STÖHLKER ; «Development of an X-ray Bragg Spectrometer for Intrashell Transitions in High-Z Few Electron Ions» ; (2008). 17, 21
- [121] PARTICLE DATA GROUP ; «Review of Particle Physics» ; *Progress of Theoretical and Experimental Physics* **2020** (2020) <https://doi.org/10.1093/ptep/ptaa104>. 17, 86
- [122] A. S. SCHLACHTER, J. W. STEARNS, W. G. GRAHAM, K. H. BERKNER, R. V. PYLE & J. A. TANIS ; «Electron capture for fast highly charged ions in gas targets : An

- empirical scaling rule» ; *Physical Review A* **27**, p. 3372–3374 (1983). ISSN 10502947. <https://journals.aps.org/pr/abstract/10.1103/PhysRevA.27.3372>. xi, 20, 21
- [123] J. RZADKIEWICZ, T. STÖHLKER, D. BANAŚ, H. F. BEYER, F. BOSCH, C. BRANDAU, C. Z. DONG, S. FRITZSCHE, A. GOJSKA, A. GUMBERIDZE, S. HAGMANN, D. C. IONESCU, C. KOZHUHAROV, T. NANDI, R. REUSCHL, D. SIERPOWSKI, U. SPILLMANN, A. SURZHYKOV, S. TASHENOV, M. TRASSINELLI & S. TROTSSENKO ; «Selective population of the [1s2s] S01 and [1s2s] S13 states of He-like uranium» ; *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* **74**, p. 012511 (2006). ISSN 10502947. <https://journals.aps.org/pr/abstract/10.1103/PhysRevA.74.012511>. 80
- [124] B. NAJJARI & A. B. VOITKIV ; «Excitation of highly charged hydrogenlike ions by the impact of equivelocity electrons and protons : A comparative study» ; *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* **87**, p. 034701 (2013). ISSN 10502947. <https://journals.aps.org/pr/abstract/10.1103/PhysRevA.87.034701>. xi, 20, 21
- [125] L. DUVAL, R. LOETZSCH, H. BEYER, D. BANAŚ, P. DERGHAM, J. GLORIUS, R. E. GRISENTI, M. GUERRA, A. GUMBERIDZE, P.-M. HILLENBRAND, P. JAGODZIŃSKI, E. LAMOUR, Y. LITVINOV, J. MACHADO, G. PAULUS, N. PAUL, N. PETRIDIS, J.-P. SANTOS, M. SCHEIDEL, R. S. SIDHU, U. SPILLMANN, S. STEYDLI, K. SZARY, S. TROTSSENKO, I. USCHMANN, G. WEBER, T. STÖHLKER, P. INDELICATO & M. TRASSINELLI ; «X-ray spectroscopy of few-electron uranium ions for tests of QED» ; *PoS FAIRness2022*, p. 012 (2023). 24
- [126] M. TRASSINELLI ; «Shape and Satellite Studies of Highly Charged Ions X-Ray Spectra Using Bayesian Methods» ; *Atoms* **11**, p. 64 (2023) <https://www.mdpi.com/2218-2004/11/4/64>. 24, 27
- [127] P. PFAFFLEIN, G. WEBER, S. ALLGEIER, Z. ANDELKOVIC, S. BERNITT, A. I. BONDAREV, A. BOROVIK, L. DUVAL, A. FLEISCHMANN, O. FORSTNER, M. FRIEDRICH, J. GLORIUS, A. GUMBERIDZE, C. HAHN, D. HENGSTLER, M. O. HERDRICH, F. HERFURTH, P. HILLENBRAND, A. KALININ, M. KIFFER, F. M. KROGER, M. KUBULLEK, P. KUNTZ, M. LESTINSKY, Y. A. LITVINOV, B. LOHER, E. B. MENZ, T. OVER, N. P. PETRIDIS, S. RINGLEB, R. S. SIGHU, U. SPILLMANN, S. TROTSSENKO, A. WARCZAK, B. ZHU, C. ENSS & T. STÖHLKER ; «Quantum Electrodynamics in Strong Electromagnetic Fields : Substate Resolved  $K\alpha$  Transition Energies in Helium-Like Uranium» ; (2024). <https://doi.org/10.48550/arXiv.2407.04166> ; submitted to PRL. 31
- [128] W. C. RÖNTGEN ; *Über eine neue Art von Strahlen* (Phys.-med. Gesellschaft) (1895). 36
- [129] C. G. BARKLA ; «Secondary röntgen radiation» ; *Nature* **71**, p. 440–440 (1905). 36
- [130] C. G. BARKLA ; «Ionisation by Röntgen Rays» ; *Nature* **80**, p. 187–187 (1909). 36

- [131] C. BARKLA & V. COLLIER; «CI. The absorption of X-rays and fluorescent X-ray spectra»; The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science **23**, p. 987–997 (1912). 36
- [132] H. HAGA & C. H. WIND; «Die Beugung der Röntgenstrahlen»; Annalen der Physik **315**, p. 305–312 (1903). 36
- [133] P. KOCH; «Über die Messung der Schwärzung photographischer Platten in sehr schmalen Bereichen. Mit Anwendung auf die Messung der Schwärzungsverteilung in einigen mit Röntgenstrahlen aufgenommenen Spaltphotogrammen von Walter und Pohl»; Annalen der Physik **343**, p. 507–522 (1912). 36
- [134] C. G. BARKLA; «XXXV. Typical cases of ionization by X-rays»; The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science **20**, p. 370–379 (1910). 36
- [135] W. H. BRAGG; «XXV. On the ionization of various gases by the  $\alpha$  particles of radium.—No. 2»; The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science **13**, p. 333–357 (1907). 36
- [136] P. EWALD; «Laue's Discovery of X-ray Diffraction by Crystals»; dans «Fifty Years of X-Ray Diffraction : Dedicated to the International Union of Crystallography on the Occasion of the Commemoration Meeting in Munich July 1962», p. 31–56 (Springer) (1962). 37
- [137] P. P. EWALD; «Zur begründung der kristalloptik»; Annalen der Physik **354**, p. 1–38 (1916). 37
- [138] W. FRIEDRICH, P. KNIPPING & M. LAUE; «Sitzungsber. math. phys. kl. k»; Bayer. Akad. Wiss. München p. 303–322 (1912). iv, 37
- [139] T. JOHANSSON; «Über ein neuartiges, genau fokussierendes Röntgenspektrometer»; *Zeitschrift für Physik* **82**, p. 507–528 (1933). <https://doi.org/10.1007/BF01342254>. 38
- [140] A. H. COMPTON; «The intensity of x-ray reflection, and the distribution of the electrons in atoms»; Physical Review **9**, p. 29 (1917). 38
- [141] W. L. BRAGG, R. W. JAMES & C. BOSANQUET; «XXIX. The intensity of reflexion of X-rays by rock-salt»; The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science **41**, p. 309–337 (1921). 38
- [142] W. BRAGG, R. t. JAMES & C. BOSANQUET; «I. The intensity of reflexion of X-rays by rock-salt.—Part II»; The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science **42**, p. 1–17 (1921). 38
- [143] E. WAGNER & H. KULENKAMPFF; «The Intensity of Reflection of Rontgen Rays of Various Wavelengths»; Ann. Physik **68**, p. 369 (1922). 38

- [144] B. DAVIS & W. M. STEMPEL; «An Experimental Study of the Reflection of X-Rays from Calcite»; *Physical Review* **17**, p. 608 (1921)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.17.608>. 38
- [145] B. DAVIS & H. PURKS; «Measurement of the Mo.K Doublet Distances by Means of the Double X-Ray Spectrometer»; *Proceedings of the National Academy of Sciences* **13**, p. 419–422 (1927)<http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pmc/articles/PMC1085029/>. 38
- [146] B. DAVIS & H. PURKS; «Additional Lines in the K Series of Molybdenum and the Natural Breadth of Spectral Lines»; *Proceedings of the National Academy of Sciences* **14**, p. 172 (1928)<http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pmc/articles/PMC1085401/>. 38
- [147] J. H. WILLIAMS & S. K. ALLISON; «Design of a Double X-Ray Spectrometer»; *Journal of the optical Society of America* **18**, p. 473–478 (1929)<http://www.opticsinfobase.org/abstract.cfm?URI=josa-18-6-473>. 38, 44
- [148] S. K. ALLISON & J. H. WILLIAMS; «The Resolving Power of Calcite for X-Rays and the Natural Widths of the Molybdenum K $\alpha$  Doublet»; *Phys. Rev.* **35**, p. 1476 (1930)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.35.1476>. 38
- [149] J. H. WILLIAMS; «A Correction to Wave-Length Measurements with the Double-Crystal Spectrometer»; *Physical Review* **40**, p. 636 (1932)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.40.636>. 38
- [150] J. BEARDEN; «Status of X-Ray Wavelengths in Minutes of the New Haven Meeting, June 23–25, 1932»; *Physical Review* **41**, p. 399 (1932)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.41.384>. 38
- [151] J. A. BEARDEN; «Absolute Wave-Lengths of the Copper and Chromium K-Series»; *Physical Review* **37**, p. 1210 (1931)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.37.1210>. 38
- [152] J. A. BEARDEN; «The Grating Constant of Calcite Crystals»; *Physical Review* **38**, p. 2089 (1931)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.38.2089>. 38
- [153] A. H. COMPTON; «A PRECISION X-RAY SPECTROMETER AND THE WAVE LENGTH OF Mo K $\alpha$ 1»; *Review of Scientific Instruments* **2**, p. 365–376 (1931). iv, 38, 39, 45
- [154] M. M. SCHWARZSCHILD; «Theory of the Double X-Ray Spectrometer»; *Physical Review* **32**, p. 162 (1928)<http://link.aps.org/abstract/PR/v32/p162>. viii, 38, 44, 70, 80
- [155] J. SINGER; «The optical principles of the diffraction of X-rays : by R. W. James. 623 pages, 14 × 23 cm., illustrations, plates. London, G. Bell & Sons, 1948. Price, \$17.50.»; (1949). <https://api.semanticscholar.org/CorpusID:125915627>. 38
- [156] U. BONSE & M. HART; «An X-Ray Interferometer»; *Appl. Physics Letters* **6**, p. 155 (1965)[http://apl.aip.org/resource/1/applab/v6/i8/p155\\_s1](http://apl.aip.org/resource/1/applab/v6/i8/p155_s1). 38

- [157] R. D. DESLATTES & A. HENINS; «X-Ray to Visible Wavelength Ratios»; *Physical Review Letters* **31**, p. 972–975 (1973)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.31.972>. 38
- [158] L. FERROGLIO, G. MANA & E. MASSA; «Si Lattice Parameter Measurement by Centimeter X-Ray Interferometry»; *Optics Express* **16**, p. 16 877–16 888 (2008)<http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-16-21-16877>. 38, 48
- [159] E. MASSA, G. MANA, U. KUETGENS & L. FERROGLIO; «Measurement of the Lattice Parameter of a Silicon Crystal»; *New Journal of Physics* **11**, p. 053 013 (2009)<http://stacks.iop.org/1367-2630/11/i=5/a=053013>. 38, 48
- [160] R. DESLATTES; «Two-Crystal, Vacuum Monochromator»; *Review of Scientific Instruments* **38**, p. 616–620 (1967)<http://link.aip.org/link/doi/10.1063/1.1720781>. 38
- [161] T. MOONEY, E. LINDROTH, P. INDELICATO, E. KESSLER & R. DESLATTES; «Precision Measurements of K and L Transitions in Xenon : Experiment and Theory for the K, L and M Levels»; *Phys. Rev. A* **45**, p. 1531 (1992)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.45.1531>. 38
- [162] E. KESSLER, R. DESLATTES, D. GIRARD, W. SCHWITZ, L. JACOBS & O. RENNER; «Mid-to-high-Z precision x-ray measurements»; *Phys. Rev. A* **26**, p. 2696 (1982)<https://journals.aps.org/pr/abstract/10.1103/PhysRevA.26.2696>. 38
- [163] J. SCHWEPPE, R. DESLATTES, T. MOONEY & C. POWELL; «Accurate Measurement of Mg and Al Ka<sub>1,2</sub> X-Ray Energy Profiles»; *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* **67**, p. 463 (1994). 38
- [164] C. I. SZABO, P. INDELICATO, ERIC-OLIVIER LEBIGOT, A. VALLETTE, P. AMARO, M. GUERRA & A. GUMBERIDZE; «Progress on Precision Measurements of Inner Shell Transitions in Highly Charged Ions at an ECR Ion Source»; dans «THE 17TH INTERNATIONAL CONFERENCE ON ATOMIC PROCESSES IN PLASMAS (ICAPIP)», p. 236 (American Institute of Physics, Belfast) (2012). 38, 65
- [165] P. AMARO, C. I. SZABO, S. SCHLESSER, A. GUMBERIDZE, E. G. KESSLER, A. HENINS, E. O. LE BIGOT, M. TRASSINELLI, J. M. ISAC, P. TRAVERS, M. GUERRA, J. P. SANTOS & P. INDELICATO; «A vacuum double-crystal spectrometer for reference-free X-ray spectroscopy of highly charged ions»; *Radiat. Phys. and Chem.* **98**, p. 132 (2014)<http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0969806X1400019X>. v, viii, 38, 44, 46, 47, 48, 49, 63, 65, 71, 80, 82, 84, 86
- [166] J. MACHADO, N. PAUL, G. SOUM-SIDIKOV, L. DUVAL, S. MACÉ, R. LOETZSCH, M. TRASSINELLI & P. INDELICATO; «Absolute Measurement of the Relativistic Magnetic Dipole Transition in He-Like Sulfur»; *Phys. Rev. A* **107**, p. 032 821 (2023)<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.107.032821>. 39, 49, 63, 72, 86

- [167] A. GUMBERIDZE, M. TRASSINELLI, N. ADROUCHE, C. I. SZABO, P. INDELICATO, F. HARANGER, J. M. ISAC, E. LAMOUR, E. O. LE BIGOT, J. MEROT, C. PRIGENT, J. P. ROZET & D. VERNHET ; «Electronic temperatures, densities, and plasma x-ray emission of a 14.5 GHz electron-cyclotron resonance ion source» ; *Rev. Sci. Instrum.* **81**, p. 033 303 (2010)<http://aip.scitation.org/doi/10.1063/1.3316805>. 40
- [168] P. DERGHAM, F. AUMAYR, E. LAMOUR, S. MACÉ, C. PRIGENT, S. STEYDLI, D. VERNHET, M. WERL, R. A. WILHELM & M. TRASSINELLI ; «Toward Probing Surface Magnetism with Highly Charged Ions» ; *Atoms* **10** (2022). ISSN 2218-2004. <https://www.mdpi.com/2218-2004/10/4/151>. 40
- [169] M. JOLLY, S. VOIKOPOULOS, E. LAMOUR, A. MÉRY, A. BRÄUNING-DEMIAN, J.-Y. CHESNEL, A. GUMBERIDZE, M. LESTINSKY, S. MACÉ, C. PRIGENT, J.-M. RAMILLON, J. RANGAMA, P. ROUSSEAU, D. SCHURY, U. SPILLMANN, S. STEYDLI, T. STÖHLKER, M. TRASSINELLI & D. VERNHET ; «Performance of a keV/u Ion Spectrometer for the FISIC Platform» ; *Atoms* **10** (2022). ISSN 2218-2004. <https://www.mdpi.com/2218-2004/10/4/146>.
- [170] S. CERVERA, M. LOBUE, E. FONTANA, M. EDDRIEF, V. H. ETGENS, E. LAMOUR, S. MACÉ, M. MARANGOLO, E. PLOUET, C. PRIGENT, S. STEYDLI, D. VERNHET & M. TRASSINELLI ; «Mastering disorder in a first-order transition by ion irradiation» ; *Phys. Rev. Mater.* **8**, p. 024 406 (2024). <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevMaterials.8.024406>. 40
- [171] J. F. D. C. MACHADO ; *High Precision Tests of Qed Measurement of the Alpha-Particle and Helion Rms Charge Radius and the Transition Energies in Highly-Charged Ions* ; Ph.d. ; Universidade Nova de Lisboa, Sorbonne Université (2018). v, vii, 42, 47, 55, 59, 84, 99
- [172] E. NASELLI, D. MASCALI, S. BIRI, C. CALIRI, G. CASTRO, L. CELONA, L. G. COSENTINO, A. GALATÀ, S. GAMMINO, M. GIARRUSSO, F. LEONE, M. MAZZAGLIA, R. RÁCZ, R. REITANO, F. P. ROMANO & G. TORRISI ; «Multi-diagnostics Setups for Magnetoplasmas Devoted to Astrophysics and Nuclear Astrophysics Research in Compact Traps» ; *Journal of Instrumentation* **14**, p. C10 008 (2019)<https://dx.doi.org/10.1088/1748-0221/14/10/C10008><https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1748-0221/14/10/C10008/pdf>. 41
- [173] E. KESSLER, A. HENINS, R. DESLATTES, L. NIELSEN & M. ARIF ; «Precision Comparison of the Lattice Parameters of Silicon Monocrystals» ; *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology* **99**, p. 1–18 (1994). 44, 47
- [174] J. E. G. KESSLER, S. M. OWENS, A. HENINS & R. D. DESLATTES ; «Silicon Lattice Comparisons Related to the Avogadro Project : Uniformity of New Material and Surface Preparation Effects» ; *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement* **48**, p. 221–4 (1999). 44, 48
- [175] S. K. ALLISON ; «The Reflecting and Resolving Power of Calcite for X-Rays» ; *Physical Review* **41**, p. 1 (1932)<http://link.aps.org/abstract/PR/v41/p1>. 44

- [176] T. TOCHIO, Y. ITO & K. OMOTE; «Broadening of the X-Ray Emission Line Due to the Instrumental Function of the Double-Crystal Spectrometer»; *Physical Review A* **65**, p. 042 502 (2002)<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.65.042502>. 45
- [177] C. I. SZABO, J. P. CLINE, A. HENINS, L. T. HUDSON & M. H. MENDENHALL; «The Nist Vacuum Double-Crystal Spectrometer : A Tool for Si-Traceable Measurement of X-Ray Emission Spectra»; *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology* **126**, p. 126 049 (2021)<https://doi.org/10.6028/jres.126.049>. 45
- [178] S. SCHLESSER; *Spectroscopie X d'ions très chargés et niveaux d'énergie de l'hydrogène pionique*; Ph.D.; Université Pierre et Marie Curie (2009). 47
- [179] P. AMARO; *Study of Forbidden Transitions in Atomic Systems*; Ph.d.; Universidade Nova de Lisboa (2011). 47
- [180] M. GUERRA; *Electron Impact Ionization Cross Sections and Analysis of X-ray Spectra*; Ph.D.; Universidade Nova de Lisboa (2012). 47
- [181] P. BECKER; «The determination of the Avogadro constant-not simply a metrological problem»; *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement* **48**, p. 225–229 (1999). 47
- [182] E. MASSA, G. MANA, L. FERROGLIO, E. G. KESSLER, D. SCHIEL & S. ZAKEL; «The Lattice Parameter of the 28 Si Spheres in the Determination of the Avogadro Constant»; *Metrologia* **48**, p. S44 (2011)<http://iopscience.iop.org/0026-1394/48/2/S07>. 48
- [183] E. TIESINGA, P. J. MOHR, D. B. NEWELL & B. N. TAYLOR; «Codata Recommended Values of the Fundamental Physical Constants : 2018»; *Reviews of Modern Physics* **93**, p. 025 010 (2021)<https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.93.025010>. 48
- [184] R. SCHOEDEL & G. BOENSCH; *Precise Interferometric Measurements at Single-Crystal Silicon Yielding Thermal Expansion Coefficients from 12 Deg to 28 °C and Compressibility.*; *Lasers in Metrology and Art Conservation*, tome 4401 (SPIE) (2001). <https://doi.org/10.1117/12.445624>. 48
- [185] H. MCSKIMIN; «Measurement of Elastic Constants at Low Temperatures by Means of Ultrasonic Waves—Data for Silicon and Germanium Single Crystals, and for Fused Silica»; *Journal of Applied Physics* **24**, p. 988–997 (1953)<http://dx.doi.org/10.1063/1.1721449>. 48
- [186] J. NYE; *Physical Properties of Crystals* (Oxford University Press, Oxford, England) (1957). 48
- [187] W. ZACHARIASEN; «A General Theory of X-Ray Diffraction in Crystals»; *Acta Crystallographica* **23**, p. 558–564 (1967)<http://dx.doi.org/10.1107/S0365110X67003202>. 48

- [188] M. S. DEL RÍO & R. DEJUS; *XOP v2.4 : recent developments of the x-ray optics software toolkit*; *SPIE Optical Engineering + Applications*, tome 8141 (SPIE) (2011). <https://doi.org/10.1117/12.893911>. v, 48, 49
- [189] A. BRUNETTI, M. SANCHEZ DEL RIO, B. GOLOSIO, A. SIMIONOVICI & A. SOMOGYI; «A library for X-ray–matter interaction cross sections for X-ray fluorescence applications»; *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy* **59**, p. 1725–1731 (2004). ISSN 0584-8547. <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0584854704001843>; 17th International Congress on X-Ray Optics and Microanalysis. 48, 71
- [190] M. SANCHEZ DEL RIO & R. J. DEJUS; «Status of XOP : an x-ray optics software toolkit»; *Proc. SPIE* **5536**, p. 171 (2004). <http://dx.doi.org/10.1117/12.560903>. v, 48, 49
- [191] M. S. DEL RIO & R. J. DEJUS; «Xop 2.1 — a New Version of the X-Ray Optics Software Toolkit»; *AIP Conference Proceedings* **705**, p. 784–787 (2004)<http://link.aip.org/link/?APC/705/784/1><http://dx.doi.org/10.1063/1.1757913>. v, 48, 49, 71
- [192] M. GUERRA, P. AMARO, C. I. SZABO, A. GUMBERIDZE, P. INDELICATO & J. P. SANTOS; «Analysis of the charge state distribution in an ECRIS Ar plasma using high-resolution x-ray spectra»; *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **46**, p. 065701 (2013)<http://stacks.iop.org/0953-4075/46/i=6/a=065701>. 49
- [193] L. M. P. FERNANDES, F. D. AMARO, A. ANTOGNINI, J. M. R. CARDOSO, C. A. N. CONDE, O. HUOT, P. E. KNOWLES, F. KOTTMANN, J. A. M. LOPES, L. LUDHOVA, C. M. B. MONTEIRO, F. MULHAUSER, R. POHL, J. M. F. DOS SANTOS, L. A. SCHALLER, D. TAQUU & J. F. C. A. VELOSO; «Characterization of Large Area Avalanche Photodiodes in X-Ray and Vuv-Light Detection»; *Journal of Instrumentation* **2**, p. P08005–P08005 (2007)<http://dx.doi.org/10.1088/1748-0221/2/08/P08005>. 50
- [194] L. M. P. FERNANDES, J. A. M. LOPES, J. M. F. DOS SANTOS & C. A. N. CONDE; «Application of Large-Area Avalanche Photodiodes to Energy-Dispersive X-Ray Fluorescence Analysis»; *X-Ray Spectrometry* **30**, p. 164–169 (2001)<https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/xrs.481>. 50
- [195] R. STEINBRÜGGE, S. KÜHN, F. NICASTRO, M. F. GU, M. TOGAWA, M. HOESCH, J. SELTMANN, I. SERGEEV, F. TRINTER, S. BERNITT, C. SHAH, M. A. LEUTENEGGER & J. R. C. LÓPEZ-URRUTIA; «X-Ray Photoabsorption of Density-Sensitive Metastable States in Ne VII, Fe XXII, and Fe XXIII»; *The Astrophysical Journal* **941**, p. 188 (2022)<https://dx.doi.org/10.3847/1538-4357/ac9c00><https://iopscience.iop.org/article/10.3847/1538-4357/ac9c00/pdf>. 60
- [196] S. SCHLESSER, S. BOUCARD, D. S. COVITA, J. M. F. DOS SANTOS, H. FUHRMANN, D. GOTTA, A. GRUBER, M. HENNEBACH, A. HIRTL, P. INDELICATO, E. O. LE BIGOT, L. M. SIMONS, L. STINGELIN, M. TRASSINELLI, J. F. C. A. VELOSO,

- A. WASSER & J. ZMESKAL; «High-accuracy x-ray line standards in the 3-keV region»; *Phys. Rev. A* **88**, p. 022 503 (2013)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.88.022503>. 63
- [197] J. MACHADO, G. BIAN, N. PAUL, M. TRASSINELLI, P. AMARO, M. GUERRA, C. SZABO, A. GUMBERIDZE, J. ISAC, J. P. SANTOS, J. DESCLAUX & P. INDELICATO; «Reference-free measurements of the  $1s2s2p^2P_{1/2,3/2} \rightarrow 1s^22s^2S_{1/2}$  and  $1s2s2p^4P_{5/2} \rightarrow 1s^22s^2S_{1/2}$  transition energies and widths in lithiumlike sulfur and argon ions»; *Phys. Rev. A* **101**, p. 062 505 (2020)<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.101.062505>. 63, 86
- [198] V. MÄCKEL, R. KLAWITTER, G. BRENNER, J. R. C. LÓPEZ-URRUTIA & J. ULLRICH; «Laser Spectroscopy of Highly Charged Argon at the Heidelberg Electron Beam Ion Trap»; *Physica Scripta* **2013**, p. 014 004 (2013)<http://stacks.iop.org/1402-4896/2013/i=T156/a=014004>. 63
- [199] P. MICKE, T. LEOPOLD, S. A. KING, E. BENKLER, L. J. SPIESS, L. SCHMÖGER, M. SCHWARZ, J. R. C. LÓPEZ-URRUTIA & P. O. SCHMIDT; «Coherent Laser Spectroscopy of Highly Charged Ions Using Quantum Logic»; *Nature* **578**, p. 60–65 (2020)<https://doi.org/10.1038/s41586-020-1959-8>. 63
- [200] A. KRAMIDA, Y. RALCHENKO, J. READER & N. A. TEAM; «Nist Atomic Spectra Database (Version 5.10),»; (2022). <https://physics.nist.gov/asd>. 63
- [201] W. G. LYNAM, P. K. CARROLL, J. T. COSTELLO, D. EVANS & G. O. SULLIVAN; «The 1s Absorption Spectrum of Neutral and Singly Ionized Boron»; *jpbAMOP* **25**, p. 3963 (1992)<https://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/25/19/008><https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0953-4075/25/19/008>. 63
- [202] A. KRAMIDA & K. HARIS; «Critically Evaluated Spectral Data for Singly Ionized Carbon (C II)»; *The Astrophysical Journal Supplement Series* **260**, p. 11 (2022). [https://tsapps.nist.gov/publication/get\\_pdf.cfm?pub\\_id=933633](https://tsapps.nist.gov/publication/get_pdf.cfm?pub_id=933633). 63
- [203] E. BIÉMONT, Y. FRÉMAT & P. QUINET; «Ionization Potentials of Atoms and Ions from Lithium to Tin (Z= 50)»; *At. Data, Nucl. Data Tab.* **71**, p. 117–146 (1999)<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0092640X98908038>. 63
- [204] P. BEIERSDORFER, T. PHILLIPS, V. L. JACOBS, K. W. HILL, M. BITTER, S. VON GOELER & S. M. KAHN; «High-resolution measurements, line identification, and spectral modeling of K-alpha transitions in Fe XVIII-Fe XXV»; *The Astrophysical Journal* **409**, p. 846 (1993)<http://adsabs.harvard.edu/abs/1993ApJ...409..846B>. 63
- [205] J. K. RUDOLPH, S. BERNITT, S. W. EPP, R. STEINBRÜGGE, C. BEILMANN, G. V. BROWN, S. EBERLE, A. GRAF, Z. HARMAN, N. HELL, M. LEUTENEGGER, A. MÜLLER, K. SCHLAGE, H. C. WILLE, H. YAVAŞ, J. ULLRICH & J. R. CRESPO LÓPEZ-URRUTIA; «X-Ray Resonant Photoexcitation : Linewidths and Energies of K alpha Transitions in Highly Charged Fe Ions»; *Phys. Rev. Lett.* **111**, p. 103 002 (2013)<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.111.103002>. 63

- [206] Y. PODPALY, J. CLEMENTSON, P. BEIERSDORFER, J. WILLIAMSON, G. V. BROWN & M. F. GU; «Spectroscopy of 2 S<sub>1/2</sub> -2 P<sub>3/2</sub> Transitions in W65+ through W71+»; Phys. Rev. A **80**, p. 052 504 (2009)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.80.052504>. 64
- [207] P. BEIERSDORFER, A. OSTERHELD, S. R. ELLIOTT, M. H. CHEN, D. KNAPP & K. REED; «Structure and Lamb shift of 2 s<sub>1/2</sub>-2 p<sub>3/2</sub> levels in lithiumlike Th87+ through neonlike Th80+»; Phys. Rev. A **52**, p. 2693 (1995). 64
- [208] P. BEIERSDORFER; «Experiments with Highly Charged Ions up to Bare U92+ on the Electron Beam Ion Trap»; AIP Conference Proceedings **323**, p. 116 (1994)<http://aip.scitation.org/doi/abs/10.1063/1.2946001>. 64
- [209] H. E. SUESS & H. C. UREY; «Abundances of the Elements»; Rev. Mod. Phys. **28**, p. 53–74 (1956). <https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.28.53>. 64
- [210] «XRISM website»; <https://www.xrism.jaxa.jp/en/>; accessed : 2024-04-30. 64
- [211] N. HELL, P. BEIERSDORFER, G. V. BROWN, M. E. ECKART, R. L. KELLEY, C. A. KILBOURNE, M. A. LEUTENEGGER, T. E. LOCKARD, F. S. PORTER & J. WILMS; «Highly Charged Ions in a New Era of High Resolution X-Ray Astrophysics»; X-Ray Spectrometry **49**, p. 218–233 (2020)<https://analyticalsciencejournals.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/xrs.3107><https://analyticalsciencejournals.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdfdirect/10.1002/xrs.3107?download=true>. 64
- [212] P. PALMERI, P. QUINET, C. MENDOZA, M. A. BAUTISTA, J. GARCÍA & T. R. KALLMAN; «Radiative and Auger Decay of K-Vacancy Levels in the Ne, Mg, Si, S, Ar, and Ca Isonuclear Sequences»; ApJS **177**, p. 408 (2008)<https://dx.doi.org/10.1086/587804>. vii, viii, xi, 65, 66, 80
- [213] R. D. COWAN; *The Theory of Atomic Structure and Spectra* (Univ of California Press) (1981). xi, 66
- [214] A. M. COSTA, M. C. MARTINS, F. PARENTE, J. P. SANTOS & P. INDELICATO; «Dirac-Fock Transition Energies and Radiative and Radiationless Transition Probabilities for Ar9+ to Ar16+/ Ion Levels with K-Shell Holes»; At. Data, Nucl. Data Tab. **79**, p. 223 (2001)<http://www.idealibrary.com/links/doi/10.1006/adnd.2001.0869>. viii, 65, 80
- [215] M. TRASSINELLI; «An introduction to Bayesian statistics for atomic physicists»; Journal of Physics: Conference Series **1412**, p. 062 008 (2020). <https://dx.doi.org/10.1088/1742-6596/1412/6/062008>. 67
- [216] J. SKILLING; «Nested Sampling for General Bayesian Computation»; Bayesian Analysis **1**, p. 833–859, 27 (2006)<https://doi.org/10.1214/06-BA127>. 68
- [217] M. TRASSINELLI; «The Nested\_Fit Data Analysis Program»; Proceedings **22**, p. 14 (2019)<https://doi.org/10.3390/proceedings2019033014>. 68

- [218] L. MAILLARD, F. FINOCCHI & M. TRASSINELLI; «Assessing Search and Unsupervised Clustering Algorithms in Nested Sampling»; *Entropy* **25** (2023). ISSN 1099-4300. <https://www.mdpi.com/1099-4300/25/2/347>. 68, 69
- [219] W. VOIGT; «Über das Gesetz der Intensitätsverteilung innerhalb der Linien eines Gasspektrums»; (1912). 70
- [220] K. VON KLITZING; «Essay : Quantum Hall Effect and the New International System of Units»; *Physical Review Letters* **122**, p. 200 001 (2019)<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.122.200001>. 70
- [221] J. BUCHNER; «Nested sampling methods»; *Statistics Surveys* **17**, p. 169 – 215 (2023). <https://doi.org/10.1214/23-SS144>. 73
- [222] C. GORDON & R. TROTTA; «Bayesian calibrated significance levels applied to the spectral tilt and hemispherical asymmetry»; *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society* **382**, p. 1859–1863 (2007). 82
- [223] L. DUVAL, E. LAMOUR, S. MACÉ, J. MACHADO, M. MAXTON, N. PAUL, C. PRIGENT, M. TRASSINELLI & P. INDELICATO; «High-Precision, Reference-Free Measurements of  $2p \Rightarrow 1s$  Transitions in Boron-Like Sulfur and Argon»; *The European Physical Journal D* **78**, p. 116 (2024)<https://doi.org/10.1140/epjd/s10053-024-00910-x>. 83
- [224] D. S. SIVIA & J. SKILLING; *Data analysis : a Bayesian tutorial*; 2<sup>e</sup> édition (Oxford University Press) (2006); ISBN 0198568320, 9780198568322. 86
- [225] R. S. ORTS, Z. HARMAN, J. R. C. LOPEZ-URRUTIA, A. N. ARTEMYEV, H. BRUHNS, A. J. G. MARTINEZ, U. D. JENTSCHURA, C. H. KEITEL, A. LAPIERRE, V. MIRONOV, V. M. SHABAEV, H. TAWARA, I. I. TUPITSYN, J. ULLRICH & A. V. VOLOTKA; «Exploring Relativistic Many-Body Recoil Effects in Highly Charged Ions»; *Physical Review Letters* **97**, p. 103 002–4 (2006)<http://link.aps.org/abstract/PRL/v97/e103002>. ix, 89
- [226] J. T. JEFFERIES; «21. Forbidden Lines in the Solar Corona, Introductory Report»; dans C. ARPIGNY, B. EDLÉN & P. SWINGS (rédacteurs), «Liege International Astrophysical Colloquia», , tome 15p. 213–234 (1969). 88
- [227] P. INDELICATO; «Mcdfgme, a Multiconfiguration Dirac Fock and General Matrix Elements Program (Release 2024v1)»; (2024). <http://www.lkb.upmc.fr/metrologysimplesystems/mdfgme-a-general-purpose-multiconfiguration-dirac-foc-program/>. 95
- [228] C. T. CHANTLER & J. A. KIMPTON; «Recent developments in X-ray tests of quantum electrodynamics»; *Can. J. Phys.* **87**, p. 763 (2009)<http://www.nrcresearchpress.com/doi/abs/10.1139/P09-019>. 99
- [229] C. T. CHANTLER, M. N. KINNANE, J. D. GILLASPY, L. T. HUDSON, A. T. PAYNE, L. F. SMALE, A. HENINS, J. M. POMEROY, J. N. TAN, J. A. KIMPTON, E. TAKACS & K. MAKONYI; «Testing Three-Body Quantum Electrodynamics with Trapped

- Ti<sup>20+</sup> Ions : Evidence for a Z-dependent Divergence Between Experiment and Calculation» ; Phys. Rev. Lett. **109**, p. 153 001 (2012)<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.109.153001>.
- [230] C. T. CHANTLER, A. T. PAYNE, J. D. GILLASPY, L. T. HUDSON, L. F. SMALE, A. HENINS, J. A. KIMPTON & E. TAKÁCS; «X-ray measurements in helium-like atoms increased discrepancy between experiment and theoretical QED» ; New J. Phys. **16**, p. 123 037 (2014)<http://stacks.iop.org/1367-2630/16/i=12/a=123037?key=crossref.b716ebd48322422e1c3d550745b3ffb3>. 99
- [231] Y. S. KOZHEDUB, A. V. MALYSHEV, D. A. GLAZOV, V. M. SHABAEV & I. I. TUPITSYN; «QED calculation of electron-electron correlation effects in heliumlike ions» ; Phys. Rev. A **100**, p. 062 506 (2019)<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.100.062506>. 99
- [232] F. WAUTERS & A. K. ON BEHALF OF THE MUX COLLABORATION; «The muX project» ; SciPost Phys. Proc. p. 022 (2021). <https://scipost.org/10.21468/SciPostPhysProc.5.022>. 99
- [233] M. HIRSCH, N. HELL, V. GRINBERG, R. BALLHAUSEN, M. A. NOWAK, K. POTTSCHEIDT, N. S. SCHULZ, T. DAUSER, M. HANKE, T. R. KALLMAN, G. V. BROWN & J. WILMS; «Chandra X-Ray Spectroscopy of the Focused Wind in the Cygnus X-1 System» ; A&A **626**, p. A64 (2019)<https://doi.org/10.1051/0004-6361/201935074>. 100
- [234] S. L. REDMAN, G. NAVE & C. J. SANSONETTI; «THE SPECTRUM OF THORIUM FROM 250 nm TO 5500 nm : RITZ WAVELENGTHS AND OPTIMIZED ENERGY LEVELS» ; The Astrophysical Journal Supplement Series **211**, p. 4 (2014). <https://dx.doi.org/10.1088/0067-0049/211/1/4>. 100





---

## Sujet : Métrologie Rayon X pour applications astrophysiques et fondamentales

---

**Résumé :** Dans cette thèse, je présente des mesures d'énergies de transition dans des ions lourds très chargés, dans le domaine des rayons X, pour des atomes allant du soufre à l'uranium. Ces mesures permettent de tester l'Électrodynamique Quantique (QED), dans des états liés, et le problème à n-corps relativiste. La première mesure a été réalisée sur des transitions intracouche 2p-2s dans l'uranium à deux, trois et quatre électrons, sur l'anneau de stockage ESR du complexe d'accélérateurs GSI/FAIR à Darmstadt avec deux spectromètres à cristal courbe. Elle a permis de tester les effets de QED jusqu'au second ordre et les effets de corrélation grâce à la précision obtenue de 37 parties par million (ppm), dix fois meilleure que celle de la mesure précédente en excellent accord avec la théorie. Le second ensemble de mesures a été réalisé sur des transitions 2p-1s dans des ions de soufre et d'argon à 5 électrons (boronoïdes), avec un trou dans la couche 1s. Ces mesures permettent de tester les calculs de problème à n-corps relativiste, et en particulier les effets de corrélation électroniques. Ces mesures, sans références externes, ont été effectuées à l'aide d'un spectromètre à double cristal plan, ce qui permet d'atteindre une précision inégalée de 4 ppm. Pour analyser ces spectres complexes, il a fallu développer de nouvelles techniques Bayésiennes afin de pouvoir déterminer le nombre, la largeur et l'énergie des transitions présentes dans les raies observées. Nous avons ainsi pu déterminer l'énergie et la largeur de plusieurs transitions non-résolues, couramment observée par les satellites X. La mesure précise de ces transitions permet de mieux comprendre les spectres astrophysiques.

**Mots clés :** Ions très chargés, Spectroscopie X, Physique Atomique, Électrodynamique quantique en états liés.

---

## Subject : X ray Metrology for astrophysics and fundamental applications

---

**Abstract:** In this thesis, I present measurements of transition energies in highly charged heavy ions, in the x ray range, for atoms ranging from sulfur to uranium. These measurements allow us to test Quantum Electrodynamics (QED), in bound states, and the relativistic n-body problem. The first measurement was carried out on 2p-2s intrashell transitions in uranium with two, three and four electrons, on the ESR storage ring of the GSI/FAIR accelerator complex in Darmstadt with two curved crystal spectrometers. This enabled to test QED effects up to second order and correlation effects, thanks to the precision obtained of 37 parts per million (ppm), ten times better than that of the previous measurement and in excellent agreement with theory. The second set of measurements was carried out on 2p - 1s transitions in 5-electron sulfur and argon ions (boronoids), with a hole in the 1s shell. These measurements make it possible to test relativistic n-body problem calculations, and in particular electronic correlation effects. These measurements, without external references, were carried out using a double planar crystal spectrometer, achieving an unrivalled accuracy of 4 ppm, in good agreement with the theory. To analyze these complex spectra, we had to develop new Bayesian techniques to determine the number, width and energy of the transitions present in the observed lines. We have thus been able to determine the energy and width of several unresolved transitions commonly observed by X-ray satellites. Precise measurement of these transitions will enable us to better understand astrophysical spectra.

**Keywords :** Highly Charged Ions, X-ray Spectroscopy, Atomic Physics, Bound-State QED,