

UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD
CENTRE D'ORSAY

THÈSE

présentée pour obtenir
Le TITRE de DOCTEUR EN SCIENCES

par
François Dulieu

Sujet

PHOTODÉTACHEMENT D'IONS NÉGATIFS D'HALOGÈNES: DISTRIBUTIONS ANGULAIRES MULTIPHOTONIQUES EN POLARISATION ELLIPTIQUE; MICROSCOPIE AU SEUIL DANS UN CHAMP ÉLECTRIQUE UNIFORME.

Soutenue le 28 juin 1996 devant la commission d'examen

M. Pierre Agostini	Rapporteur
M. Christophe Blondel	
M. Dominique Delande	Rapporteur
M. Christian Delsart	
M. Paul Golovinski	
M. Azzeddine Lahmam-Bennani	

Therri,

Ma thèse commence par être un apprentissage. Merci à Christophe Blondel et Christian Delant, mes deux directeurs de thèse, d'avoir toujours patiemment répondu à mes questions; il n'est rien de plus agréable que d'apprendre de personnes qui aiment faire partager leur savoir. Votre complaisance fait plaisir à voir, je vous remercie de m'en avoir fait profiter.

Je n'aurais pas fait tout ce chemin si certains de mes professeurs ne m'avaient pas fait aimer la physique. Je remercie particulièrement les professeurs Bouyssy, Champéau et Bauche pour leur enthousiasme et leur écoute, ainsi que le professeur Dulieu pour ses cours "buissonniers".

Je remercie les directeurs Π^{me} Bréchnagac et Π^{e} Colliex, ainsi que l'ensemble du laboratoire pour leur accueil.

Si vous venez visiter "la manip", je saurais vous montrer chaque élément et vous dire quelles personnes y ont travaillé. Dans presque tous les domaines, je suis reconnaissante mon incompetence, merci donc à ceux qui m'ont prêté leur savoir-faire avec sympathie. Merci à Jean Louis, "Dédé", Roger, "Dudu", Patrice, Alain, Daniel, Jacky, Yvon, Bernard, Jean Marc, Roland, " Π^{e} Fume", Jocelyne, Thichèle et Alain.

J'adresse tous mes remerciements à Pierre Agostini, Dominique Delande, Paul Golovinski, Azzeddine Lahmam-Bennani pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail en acceptant de faire partie du jury.

Merci à Donna pour ses avis et à Jérôme mon tuteur préféré.
Merci à Frédéric pour nos "collaborations" informatiques. Je n'oublie pas l'aide que m'ont apporté tous les stagiaires; merci à Marie-Anne, Christophe, Vivien, Bruno et les autres...

Enfin je remercie les miens pour m'avoir toujours encouragé à aller de l'avant.

Table des matières

1	Introduction	9
2	Propriétés des ions négatifs	13
2.1	Les ions négatifs existent	13
2.2	Un seul niveau lié	14
2.3	La loi de seuil de Wigner	15
2.4	Les ions négatifs d'halogènes	17
2.5	Les ions négatifs dans des champs lasers intenses	18
2.5.1	Intérêt des ions négatifs pour les phénomènes multi-photoniques	18
2.5.2	Des sections efficaces aux distributions angulaires en lumière elliptique	19
2.6	Les ions négatifs en champ électrique uniforme.	19
3	Extension du Théorème de Yang	21
3.1	Introduction	21
3.2	Distributions angulaires de photoélectrons détachés par de la lumière polarisée rectilignement	22
3.2.1	Qu'est-ce qu'une distribution angulaire?	22
3.2.2	Théorème de Yang	23
3.3	Distributions angulaires avec de la lumière de polarisation elliptique	23
3.3.1	Intérêt de la lumière elliptique	23
3.3.2	Caractérisation de la lumière elliptique	24
3.3.3	Comment décrire ces distributions angulaires:la conjecture	25
3.4	Démonstration de la formule élargissant le théorème de Yang	26
3.4.1	Nomenclature et cadre du calcul	26
3.4.2	Opérateurs de transitions	26
3.4.3	Amplitudes d'excitation multiphotoniques	27
3.4.4	Moment cinétique de l'électron détaché	29

3.4.5	Exemple du détachement à 2 photons	30
3.4.6	Forme générale de la distribution angulaire d'électrons détachés par N photons en lumière elliptique	31
3.5	Paramètres a_{pq} en fonction des amplitudes d'excitations	37
3.6	Discussion	45
3.6.1	Symétries des distributions angulaires elliptiques	45
3.6.2	Nombre de paramètres α_{pq}	45
3.6.3	Amplitudes atomiques et paramètres α_{pq}	46
3.6.4	Asymétrie de la distribution dans le cadre de l'approximation des ondes planes	47
3.6.5	Conclusion	47
4	Aspects expérimentaux	49
4.1	Introduction	49
4.2	Le jet	50
4.2.1	La source	50
4.2.2	L'électrostatique	53
4.3	L'optique	55
4.3.1	Le montage optique	55
4.3.2	Problèmes spécifiques au montage	56
4.3.3	Changement de miroirs du laser	57
4.4	La détection et traitement de données	65
4.4.1	Le paramètre θ	65
4.4.2	Le paramètre d'ellipticité ξ	65
4.4.3	Temps de vol	66
4.4.4	Enregistrements	67
4.4.5	Difficultés expérimentales	68
5	Compétition entre voies de détachement et effet pondéromoteur	71
5.1	Introduction	71
5.2	Cadre de l'étude	73
5.2.1	Caractéristiques du faisceau laser	73
5.2.2	Nombre d'ions détachés	75
5.2.3	Valeurs expérimentales	75
5.2.4	Influence du mouvement des ions	75
5.3	Les différents régimes de photodétachement d'ions en jet	76
5.3.1	Régime non-saturé dit "perturbatif"	76
5.3.2	Régime saturé	77
5.3.3	Régime intermédiaire	78
5.3.4	Comparaison des calculs numériques avec les prévisions analytiques	79

5.3.5	Effet de troncature dû au diamètre du jet d'ions	80
5.4	Compétition de voies de photodétachement	82
5.4.1	Mise en évidence	82
5.4.2	Compétition des voies de détachement par 3 et 4 photons	83
5.5	Effet pondéromoteur	84
5.6	Fermeture de voie par effet pondéromoteur	85
5.6.1	Mise en évidence de l'effet de fermeture de voie	85
5.6.2	Influence de la fermeture de voie sur D_4	86
5.6.3	Influence de la compétition de voie sur le processus d'ordre 5	86
5.7	Conclusion	87
6	Analyse des résultats	91
6.1	Détachement par 3 photons de I^- en lumière elliptique	91
6.1.1	Résultats obtenus antérieurement avec I^-	91
6.1.2	Conditions expérimentales	92
6.1.3	Résultats expérimentaux	92
6.1.4	Analyse quantitative	94
6.1.5	Comparaison avec les résultats et les calculs précédents	96
6.1.6	Discussion	98
6.2	Détachement par 4 photons de Cl^- en lumière elliptique	98
6.2.1	Résultats obtenus antérieurement avec Cl^-	98
6.2.2	Conditions expérimentales	98
6.2.3	Résultats expérimentaux	99
6.2.4	Analyse quantitative	100
6.2.5	Comparaison avec les calculs existants	101
6.2.6	Discussion	102
6.3	Détachement par 4 photons de F^- en lumière elliptique	103
6.3.1	Résultats obtenus antérieurement avec F^-	103
6.3.2	Motivations particulières	103
6.3.3	Conditions expérimentales	104
6.3.4	Résultats expérimentaux	104
6.3.5	Analyse quantitative	105
6.3.6	Comparaison avec les résultats et les calculs précédents	106
6.3.7	Discussion	107
6.4	Conclusion	107
7	Microscopie de photodétachement	109
7.1	Introduction	109
7.2	Description de principe	111
7.2.1	Notations	111

7.2.2	Rayon maximum	112
7.2.3	Phase d'oscillation	113
7.2.4	Projection d'une sphère sur un plan	113
7.2.5	Expression semi-classique de la densité de courant . . .	114
7.2.6	Calcul quantique	115
7.2.7	A propos des unités	115
7.2.8	Choix des paramètres expérimentaux E et ϵ	116
7.3	Choix du type d'ions négatifs utilisés	116
7.4	Autres paramètres expérimentaux	117
7.4.1	Dimension de la zone d'émission des électrons	117
7.4.2	Angle entre le faisceau laser et le champ électrique . . .	118
7.4.3	Effet d'entraînement dû au jet	119
8	Montage expérimental de l'expérience de microscopie de photodétachement	121
8.1	Introduction	121
8.2	Nouvelles chambres	122
8.2.1	Présentation générale	122
8.2.2	Le circuit de pompage	122
8.2.3	Pompage d'appoint par pièges à azote	125
8.3	Réalisation du nouveau jet	125
8.3.1	Description du jet	125
8.3.2	Le virage quadrupolaire	127
8.3.3	Le ralentisseur	128
8.3.4	Réglages du jet d'ions	129
8.4	Détection	130
8.4.1	Le détecteur	130
8.4.2	La zone de détection	131
8.4.3	Polarisation de la zone de détection	133
8.5	La source laser	134
8.6	Difficultés expérimentales	135
8.6.1	Les électrons parasites	135
8.6.2	Détection du signal de photodétachement	136
8.7	Chronologie	136
9	Analyse des premiers résultats	139
9.1	Expérience préliminaire avec une raie UV d'un laser à argon. .	139
9.1.1	Information radiale	139
9.1.2	Largeur d'appareil	140
9.1.3	Effet de la dispersion de l'énergie des électrons	143
9.1.4	Effet de l'augmentation de la largeur d'appareil	143

9.2	Premières images de coupe de fonction d'onde	144
9.2.1	Description qualitative	144
9.3	Déformation des images	146
9.4	Effet de la structure hyperfine du brome	146
9.5	Simulation d'une image	149
9.6	Perspectives	151
9.6.1	Améliorations immédiates	151
9.6.2	Modèle quantique?	152
9.6.3	Microscopie de photoïonisation?	152
Bibliographie		155
A Article 1		167
B Article 2		169

THE UNIVERSITY OF CHICAGO PRESS
50 EAST LEXINGTON AVENUE
NEW YORK, N.Y. 10017-2473
TEL: 212 850 6641
WWW.CHICAGO.PRESS.COM

Chapitre 1

Introduction

Cette thèse est composée de deux parties. La première s'intéresse à l'étude du détachement multiphotonique d'ions négatifs d'halogènes dans le cas général de la polarisation elliptique. La seconde partie concerne la mise en place d'une expérience dite de "microscopie de photodétachement", c'est-à-dire la localisation des interférences électroniques apparaissant au seuil de photodétachement d'ions négatifs en présence d'un champ électrique extérieur.

Le point commun de ces deux thèmes est le photodétachement d'ions négatifs. Photodétacher consiste à arracher un électron à un ion négatif (que l'on a préalablement formé), avec de la lumière.

L'obtention et l'utilisation d'ions négatifs isolés est délicate, c'est peut-être pourquoi la place au sein de la physique atomique de leur étude expérimentale est plutôt limitée.

Pourtant en étudiant les propriétés des ions négatifs, on peut constater que ceux-ci sont des édifices atomiques simples, si on les compare aux atomes neutres.

La simplicité des propriétés des ions négatifs les a révélés être un outil idéal pour l'étude de certains phénomènes difficilement interprétables avec des atomes neutres. Par exemple l'observation du détachement avec un photon excédentaire d'un ion négatif [BLO91, STA91, DAV91] a permis de démontrer définitivement la cohérence du phénomène, bien que l'ionisation au dessus du seuil, phénomène similaire pour un atome neutre, eût été observée depuis longtemps [AGO79], sans qu'on puisse trancher sur la nature du phénomène.

Si tous les résultats obtenus avec les ions négatifs ne sont pas aussi spectaculaires, l'étude expérimentale du photodétachement permet de tester de nombreuses théories. L'étude du détachement multiphotonique dans le cas général de la polarisation elliptique est à placer dans ce contexte. Les distributions angulaires obtenues avec de la lumière elliptique permettent

d'extraire le maximum d'informations des processus de détachement multiphotonique [BLO93b].

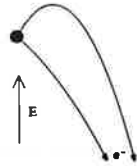


Figure 1.1:

L'étude de la microscopie de photodétachement est une autre illustration de l'intérêt des ions négatifs. En effet, un électron détaché dans un champ électrique peut atteindre le détecteur par deux chemins possibles. (*c.f.* figure 1.1). On peut donc en principe observer des interférences électroniques que ce soit à partir d'atomes neutres ou d'ions négatifs. Mais l'interfrange a été estimé à $10 \mu\text{m}$ dans le cas des atomes neutres, c'est pourquoi ce type d'interférences électroniques n'a encore jamais été observé. Dans le cas des ions négatifs

l'interfrange peut dépasser $500 \mu\text{m}$ avec un appareillage de taille réaliste, ce qui a motivé la réalisation d'un dispositif expérimental susceptible de mettre en évidence ce type d'interférence.

Si de nombreuses expériences d'interférences électroniques ont déjà été réalisées [NIC90], cette approche est nouvelle car dans ce cas les interférences électroniques sont directement dues à l'interaction de l'ion et des champs électriques, et ne nécessitent pas d'élément macroscopique extérieur. Ces interférences sont donc le reflet de ce qui se passe au cœur du processus, c'est à ce titre que l'on a surnommé cette expérience "microscopie de photodétachement".

Le chapitre 2 est consacré à la description des particularités des ions négatifs, ainsi qu'à l'explication de la démarche qui nous a poussés à effectuer les deux études qui font l'objet de cette thèse.

Nous avons eu besoin pour décrire mathématiquement les distributions angulaires de photodétachement en lumière elliptique, d'étendre le théorème de Yang [YAN48], valable en polarisation rectiligne, à la polarisation elliptique pour les ions négatifs d'halogènes. Cette extension s'applique également à de nombreux cas de photoïonisation. Le chapitre 3 détaille cet aspect théorique.

Le chapitre 4 décrit le montage expérimental avec lequel nous avons réalisé les mesures de distributions angulaires d'ions négatifs d'halogènes. J'y détaillerai particulièrement les caractéristiques du faisceau laser.

Le chapitre 5 s'intéresse aux phénomènes de compétitions de voies de photodétachement et à l'effet pondéromoteur. Les calculs qu'il résume cherchent à vérifier si le détachement de F^- par 4 photons infrarouges, est un "vrai" phénomène à un photon en excès. Cela nous sera utile lors de la discussion des résultats des distributions angulaires de détachement de F^- par 4 photons en lumière elliptique. Les calculs soulignent également la

difficulté d'obtenir des distributions angulaires de détachement de F^- par 5 photons dans nos conditions expérimentales.

Le chapitre 6 analyse les résultats de nos mesures des distributions angulaires de photodétachement en lumière elliptique de I^- , Cl^- et F^- . Nous avons réuni l'ensemble des données expérimentales que nous avons présentées de façon aussi précise que possible. Au regard de ces données il se dégage quelques questions auxquelles aucune théorie n'a jusqu'à présent répondu.

Le chapitre 7 est consacré à l'explication du principe de l'expérience de microscopie de photodétachement. J'y décrirai le rôle de chaque paramètre expérimental, et discuterai des valeurs pour lesquelles le phénomène d'interférence peut être observé.

Le chapitre 8 décrit la réalisation du nouveau montage expérimental. Les similitudes et les différences des deux montages seront étudiées.

Enfin, le chapitre 9 dévoile les premières images du microscope de photodétachement. J'y analyse les premières performances du montage et y vérifie l'accord qualitatif des premières observations avec la théorie.

THE UNIVERSITY OF CHICAGO PRESS
50 EAST LEXINGTON AVENUE
NEW YORK, N.Y. 10017

Chapitre 2

Propriétés des ions négatifs

2.1 Les ions négatifs existent

Un noyau possédant Z protons chargés positivement s'entoure de Z électrons chargés négativement. L'édifice atomique ainsi formé, l'atome, est électriquement neutre, le nuage électronique compensant exactement la charge positive du noyau.

Si on retire un électron à un atome neutre, on l'ionise. L'ion positif crée un champ coulombien, susceptible d'attirer un électron, pour reformer un atome neutre. Si on approche un électron d'un atome neutre, il ne pourra pas être lié par le champ coulombien du noyau, puisque ce dernier est écranté par les électrons. Il n'est donc pas évident que l'ensemble forme un nouvel édifice atomique stable, l'ion négatif.

Toutefois un électron qui pénètre dans le cœur d'un atome voit un potentiel attractif, bien qu'à très courte portée. De plus, si on approche un électron d'un atome neutre, les électrons liés vont être repoussés par rapport au noyau par la charge de l'électron supplémentaire, ce qui induit un dipôle électrique. Le potentiel produit par ce dipôle est susceptible de lier le nouvel électron. C'est ainsi que l'on explique l'existence d'ions négatifs stables.

Tous les atomes neutres ne peuvent pas former d'ions négatifs stables. Les gaz rares par exemple ne le peuvent pas. *L'affinité électronique*, qui est l'énergie nécessaire pour détacher l'électron de l'atome, est toujours inférieure à *l'énergie d'ionisation*, énergie nécessaire pour ioniser l'atome. L'énergie d'ionisation de l'hydrogène vaut environ 13,6 eV, alors que son affinité électronique n'est que de 0,754 eV. Les affinités électroniques restent relativement faibles puisque la plus grande affinité électronique atomique qui est celle du chlore, a été mesurée à 3,61 269(7) eV [TRA87a].

Les calculs basés sur le modèle de Hartree-Fock, c'est à dire un modèle à

électrons indépendants, donnent une idée de la stabilité de la plupart des ions négatifs [NOV91]. Mais ces calculs sous-estiment presque toujours l'affinité électronique, par exemple d'un facteur 2 pour le fluor.

Une part essentielle de la stabilité des ions négatifs est due aux corrélations électroniques. Ceci signifie qu'on ne peut pas considérer que le mouvement d'un électron dépend seulement de la position moyenne des autres. Il faut tenir compte de l'interaction de tous les électrons; autrement dit, les électrons se partagent l'attraction du noyau, augmentant ainsi la stabilité de l'ion négatif.

2.2 Un seul niveau lié

Le potentiel vu par un électron qui s'échappe d'un atome neutre en l'ionisant, est un potentiel coulombien en $1/r$, où r est la distance au noyau, supposé centre du potentiel.

L'électron extérieur, en repoussant le nuage électronique, induit un dipôle dont l'amplitude est inversement proportionnelle à r^2 . Le potentiel du dipôle est également en $1/r^2$. Il en résulte que le potentiel vu par l'électron se comporte en $1/r^4$.

Il faut noter que ce raisonnement n'est valable qu'à l'extérieur du cœur atomique; à l'intérieur, on a affaire à un problème à plusieurs corps qui se réduit plus à une interaction coulombienne classique.

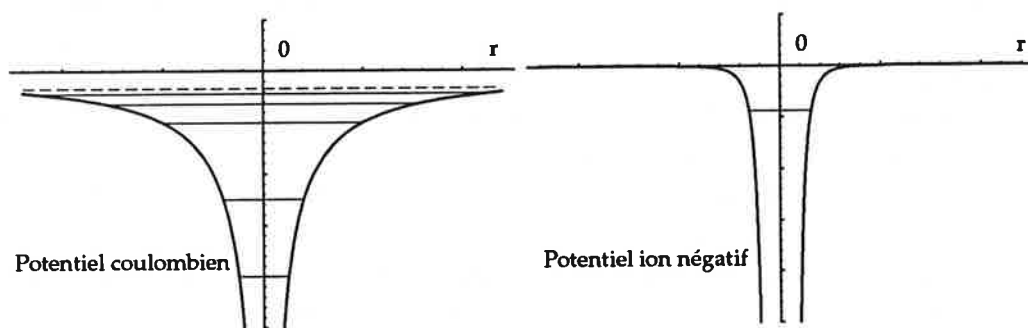


Figure 2.1: *A gauche un puits de potentiel coulombien, à droite un puits de potentiel en $1/r^4$ produit par un dipôle induit, cas des ions négatifs. Les échelles sont les mêmes, les unités, arbitraires. On constate que le potentiel d'ion négatif s'annule très rapidement, alors que le potentiel coulombien s'étend à grande distance.*

Le potentiel en $1/r^4$ ne donne en général lieu qu'à un seul état discret lié (d'autres états discrets excités apparaissent dans le continuum sous

forme de résonances de photodétachement, notamment pour les ions négatifs d'alcalins [STA92]).

La dégénérescence de cet état lié peut être éventuellement levée par le couplage spin-orbite (structure fine) ou l'interaction avec le noyau (structure hyperfine).

Dans un potentiel coulombien, on trouve une infinité d'états liés, qu'on appelle les états de Rydberg. La densité de ces états augmente quand on s'approche du seuil d'ionisation. Ceci illustre le fait que l'électron ressent les effets du potentiel coulombien même à très grande distance.

L'absence de séries de Rydberg dans les ions négatifs rend la spectroscopie autour du seuil de détachement considérablement plus simple à étudier que celle des seuils d'ionisation. De plus l'absence de champ coulombien dû au cœur permet de considérer que l'électron est libre. On peut donc appliquer la loi de seuil de Wigner [WIG48].

2.3 La loi de seuil de Wigner

Dans le cas du photodétachement, si σ est la section efficace de photodétachement, ℓ le moment cinétique de l'électron détaché et ϵ son énergie au dessus du seuil, la loi de Wigner s'écrit:

$$\sigma \sim \epsilon^{\ell + \frac{1}{2}} \quad (2.1)$$

Cette loi a été vérifiée par de nombreuses expériences sur les ions négatifs (Branscomb *et al* [BRA58]). Elle a été confirmée dans le cadre du détachement multiphotonique (Trainham *et al* [TRA87a], Tang *et al* [TAN89]).

Elle nous apprend que la section efficace est nulle au seuil, contrairement au cas des atomes neutres où la section efficace moyenne d'excitation au seuil est la limite de la section efficace d'excitation des séries de Rydberg convergeant vers le seuil.

La dépendance en ℓ de l'énergie au dessus du seuil montre que juste au dessus du seuil, les électrons vont être détachés avec leurs plus petit moment cinétique permis.

Dans le cas d'un photodétachement produisant un électron dans un état final où ℓ peut être nul, la section va croître juste au dessus du seuil en $\sqrt{\epsilon}$, c'est à dire avec une dérivée infinie au seuil. L'observation du seuil de photodétachement et la mesure de l'affinité électronique sont donc particulièrement aisées dans cette situation, puisque l'accroissement de la section efficace au seuil va se faire de façon brusque.

Avec l'accroissement de l'énergie au dessus du seuil, les états permis de plus grand ℓ vont être de plus en plus présents. Ce fait est remarquablement

illustré figure 2.2 [BLO92], où l'on voit, avec l'accroissement de l'énergie au dessus du seuil, apparaître des structures de fréquences angulaires de plus en plus élevées (qui correspondent à des valeurs de ℓ de plus en plus grandes ici $\ell = 1, 3, \dots$) dans les distributions angulaires de photodétachement des ions négatifs d'halogènes par deux photons de 532 nm.

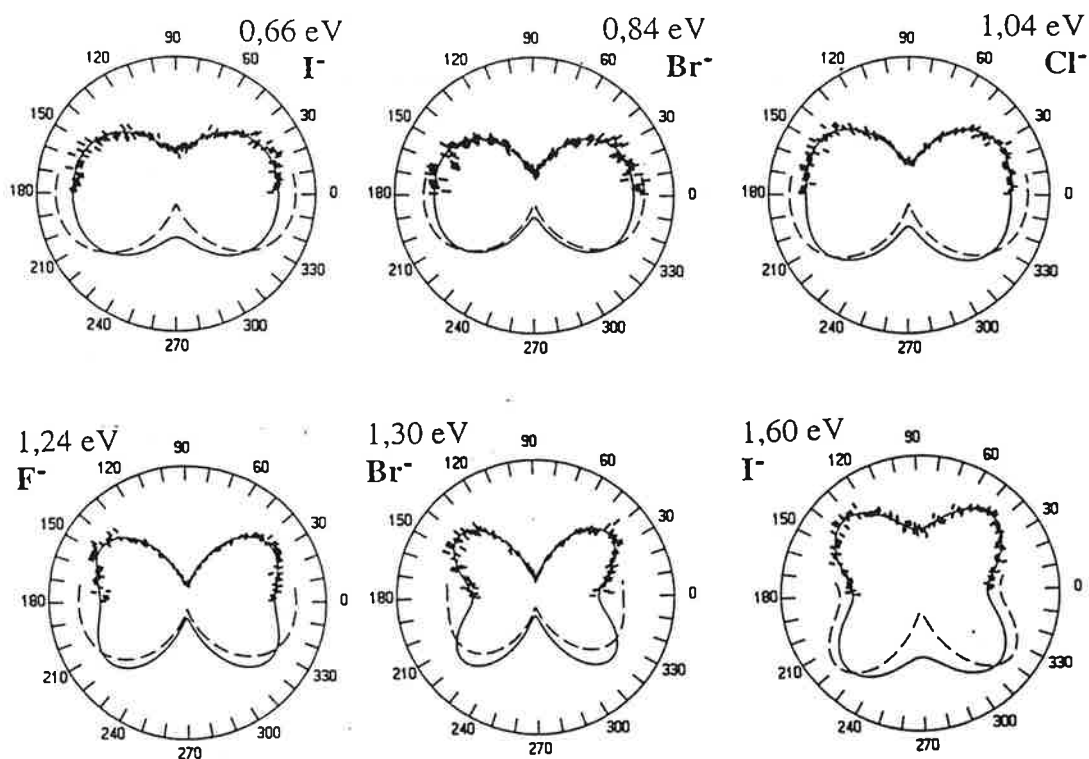


Figure 2.2: Distributions angulaires d'ions négatifs d'halogènes détachés par 2 photons de 532 nm. L'énergie indiquée correspond à l'énergie atteinte au dessus du seuil. L'importance de la structure fine $^2P_{1/2} - ^2P_{3/2}$ des atomes neutres Br et I permettent de distinguer expérimentalement les deux voies de photodétachement. L'apparition de structures de fréquences angulaires de plus en plus élevées peut être interprétée comme une conséquence de la loi de Wigner. Les lignes pointillées donnent le résultat de calculs effectués dans l'approximation des ondes planes [BLO92] lorsque l'énergie croît.

2.4 Les ions négatifs d'halogènes

Simplicité théorique

Les ions négatifs d'halogènes ont le même nombre d'électrons que les gaz rares de nombre de charges immédiatement supérieur. Leur dernière couche électronique est une couche p complète. Ils ont donc une symétrie sphérique. Le moment cinétique total est nul, le spin également. L'état fondamental 1S_0 , le seul état lié, est non dégénéré. L'ion, une fois détaché, peut produire un atome dans deux niveaux d'énergie différents, les niveaux de structure fine $^2P_{\frac{1}{2}}$ et $^2P_{\frac{3}{2}}$.

Les ions négatifs d'halogènes sont donc des édifices atomiques relativement simples.

Grande affinité électronique

Les ions négatifs d'halogènes sont les ions négatifs les plus stables. Leur affinité va de 3,059038(10) eV [HAN92] pour I^- à 3,61269(7)eV [TRA87a] pour Cl^- . Les affinités électroniques de Br^- et de F^- ont également été mesurées à, respectivement, 3,363590(3) eV et 3,401190(4) eV [BLO89c].

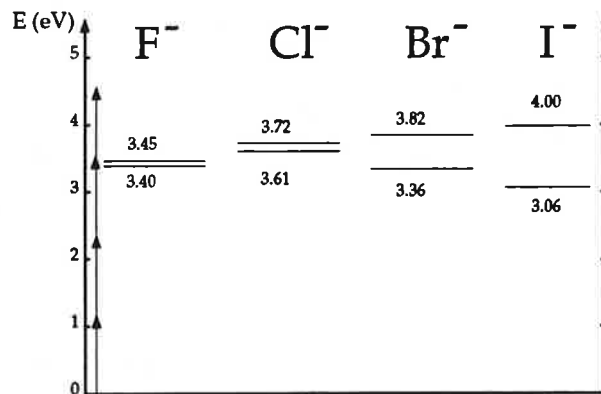


Figure 2.3: Schéma de niveaux des ions F^- , Cl^- , Br^- et I^- . Pour chaque ion le niveau d'énergie le plus bas correspond à l'atome neutre dans l'état de structure fine $^2P_{\frac{3}{2}}$, le niveau supérieur correspondant à l'atome neutre dans l'état $^2P_{\frac{1}{2}}$. Les photons représentés par des flèches sont des photons de Nd:YAG de longueur d'onde $\lambda = 1,0642 \mu m$.

La grande affinité électronique des ions négatifs d'halogènes leur confère une bonne stabilité. Ils sont relativement résistants aux collisions, et leur production est également facilitée. Ce sont des ions négatifs parmi les plus faciles à utiliser expérimentalement.

L'affinité des ions négatifs d'halogènes et leur section efficace sont telles qu'on peut faire des études de photodétachement multiphotonique sans avoir besoin de construire de nouvelles sources lasers. Un laser commercial classique du type Nd:YAG, délivrant des impulsions d'un joule durant 10 ns, correctement focalisé, fournit des éclaircements suffisants, ce qui constitue un autre argument expérimental favorable au choix des ions négatifs d'halogènes.

2.5 Les ions négatifs dans des champs lasers intenses

2.5.1 Intérêt des ions négatifs pour les phénomènes multiphotoniques

A partir de la mise au point des lasers [MAI60], on a pu produire en laboratoire des éclaircements suffisants pour étudier des phénomènes multiphotoniques [KAI61]. La première transition multiphotonique sur un édifice atomique fut observée en 1965 par Hall *et al* [HAL65] sur un ion négatif. C'était le détachement de I^- par deux photons d'un laser à rubis.

De nombreuses expériences d'ionisation multiphotonique ont été réalisées, mais leur interprétation a été singulièrement compliquée par des phénomènes propres à l'ionisation multiphotonique, tels que les résonances intermédiaires, les transitions résonnantes induites par les déplacements lumineux des niveaux, et enfin la présence du champ coulombien qui agit sur l'électron éjecté.

Si la première expérience de transition multiphotonique sur un édifice atomique a été effectuée sur un ion négatif en 1965, il a fallu attendre 1987 [TRA87a, BLO87] pour que de nouvelles expériences soient réalisées. Pourtant, les ions négatifs constituent des outils idéaux pour ce genre d'étude.

Comme ils n'ont qu'un seul état stable, les ions négatifs ne peuvent pas donner lieu à des résonances intermédiaires, induites ou non.

De plus les électrons détachés d'ions négatifs ne sont pas soumis à un champ coulombien. Or un électron dans un champ coulombien peut échanger de l'énergie avec le champ laser. Le potentiel d'un ion négatif étant à très courte portée (cf 2.2), on peut considérer l'électron éjecté comme quasi-libre et utiliser "l'approximation des ondes planes" pour décrire leur comportement. Or, l'électron libre ne peut pas absorber de photon.

Les ions négatifs sont donc des sujets idéaux pour l'étude théorique des transitions multiphotoniques état discret - continuum. Ils ont permis d'améliorer la compréhension des phénomènes multiphotoniques, en particulier éclaircir le rôle du champ coulombien.

De plus, les phénomènes multiphotoniques permettent de mieux cerner les propriétés des ions négatifs, et notamment le rôle et l'importance des corrélations électroniques. En effet, l'excitation multiphotonique donne à l'électron éjecté accès à un plus grand nombre d'états finals, ce qui se révèle être un test pour les différentes théories prenant en compte les effets de corrélations électroniques.

2.5.2 Des sections efficaces aux distributions angulaires en lumière elliptique

Les premières expériences de détachement multiphotonique ont consisté à mesurer les sections efficaces. Malgré les efforts des expérimentateurs pour obtenir des résultats les plus précis possibles, l'incertitude expérimentale n'a pas permis de départager les différentes théories existantes. Mesurer les distributions angulaires de photodétachement a permis une confrontation beaucoup plus précise [BLO92]. On a pu ainsi constater que l'approximation des ondes planes permet d'évaluer qualitativement la forme des distributions angulaires pour les ions les plus lourds, et s'applique assez bien à l'ion F^- de façon quantitative.

Les résultats sont améliorés si l'on tient compte des effets au premier ordre de rediffusion sur le cœur. La prise en compte des corrélations électroniques [PAN91] (qui n'a été faite que pour l'ion F^- , car la difficulté croît rapidement avec la taille de l'ion), permet encore de rapprocher les résultats théoriques et les données expérimentales.

En 1988, Kassae *et al* [KAS88] ont montré que les distributions angulaires obtenues avec de la lumière polarisée elliptiquement constituent de nouveaux tests des théories d'ionisation multiphotonique. Dans le cas du photodétachement, la lumière polarisée elliptiquement permet également d'extraire le plus d'informations des distributions angulaires [BLO93b]. Cela devient même un test direct de l'approximation des ondes planes.

2.6 Les ions négatifs en champ électrique uniforme.

Le processus de photodétachement est modifié par la présence d'un champ électrique uniforme [BAR91]. L'électron, une fois photodétaché, peut directement quitter le cœur atomique ou être d'abord réfléchi sur la barrière de potentiel, comme l'illustre la figure 2.4. Il en résulte des interférences.

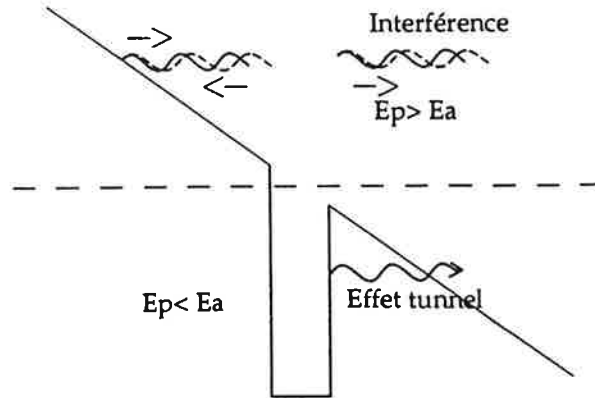


Figure 2.4: Puits de potentiel unidimensionnel d'un ion négatif en champ électrique. E_a est l'affinité électronique. E_p l'énergie du photon.

Par effet tunnel, l'électron peut être photodétaché alors que l'énergie du photon est inférieure à l'affinité électronique.

La loi de Wigner au seuil n'est plus valable en présence de champ électrique. La section efficace de photodétachement n'est plus nulle en dessous du seuil à cause de l'effet tunnel, et les interférences provoquent des oscillations de la section efficace totale. Baruch *et al* [BAR91] ont étudié le phénomène. La figure 2.5 illustre leurs calculs qui sont en accord avec leurs mesures expérimentales.

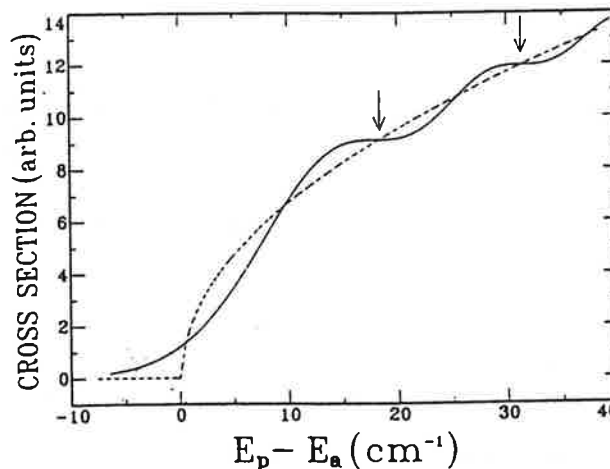


Figure 2.5: Courbe issue de [BAR91]. Section efficace totale de photodétachement en présence d'un champ électrique uniforme de 1500 V/cm. E_p est l'énergie du photon et E_a est l'affinité électronique. L'électron est détaché en onde s . La courbe en tireté est un tracé de la loi de Wigner pour une onde s .

Chapitre 3

Extension du Théorème de Yang

3.1 Introduction

L'enregistrement des distributions angulaires de détachement multiphotonique dans le cas général de la lumière polarisée elliptiquement, apporte plus d'informations que les mêmes enregistrements effectués avec de la lumière rectiligne [BLO93b].

La forme mathématique des distributions angulaires que l'on obtient en photodétachant des ions négatifs d'halogènes avec de la lumière polarisée rectilignement est bien connue. Elle est donnée par le théorème de Yang. En revanche, ce dernier n'est pas applicable dans le cas de la polarisation elliptique.

Pour analyser nos distributions angulaires obtenues avec de la lumière polarisée elliptiquement, il nous a fallu étendre le théorème de Yang au cas général de la polarisation elliptique, pour le cas des ions négatifs d'halogènes.

Dans la première partie de ce chapitre, je rappellerai la définition des distributions angulaires de photoélectrons en lumière polarisée rectilignement ainsi que le théorème de Yang. Après une description du photodétachement en lumière elliptique, la seconde partie consistera en la démonstration de la formule qui constitue l'extension du théorème de Yang. J'expliciterai ensuite le lien entre les paramètres de la formule et les amplitudes des fonctions d'ondes de l'électron détaché. Enfin, je détaillerai les implications de la formule.

3.2 Distributions angulaires de photoélectrons détachés par de la lumière polarisée rectilignement

3.2.1 Qu'est-ce qu'une distribution angulaire?

Lors du photodétachement d'un électron dans l'approximation dipolaire électrique (très bien vérifiée), seul le champ électrique du faisceau laser impose des directions d'espace privilégiées. En polarisation rectiligne, l'angle θ entre le champ électrique et la direction d'éjection de l'électron est la seule variable d'espace dont le photodétachement dépend.

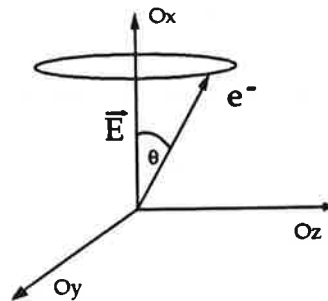


Figure 3.1: \vec{E} est le vecteur champ électrique, dirigé suivant Ox. θ est l'angle d'éjection

Mesurer une distribution angulaire consiste à mesurer le flux électronique pour toutes les directions de l'espace, c'est à dire la variation du flux électronique en fonction de θ .

La connaissance de la distribution angulaire dans un plan contenant \vec{E} (dirigé suivant Ox) suffit, puisque le système est invariant par rotation autour de l'axe Ox. Dans toutes nos expériences (comme souvent ailleurs), on se contente donc de détecter les électrons dans le plan de polarisation.

Comme le champ est oscillant, il y a symétrie par rapport à l'origine. Un hémicycle du plan de détection contient donc toute l'information.

Toutes les distributions angulaires présentées par la suite ne sont données que pour l'intervalle 0-180°, l'intervalle 180-360° redonnant strictement la même distribution.

Expérimentalement, la distribution angulaire que l'on obtient, à un facteur de normalisation près, est la probabilité d'éjection de l'électron en fonction des directions de l'espace. Cette probabilité est égale au carré du module de la projection de la fonction d'onde de l'état final de l'électron sur le sous-

espace vectoriel correspondant à une direction particulière de localisation de la probabilité de présence.

Avec une distribution angulaire de photoélectrons, on a donc une information indirecte sur les états quantiques intervenant dans le processus.

3.2.2 Théorème de Yang

Pour le détachement multiphotonique en polarisation rectiligne d'ions négatifs d'halogènes, on peut utiliser le théorème de Yang [YAN48]. Il donne la forme analytique des distributions que l'on peut attendre quand on détache un ion ou atome à symétrie sphérique par N photons de lumière rectiligne:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\sigma}{4\pi} \left(1 + \sum_{p=1}^N \beta_{2p} P_{2p}(\cos \theta) \right) \quad (3.1)$$

où P_{2p} sont les polynômes de Legendre d'ordre pair et σ la section efficace. Il permet d'obtenir les N paramètres d'asymétrie β d'une distribution angulaire obtenue par un détachement à N photons. Cette formule est valable pour

- des ions (atomes) à symétrie sphérique ($J = 0$),
- de la lumière polarisée rectilignement,
- une distribution angulaire mesurée dans un plan contenant la direction de polarisation.

3.3 Distributions angulaires avec de la lumière de polarisation elliptique

3.3.1 Intérêt de la lumière elliptique

Pour toute distribution angulaire de détachement ou d'ionisation ne mettant en jeu qu'une transition à un photon, la lumière elliptique n'apporte pas plus d'information que la lumière polarisée rectilignement. La distribution angulaire en polarisation elliptique n'est que la superposition incohérente de distributions angulaires obtenues en polarisation rectiligne (Sanson et Starace 1975 [SAM75]).

Dès qu'on s'intéresse à des excitations multiphotoniques, enregistrer des distributions angulaires avec de la lumière elliptique prend tout son sens. Une excitation multiphotonique, composée de transitions σ^+ et σ^- , permet de passer par des chemins différents pour atteindre le même état final. Par exemple une excitation: σ^+ puis σ^- , mène au même état que

l'excitation: σ^- puis σ^+ . Il y a donc possibilité d'interférence entre les différents chemins. Cela conduit à de nouveaux effets dans les distributions angulaires de photoélectrons, parfaitement imprédictibles avec de la lumière polarisée rectilignement qui n'a que le type d'excitation π .

L'étude des distributions angulaires d'électrons détachés par plusieurs photons pour différentes valeurs d'ellipticités de la lumière, contient plus d'informations que la même distribution obtenue avec de la lumière polarisée rectilignement. Le cas de la polarisation rectiligne est un cas particulier de polarisation elliptique. On va donc pouvoir comparer les coefficients d'asymétrie β obtenus précédemment en polarisation rectiligne [BLO92], avec ceux que l'on peut tirer de mesures en polarisation d'ellipticité variable.

3.3.2 Caractérisation de la lumière elliptique

La lumière elliptique est caractérisée par l'angle d'ellipticité ξ . Si (Oz) est l'axe de propagation de la lumière et (xOy) le plan de polarisation, on peut décrire le champ électrique \vec{E} de la lumière elliptique par:

$$\vec{E} = E_0 \left(\hat{X} \cos \frac{\xi}{2} \cos \omega t + \hat{Y} \sin \frac{\xi}{2} \sin \omega t \right) \quad (3.2)$$

$\xi = 0$ correspond à la polarisation rectiligne et $\xi = \pm \frac{\pi}{2}$ à la polarisation circulaire σ^\pm .

On constate qu'il n'y a plus de symétrie de révolution par rapport à l'axe (Ox) contrairement au cas de la polarisation rectiligne. On va donc devoir redéfinir les angles qui décrivent correctement le problème.

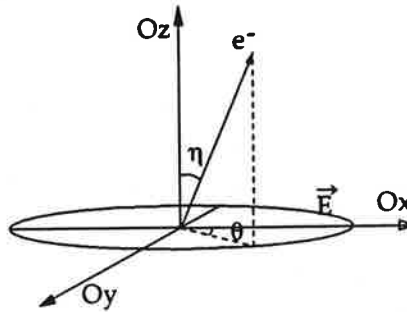


Figure 3.2: θ est l'angle entre la projection de la direction d'éjection sur le plan de polarisation et le grand axe de l'ellipse dirigé suivant (Ox) . η est l'angle entre la direction de propagation et la direction d'éjection

La direction d'éjection de l'électron est repérée par les angles θ et η . θ est l'angle entre la projection de la direction d'éjection sur le plan de

polarisation et la direction du grand axe de l'ellipse. η est l'angle entre la direction d'éjection et la direction de propagation du faisceau.

Mesurer une distribution angulaire consiste à priori à mesurer le flux électronique pour toutes les directions de l'espace, c'est à dire la variation du flux électronique en fonction des variables η et θ . Dans toutes nos expériences (comme souvent ailleurs), on se contente de détecter les électrons dans le plan de polarisation ($\eta = \pi/2$). Dans ce cas, mesurer une distribution angulaire consiste à mesurer le nombre d'électrons détachés pour toutes les valeurs de θ .

Si on se restreint au plan de polarisation (appelé aussi plan équatorial), θ a la même signification qu'en lumière polarisée rectilignement (de ξ). C'est pour cela que nous avons conservé la même notation.

3.3.3 Comment décrire ces distributions angulaires: la conjecture

A partir du détachement à deux photons de 532 nm des ions I^- et F^- , C. Blondel et C. Delsart [BLO93b] ont fait la conjecture suivant laquelle les distributions angulaires résultant de processus à N photons s'écriraient sous la forme:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = u_0(\xi) + \sum_{p=1}^N u_p(\xi) \cos 2p\theta + \sum_{p=1}^{N-1} v_p(\xi) \sin 2p\theta \quad (3.3)$$

Cette conjecture était fondée sur le résultat du calcul explicite du cas à deux photons et sur quelques éléments de symétrie. Cette conjecture corroborait également des calculs menés par Kassae *et al.* [KAS88] sur l'ionisation à deux photons de l'hydrogène.

Même sans plus de précision sur la forme analytique des $u_p(\xi)$ et des $v_p(\xi)$, la formule donne la façon dont la distribution angulaire varie avec θ . Elle montre également que l'on peut tirer des distributions angulaires enregistrées avec de la lumière polarisée elliptiquement environ deux fois plus de paramètres qu'avec de la lumière polarisée rectilignement.

A l'occasion de notre étude à 3 photons avec I^- et 4 photons avec Cl^- et F^- en lumière elliptique, nous avons transformé la conjecture en théorème, en en précisant la forme.

3.4 Démonstration de la formule élargissant le théorème de Yang

3.4.1 Nomenclature et cadre du calcul

Cette partie, qui reprend l'article [DUL95a], est consacrée à l'extension du théorème de Yang au cas de la lumière elliptique. Je vais commencer par expliciter les notations.

J représente le moment cinétique total du système. M_j, M , ou M' sont ses projections sur l'axe de quantification, selon le cas considéré.

L'état final est composé d'un atome neutre et d'un électron détaché. L'atome neutre a pour moment cinétique L de projection m_c (c comme cœur). Les nombres quantiques qui caractérisent l'électron sont ℓ et m .

La formule que nous avons établie ne s'applique cependant que dans le cadre de certaines hypothèses. Tout comme le champ d'application du théorème de Yang, nous nous sommes contentés d'étudier les cas où l'atome (ou l'ion) initial est sphérique ($J = 0$). C'est le cas des ions négatifs d'halogènes, mais également de bien d'autres espèces.

Nous nous sommes également limités à décrire les distributions angulaires obtenues dans le plan de polarisation. L'angle θ a alors la même signification qu'en lumière rectiligne.

La formule n'est a priori valable que pour des ions (atomes) dont le cœur est laissé dans un état de moment cinétique impair, ce qui est le cas, entre autres, des ions négatifs d'halogènes ($L = 1$).

Tout ce calcul ne tient compte ni du spin de l'électron éjecté, ni de celui du cœur atomique neutre. Bien que l'opérateur de transition dipolaire électrique n'agisse pas sur le spin, et que l'ion négatif dans l'état initial a un spin nul, cela ne justifie pas rigoureusement cette absence. En effet, on peut remarquer que l'état final de cœur ${}^2P_{3/2}$ n'est pas bien représenté par la base d'états propres de spin total.

Tenir compte des sous espaces de spin ne doit pas rendre caduque la forme analytique des distributions angulaires, mais elle peut réduire ses degrés de liberté. En d'autres termes, en tenant compte du spin, on arriverait au même type de formule, mais avec peut être quelques coefficients nuls supplémentaires, ou plus fortement dépendant les uns des autres

3.4.2 Opérateurs de transitions

Avec de la lumière polarisée rectilignement, quand on utilise l'approximation du dipôle électrique, l'axe de quantification généralement choisi est celui du champ électrique. Dans le cas de la polarisation elliptique, nous avons

choisi l'axe perpendiculaire au plan de polarisation comme axe de quantification. Cela permet de décomposer le champ électrique polarisé elliptiquement comme la somme de deux polarisations circulaires.

Pour un champ électrique:

$$\vec{E} = E_0 \left(\hat{X} \cos \frac{\xi}{2} \cos \omega t + \hat{Y} \sin \frac{\xi}{2} \sin \omega t \right) \quad (3.4)$$

où ξ est l'angle d'ellipticité.

L'opérateur de transition T peut être décomposé sur la base des deux composantes d'un opérateur vectoriel standard:

$$T = cT_1^{(1)} + sT_{-1}^{(1)} \quad (3.5)$$

où $c = \cos \left(\frac{3\pi}{4} + \frac{\xi}{2} \right)$ et $s = \sin \left(\frac{3\pi}{4} + \frac{\xi}{2} \right)$. L'ellipticité de la lumière est totalement contenue dans les termes c et s . Ce sont ces termes qui vont particulièrement nous intéresser.

3.4.3 Amplitudes d'excitation multiphotoniques

A partir d'un état $|J, M\rangle$, après l'excitation à un photon, pour l'état d'arrivée J' donné ($J' = J \pm 1$), les amplitudes d'excitation $|J, M\rangle \rightarrow |J', M+1\rangle$ et $|J, M\rangle \rightarrow |J', M-1\rangle$ sont respectivement dans le même rapport que:

$$c \begin{pmatrix} J & 1 & J' \\ M & +1 & -M-1 \end{pmatrix} \text{ et } s \begin{pmatrix} J & 1 & J' \\ M & -1 & -M+1 \end{pmatrix} \quad (3.6)$$

Les ions négatifs d'halogènes ont un moment cinétique total $J = 0$. Après une excitation à un photon, J vaut forcément 1, M vaut ± 1 , comme l'illustre le diagramme 3.3. A l'arrivée (en haut du diagramme), on aura comme

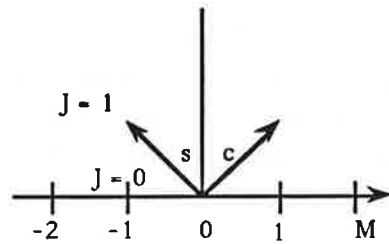


Figure 3.3: Diagramme d'excitation à un photon, à partir de $J = 0$.

rapport des branchements c (branche de droite) et s (branche de gauche), car les $3j$ sont identiques dans les deux cas.

Dans le cas d'une excitation à deux photons, pour tracer les diagrammes, on peut partir de l'état d'excitation à un photon et lui faire subir une nouvelle excitation. Cela nous conduit à trois diagrammes, présentés figure 3.4.

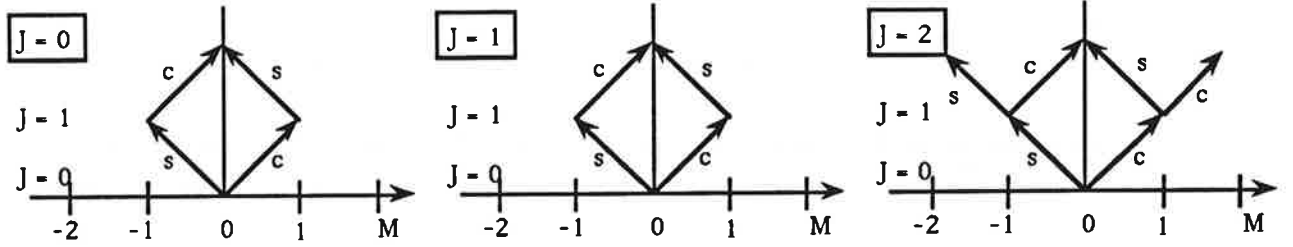


Figure 3.4: Diagrammes d'excitation à deux photons, à partir de $J = 0$.

Le diagramme du milieu (qui correspond au $J = 1$ à l'arrivée) donne une interférence destructive, puisque $J + 1 + J' = 1 + 1 + 1$ est impair (ligne du haut du $3j$). On n'en conservera donc que deux. Dans le cas du diagramme menant à $J = 0$ les deux voies se retrouvent et donnent un terme proportionnel à cs .

On peut ainsi continuer, nous l'avons fait pour 3, 4 et 5 photons.

On n'a pas à se soucier des détails des états intermédiaires. La connaissance du dernier étage des diagrammes permet de définir l'état final.

Puisque nous nous occupons de photodétachement, le dernier étage du diagramme signifie que l'ion a été porté dans un état du continuum $|\Psi_f(\xi)\rangle$, qui est le résultat de l'addition cohérente des états $|\psi_J^{(k)}(\xi)\rangle$ produits par chaque diagramme d'excitation k .

$$|\Psi_f(\xi)\rangle = \sum_{\text{diagrammes } (k)} A_J^{(k)} |\psi_J^{(k)}(\xi)\rangle \quad (3.7)$$

$A_J^{(k)}$, qu'on ne connaît pas, est l'amplitude d'excitation liée au diagramme k . La notation J rappelle que chaque diagramme décrit un état d'arrivée de moment cinétique bien déterminé.

Les M_j ont une parité déterminée (la même que le nombre N de photons absorbés). On peut réécrire $|\Psi_f(\xi)\rangle$ sur une base de vecteurs propres.

$$|\psi_J^{(k)}(\xi)\rangle = \sum_{M=-J, M \equiv N[2]}^J C_{J,M} c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}} |k, J, M\rangle \quad (3.8)$$

$M \equiv N[2]$ signifie que M a la même parité que N . Toute la dépendance en ξ est contenue dans les termes $c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}}$. Le module $\left| |\psi_J^{(k)}(\xi)\rangle \right|$ de la

fonction d'onde dépend donc de ξ . Cela traduit le fait que la section efficace totale varie avec l'ellipticité de la lumière.

En revanche, il est nécessaire de normaliser $|\psi_J^{(k)}(\xi)\rangle$ pour définir de façon non-ambiguë les amplitudes $A_J^{(k)}$ de l'équation 3.7, que l'on peut chercher à rendre indépendant de ξ .

On peut imposer la normalisation avec un cas particulier. Nous avons choisi la polarisation rectiligne en posant $\langle \psi_J^{(k)}(0) | \psi_J^{(k)}(0) \rangle = 1$. Les coefficients $C_{J,M}$ sont ainsi déterminés à un facteur de phase commun près. Les $|A_J^{(k)}|^2$ deviennent les rapports de branchements entre les différents diagrammes (k) , dans le cas de la polarisation rectiligne.

Pour la polarisation rectiligne on choisit traditionnellement pour axe de quantification l'axe parallèle au champ électrique c'est à dire parallèle à Ox . L'excitation ne peut apporter un quantum de moment cinétique suivant cet axe. La fonction d'onde

$$|\psi_J^{(k)}(0)\rangle = \sum_{M=-J, M \equiv N[2]}^J C_{J,M} (-1)^{\frac{N+M}{2}} 2^{-\frac{N}{2}} |k, J, M\rangle$$

doit être égale à $|k, J, M=0\rangle_x$, un vecteur propre de J_x de valeur propre 0. Les coefficients $C_{J,M}$ n'ont pas besoin d'indice (k) , car ils peuvent être déduits d'une matrice standard de rotation. $|\psi_J^{(k)}(\xi)\rangle$ exprimée sur une base standard de $|k, J, M\rangle$ ne dépend pas du détail des diagrammes d'excitation.

3.4.4 Moment cinétique de l'électron détaché

Dans nos mesures de distributions angulaires, c'est le moment angulaire ℓ de l'électron éjecté qui nous importe. Nous devons donc projeter tous les états finals d'un J donné sur tous les sous-espaces des différentes valeurs de ℓ possibles. Comme on sait que le moment cinétique total J est la somme du moment cinétique du cœur résiduel L et du moment cinétique du photoélectron ℓ , on peut, par les règles d'addition des moments cinétiques et de conservation de la parité, déduire ℓ de J et L .

$L = 1$, puisque l'ion détaché laisse un cœur neutre dans l'état $p^5 P^o$, ℓ peut donc prendre les valeurs $\ell = J-1$ (sauf $J = 0$ bien entendu) et $\ell = J+1$.

Puisque $(|k, J, M\rangle)$ est une base constituée de vecteurs propres standard, tous ses vecteurs sont représentés de la même façon sur les bases $(|\ell, J, M\rangle)$. On peut alors définir les amplitudes partielles d'excitation $A_{J,\ell}^{(k)}$ et réécrire l'état final comme:

$$|\Psi_f(\xi)\rangle = \sum_{\text{diagrammes}(k)} \sum_{\ell} A_{J,\ell}^{(k)} \sum_{M=-J, M \equiv N[2]}^J C_{J,M} c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}} |\ell, J, M\rangle \quad (3.9)$$

Dans cette formule, seules les amplitudes partielles d'excitations $A_{J,\ell}^{(k)}$ dépendent du choix du diagramme (k), alors que les autres paramètres ne dépendent que des nombres quantiques orbitaux finals. Si on connaît l'amplitude totale $A_{J,\ell} = \sum_{(k)} A_{J,\ell}^{(k)}$, peu importe de savoir quels diagrammes ont permis d'obtenir ce couple (J, ℓ). On peut donc réécrire l'équation 3.9 :

$$|\Psi_f(\xi)\rangle = \sum_J \sum_{\ell} A_{J,\ell} \sum_{M=-J, M \equiv N[2]}^J C_{J,M} c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}} |\ell, J, M\rangle \quad (3.10)$$

Dans le cas de la polarisation rectiligne, les $A_{J,\ell}$ sont toujours les coefficients des vecteurs propres normalisés $|\ell, J, m = 0\rangle_x$, et ont donc la propriété

$$\langle \Psi_f(\text{rectiligne}) | \Psi_f(\text{rectiligne}) \rangle = \sum_{(J,\ell)} |A_{J,\ell}|^2. \quad (3.11)$$

3.4.5 Exemple du détachement à 2 photons

Si on reprend le schéma des diagrammes d'excitation de la figure 3.4, le diagramme du milieu (qui correspond au $J = 1$ à l'arrivée) aboutit à des amplitudes d'excitation nulles.

Le long du diagramme menant à $J = 0$, les deux voies se retrouvent et donnent un terme proportionnel à cs .

Pour le diagramme où $J = 2$ dans l'état final, il y aura des termes proportionnels à s^2 (branche $M_j = -2$), des termes proportionnels à sc (branches $M_j = 0$), et des termes proportionnels à c^2 (branche $M_j = +2$).

Puisque c'est l'état final de l'électron détaché qui nous intéresse pour obtenir la distribution angulaire, il nous faut connaître son moment cinétique orbital ℓ . De $J = 0$ on déduit que $\ell = 1$, puisque L , moment cinétique orbital du cœur résiduel vaut 1. A $J = 2$, on associe $\ell = 1$ et $\ell = 3$. Si on utilise les notations spectroscopiques, à savoir, s pour $\ell = 0$, p pour $\ell = 1$... et que l'on écrit pour simplifier $|p, 2, M = 0\rangle$ au lieu de $|\epsilon, \ell = 1, J = 2, M = 0\rangle$, l'équation 3.10 devient dans le cas à deux photons:

$$\begin{aligned}
 |\Psi_f(\xi)\rangle = & \\
 & 2 A_{0,p} cs |p, 0, M = 0\rangle \tag{3.12} \\
 & + A_{2,p} \left(\sqrt{\frac{3}{2}} s^2 |p, 2, M = -2\rangle + cs |p, 2, M = 0\rangle + \sqrt{\frac{3}{2}} c^2 |p, 2, M = +2\rangle \right) \\
 & + A_{2,f} \left(\sqrt{\frac{3}{2}} s^2 |f, 2, M = -2\rangle + cs |f, 2, M = 0\rangle + \sqrt{\frac{3}{2}} c^2 |f, 2, M = +2\rangle \right)
 \end{aligned}$$

On peut vérifier que cet état final s'écrit dans le cas de la polarisation rectiligne ($\xi = 0$ donc $c = -1/\sqrt{2}$ et $s = 1/\sqrt{2}$):

$$\begin{aligned}
 |\Psi_f(\text{rectiligne})\rangle = & \\
 & - A_{0,p} |p, 0, M = 0\rangle \tag{3.13} \\
 & + A_{2,p} \left(\sqrt{\frac{3}{8}} |p, 2, M = -2\rangle - \frac{1}{2} |p, 2, M = 0\rangle + \sqrt{\frac{3}{8}} |p, 2, M = +2\rangle \right) \\
 & + A_{2,f} \left(\sqrt{\frac{3}{8}} |f, 2, M = -2\rangle - \frac{1}{2} |f, 2, M = 0\rangle + \sqrt{\frac{3}{8}} |f, 2, M = +2\rangle \right)
 \end{aligned}$$

et le carré du module de ce vecteur d'état final est:

$$\langle \Psi_f(\text{rectiligne}) | \Psi_f(\text{rectiligne}) \rangle = |A_{0,p}|^2 + |A_{2,p}|^2 + |A_{2,f}|^2 \tag{3.14}$$

3.4.6 Forme générale de la distribution angulaire d'électrons détachés par N photons en lumière elliptique

Afin de projeter $|\Psi_f(\xi)\rangle$ sur l'espace qui correspond aux directions de détection, il vaut mieux le décrire sur une base des états propres de l'électron éjecté. Les $|\ell, J, M\rangle$ de l'état final décrit dans l'équation 3.10 peuvent être décomposés, grâce aux coefficients de Clebsch-Gordan, sur une base des états propres $|\ell, m\rangle$ de l'électron détaché, laissant le cœur dans l'état $|L, m_C\rangle$. L'équation 3.10 se réécrit:

$$\begin{aligned}
 |\Psi_f(\xi)\rangle = \sum_J \sum_\ell A_{J,\ell} & \sum_{M=-J, M \equiv N[2]}^J c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}} C_{J,M} \\
 & \sum_{m_C} |L, m_C; \ell, m\rangle \langle L, m_C; \ell, m | J, M \rangle \tag{3.15}
 \end{aligned}$$

Les nombres quantiques suivent les règles habituelles d'addition de moment cinétique, en particulier $M = m_c + m$.

Si $\mathbf{P}_{\eta,\theta}$ est le projecteur de $|\Psi_f(\xi)\rangle$ sur l'espace qui correspond à la direction de détection (η, θ) on sait que:

$$\mathbf{P}_{\eta,\theta} |L, m_c; \ell, m\rangle = \mathcal{Y}_\ell^m(\eta, \theta) |L, m_c\rangle \otimes |\eta, \theta\rangle \quad (3.16)$$

où \mathcal{Y}_ℓ^m sont les harmoniques sphériques.

Appliquée à $|\Psi_f(\xi)\rangle$ l'équation 3.16 prend la forme:

$$\mathbf{P}_{\eta,\theta} |\Psi_f(\xi)\rangle = |\xi, \eta, \theta\rangle_c \otimes |\eta, \theta\rangle \quad (3.17)$$

où $|\xi, \eta, \theta\rangle_c$ est un vecteur d'état du cœur. Le carré de son module est la probabilité $\mathcal{P}_\xi(\eta, \theta)$ de trouver l'électron dans la direction (η, θ) . Il reste à récrire $|\xi, \eta, \theta\rangle_c$ à partir des équations 3.15 et 3.17.

$$|\xi, \eta, \theta\rangle_c = \sum_{m_c} \left[\sum_{\ell, m} c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}} \left(\sum_J A_{J,\ell} C_{J,M} \langle L, m_c; \ell, m | J, M \rangle \right) \mathcal{Y}_\ell^m(\eta, \theta) \right] |L, m_c\rangle \quad (3.18)$$

Les harmoniques sphériques peuvent être décomposées en $\mathcal{Y}_\ell^m(\eta, \theta) = \mathcal{Z}_\ell^m(\eta) e^{im\theta}$. Le carré du module de $|\xi, \eta, \theta\rangle_c$ prend la forme:

$$\mathcal{P}_\xi(\eta, \theta) = \sum_{m_c} \left| \sum_m \sum_{\ell=|m|}^{L+N} c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}} \left(\sum_J A_{J,\ell} C_{J,M} \langle L, m_c; \ell, m | J, M \rangle \right) \mathcal{Z}_\ell^m(\eta) e^{im\theta} \right|^2 \quad (3.19)$$

Nous avons ainsi obtenu une expression *générale*¹ de la probabilité angulaire de détection de l'électron éjecté, qui contient explicitement:

- sa dépendance en θ et η ,
- sa dépendance à l'ellipticité de la lumière via les termes c et s

Nous allons maintenant, pour aboutir à la formule donnant la forme générale des distributions angulaires de photoélectrons détachés par N photons en lumière elliptique dans le plan équatorial, faire quelques restrictions. Pour cela nous allons nous intéresser aux distributions dans le plan équatorial, c'est à dire considérer que $\eta = \frac{\pi}{2}$. Puis nous allons nous resservir des hypothèses: $J = 0$ et l'atome laissé dans un état impair.

¹Dans le cadre $J = 0$, L impair.

Restriction au plan équatorial

Lors de nos expériences, le détecteur est placé dans le plan de polarisation, autrement dit $\eta = \frac{\pi}{2}$. Or on sait que dans le plan équatorial $\eta = \frac{\pi}{2}$, les harmoniques sphériques, qui ont ℓ et m de parité opposée, sont nulles.

Les sommes sur m ne prennent donc que les valeurs de même parité que ℓ . On peut introduire une nouvelle variable qui ne dépend d'aucun angle:

$$X_{m_C \ell m} = Z_\ell^m \left(\frac{\pi}{2} \right) \sum_J A_{J,\ell} C_{J,M} \langle L, m_C; \ell, m | J, M \rangle \quad (3.20)$$

$\mathcal{P}_\xi(\eta, \theta)$ devient si on le restreint au plan équatorial:

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_\xi(\theta) &= \sum_{m_C} \left| \sum_{m=-L-N}^{L+N} \left(\sum_{\ell=|m|}^{L+N} c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}} X_{m_C \ell m} \right) e^{im\theta} \right|^2 \\ &= \sum_{m_C} \sum_{m,m'} \left(\sum_{\ell,\ell'} c^{N+\frac{M+M'}{2}} s^{N-\frac{M+M'}{2}} X_{m_C \ell m} X_{m_C \ell' m'}^* \right) e^{i(m-m')\theta} \quad (3.21) \end{aligned}$$

On obtient ainsi toute la dépendance angulaire (θ) du plan équatorial, ainsi que la dépendance à l'ellipticité de la lumière (ξ).

Fréquences angulaires et parités de la probabilité angulaire avec la restriction $J = 0$ et l'atome laissé dans un état impair

Dans ce paragraphe nous allons énumérer un certain nombre de propriétés qui nous seront utiles pour la suite de la démonstration.

- $\mathcal{P}_\xi(\theta)$ est une combinaison linéaire d'exponentielles $e^{i(m-m')\theta}$, ce qui veut dire que les fréquences angulaires dans le plan de polarisation ne dépendent que de $m - m'$. Or $M = m_C + m$ et $M' = m_C + m'$, avec la même valeur de m_C , donc $m - m' = M - M'$.
- Comme M et M' sont en valeur absolue inférieurs ou égaux à J , lui-même inférieur ou égal à N on déduit que M et M' sont compris entre $-N$ et N , et que donc $M - M' \in [-2N, 2N]$, ce qui revient à dire que les fréquences angulaires sont comprises entre 0 et $2N$.
- Tous les M et M' ont la même parité, donc leur différence est paire; autrement dit, les fréquences angulaires sont paires. On en déduit que la probabilité angulaire est une *combinaison linéaire* de $\cos 2p\theta$ et $\sin 2p\theta$ avec $p \in [0, N]$.

- Les parités des nombres quantiques impliqués dans l'équation 3.21 sont bien définies. En effet, chaque photon, qu'il soit σ^+ ou σ^- , change la parité de M . Comme la valeur initiale de M est paire, la valeur finale de M a forcément la même parité que N .
- Puisque l'on part d'un ion pair, et que l'halogène est laissé dans un état impair, l'électron doit avoir une parité opposée à celle de N . Toutes les valeurs de m ont donc la parité opposée à celle N .
- Des deux remarques précédentes on déduit que M et m sont de parité opposées; or $M = m_c + m$, donc m_c est impair. Comme $L = 1$, les seules valeurs de m_c qui contribuent à la distribution angulaire sur le plan équatorial sont ± 1 .
- Comme l'état initial est $J = 0$, la parité de J change avec chaque photon absorbé. Ceci est démontré par le fait qu'en polarisation rectiligne, avec l'axe de quantification pris le long du champ électrique, il n'y a pas de transition $|J, M = 0\rangle_x \rightarrow |J, M = 0\rangle_x$. Ce changement systématique de parité implique que les coefficients $3j$ qui retracent les amplitudes relatives le long des branches symétriques des diagrammes d'excitation, sont tous pairs, c'est à dire invariants au changement de tous les nombres quantiques magnétiques m en leurs opposés. De même, les coefficients $C_{J,M}$ ont les mêmes propriétés.

Dépendance en ξ des distributions angulaires

Pour déterminer la dépendance de la probabilité angulaire avec l'ellipticité de la lumière, on a besoin de connaître les propriétés de parité des termes $X_{m_c \ell m}$.

Changer m_c et m en leurs opposés revient à multiplier tous les $X_{m_c \ell m}$ de l'équation 3.21 par le facteur $(-1)^{L+J} = (-1)^{L+N}$, qui est le même facteur pour tous les termes de la somme. Cette propriété des $X_{m_c \ell m}$ se déduit aisément de celle des $C_{J,M}$.

Les produits $X_{m_c \ell m} X_{m_c \ell' m'}^*$ restent inchangés quand on remplace m et m_c par leurs opposés.

Les termes carrés (i.e. $\ell = \ell'$, $m = m'$), au sein des sommes $\sum_{m, m'} \sum_{\ell, \ell'}$, de l'équation 3.21 ont une contribution de la forme $\sum_{m, \ell} c^{N+M} s^{N-M} |X_{m_c \ell m}|^2$ indépendante de θ . Quand on l'additionne avec les termes de m opposé dans la somme des m_c opposés, chaque terme carré fournit: $(cs)^{N-|M|} (c^{2|M|} + s^{2|M|})$

$|X_{m_c \ell m}|^2$, avec $cs = -\cos \xi$ et

$$c^{2|M|} + s^{2|M|} = \frac{1}{2^{|M|}} \sum_{k=0}^{|M|} [1 + (-1)^k] C_{|M|}^k \sin^k \xi \quad (3.22)$$

où les $C_{|M|}^k$ sont les coefficients binomiaux.

Seuls les termes pairs ne sont pas annulés par le facteur $[1 + (-1)^k]$. Ainsi la contribution de chaque terme carré est un polynôme en $\cos \xi$ à la puissance $N - |M|$ à laquelle s'ajoute un terme pair $k \in [0, |M|]$.

La somme $\sum_{m,m'} \sum_{\ell,\ell'}$ de l'équation 3.21 produit également des termes rectangles $((\ell, m) \neq (\ell', m'))$. Ces termes rectangles peuvent être regroupés par groupes de quatre: deux provenant de la somme où $m_c = -1$, et deux de la somme où $m_c = +1$. En remplaçant $(m - m')\theta$ par la notation simplifiée δ , chacun de ces groupes donne:

$$\begin{aligned} & c^{N + \frac{M+M'}{2}} s^{N - \frac{M+M'}{2}} [X_{m_c \ell m} X_{m_c \ell' m'}^* e^{i\delta} + X_{m_c \ell m}^* X_{m_c \ell' m'} e^{-i\delta}] \\ & + c^{N - \frac{M+M'}{2}} s^{N + \frac{M+M'}{2}} [X_{m_c \ell m} X_{m_c \ell' m'}^* e^{-i\delta} + X_{m_c \ell m}^* X_{m_c \ell' m'} e^{i\delta}] \quad (3.23) \end{aligned}$$

Ce terme peut être séparé en deux parties: l'une, qu'on peut appeler la partie cosinus:

$$(cs)^{N - \frac{|M+M'|}{2}} (c^{|M+M'|} + s^{|M+M'|}) \Re [X_{m_c \ell m} X_{m_c \ell' m'}^*] \cos \delta \quad (3.24)$$

et l'autre, la partie sinus:

$$(cs)^{N - \frac{|M+M'|}{2}} \epsilon (c^{|M+M'|} - s^{|M+M'|}) \Im [X_{m_c \ell m} X_{m_c \ell' m'}^*] \sin \delta \quad (3.25)$$

où \Re est la partie réelle et \Im la partie imaginaire d'un nombre complexe et $\epsilon = -\frac{M+M'}{|M+M'|}$.

On avait déjà conclu de la formule 3.21 que la distribution angulaire était une combinaison linéaire de $\cos 2p\theta$ et $\sin 2p\theta$ où $p \in [0, N]$. Or, la valeur extrême $p = N$ ne peut être atteinte que par des termes tels que $|M - M'| = 2N$, impliquant $M + M' = 0$. Dans ce cas, le terme en sinus est nul. De même pour $p = 0$, $\epsilon = 0$.

On peut préciser maintenant que la distribution angulaire est une combinaison linéaire de $\cos 2p\theta$ avec $p \in [0, N]$ et de $\sin 2p\theta$ avec $p \in [1, N - 1]$.

Cette restriction apparemment anodine a d'importantes conséquences pratiques. Dans le cas d'une excitation à un photon, elle entraîne que les distributions angulaires obtenues avec une polarisation elliptique ne sont que la

superposition incohérente de deux distributions angulaires, symétriques par rapport au sens de parcours de l'ellipse, comme cela avait été montré[SAM75].

Pour une excitation multiphotonique, le terme de plus haute fréquence angulaire permet (en principe) de déterminer les axes de polarisations.

Puisque M et M' ont même parité on peut introduire un entier n tel que $|M + M'| = 2n$. Le terme (3.24) en cosinus peut être écrit:

$$(cs)^{N-n} \frac{1}{2^{|M|}} \sum_{k=0}^n [1 + (-1)^k] C_n^k \sin^k \xi \Re [X_{m_C \ell m} X_{m_C \ell' m'}^*] \cos \delta \quad (3.26)$$

qui est une combinaison linéaire de $\cos^q \xi \cos 2p\theta$ où $q \in [N-n, N]$, q étant de même parité que $N-n$ et que $p = \frac{|M-M'|}{2}$. Et comme $\frac{|M+M'|}{2} + \frac{|M-M'|}{2} \leq N$, $q \geq p$.

Si on transforme de la même manière (3.25), il vient:

$$(cs)^{N-n} \frac{\epsilon}{2^{|M|}} \sum_{k=0}^n [1 - (-1)^k] C_n^k \sin^k \xi \Im [X_{m_C \ell m} X_{m_C \ell' m'}^*] \sin \delta \quad (3.27)$$

La seule différence avec la partie cosinus, c'est que seules les puissances impaires de $\sin \xi$ restent dans la somme $\sum_{k=1}^n$. La partie en sinus mène à une combinaison linéaire de $\cos^{q-1} \xi \sin \xi \sin 2p\theta$, où q et p sont de parités opposées et $q \in [1, N]$.

Extension du théorème de Yang

Expérimentalement, on appelle distribution angulaire la fonction $\mathcal{A}_\xi(\theta) = 4\pi \mathcal{P}_\xi(\theta)$. Ainsi dans le cas de la polarisation rectiligne, la normalisation entraîne que $Z = \int \mathcal{P}_{\xi=0}(\theta) d\Omega = \frac{1}{2} \int_0^\pi \mathcal{A}_{\xi=0}(\theta) \sin \theta d\theta = 1$. L'amplitude $\mathcal{A}_0(\theta)$, une fois normalisée, devient juste le facteur par lequel le signal s'écarte de la moyenne, pour la direction θ .

Résumons-nous: en lumière elliptique, dans le cas du détachement (ou d'une ionisation) par N photons d'un ion d'état initial $J = 0$, où le cœur résiduel est laissé dans un état impair, la distribution angulaire dans le plan de polarisation peut s'écrire:

$$\begin{aligned}
 \mathcal{A}_\xi^{(N)}(\theta) = & \sum_{p=0}^N \sum_{q=p, p+q \text{ pair}}^N a_{pq} \cos^q \xi \cos 2p\theta \\
 & + \sum_{p=1}^{N-1} \sum_{q=p+1, p+q \text{ impair}}^N a_{pq} \cos^{q-1} \xi \sin \xi \sin 2p\theta \quad (3.28)
 \end{aligned}$$

La formule 3.28 donne la formle générale des distributions angulaires d'électrons détachés (ou ionisés) par N photons. Elle peut s'appliquer pour:

- des ions (atomes) à symétrie sphérique ($J = 0$)
- un cœur laissé dans un état impair
- de la lumière polarisée elliptiquement
- une distribution angulaire mesurée dans le plan de polarisation.

Z s'écrit:

$$Z = \sum_{p=0}^N \frac{1}{1-4p^2} \sum_{q=p, p+q \text{ pair}}^N a_{pq} \quad (3.29)$$

On normalise la formule en remplaçant tous les coefficients a_{pq} par les coefficients α_{pq} correspondants:

$$\alpha_{pq} = Z^{-1} a_{pq} \quad (3.30)$$

Les résultats expérimentaux peuvent être présentés sous la forme des a_{pq} ou des α_{pq} . Ces derniers sont adimensionnés, et sont moins sensibles aux fluctuations globales de signal.

3.5 Paramètres a_{pq} en fonction des amplitudes d'excitations

Reprenons l'équation 3.12 relative au cas de l'excitation à 2 photons. Chaque état de cœur $|m_c = \pm 1\rangle$ a un coefficient qui est une combinaison linéaire de 6 harmoniques sphériques non nulles (4 pour f et 2 pour p). Les distributions angulaires qui ressortent d'abord du calcul sont des fonctions quadratiques de ces 6 harmoniques sphériques ainsi que des trois amplitudes $A_{0,p}$, $A_{2,p}$ et $A_{2,f}$. On sépare les deux états de cœur $m_c = \pm 1$. Prenons le cas $m_c = +1$, il vient 6 termes:

- 1 terme pour $A_{0,p}$, correspondant à $m = -1$
- 2 pour $A_{2,p}$, correspondant à $m = \pm 1$
- 3 pour $A_{2,f}$, correspondant à $m = -3, \pm 1$

On trouve de même 6 termes pour le cas $m_c = -1$.

On calcule le carré du module pour chaque état de coeur ce qui forme $2 \times 6^2 = 72$ termes. Si on regroupe correctement les termes [BLO93b] on peut faire apparaître la forme de l'équation 3.28.

Le tableau 3.1 donne les $a_{pq}^{(2)}$ ($p+q$ pairs) à partir des différentes formes quadratiques rencontrées. On peut, par exemple, extraire l'expression a_{00} à partir

Réels	mult	$a_{0,0}$	$a_{0,2}$	$a_{1,1}$	$a_{2,2}$	Σ
$A_{0,p}A_{0,p}^*$	1×1	0	1	0	0	1
$A_{2,p}A_{2,p}^*$	1×1	$\frac{9}{4}$	-1	$\frac{3}{4}$	0	2
$A_{2,f}A_{2,f}^*$	1×1	$\frac{39}{16}$	$-\frac{33}{32}$	$\frac{9}{8}$	$\frac{15}{32}$	3
$\Re(A_{0,p}A_{2,p}^*)$	1×1	0	$-\frac{1}{\sqrt{2}}$	$\frac{-3}{\sqrt{2}}$	0	$-2\sqrt{2}$
$\Re(A_{0,p}A_{2,f}^*)$	1×1	0	$\frac{\sqrt{3}}{2}$	$\frac{3\sqrt{3}}{2}$	0	$2\sqrt{3}$
$\Re(A_{2,p}A_{2,f}^*)$	1×1	$\frac{-3}{4}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$\frac{1}{8}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$\frac{-3}{2}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$\frac{-15}{8}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$-2\sqrt{6}$

Tableau 3.1: Paramètres d'asymétrie à $p+q$ pair, en fonction des amplitudes d'excitation pour le cas à 2 photons. Σ est la somme des termes de la ligne. 'mult' signifie multiplicité.

du tableau en ajoutant les termes de la colonne et l'on trouve:

$$a_{00} = \frac{9}{4} |A_{2,p}|^2 + \frac{39}{16} |A_{2,f}|^2 - \frac{3}{4} \sqrt{\frac{3}{2}} \Re(A_{2,p}A_{2,f}^*)$$

ce qui correspond au terme constant que l'on trouve en faisant explicitement le calcul à partir de l'équation 3.12.

La colonne 'mult', qui signifie 'multiplicité', représente le nombre de termes qui apparaissent quand les produits des $A_{J,\ell}A_{J',\ell'}^*$ sont exprimés en somme de produits élémentaires de type $A_{J,\ell}^{(k)}A_{J',\ell'}^{(k')*}$.

Nous avons opté pour la présentation sous forme de tableau car elle est plus synthétique; en effet pour les ordres plus élevés, il faut beaucoup de place pour écrire ce type de formule. Avant de regrouper les termes, il sort du calcul plus de mille termes dans le cas du détachement à 4 photons...

On peut aussi se servir de ce tableau pour vérifier que l'intégrale de normalisation est égale au carré du module de l'état final $|\Psi_f(0)\rangle$. Pour $Z = a_{00} + a_{02} - \frac{1}{3}a_{11} - \frac{1}{15}a_{22}$, on tire des colonnes:

$$Z = |A_{0,p}|^2 + |A_{2,p}|^2 + |A_{2,f}|^2$$

De la même façon le tableau 3.2 page 39 donne les coefficients quadratiques des amplitudes de type $\Im(A_{J,\ell}A_{J',\ell'}^*)$ du coefficient a_{12} .

Imaginaires	mult	$a_{1,2}$
$\Im(A_{0,p}A_{2,p}^*)$	1×1	$\frac{-3}{\sqrt{2}}$
$\Im(A_{0,p}A_{2,f}^*)$	1×1	$\frac{3\sqrt{3}}{2}$

Tableau 3.2: Paramètres d'asymétrie à p impair, en fonction des amplitudes d'excitation pour le cas à 2 photons. Σ est la somme des termes de la ligne. 'mult' signifie multiplicité.

Le tableau 3.3 page 42 donne les coefficients de type $\Re(A_{J,\ell}A_{J',\ell'}^*)$ des coefficients $a_{pq}^{(3)}$ ($p+q$ pairs) du détachement à 3 photons.

Le tableau 3.4 page 43 donne les coefficients $a_{pq}^{(3)}$ des termes $\sin 2p\theta$ en fonction des formes quadratiques $\Im(A_{J,\ell}A_{J',\ell'}^*)$ du détachement à 3 photons.

Le tableau 3.5 page 43 est analogue aux tableaux 3.1 et 3.3 pour le cas à 4 photons.

Le tableau 3.6 page 44 est analogue aux tableaux 3.2 et 3.4 pour le cas à 4 photons.

Règles de sommes des paramètres d'asymétrie

La dernière colonne des tableaux 3.1, 3.3 et 3.5 représente la somme des coefficients de toute la ligne. Cette somme a un sens simple. D'après l'équation 3.28 $\sum_{p,q} a_{pq}$ ($p+q$ pair) vaut simplement $\mathcal{A}_0(0)$, qui n'est autre que le facteur par lequel la distribution angulaire s'écarte de la moyenne, dans la direction du champ électrique en polarisation rectiligne. Pour ce type de polarisation, il vaut mieux choisir Ox (parallèle au champ électrique) comme axe de quantification. D'après les remarques du paragraphe 3.4.3

$$|\Psi_f(0)\rangle = \sum_{(k)} \sum_{\ell} A_{J,\ell}^{(k)} |k, J, M=0\rangle_x = \sum_{(J,\ell)} A_{J,\ell} |J, 0\rangle_x \quad (3.31)$$

Le vecteur d'état du cœur $|\xi, \eta, \theta\rangle_C$ obtenu après la mesure est comme pour l'équation 3.19:

$$|0, (\eta, \theta)_z\rangle_C = \sum_{m_C} \left[\sum_{(J, \ell)} A_{J, \ell} \langle L, m_C; \ell, m | J, 0 \rangle \mathcal{Y}_\ell^m(\eta, \theta) \right] |L, m_C\rangle_x \quad (3.32)$$

L'indice x rappelle que l'on utilise un axe de quantification particulier.

La probabilité angulaire de trouver un électron pour un angle donné se calcule en prenant le carré du module de $|0, (\eta, \theta)_x\rangle_C$.

Pour $\eta = 0$, la seule harmonique sphérique qui n'est pas nulle est $\mathcal{Y}_\ell^0(0) = \sqrt{\frac{2\ell+1}{4\pi}}$, donc seul $m_C = 0$ est à prendre en compte.

$$\mathcal{A}_0(0) = \left| \sum_{(J, \ell)} A_{J, \ell} \langle L, 0; \ell, 0 | J, 0 \rangle \sqrt{2\ell+1} \right|^2 \quad (3.33)$$

$\mathcal{A}_0(0)$ est une forme quadratique des amplitudes. Comme pour les ions négatifs d'halogènes $L = 1$, le coefficient de Clebsch-Gordan a une expression simple. On note $j = \sup(J, \ell)$,

$$\langle L, 0; \ell, 0 | J, 0 \rangle = (-1)^{j-L+\ell} \sqrt{\frac{j(2J+1)}{(2j+1)(2j-1)}} \quad (3.34)$$

([ROT59, formule 1.57]).

$\mathcal{A}_0(0)$ se réécrit:

$$\mathcal{A}_0(0) = \sum_{(J, \ell)} f_{J\ell} |A_{J, \ell}|^2 + \sum_{\{(J, \ell), (J', \ell')\}} g_{J\ell J'\ell'} \Re(A_{J, \ell} A_{J', \ell'}^*) \quad (3.35)$$

où $f_{J\ell} = j$ et $g_{J\ell J'\ell'} = (-1)^{j+j'} 2\sqrt{jj'}$. C'est exactement ce que l'on retrouve dans la colonne Σ des tableaux 3.1, 3.3 et 3.5.

Autre méthode de calcul

Avant d'aboutir à la forme générale qui a conduit à l'équation 3.28, nous avons calculé les formes particulières des distributions à 2,3,4 et 5 photons.

Deux méthodes ont été employées, et elles ont donné les mêmes résultats en ce qui concerne la forme des formules.

On peut considérer les schémas d'excitation couplé (J total) et découpler l'état final de l'électron. C'est la technique que nous avons utilisée tout au long de ce chapitre.

On peut également faire apparaître dans l'état initial la combinaison cohérente de deux états de l'électron excitable, dont on suit alors le cheminement dans l'excitation. Cette seconde méthode a donné la même forme de distribution angulaire. Cependant elle est discutable, en effet, découpler dans l'état initial, c'est supposer qu'il n'y aura plus d'interaction avec le cœur atomique durant l'excitation. Or l'état initial n'est pas tout à fait p^6 . Les états intermédiaires ne sont donc en réalité pas seulement $p^5\epsilon s$ et $p^5\epsilon d$ (pour le cas à deux photons).

La méthode que nous avons finalement gardée, et dont les tableaux de ce chapitre sont le résultat direct, est indiscutable de ce point de vue. Les états successifs de moment cinétique total sont des états rigoureux, et découpler l'état final est sans équivoque, puisque l'électron quitte l'édifice atomique.

Réels	mult	$a_{0,0}$	$a_{0,2}$	$a_{1,1}$	$a_{1,3}$	$a_{2,2}$	$a_{3,3}$	Σ
$A_{1,s}A_{1,s}^*$	2×2	0	1	0	0	0	0	1
$A_{1,d}A_{1,d}^*$	2×2	0	$\frac{5}{4}$	0	$\frac{3}{4}$	0	0	2
$A_{3,d}A_{3,d}^*$	1×1	$\frac{75}{16}$	$-\frac{105}{32}$	$\frac{15}{8}$	$-\frac{3}{4}$	$\frac{15}{32}$	0	3
$A_{3,g}A_{3,g}^*$	1×1	$\frac{625}{128}$	$-\frac{861}{256}$	$\frac{285}{128}$	$-\frac{435}{512}$	$\frac{195}{256}$	$\frac{175}{512}$	4
$\Re(A_{1,s}A_{1,d}^*)$	2×2	0	$-\frac{1}{\sqrt{2}}$	0	$\frac{-3}{\sqrt{2}}$	0	0	$-2\sqrt{2}$
$\Re(A_{1,s}A_{3,d}^*)$	2×1	0	$\frac{\sqrt{3}}{2}$	$\frac{5\sqrt{3}}{2}$	$-\sqrt{3}$	0	0	$2\sqrt{3}$
$\Re(A_{1,s}A_{3,g}^*)$	2×1	0	$-\frac{9}{16}$	$-\frac{5}{8}$	$-\frac{5}{8}$	$-\frac{35}{16}$	0	-4
$\Re(A_{1,d}A_{3,d}^*)$	2×1	0	$\frac{-5}{8}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$\frac{-5}{4}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$\frac{-1}{4}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$\frac{-15}{8}\sqrt{\frac{3}{2}}$	0	$-2\sqrt{6}$
$\Re(A_{1,d}A_{3,g}^*)$	2×1	0	$\frac{27}{16\sqrt{2}}$	$\frac{55}{8\sqrt{2}}$	$\frac{-17}{8\sqrt{2}}$	$\frac{25}{16\sqrt{2}}$	0	$4\sqrt{2}$
$\Re(A_{3,d}A_{3,g}^*)$	1×1	$\frac{-25\sqrt{3}}{32}$	$\frac{21\sqrt{3}}{64}$	$\frac{-45\sqrt{3}}{32}$	$\frac{51\sqrt{3}}{128}$	$\frac{-75\sqrt{3}}{64}$	$\frac{-175\sqrt{3}}{128}$	$-4\sqrt{3}$

Tableau 3.3: Paramètres d'asymétrie à $p+q$ pair, en fonction des amplitudes d'excitation pour le cas à 3 photons.

Imaginaires	mult	$a_{1,2}$	$a_{2,3}$
$\Im(A_{1,s}A_{3,d}^*)$	2×1	$\frac{5\sqrt{3}}{2}$	0
$\Im(A_{1,s}A_{3,g}^*)$	2×1	$-\frac{5}{8}$	$-\frac{35}{16}$
$\Im(A_{1,d}A_{3,d}^*)$	2×1	$\frac{-5}{4} \sqrt{\frac{3}{2}}$	$\frac{-15}{8} \sqrt{\frac{3}{2}}$
$\Im(A_{1,d}A_{3,g}^*)$	2×1	$\frac{55}{8\sqrt{2}}$	$\frac{25}{16\sqrt{2}}$

Tableau 3.4: Paramètres d'asymétrie à $p+q$ impair, en fonction des amplitudes d'excitation pour le cas à 3 photons.

Réels	mult	$a_{0,0}$	$a_{0,2}$	$a_{0,4}$	$a_{1,1}$	$a_{1,3}$	$a_{2,2}$	$a_{2,4}$	$a_{3,3}$	$a_{4,4}$	Σ
$A_{0,p}A_{0,p}^*$	2×2	0	0	1	0	0	0	0	0	0	1
$A_{2,p}A_{2,p}^*$	3×3	0	$\frac{9}{4}$	-1	0	$\frac{3}{4}$	0	0	0	0	2
$A_{2,f}A_{2,f}^*$	3×3	0	$\frac{39}{16}$	$-\frac{33}{32}$	0	$\frac{9}{8}$	0	$\frac{15}{32}$	0	0	3
$A_{4,f}A_{4,f}^*$	1×1	$\frac{1225}{128}$	$-\frac{2325}{256}$	$\frac{33}{32}$	$\frac{525}{128}$	$-\frac{1395}{512}$	$\frac{315}{256}$	$-\frac{15}{32}$	$\frac{175}{512}$	0	4
$A_{4,h}A_{4,h}^*$	1×1	$\frac{10045}{1024}$	$-\frac{9465}{1024}$	$\frac{8535}{8192}$	$\frac{1155}{256}$	$-\frac{3015}{1024}$	$\frac{1575}{1024}$	$-\frac{1155}{2048}$	$\frac{595}{1024}$	$\frac{2205}{8192}$	5
$\Re(A_{0,p}A_{2,p}^*)$	2×3	0	0	$-\frac{1}{\sqrt{2}}$	0	$\frac{-3}{\sqrt{2}}$	0	0	0	0	$-2\sqrt{2}$
$\Re(A_{0,p}A_{2,f}^*)$	2×3	0	0	$\frac{\sqrt{3}}{2}$	0	$\frac{3\sqrt{3}}{2}$	0	0	0	0	$2\sqrt{3}$
$\Re(A_{0,p}A_{4,f}^*)$	2×1	0	0	$-\frac{9}{16}$	0	$-\frac{5}{4}$	$-\frac{35}{8}$	$\frac{35}{16}$	0	0	-4
$\Re(A_{0,p}A_{4,h}^*)$	2×1	0	0	$\frac{9\sqrt{5}}{32}$	0	$\frac{5\sqrt{5}}{8}$	$\frac{35\sqrt{5}}{16}$	$\frac{-35\sqrt{5}}{32}$	0	0	$2\sqrt{5}$
$\Re(A_{2,p}A_{2,f}^*)$	3×3	0	$\frac{-3}{4} \sqrt{\frac{3}{2}}$	$\frac{1}{8} \sqrt{\frac{3}{2}}$	0	$\frac{-3}{2} \sqrt{\frac{3}{2}}$	0	$\frac{-15}{8} \sqrt{\frac{3}{2}}$	0	0	$-2\sqrt{6}$
$\Re(A_{2,p}A_{4,f}^*)$	3×1	0	$\frac{45}{16\sqrt{2}}$	$\frac{-9}{8\sqrt{2}}$	$\frac{105}{8\sqrt{2}}$	$\frac{-67}{8\sqrt{2}}$	$\frac{35}{16\sqrt{2}}$	$\frac{-5}{8\sqrt{2}}$	0	0	$4\sqrt{2}$
$\Re(A_{2,p}A_{4,h}^*)$	3×1	0	$\frac{-9}{16} \sqrt{\frac{5}{2}}$	$\frac{9}{64} \sqrt{\frac{5}{2}}$	$\frac{-21}{32} \sqrt{\frac{5}{2}}$	$\frac{-31}{128} \sqrt{\frac{5}{2}}$	$\frac{-35}{32} \sqrt{\frac{5}{2}}$	$\frac{-7}{64} \sqrt{\frac{5}{2}}$	$\frac{-189}{128} \sqrt{\frac{5}{2}}$	0	$-2\sqrt{10}$
$\Re(A_{2,f}A_{4,f}^*)$	3×1	0	$\frac{-5\sqrt{3}}{8}$	$\frac{11\sqrt{3}}{64}$	$\frac{-35\sqrt{3}}{32}$	$\frac{11\sqrt{3}}{128}$	$\frac{-35\sqrt{3}}{32}$	$\frac{-5\sqrt{3}}{64}$	$\frac{-175\sqrt{3}}{128}$	0	$-4\sqrt{3}$
$\Re(A_{2,f}A_{4,h}^*)$	3×1	0	$\frac{19\sqrt{15}}{32}$	$\frac{-29\sqrt{15}}{128}$	$\frac{161\sqrt{15}}{64}$	$\frac{-389\sqrt{15}}{256}$	$\frac{35\sqrt{15}}{64}$	$\frac{-13\sqrt{15}}{128}$	$\frac{49\sqrt{15}}{256}$	0	$2\sqrt{15}$
$\Re(A_{4,f}A_{4,h}^*)$	1×1	$\frac{-245\sqrt{5}}{256}$	$\frac{165\sqrt{5}}{256}$	$\frac{-87\sqrt{5}}{2048}$	$\frac{-105\sqrt{5}}{64}$	$\frac{225\sqrt{5}}{256}$	$\frac{-315\sqrt{5}}{256}$	$\frac{195\sqrt{5}}{512}$	$\frac{-245\sqrt{5}}{256}$	$\frac{-2205\sqrt{5}}{2048}$	$-4\sqrt{5}$

Tableau 3.5: Paramètres d'asymétrie à p pair, en fonction des amplitudes d'excitation pour le cas à 4 photons.

Imaginaires	mult	$a_{1,2}$	$a_{1,4}$	$a_{2,3}$	$a_{3,4}$
$\Im(A_{0,p}A_{2,p}^*)$	2×3	0	$\frac{-3}{\sqrt{2}}$	0	0
$\Im(A_{0,p}A_{2,f}^*)$	2×3	0	$\frac{3\sqrt{3}}{2}$	0	0
$\Im(A_{0,p}A_{4,f}^*)$	2×1	0	$-\frac{5}{4}$	$-\frac{35}{8}$	0
$\Im(A_{0,p}A_{4,h}^*)$	2×1	0	$\frac{5\sqrt{5}}{8}$	$\frac{35\sqrt{5}}{16}$	0
$\Im(A_{2,p}A_{4,f}^*)$	3×1	$\frac{105}{8\sqrt{2}}$	$\frac{-7}{2\sqrt{2}}$	$\frac{35}{16\sqrt{2}}$	0
$\Im(A_{2,p}A_{4,h}^*)$	3×1	$\frac{-21}{32}\sqrt{\frac{5}{2}}$	$\frac{35}{128}\sqrt{\frac{5}{2}}$	$\frac{-35}{32}\sqrt{\frac{5}{2}}$	$\frac{-189}{128}\sqrt{\frac{5}{2}}$
$\Im(A_{2,f}A_{4,f}^*)$	3×1	$\frac{-35\sqrt{3}}{32}$	$\frac{49\sqrt{3}}{128}$	$\frac{-35\sqrt{3}}{32}$	$\frac{-175\sqrt{3}}{128}$
$\Im(A_{2,f}A_{4,h}^*)$	3×1	$\frac{161\sqrt{15}}{64}$	$\frac{-175\sqrt{15}}{256}$	$\frac{35\sqrt{15}}{64}$	$\frac{49\sqrt{15}}{256}$

Tableau 3.6: Paramètres d'asymétrie à $p+q$ impair, en fonction des amplitudes d'excitation pour le cas à 4 photons.

3.6 Discussion

3.6.1 Symétries des distributions angulaires elliptiques

Par des arguments simples de symétrie, on peut justifier en grande partie la forme de l'équation 3.28.

- $\mathcal{A}_\xi(\theta)$ est une fonction périodique de θ de période π (cf 3.2.1). C'est aussi une fonction périodique de ξ de période 2π . \mathcal{A} peut donc être décrite sur la base des fonctions $\cos^q \xi \cos 2p\theta$, $\cos^q \xi \sin 2p\theta$, $\cos^{q-1} \xi \sin \xi \cos 2p\theta$ et $\cos^{q-1} \xi \sin \xi \sin 2p\theta$ où p et q sont des entiers positifs.
- Le changement de sens de l'ellipse ($\xi \mapsto -\xi$) correspond à la transformation de θ en $-\theta$. Cette condition se traduit par: $\mathcal{A}_{-\xi}(\theta) = \mathcal{A}_\xi(-\theta)$. Cela implique que seules les fonctions $\cos^q \xi \cos 2p\theta$ et $\cos^{q-1} \xi \sin \xi \sin 2p\theta$ sont utiles dans la base.
- La transformation ($\xi \mapsto \xi + \pi$) fait tourner la polarisation de l'ellipse d'un angle $\frac{\pi}{2}$ et change son sens d'orientation. Donc \mathcal{A} doit respecter $\mathcal{A}_{\xi+\pi}(\theta) = \mathcal{A}_\xi(-\theta - \frac{\pi}{2})$. Cela implique que les indices des cosinus doivent être tels que $(p+q)$ soit pair et que pour les indices des sinus, $(p+q)$ doit être impair.
- Pour achever la démonstration pour n'importe quel ion (ou atome) sphérique, il reste à mettre en évidence les bornes des entiers p et q . Si $p = 0$, seuls les termes en $\cos 2p\theta$ sont non-nuls; il faut éliminer les valeurs impaires de q puisque $p+q$ est pair. Pour d'autres bornes on a recours au cas particulier de la polarisation circulaire.
 1. Quand $\xi = \frac{\pi}{2}$ (polarisation circulaire), la partie paire de $\mathcal{A}(\theta)$ devient $\sum_{p(\text{pair})} a_{p0} \cos 2p\theta$. Elle n'est constante que si tous les a_{p0} où $p \geq 2$ et p pairs, sont nuls. Si p est impair, $q = 0$ est interdit car sinon la puissance de $\cos \xi$ serait négative. Le seul coefficient a_{p0} non nul est a_{00} . C'est la valeur constante de \mathcal{A} qu'on attend logiquement pour la polarisation circulaire.
 2. Quand $\xi = \frac{\pi}{2}$, la partie impaire de $\mathcal{A}(\theta)$ devient $\sum_{p(\text{pair})} a_{p,1} \sin 2p\theta$. Elle doit être nulle ce qui implique que $(p \text{ pair}) \Rightarrow (a_{p,1} = 0)$

3.6.2 Nombre de paramètres α_{pq}

La formule 3.28 nous montre que l'enregistrement de distributions angulaires en lumière elliptique apporte plus d'information que des distributions an-

gulaires obtenues avec de la lumière polarisée rectilignement, à condition d'observer un phénomène multiphotonique. En effet la formule de Yang:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\sigma}{4\pi} \left(1 + \sum_{p=1}^N \beta_{2p} P_{2p}(\cos \theta) \right)$$

nous apprend qu'on obtient N paramètres β indépendants en polarisation linéaire. De la formule élargissant le théorème de Yang au cas de la lumière elliptique 3.28 on peut tirer le nombre de paramètres a_{pq} en fonction de la parité de N . Le nombre exact est indiqué dans le tableau 3.7, ainsi que le nombre de coefficients pour N allant de 2 à 5.

Nombre de coefficients a_{pq}				
		Cas général	$N = 2$	$N = 4$
N pair	$p + q$ pair	$\left(\frac{N}{2} + 1\right)^2$	4	9
	$p + q$ impair	$\left(\frac{N}{2}\right)^2$	1	4
	total	$\frac{N^2}{2} + N + 1$	5	13
		Cas général	$N = 3$	$N = 5$
N impair	$p + q$ pair	$\frac{(N+1)(N+3)}{4}$	6	12
	$p + q$ impair	$\frac{N^2-1}{4}$	2	6
	total	$\frac{N^2}{2} + N + \frac{1}{2}$	8	18

Tableau 3.7: Nombre de coefficients a_{pq} en fonction de N .

3.6.3 Amplitudes atomiques et paramètres α_{pq}

Bien que nous ayons trouvé l'expression explicite des paramètres d'asymétrie a_{pq} en fonction des amplitudes d'excitation, on ne peut revenir aux amplitudes atomiques à partir des paramètres a_{pq} . En effet les a_{pq} sont des fonctions quadratiques des $\mathcal{A}_{\mathcal{J},\ell}$, et inverser le système conduit inévitablement à de multiples racines. Cette remarque a déjà été développée avec des illustrations géométriques dans le cas à deux photons [BLO93a].

Une distribution angulaire n'est donc pas la signature d'une combinaison d'états de moments cinétiques particulière. Au contraire une même distribution angulaire peut résulter de combinaisons d'états finals très différentes.

3.6.4 Asymétrie de la distribution dans le cadre de l'approximation des ondes planes

Confirmant la remarque de Muller *et al* [MUL88], l'équation 3.25 nous montre que les seuls termes qui peuvent rompre la symétrie des distributions angulaires par rapport au sens de parcours de l'ellipse sont proportionnels à la partie imaginaire des XX'^* . Or $X_{m,\ell m}$ est une combinaison linéaire à coefficients réels des amplitudes $A_{\ell,\ell}$.

S'il arrive que toutes les phases relatives de ces amplitudes soient des multiples de π , et donc que les XX'^* soient réels, la distribution angulaire correspondante aura ses termes en sinus égaux à zéro et sera symétrique par rapport aux axes de l'ellipse.

C'est le cas dans l'approximation des ondes planes. Ainsi la sensibilité au sens de parcours de l'ellipse est un test pour l'approximation des ondes planes. En conséquence, dès qu'une dissymétrie apparaît dans les distributions angulaires, on est sûr que l'approximation des ondes planes ne peut plus décrire correctement le phénomène. Mesurer des distributions angulaires de photodétachement multiphotonique en lumière polarisée elliptiquement est donc un test direct de l'approximation des ondes planes.

3.6.5 Conclusion

Nous avons établi une formule générale qui donne la forme analytique des distributions angulaires d'électrons détachés (ou ionisés) par N photons en lumière elliptique. Cette formule est valable si l'édifice atomique initial est symétrique ($J = 0$) et si le cœur restant a un moment angulaire impair. La formule 3.28 peut donc s'appliquer dans bien d'autres cas que le détachement d'ions négatifs d'halogènes.

Les détails internes du calcul montrent que la simple observation d'une asymétrie dans une distribution angulaire mesurée avec de la lumière elliptique peut permettre de conclure que l'approximation des ondes planes n'est pas suffisante pour interpréter les résultats.

Le nombre de paramètres d'asymétrie démontre l'intérêt des distributions angulaires de photodétachement multiphotonique réalisés avec de la lumière elliptique par rapport à ceux enregistrés avec de la lumière polarisée rectilignement.

Grâce à la formule, on peut extraire d'une distribution angulaire, un jeu de paramètres d'asymétrie α . Ces paramètres sont adimensionnés et ne dépendent pas du niveau du signal qui peut varier d'une expérience à l'autre.

L'expression des paramètres d'asymétrie α en fonction des amplitudes d'excitation pour le cas à 2, 3 et 4 photons a été établie. Même si l'on ne peut

pas faire l'inverse pour remonter directement de nos distributions angulaires expérimentales aux fonctions d'ondes atomiques, ces expressions peuvent servir à des travaux théoriques visant à reproduire nos valeurs expérimentales.

L'étape suivante de ces calculs consisterait à étendre la formule à un cadre plus général ($J \neq 0$, cœur pair), ou à estimer l'influence de la projection de l'état final sur un niveau particulier de structure fine du cœur restant.

L'établissement de cette formule nous a permis de dépouiller nos distributions angulaires expérimentales enregistrées avec des polarisations elliptiques variables, de façon sûre et non-ambigüe. Nous avons également pu les comparer aux précédentes distributions angulaires obtenues en lumière polarisée rectilignement. Ces résultats expérimentaux seront détaillés au chapitre 6. Le montage expérimental est décrit au chapitre suivant.

Chapitre 4

Aspects expérimentaux

4.1 Introduction

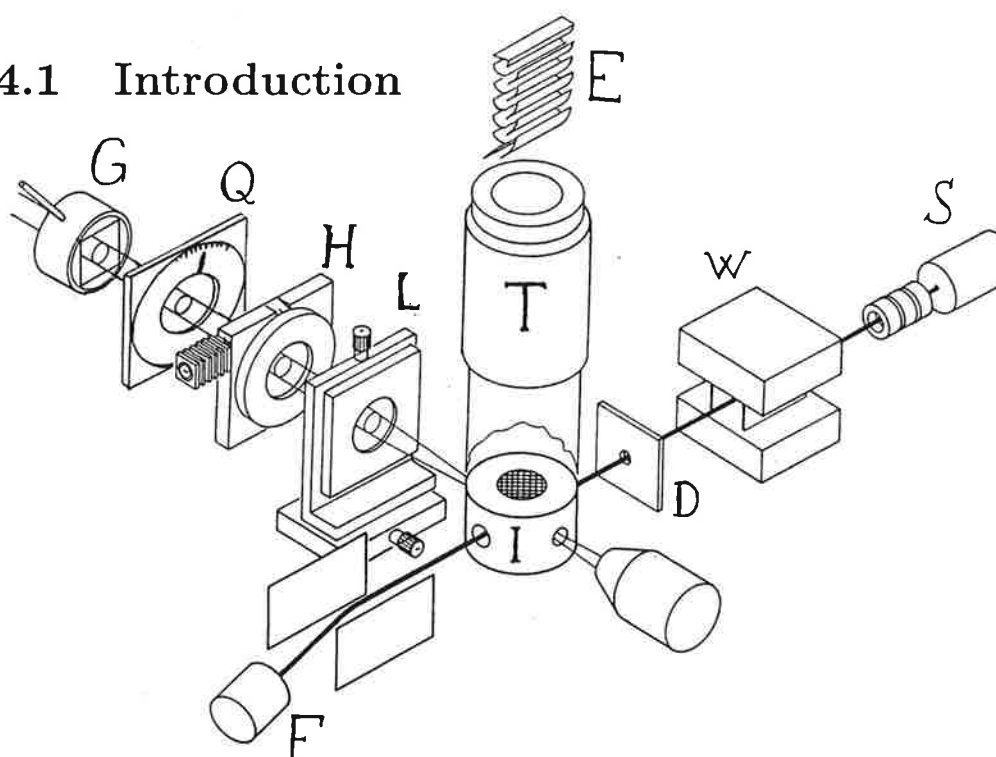


Figure 4.1: *Dispositif expérimental: S source d'ions, W filtre de Wien, D, diaphragme refroidi à l'azote liquide, I zone d'interaction électriquement et magnétiquement blindée, F coupe de Faraday, L lentille, H lame demi-onde montée sur un support tournant entraîné par un moteur pas à pas, Q lame quart d'onde, G prisme de Glan polariseur, T tube de temps de vol, E multiplicateur d'électron*

Le dispositif expérimental que nous avons utilisé pour faire nos mesures de distributions angulaires d'ions négatifs d'halogènes en lumière infrarouge po-

larisée elliptiquement est représenté figure 4.1. Il a été décrit dans différents articles [BLO87, BLO89a, BLO92].

Une première enceinte, pompée par une pompe à diffusion et une petite pompe turbomoléculaire, contient la source et le filtre de Wien. La seconde enceinte, réservée à l'interaction et à la détection est pompée par une pompe turbo moléculaire. Cette seconde chambre, appelée chambre d'interaction, est séparée de la première par une vanne d'isolement. La vanne n'est ouverte que lorsque le jet d'ions négatifs a été correctement établi dans la première chambre, ce qui limite la dégradation du vide dans la chambre d'interaction.

Pour effectuer des mesures de distributions angulaires de photodétachement d'ions négatifs, on commence par produire les ions et on les transporte en jet jusqu'à la zone d'interaction. Ces deux opérations sont décrites au paragraphe 4.2.

Il faut ensuite réaliser l'intersection du jet avec le faisceau laser dont les caractéristiques seront détaillées au paragraphe 4.3.

Enfin on enregistre les distributions angulaires, ce qui nécessite notamment la détection des électrons détachés. Cet aspect sera analysé au paragraphe 4.4.

4.2 Le jet

4.2.1 La source

Principe de fonctionnement

Les ions négatifs d'halogènes ont une grande affinité électronique (de l'ordre de 3 eV); c'est pourquoi ils peuvent être produits directement à partir d'atomes neutres d'halogènes mis en présence d'un plasma, car les électrons du milieu ionisé et les atomes ont de fortes chances de former des ions négatifs. La source que nous utilisons fonctionne sur ce principe.

La source (voir figure 4.2) est constituée d'un cylindre métallique (3×4 cm) dont le couvercle est percé du trou d'extraction. Le cylindre contient une nacelle et un filament. Une arrivée d'argon est située à l'opposé du trou d'extraction.

On injecte de l'argon dans la source. Le filament de tungstène est traversé par un courant intense (10 à 12 A). Entre ce dernier et l'anode percée, on applique une tension (dite tension de décharge).

Le filament émet des électrons qui favorisent la naissance d'une décharge entre le filament et l'anode au travers de l'argon. Un plasma est ainsi créé. Les atomes d'halogènes sont issus de sels d'halogénures d'alcalins (KCl, NaI...) qui sont placés dans une nacelle placée à proximité du filament. La chaleur

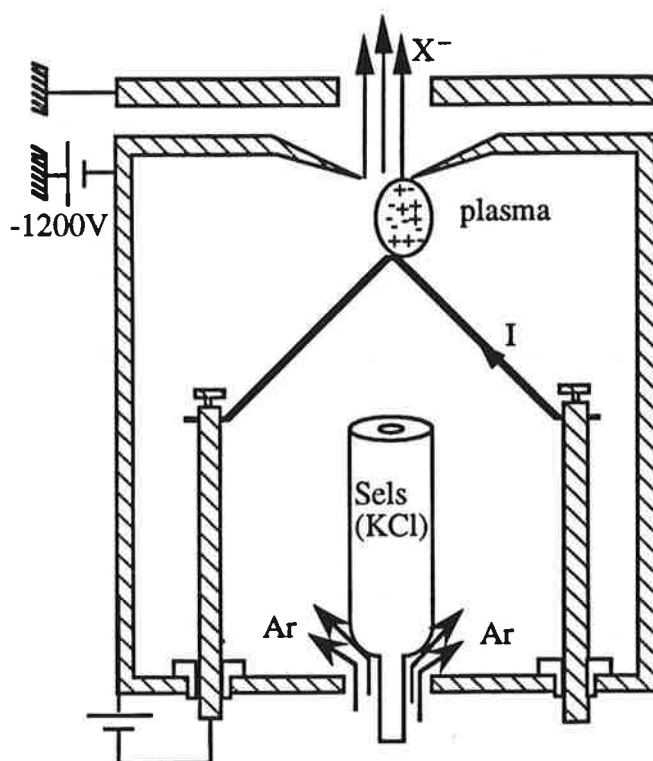


Figure 4.2: Schéma de la source

dégagée par ce dernier suffit à faire évaporer une petite partie des molécules de sel qui sont dissociées aux abords du plasma. Pour le fluor, on injecte directement du tétrafluorure de carbone.

L'ensemble de la source (anode, filament...) est porté à un potentiel de -1200V. Dans le plasma, différents processus (attachement, recombinaisons...) créent des ions négatifs, notamment aux alentours du trou de l'anode. En face du trou se trouve une bague mise à la masse de la lentille électrostatique. Cette bague est dite "extractrice". Les particules négatives qui quittent la source, ou qui se trouvent aux abords du trou (par lequel pénètre un peu de champ électrique), remontent le potentiel et sont accélérées. Un jet négatif est ainsi créé. Ce type de source s'appelle source à décharge à cathode chaude.

Mise en œuvre

Pour obtenir une décharge stable, il est essentiel d'avoir une pression d'argon constante dans la cellule à décharge. Etant donné les conditions à l'intérieur de la source (plasma, émission thermoélectronique), il est difficile d'y faire une mesure de pression, aussi, c'est la pression dans la première chambre de

vol qui est utilisée comme indication de pression de la source. On peut s'y fier car la plus grande partie des "molécules" présentes dans l'enceinte paraît être l'argon sortant de la source, puisque la pression en fonctionnement est environ 10 fois supérieure à la pression sans injection d'argon. Le débit d'argon est régulé par une vanne piézo-électrique. L'ouverture de cette dernière est commandée par une électronique d'asservissement qui maintient la pression de la première chambre à un niveau de consigne. La pression dans la source, bien qu'inconnue, peut ainsi être contrôlée.

Le vide limite de notre enceinte étant de 70 micropascals, nous avons obtenu les meilleurs résultats pour une pression de $7 \cdot 10^{-4}$ Pa pour l'iode, $2,7 \cdot 10^{-3}$ Torr pour le fluor et $1,3 \cdot 10^{-3}$ Pa pour le chlore.

Au cours de nos travaux nous avons essayé différentes modifications de la source avec plus ou moins de succès. Nous avons augmenté la taille du trou d'extraction jusqu'à 0.9 mm pour augmenter le nombre d'ions produits. Mais si plus d'ions sont extraits, pour conserver les mêmes valeurs de pression à l'intérieur de la source, il faut de plus grandes pressions dans la chambre de vol (puisque l'argon s'échappe vers l'enceinte par le trou d'extraction), ce qui est défavorable car alors les ions se détachent par collisions avec le gaz résiduel. De plus, des décharges se produisent souvent entre la source et la bague extractrice. Nous avons finalement opté pour un trou de 0.6 mm.

Nous avons également modifié la forme de l'anode percée. La simple plaque plane trouée a été remplacée par une anode où le trou est percé à l'extrémité d'un cône qui pointe vers le filament (comme on peut le voir sur la figure 4.2). Le but de cette modification a été de mieux localiser la décharge, pour que le jet soit plus stable. Il arrivait en effet que la décharge se produise vers les bords de la boîte, plutôt que vers le trou. Dans la nouvelle configuration, le trou se trouve être la partie de l'anode la plus proche du filament, c'est donc vers ses bords que la décharge se produit. Le trou est bordé par un angle vif ce qui favorise également la décharge.

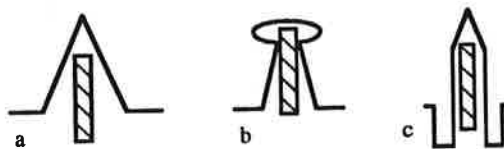


Figure 4.3: *Formes des filaments utilisés. En zébré la position de la nacelle. a: filament en pointe. b filament qui encercle le haut de la nacelle. c: filament qui longe la nacelle.*

Nous avons testé plusieurs formes de filaments. Le filament en pointe (cf figure 4.3: a) donne d'excellents résultats pour l'iode et le fluor mais chauffe

insuffisamment la nacelle pour le chlore, car les chlorures de potassium et de sodium ont une température d'évaporation plus importante que les iodures. Nous avons donc confectionné un filament (b) qui encerclait le haut de la nacelle, et qui ainsi la chauffait plus. Nous avons effectivement eu plus d'intensité du courant d'ions, mais la décharge se déplaçait, nous obligeant à refaire les réglages très régulièrement. En effet, sur la couronne du filament, il n'y a pas de point de départ privilégié de la décharge, et elle "dérive". Nous avons finalement opté pour une troisième forme où le filament longe la nacelle (c), ce qui assure un chauffage correct, et possède une pointe qui localise la décharge.

Plusieurs types de précurseurs (source des halogènes) ont été testés, et avons conclu que le NaI, le KCl et le CF_4 étaient les plus adaptés après avoir testé le KI, le NaCl, le ZnCl... et différents mélanges et dosages de ces précurseurs.

4.2.2 L'électrostatique

L'ensemble de l'électrostatique a pour but de transporter les ions produits par la source dans la région d'interaction où le jet va croiser le faisceau laser. Un schéma de principe figure 4.4 détaille le jet.

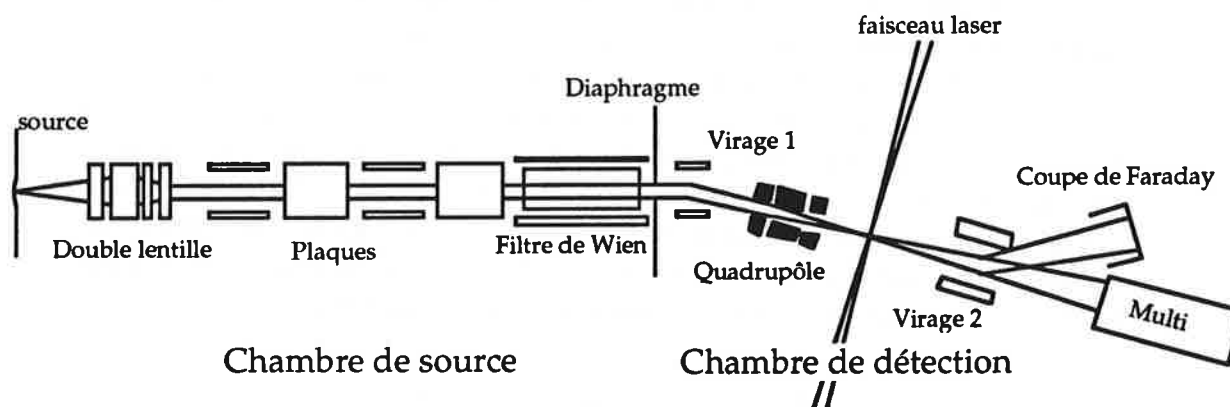


Figure 4.4: Schéma du jet

1. La double lentille sert à collimater le jet pour que le transport se fasse avec le minimum de pertes. Elle est composée de 4 cylindres percés. La première bague est reliée à la masse et sert d'extractrice. La seconde et la quatrième sont polarisées négativement entre - 400 et - 1000V. La troisième est mise à la masse et isole les deux bagues polarisées. Le potentiel répulsif en couronne des deuxième et quatrième lentilles

“focalise” le jet. A l'image de l'optique traditionnelle, c'est une combinaison de deux lentilles qui permet d'obtenir un jet bien collimaté.

2. Les plaques défectrices servent à dévier le faisceau (par simple force de Coulomb due à un champ électrique uniforme) pour le recentrer. Il faut noter qu'elles déforment aussi légèrement le faisceau puisqu'il y a un gradient de champ inévitable.
3. Le filtre de Wien, par une combinaison de champ électrique et magnétique, sélectionne les ions en vitesse (donc en masse). \vec{E} et \vec{B} sont orthogonaux, de telle sorte que la force de Coulomb ($\vec{F} = q\vec{E}$) compense celle de Lorentz ($\vec{F} = q\vec{v} \wedge \vec{B}$) pour une classe de vitesse. Pour les autres vitesses, la résultante des deux forces n'est pas nulle et il y a déviation. Comme les particules chargées négativement ont toutes reçu la même énergie accélératrice, sélectionner en vitesse revient à sélectionner en masse, on peut donc ainsi être sûr que le faisceau est monocinétique et composé d'un seul type d'ions. Le filtre de Wien agit en somme comme un filtre de masse.
4. Le diaphragme sert à bloquer les particules déviées par le filtre. Dans une moindre mesure, il contribue à établir un vide différentiel entre les deux chambres.
5. Le virage, composé de deux plaques polarisées, sert à éliminer les neutres détachés par collision, dans la première enceinte. C'est indispensable si l'on veut limiter les électrons produits par l'ionisation des atomes neutres présents dans le jet.
6. Le quadrupôle sert à focaliser le faisceau pour avoir la plus grande densité d'ions possible dans la région d'interaction avec le laser. Cette dernière a un volume très petit car le laser est fortement focalisé pour obtenir les grandes intensités conduisant à une probabilité d'excitation multiphotonique appréciable.
7. Les plaques défectrices du second virage servent à dévier les ions non détachés. Ainsi seuls les atomes neutres sont détectés par le multiplicateur d'électrons. On obtient alors une mesure directe de l'efficacité de détachement du dispositif.
8. La coupe de Faraday recueille le courant de particules chargées, dont un picoampèremètre permet de mesurer l'intensité.

9. Le multiplicateur d'électrons détecte le faisceau d'atomes neutres produits par détachement.

4.3 L'optique

4.3.1 Le montage optique

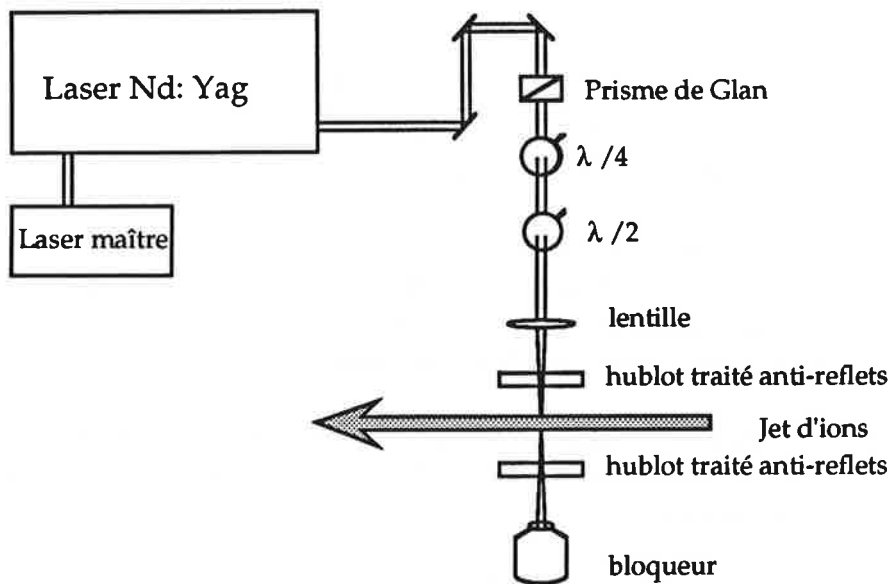


Figure 4.5: Schéma du montage optique utilisé.

Nous nous sommes servis, pour notre étude du détachement multiphotonique d'ions négatifs d'halogènes en lumière elliptique, d'un laser pulsé Nd:YAG monomode émettant à 1064,2 nm. Les impulsions, d'une largeur temporelle à mi-hauteur de 12 ns, ont une énergie de 0,98 J à une cadence de répétition de 10 Hz. Le déclenchement de type Q-switch est assuré par une cellule de Pockels. La cavité principale du type "cavité instable" contient un barreau de Nd:YAG pompé par lampes flash. et oscille spontanément sur plusieurs modes longitudinaux. Elle est asservie par injection d'un oscillateur maître qui lui assure sa monochromaticité. Un second barreau de Nd:YAG, pompé par lampes flash, situé à la sortie de la cavité principale sert d'amplificateur, ce qui permet d'atteindre une énergie par impulsion de 0,98 J.

L'oscillateur maître est composé d'un barreau de YAG pompé par diode. Sa cavité d'une dizaine de cm émet un rayonnement continu monochromatique de 1064.2 nm, d'une puissance de quelques mW.

A la sortie des miroirs de renvoi, on parfait la polarisation rectiligne en plaçant un prisme de Glan, même si le faisceau est en principe polarisé rectilignement en sortie du laser.

La lame $\lambda/4$ permet de choisir (selon l'orientation de ses lignes neutres par rapport à la polarisation incidente), l'ellipticité que l'on désire.

La lame $\lambda/2$ permet quant à elle de faire tourner la direction principale du champ électrique, ce qui est indispensable si on veut mesurer des distributions angulaires sans déplacer le détecteur (cf 4.4).

Les lentilles plan-convexes traitées utilisées avaient une focale de 30 cm pour le fluor et l'iode et de 15 cm pour le chlore. Les éclaircissements maximum atteints étaient respectivement $1.4 \cdot 10^{16} \text{ Wm}^{-2}$ et $2.1 \cdot 10^{16} \text{ Wm}^{-2}$. Le rapport entre les deux éclaircissements maximaux n'est pas exactement 4 car la configuration du laser a changée entretemps (cf. 4.3.3).

4.3.2 Problèmes spécifiques au montage

La plupart des difficultés expérimentales que nous avons rencontrées avec l'optique était liée à la puissance du faisceau. Avec ce type de laser (1 J, 10 ns), on peut facilement endommager les éléments optiques. Si un traitement optique "antireflet" s'endommage, la réflexion qui peut en résulter suffit, au travers d'autres optiques, à provoquer des dégâts. La figure 4.6 illustre ce phénomène dans le cas où le faisceau est refocalisé dans une lentille. Même

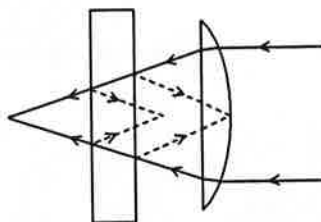


Figure 4.6: *Illustration d'une refocalisation accidentelle par la face d'entrée d'une lame.*

une très faible réflexion suffit pour percer la lentille. Le placement des optiques est donc calculé pour éviter un telle configuration. Cependant on ne connaît pas exactement la forme du faisceau à la sortie du laser, et ce sont des phénomènes de refocalisation ou de "points chauds" à l'intérieur du faisceau principal, dus au laser lui-même qui ont été à l'origine de quelques destructions d'éléments optiques.

4.3.3 Changement de miroirs du laser

Motivations

La cavité du laser DCR 3 de chez Spectra Physics est de type instable, avec un miroir de sortie réfléchissant la lumière au centre et laissant passer le faisceau sur les côtés, comme le montre la figure 4.7. Le profil du faisceau juste en sortie du laser est donc un anneau lumineux.

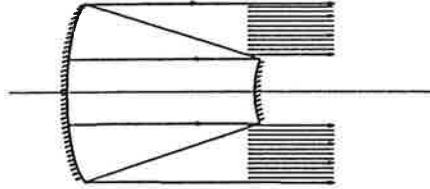


Figure 4.7: *Cavité instable dont la lumière sort autour du miroir de sortie .*

Toute l'énergie du faisceau une fois focalisé n'est pas contenue dans le pic principal, car il y a également un anneau secondaire comme on peut le voir sur la figure 4.8.

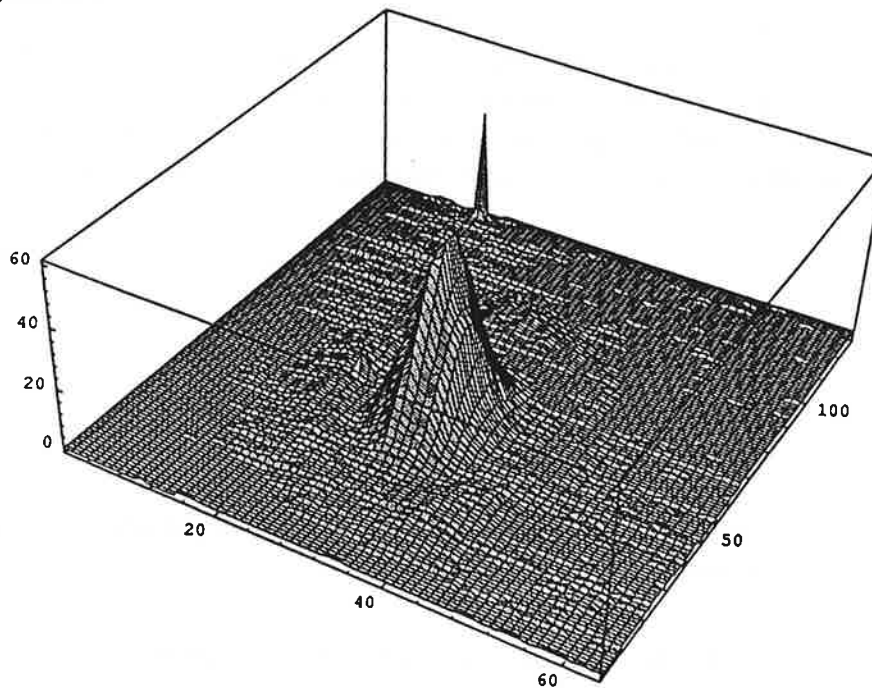


Figure 4.8: *Image de la tache laser prise au waist. Verticalement: intensité lumineuse (unités arbitraires); en profondeur est représenté l'axe vertical ($2.524 \mu\text{m}$ par unité), transversalement l'axe horizontal ($3.708 \mu\text{m}$ par unité).*

Spectra Physics nous a proposé de remplacer les miroirs de la cavité par un nouveau jeu, qui rende le faisceau gaussien. Lors de la focalisation du faisceau, toute l'énergie doit être contenue dans le pic central, ce qui est intéressant pour l'étude des phénomènes non-linéaires. La lumière de faible intensité répartie hors du pic central peut être considérée comme de la lumière perdue.

Montage expérimental d'analyse des faisceaux

Nous avons réalisé un dispositif susceptible d'analyser les deux types de faisceaux lasers aux alentours du waist afin de pouvoir les comparer. Le montage est présenté figure 4.9. Il est semblable à celui décrit dans l'article de 1989 [BLO89a].

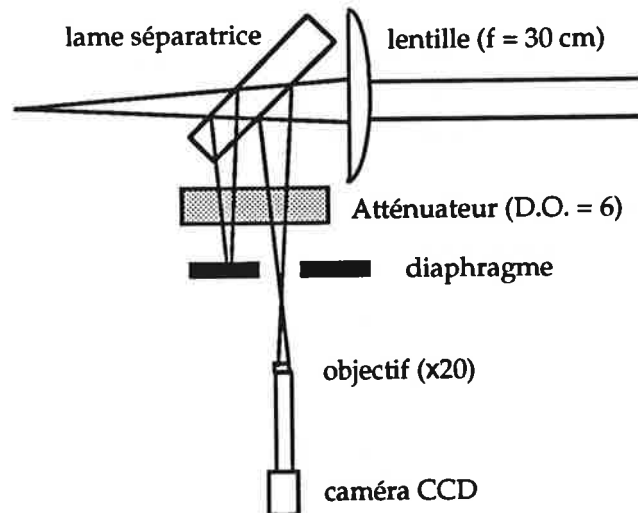


Figure 4.9: Montage destiné à évaluer le faisceau laser. Le point de focalisation du faisceau observé est mis au foyer de l'objectif.

Sur un P.C. dans lequel était implantée une carte adéquate, nous avons réalisé un programme d'acquisition des images en assembleur. Sa principale vertu, outre sa cadence d'acquisition, était de ne retenir que les images éclairées. En effet, les trames d'une caméra CCD sont renouvelées 50 fois par seconde, et notre laser a une cadence de 10 Hz. Sans sélection préalable, 4 images sur 5 sont noires. Le programme pouvait également enregistrer les images digitalisées.

Nous avons aussi réalisé un programme d'analyse permettant par exemple d'ajuster une partie de l'image par une gaussienne, ou d'intégrer le signal...

Paramètres utilisés pour l'analyse

A partir d'une image digitalisée on peut facilement estimer l'énergie:

$$E = \int_{surface} I ds = s \frac{I_m}{g_m} \sum_{i,j} g_{ij} \quad (4.1)$$

g_{ij} est la valeur digitalisée du pixel de cote i, j . s représente la surface d'un pixel, qui a été étalonnée en 1989. I_m est l'éclairement maximum. g_m est un facteur d'échelle d'intensité.

A partir d'une image digitalisée on peut également estimer l'efficacité d'un processus non linéaire. Si k est le nombre de photons requis pour le phénomène alors le signal non linéaire d'ordre k sera proportionnel à D_k défini comme:

$$D_k = \int I^k ds = s \left(\frac{I_m}{g_m} \right)^k \sum_{i,j} g_{ij}^k \quad (4.2)$$

Si on suppose que l'on a affaire à un faisceau gaussien, on peut faire correspondre à ce signal D_k un waist équivalent W_k . Cela revient à rechercher le waist du faisceau gaussien qui aurait, à énergie équivalente, la même efficacité D_k .

L'intensité d'un faisceau gaussien de waist w peut s'écrire en fonction de r éloignement à l'axe optique:

$$I = I_0 e^{-2\left(\frac{r}{w}\right)^2} \quad (4.3)$$

Sachant que:

$$\frac{\int I^k ds}{(\int I ds)^k} = \left(\frac{2}{\pi} \right)^{1-k} \frac{w^{2(k-1)}}{k} \quad (4.4)$$

on peut déduire que:

$$W_k = \sqrt{\frac{2s}{\pi}} k^{-\frac{1}{2(k-1)}} \left(\frac{(\sum_{i,j} g_{ij})^k}{\sum_{i,j} g_{ij}^k} \right)^{\frac{1}{2(k-1)}} \quad (4.5)$$

On peut aussi à partir d'une image digitalisée, réaliser un ajustement du pic central par une gaussienne. De cet ajustement on peut tirer W_a , waist du faisceau gaussien qui représente le mieux le pic central.

Connaissant W_a et les autres paramètres du pic central on peut estimer Γ , le rapport entre l'énergie contenue dans le pic central et l'énergie totale contenue dans l'image. C'est finalement ce paramètre que l'on cherche à rendre le plus proche possible de 1. Tout écart à 1 est considéré comme de l'énergie perdue.

En résumé, pour analyser une image digitalisée nous disposons des paramètres D_k , W_k , W_a , E , et Γ .

- E est l'énergie lumineuse représentée sur l'image.
- Γ est le rapport entre l'énergie contenue dans le pic central et l'énergie de l'ensemble de l'image.
- D_k est l'efficacité du phénomène de détachement d'ordre k , pour k valant 3,4 et 5.
- W_k est le waist qu'aurait un faisceau gaussien d'efficacité identique à D_k .
- W_a le waist obtenu par ajustement d'une gaussienne sur le pic central.

Analyse du faisceau "en beignet" ou "non-gaussien"

Une de nos premières constatations a été que l'ajustement du faisceau par une bande verticale et par une bande horizontale ne donnait pas tout à fait les mêmes résultats (écart de 3% sur le waist). Nous avons tourné la caméra de 90° autour de l'axe de prise de vue, et avons constaté que les axes de l'image avaient bien été échangés, et que l'écart de 3% subsistait. Nous avons conclu que le faisceau était très légèrement elliptique. Cela avait déjà été remarqué lors d'une étude précédente.

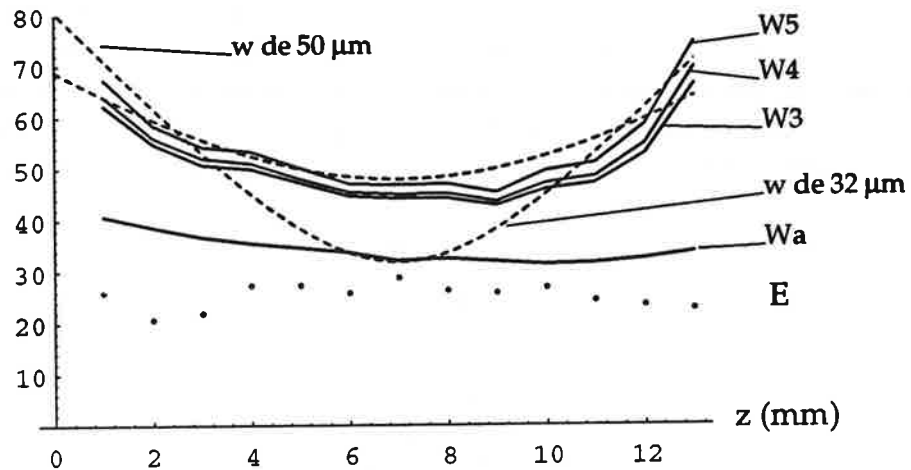


Figure 4.10: En traits plein: W_a et W_3 , W_4 et W_5 (en μm) en fonction de z , exprimé en mm. Les points sont une mesure de E en unités arbitraires. En pointillé le comportement théorique de faisceaux gaussiens, de waist de $32\mu\text{m}$ et de $50\mu\text{m}$.

Nous avons enregistré les taches laser en amont et en aval du waist pour voir l'évolution de son profil. Les résultats de nos dépouillements ont été portés sur un graphique figure 4.10.

On constate que W_a , qui est tout au long de l'axe de l'ordre de $30 \mu\text{m}$, ne se comporte pas comme on l'attendrait. La divergence du faisceau semble très faible par rapport à ce que devrait être le comportement d'un faisceau gaussien. On constate également que les W_k se comportent comme si le faisceau avait un waist de $50 \mu\text{m}$ environ. Nous avons donc induit que le pic central n'était que le premier ordre d'une structure dont le waist réel serait beaucoup plus grand. Cette idée est illustrée figure 4.11.

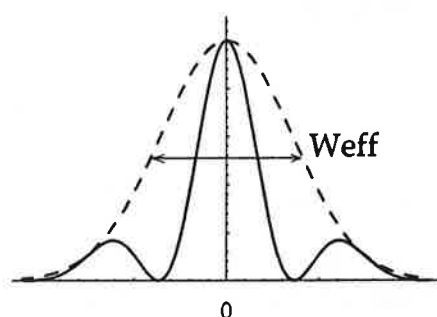


Figure 4.11: le pic central n'est que le pic principal d'une structure plus compliquée contenant ici 2 ordres. Cette structure a un waist effectif W_{eff} plus important.

Cette structure du faisceau peut être obtenue par un mode particulier au sein de la cavité du laser. En particulier le mode Laguerre-gaussien TEM_{10} , a une symétrie cylindrique et un pic central entouré d'un anneau secondaire (figure 4.12), et un waist effectif plus large que la "largeur" du pic central. Cependant il semble que les lobes secondaires soient plus importants que pour

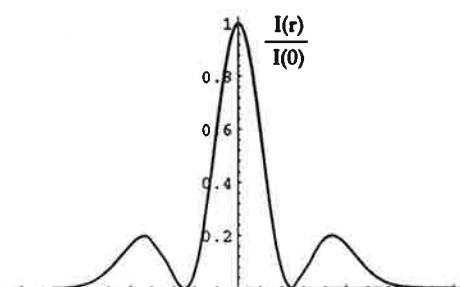


Figure 4.12: Mode Laguerre-gaussien TEM_{10} .

notre faisceau. En calculant analytiquement Γ , on obtient $1 - 2/e$ soit 26%.

Or nous avons estimé Γ à $60 \pm 5\%$. Le mode Laguerre-gaussien n'est donc pas une représentation satisfaisante du faisceau. J. Pinard nous a suggéré [DYE89] que nous observons peut être simplement la diffraction à l'infini du miroir de sortie. Si R_1 est le rayon intérieur du diaphragme et R_2 son diamètre extérieur alors à l'infini:

$$\frac{I(r)}{I(0)} = \frac{\left[\frac{2J_1(u_2)}{u_2} R_2^2 - \frac{2J_1(u_1)}{u_1} R_1^2 \right]^2}{(R_2^2 - R_1^2)^2} \quad (4.6)$$

où $u_i = 2\pi R_i \frac{r}{\lambda f}$ et J_i les fonctions de Bessel.

Cette fonction est représentée graphiquement figure 4.13. On constate

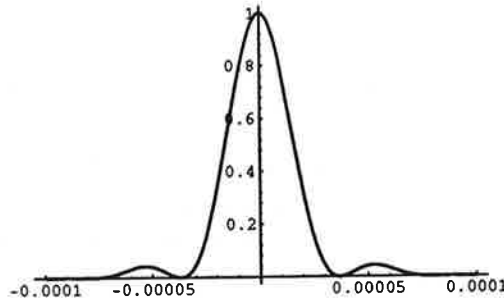


Figure 4.13: Diffraction à l'infini d'un diaphragme annulaire de rayon intérieur 0.9 mm et de rayon extérieur 3.25 mm, pour une longueur d'onde de 1.0642 μm . L'unité de l'abscisse est le mètre.

que la largeur à 1/e de l'image de diffraction est d'environ 32 μm . C'est du même ordre de grandeur que le W_a (30 μm), c'est-à-dire la largeur estimée à 1/e du pic central. En calculant Γ , on obtient 74 % ce qui est voisin des 60 % mesurés.

Nous avons tracé le résultat du calcul, et la moyenne d'une bande horizontale d'une image aux alentours du maximum sur le même graphique figure 4.14

Le modèle de l'image diffractée à l'infini du miroir de sortie est tout à fait satisfaisant.

Analyse du faisceau gaussien

Spectra-Physics a remplacé les miroirs par des miroirs spéciaux à pouvoir de réflexion progressif et nous avons refait la même analyse. Sur la figure 4.15 est représenté l'enregistrement de l'image du faisceau laser dans le plan de focalisation.

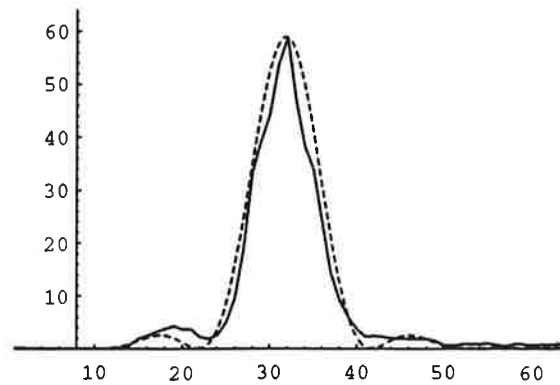


Figure 4.14: *Comparaison entre l'image et le modèle de diffraction. Si l'ordonnée est exprimée en unités arbitraires, l'abscisse est comptée en pas de deux pixels.*

Les franges qui apparaissent sont dues aux interférences produites par la lame de verre qui protège la plaque de CCD. Elles étaient moins apparentes dans l'ancienne configuration car le laser devait être moins monochromatique.

La tache est plus large et les maximums secondaires ont disparu. Cependant on obtient $\Gamma = 75 \pm 5 \%$ ce qui est un petit peu étonnant car si l'intensité avait été réellement gaussienne on aurait obtenu 100 %. Ce n'est pas un effet dû à la lumière résiduelle, dont on a tenu compte. Nous avons mené la même analyse que pour le faisceau "donut". Les W_k et W_a ont bien le comportement d'un faisceau gaussien. La figure 4.16 illustre assez bien, si on garde à l'esprit que vient se superposer à l'image de l'intensité du laser une structure d'interférence due à la lame de verre qui protège le CCD.

Bilan du changement de miroirs

Le changement de miroirs paraît concluant. On peut néanmoins remarquer que le pic central de la configuration beignet est beaucoup plus étroit et donc intense que le faisceau gaussien, et semble plus avantageux puisque nous recherchons un signal non linéaire d'ordre élevé. Ceci est confirmé par le calcul de l'efficacité du phénomène à 5 photons, D_5 , puisque l'on mesure une diminution d'un facteur 20 entre le D_5 de l'ancienne configuration et le D_5 de la nouvelle.

Pour augmenter le signal non linéaire d'ordre 5, il faut augmenter l'éclairement. On peut toujours focaliser davantage. Puisqu'on peut choisir le waist de l'une ou l'autre des configurations en changeant la focalisation, le paramètre important pour obtenir de grandes intensités devient l'énergie contenue dans le pic. Or on a vu que Γ est plus important dans la seconde configuration que dans la première, ce qui veut dire qu'il y aura plus d'énergie

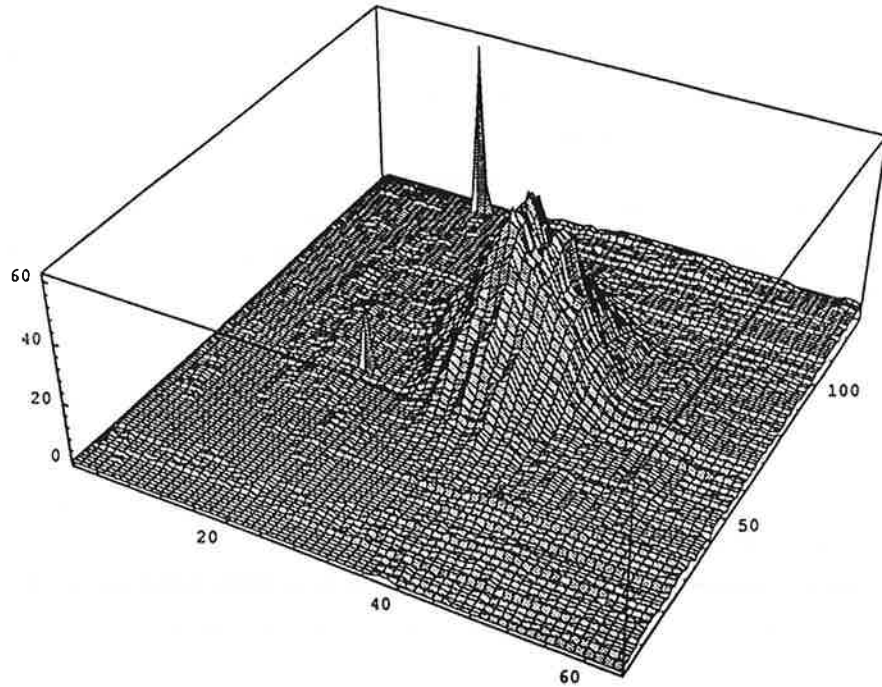


Figure 4.15: Image de la tache laser prise au waist avec la nouvelle configuration laser. Même échelle que figure 4.8

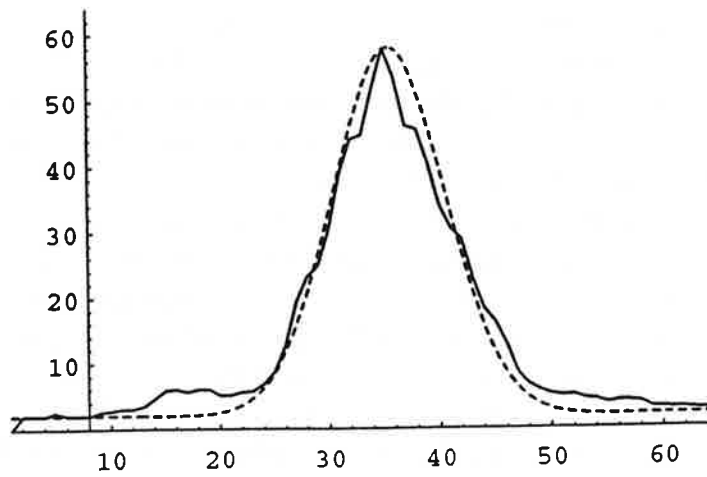


Figure 4.16: Profil du faisceau laser (moyenné sur quelques lignes aux alentours du maximum) et intensité théorique d'un faisceau gaussien de $53 \mu\text{m}$. Si l'ordonnée est exprimée en unités arbitraires, l'abscisse est comptée en pas de deux pixels.

dans le pic principal. Nous avons donc décidé de conserver ces miroirs.

Pour focaliser de façon plus efficace nous avons utilisé une lentille divergente placée avant la lentille convergente pour élargir le faisceau qui ensuite se refocalise plus. Cependant, bien avant d'atteindre les limites imposées par la diffraction, nous avons été contraint par la géométrie de notre dispositif. En effet, plus on focalise et plus l'ouverture angulaire du faisceau est importante. Si α est l'angle d'ouverture d'un faisceau gaussien, w_0 son waist et λ sa longueur d'onde, on peut écrire:

$$\alpha = \frac{\lambda}{\pi w_0}. \quad (4.7)$$

Or l'ouverture angulaire de la zone de détection est limitée par les trous de passages de la chemise en mu-métal. Nous n'avons donc pas pu en pratique obtenir un waist inférieur à 20 μm .

Toute amélioration technologique n'est pas forcément utile. Le changement des miroirs du laser n'a tout compte fait rien amélioré.

4.4 La détection et traitement de données

4.4.1 Le paramètre θ

Le paramètre θ que l'on fait varier lorsque l'on mesure une distribution angulaire de photodétachement en polarisation rectiligne est l'angle entre la direction du champ électrique et la direction d'éjection de l'électron.

Dans le cas de la lumière polarisée elliptiquement, θ est l'angle entre le grand axe de l'ellipse et la direction d'éjection. Pour un ion immobile, si on néglige toute distorsion de trajectoire due à des champs extérieurs, la direction de détection de l'électron sera celle de sa direction d'éjection.

Pour un ion en mouvement dans un jet, il faut apporter une correction due à l'entraînement des ions: δ l'angle d'entraînement (se reporter à la figure 4.17) qui n'a pas d'autre effet que de décaler l'origine des mesures. On s'affranchit de la déviation parasite des trajectoires des électrons en isolant la zone de tous champs électriques et magnétiques. Cette isolation est assurée par la présence de deux tubes en mu-métal qui entourent la zone.

4.4.2 Le paramètre d'ellipticité ξ

Les distributions angulaires que nous avons enregistrées ont été réalisées avec de la lumière polarisée elliptiquement. L'angle d'ellipticité ξ est défini au

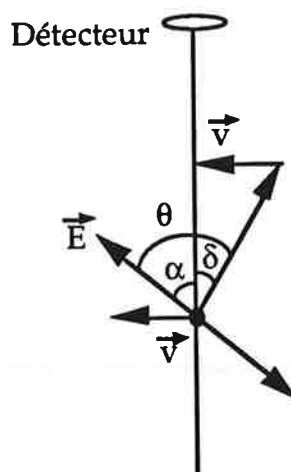


Figure 4.17: L'ion se déplace à la vitesse v . Il est soumis à un champ électrique oscillant E . θ est l'angle entre la direction du champ électrique et la direction d'éjection. δ est l'angle d'entraînement. La direction d'éjection de l'électron n'est pas celle de détection, mais on peut déduire θ , de α connaissant l'angle d'entraînement: $\theta = \alpha + \delta$

paragraphe 3.3.2 par la forme du champ électrique de la lumière excitatrice:

$$\vec{E} = E_0 \left(\hat{X} \cos \frac{\xi}{2} \cos \omega t + \hat{Y} \sin \frac{\xi}{2} \sin \omega t \right) \quad (4.8)$$

$\xi = 0$ correspond à la polarisation rectiligne et $\xi = \pm \frac{\pi}{2}$ aux polarisations circulaires σ^\pm .

Sur le dispositif expérimental, on fait varier l'angle ξ en tournant la lame quart d'onde. La lumière polarisée rectilignement à l'entrée ressort avec une ellipticité dépendante de l'angle entre les lignes neutres de la lame et la polarisation incidente.

Lors d'un enregistrement on travaille à ξ constant. La lame reste fixe et on repère sa position sur un cadran gradué en degrés. Nous avons relevé la position de la valeur $\xi = 0$ sur le cadran gradué, et connaissons ainsi l'ellipticité de la lumière en fonction de l'orientation de la lame quart d'onde: à chaque degré de rotation de la lame correspond un accroissement de l'ellipticité de 2° .

4.4.3 Temps de vol

Une même impulsion laser éclairant un seul type d'ions peut produire plusieurs "types" d'électrons.

En plus des ions détachés avec le minimum de photons indispensable, il peut y avoir des phénomènes à un photon (ou plus) en excès. L'énergie de ce (ces) photons en excès augmente d'autant l'énergie cinétique de l'électron éjecté.

D'autre part, les plus lourds des halogènes ont une structure fine importante. Selon l'état dans lequel est laissé l'atome neutre, on peut distinguer deux voies d'éjection pour les électrons, l'atome neutre restant dans son état final de structure fine $^2P_{3/2}$ ou excité $^2P_{1/2}$.

Puisqu'on peut obtenir différents types d'électrons, on peut essayer de les séparer. Un tube de temps de vol peut répondre à ce besoin.

La durée de parcours des électrons dépend de leur énergie cinétique. En choisissant une plage temporelle d'observation, on choisit une plage d'énergie cinétique. On peut ainsi sélectionner les types d'électrons émis, s'ils ont des énergies cinétiques suffisamment différentes (plus de 200 meV).

En pratique, le tube de temps de vol mesure 50 cm. Le détecteur, un multiplicateur d'électrons, est placé à son extrémité. La plage temporelle durant laquelle la détection est active est large de 40 ns. Elle est retardée par rapport au déclenchement de l'impulsion laser de façon variable (de l'ordre de quelques centaines de nanosecondes), suivant l'énergie de l'électron que l'on veut observer.

L'ensemble du système de détection a une faible ouverture angulaire. Si cette caractéristique assure une grande précision, cela réduit en revanche l'intensité du signal de photoélectrons. Pour augmenter le nombre d'électrons détectés on applique une différence de potentiel (environ 2 V) entre la zone d'interaction et le tube de temps de vol. Ce faible champ électrique a la vertu d'augmenter le signal en agrandissant l'ouverture angulaire du système de détection. En contrepartie, il diminue la résolution angulaire et réduit aussi la résolution du temps de vol à cause de l'accélération des électrons.

4.4.4 Enregistrements

Enregistrer la distribution angulaire de photodétachement consiste à compter les électrons émis dans toutes les directions. Pour cela, on fait varier θ en faisant tourner la lame demi-onde. La rotation de la lame est assurée par un moteur pas à pas qui a une précision de $1/100^{\text{ème}}$ de degré.

Un tour complet de la lame demi-onde correspond à deux révolutions complètes du grand axe de polarisation de l'ellipse. Cela représente 4 périodes d'enregistrement de θ de 180° (cf 3.2.1). Si l'on observe les mêmes variations du signal au cours des quatre périodes, on est sûr que les défauts de la lame demi-onde ou de son revêtement anti-reflet ne sont pas en cause.

Le nombre d'ions qui sont éclairés lors d'une impulsion laser est de l'ordre de 1000 (cf 5.2.3). Vu la faible ouverture angulaire de l'appareillage de détection, on s'attend à obtenir moins d'un électron par coup de laser. Ce n'est qu'une moyenne: étant donné la loi de Poisson il y aura des coups à 2, 3, n électrons, en proportion très faible. On est donc dans des conditions où l'on peut faire du comptage d'électron, sans risque de saturer le détecteur.

Un enregistreur multicanaux, implanté dans un PC, compte les électrons canal par canal. Le moteur est couplé à l'enregistreur si bien que chaque canal correspond à une plage angulaire bien déterminée de $1/10^{\text{ème}}$ de degré.

Comme cette valeur est inférieure à l'ouverture angulaire du détecteur, on peut "compresser" le jeu de données, c'est à dire regrouper plusieurs canaux. Cela permet d'augmenter le nombre d'électrons comptés dans ces groupes de canaux, ce qui est utile pour le traitement statistique des données, en particulier en réduisant l'incertitude relative.

En pratique un enregistrement dure environ un quart d'heure durant lequel le jet doit être parfaitement stable. Pour obtenir une distribution angulaire on additionne de 4 à 15 enregistrements selon le nombre d'électrons par tour (de 150 à 2400). Le nombre d'enregistrements réalisés représente un compromis entre les difficultés expérimentales et la recherche du meilleur rapport signal sur bruit.

Pour chaque valeur de l'ellipticité que l'on choisit grâce à la lame quart d'onde, on renouvelle la série d'enregistrements.

4.4.5 Difficultés expérimentales

Electrons parasites

Une des difficultés expérimentales est de s'assurer que les électrons que l'on veut observer sont les seuls que l'on détecte. La technique du temps de vol permet de ne tenir compte que des électrons qui arrivent dans une plage temporelle déterminée. Grâce à elle on peut sélectionner un processus multiphotonique particulier.

Cependant, il existe d'autres sources d'électrons que nous appelons électrons parasites.

La première source possible de ces électrons parasites est due au détachement des ions par collision, à proximité de l'entrée du tube de temps de vol. Si l'on règle correctement le jet, il n'y a pas de collisions contre les parois à proximité du détecteur, par contre il existe toujours une certaine probabilité de collision avec le gaz résiduel (qui a une pression de 3 à $5 \cdot 10^{-5}$ Pa). Cependant, cette source d'électrons parasites n'est pas trop gênante car la plupart de ces électrons sont éliminés par la restriction de la fenêtre

temporelle du temps de vol.

Ces électrons parasites sont faciles à mesurer, il suffit de faire un enregistrement sans laser. Ils sont limités à quelques unités et sont isotropes.

La seconde source d'électrons parasites est due au laser qui peut ioniser le gaz résiduel, mais aussi et surtout éclairer une paroi métallique et produire une gerbe d'électrons.

Ce type d'électrons est moins bien éliminé par la restriction temporelle de détection puisque comme les électrons que l'on veut étudier, ils sont créés par l'impulsion laser, et donc presque simultanés.

Ils sont également plus difficiles à détecter dans la mesure où ils sont sensibles à la direction de polarisation du faisceau laser. On peut ainsi faire des réglages avec une certaine polarisation et ne plus en compter, et les voir réapparaître en changeant la position de la lame demi-onde. De plus, ces électrons ont une distribution angulaire propre.

Quand le laser fonctionne au mieux et que l'optique est correctement réglée, il est possible de faire disparaître totalement ces électrons parasites. En revanche, dès que le laser ne fonctionne plus très bien (points chauds, refocalisation...), alors il devient impossible de les éliminer.

Réglages et détection

Pour savoir si le laser croise correctement le faisceau d'ion, on dispose de la détection des atomes neutres détachés. On observe ce signal issu d'un multiplicateur d'électrons dans une plage temporelle déclenchée par l'impulsion laser, retardée du temps de vol des atomes entre la zone d'interaction et le détecteur. On évite ainsi de prendre en compte la plupart des ions neutres détachés par collision avec le gaz résiduel.

Cependant, optimiser le signal d'atomes neutres ne suffit pas toujours à trouver le meilleur comptage d'électrons. Il arrive en effet que la zone d'interaction ions-laser ne soit pas exactement sous l'ouverture du tube de temps de vol.

De même, maximiser le courant d'ions ne signifie pas toujours augmenter le taux de comptage des électrons. L'intensité du courant d'ions est mesurée à l'aide d'une coupe de Faraday. Comme l'illustre la figure 4.18, la meilleure focalisation du faisceau d'ion dans la zone d'interaction ne correspond pas forcément au maximum d'intensité détectée.

Comme le flux d'électrons compté est faible (au mieux quelques événements par secondes), pour faciliter l'estimation du taux de comptage, un "bip" sonore se fait entendre à chaque fois qu'un électron est compté. Malgré cette astuce, l'optimisation du taux de comptage reste délicate.

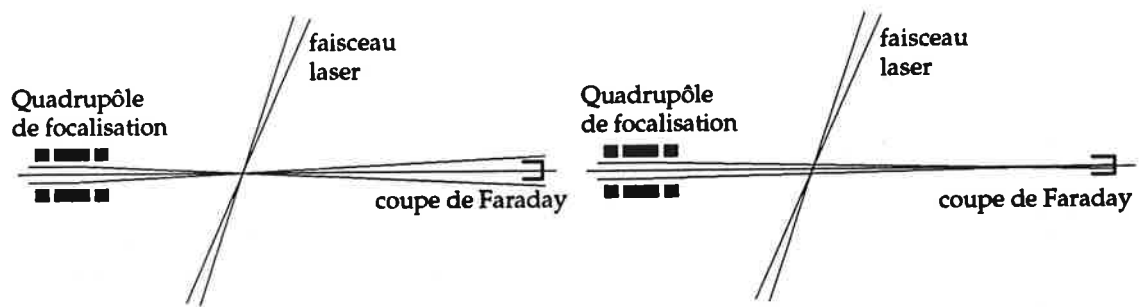


Figure 4.18: *A gauche le jet d'ions est focalisé sur la zone d'interaction avec le laser maximisant le signal de détachement, à droite le jet est focalisé sur la coupe de Faraday, ce qui donne la meilleure lecture de l'intensité.*

Chapitre 5

Compétition entre voies de détachement et effet pondéromoteur

5.1 Introduction

Le photodétachement d'un ion négatif se produit si l'énergie apportée par les photons absorbés est supérieure au seuil de détachement. Pour une énergie de photon et un ion donnés, il existe un nombre minimum de photons nécessaire au photodétachement.

Mais le photodétachement peut également se produire avec plus de photons que le minimum requis. C'est le phénomène de photodétachement avec photons en excès (EPD, Excess-photon detachment) mis en évidence en 1991 par Blondel *et al* [BLO91] puis par Stapelfeldt *et al* [STA91] et Davidson *et al* [DAV91].

En 1979 Agostini *et al* [AGO79] avaient observé le phénomène similaire d'ionisation au dessus du seuil (ATI: above threshold ionisation) dans le xénon c'est à dire d'ionisation avec un (ou plusieurs) photon(s) de plus que nécessaire.

L'étude de l'efficacité d'ionisation (ou de détachement) multiphotonique d'atomes au waist de faisceaux gaussiens a donné lieu à de nombreuses études théoriques [CHI70, CER75, BOU76]). La plupart de ces études s'intéressent à l'efficacité en fonction de l'éclairement, qui permet de déterminer des sections efficaces [BLO89a].

Quels que soient les "régimes" de détachement, on peut aisément induire que si l'on désire augmenter le signal de détachement multiphotonique, il faut augmenter l'éclairement.

La probabilité de détachement (ou d'ionisation) par n photons est proportionnelle à $\sigma_n I^n$ par unité de temps, σ_n est la section efficace du processus d'ordre n , et I , l'éclairement. Pour obtenir de meilleures chances d'observer des phénomènes d'ordre élevé, il faut l'éclairement le plus grand possible. Par exemple, si on augmente l'éclairement de 15%, la probabilité de détachement d'un phénomène à 5 photons est multipliée par 2 ($= 1,15^5$).

Expérimentalement, une fois la puissance maximale du laser atteinte, on peut jouer sur la focalisation du faisceau pour obtenir de plus grandes intensités.

En 1988, Sogard [SOG88] a étudié le phénomène sous cet angle nouveau, c'est à dire à énergie d'impulsion laser donnée, en faisant varier la taille du faisceau. Nous avons repris ce point de vue qui expérimentalement nous intéressait plus.

En focalisant plus fort le faisceau, on peut obtenir des éclaircissements plus intenses, et donc favoriser les phénomènes d'ordre plus élevé. Cependant, focaliser revient aussi à réduire le volume éclairé. Réduire le volume éclairé, c'est réduire le nombre d'ions détachables, ce qui concourt à diminuer le signal.

Il y a un compromis à trouver entre l'augmentation de l'intensité et la diminution du volume éclairé. A chaque ordre, ou voie de photodétachement, correspond une focalisation optimum. Ceci est traité de manière analytique dans le paragraphe 5.3 .

Dans la réalité, tous les ordres de détachement coexistent. Un ion peut être détaché dans n'importe laquelle des voies. Or, dans une impulsion laser, l'éclairement croît continument depuis zéro avant d'atteindre son maximum, et passe donc par de "faibles" valeurs où ce sont les phénomènes d'ordre le plus bas qui sont les plus probables. Ainsi avant même que l'éclairement du laser ait atteint une valeur pour laquelle le phénomène a un photon en excès est efficace, le phénomène d'ordre le plus bas peut avoir détaché tous les ions présents.

Pour calculer l'optimum de focalisation, il faut donc tenir compte de la compétition entre les différentes voies de détachement. Cela ne peut se résoudre que numériquement. Ce nouvel aspect est traité au paragraphe 5.4.

En outre, pour peu que l'énergie cinétique des photoélectrons ne soit pas trop importante, il peut y avoir fermeture de voie par effet pondéromoteur [MUL83]. Bien sûr, si une voie de détachement est fermée, les conditions de la compétition entre voies sont modifiées. Le paragraphe 5.5 détaille les effets que peut avoir la fermeture de voie par effet pondéromoteur.

Ce sont les ions négatifs de fluor qui se prêtent le mieux à l'étude des 3 phénomènes décrits ci-dessus en interaction les uns avec les autres. Trois photons issus de notre laser YAG:Nd ($\lambda = 1064.2$ nm) suffisent à détacher l'ion.

Les phénomènes d'ordres supérieurs (détachement à 4, 5 photons) peuvent également se produire avec des efficacités raisonnables, puisque l'éclairement crête de notre laser peut dépasser 10^{16} W.m^{-2} pour certaines valeurs de focalisation.

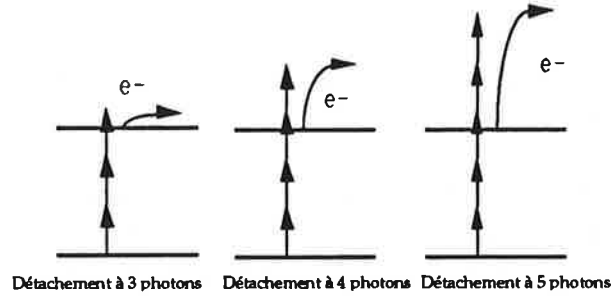


Figure 5.1: *Détachement à 3, 4 et 5 photons de F^- . $\sigma_3 I^3 = 1s^{-1}$ pour $I = 4, 7.10^{12} \text{ Wm}^{-2}$; $\sigma_4 I^4 = 1s^{-1}$ pour $I = 5, 5.10^{13} \text{ Wm}^{-2}$; $\sigma_5 I^5 = 1s^{-1}$ pour $I = 2, 6.10^{14} \text{ Wm}^{-2}$*

Mais trois photons n'apportent que 93 meV d'énergie cinétique à l'électron qu'ils détachent. Pour $I = 8, 8.10^{15} \text{ W m}^{-2}$, 93 meV ne sont plus suffisants, et 3 photons ne peuvent plus détacher F^- : c'est la fermeture de voie par effet pondéromoteur.

5.2 Cadre de l'étude

5.2.1 Caractéristiques du faisceau laser

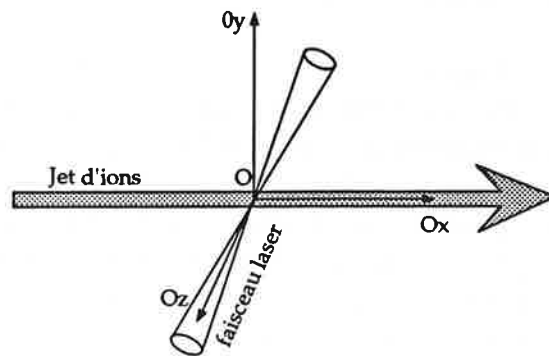


Figure 5.2: *L'origine du système est choisie au waist du faisceau laser qui se propage suivant l'axe Ox. Les ions se déplacent suivant Ox*

Nous avons supposé pour nos calculs, que le faisceau laser était gaussien, aussi bien spatialement que temporellement. L'intensité lumineuse s'écrit:

$$I(x, y, z, t) = I_M f(t) g(x, y, z) \quad (5.1)$$

I_M est l'intensité maximale (située au waist du faisceau gaussien). $f(t)$ et $g(x, y, z, t)$ sont les deux profils gaussiens qu'on peut écrire:

$$f(t) = \exp\left(\frac{-t^2}{\tau^2}\right) \text{ et } g(r, \xi) = \frac{1}{1 + \xi^2} \exp\left(\frac{-r^2}{\rho^2}\right) \quad (5.2)$$

où $r^2 = x^2 + y^2$, $\rho^2 = R^2(1 + \xi^2)$, $\xi = \frac{z\lambda}{2\pi R^2}$.

τ est la largeur temporelle de l'impulsion. R est le rayon du faisceau au waist. Il est lié au waist w_0 habituellement défini [KOG66], par la relation $R = w_0/\sqrt{2}$.

On peut constater que la répartition spatiale d'intensité $g(x, y, z)$, décroît exponentiellement perpendiculairement à la direction de propagation, alors que dans la direction de propagation elle décroît beaucoup plus lentement (lorentzienne).

θ , l'ouverture angulaire du faisceau dépend de la focalisation. Puisque $\theta \approx \tan \theta = \lambda/\pi w_0 = \sqrt{2}\lambda/\pi R$, le paramètre R dépend de la focalisation du faisceau. Or la focalisation d'un faisceau gaussien de rayon de waist w_1 de longueur de Rayleigh $Z_1 = \frac{\pi w_1^2}{\lambda}$ par une lentille de distance focale f située à la distance $e_1 + f$ du waist (cf figure 5.3)

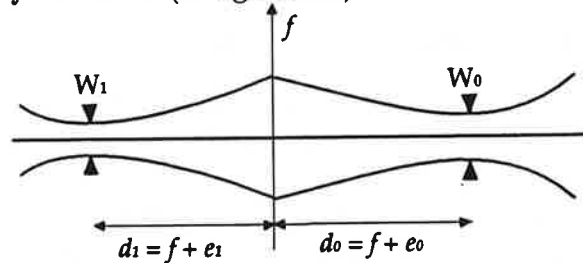


Figure 5.3: Schéma de la focalisation d'un faisceau gaussien de waist w_1 par une lentille de longueur focale f

se traduit par un rayon de waist w_0 tel que:

$$w_0 = \frac{w_1 f}{\sqrt{e_1^2 + Z_1^2}} \quad (5.3)$$

Donc le rayon $R = w_0/\sqrt{2}$ est proportionnel à la distance focale de la lentille. C'est pour cela que dans la suite des calculs, c'est le paramètre R que l'on fait varier, car expérimentalement, il est facile de changer la focalisation du faisceau en remplaçant la lentille.

5.2.2 Nombre d'ions détachés

Dans une expérience de détachement à n photons, si σ_n est la section efficace et I l'éclairement, l'évolution temporelle de la population (n_i) d'ions est régie par l'équation différentielle:

$$dn_i = -\sigma_n n_i I^n dt \quad (5.4)$$

Le nombre d'électrons émis est égal au nombre d'ions détachés, donc à la différence de la population d'ions initiale et de la population finale. On obtient comme probabilité pour un électron d'être éjecté à la fin de l'impulsion laser:

$$p = 1 - \exp(-P) \quad (5.5)$$

$$\text{où } P = \int_{-\infty}^{+\infty} \sigma_n I^n dt \quad (5.6)$$

Pour obtenir le nombre total d'électrons éjectés, il suffit d'intégrer sur le volume.

$$D = N \int \int \int_{-\infty}^{+\infty} [1 - \exp(-P)] dV \quad (5.7)$$

D est le nombre total d'électrons éjectés au cours d'une impulsion laser, N la densité d'ions.

5.2.3 Valeurs expérimentales

Le laser a pour longueur d'onde $1,0642 \mu\text{m}$. τ , la largeur temporelle a été mesurée à $8,6 \text{ ns}$. L'énergie par impulsion, E , est de l'ordre de $0,7 \text{ J}$ au niveau de la zone d'interaction.

On peut estimer N à $5 \cdot 10^{11}$ ions par m^3 , les ions ayant une vitesse $v = 1,1 \cdot 10^5 \text{ m/s}$, pour un jet de fluor de 50 nA , accéléré à $1,2 \text{ kV}$, d'une section de 5 mm^2 .

Les sections efficaces ont été tirées des calculs de M. Crance [CRA88]:

$$\begin{aligned} \sigma_3 &= 9,6 \cdot 10^{-39} \text{ s}^{-1} \text{ W}^{-3} \text{ m}^6 \\ \sigma_4 &= 1,0 \cdot 10^{-55} \text{ s}^{-1} \text{ W}^{-4} \text{ m}^8 \\ \sigma_5 &= 8,7 \cdot 10^{-73} \text{ s}^{-1} \text{ W}^{-5} \text{ m}^{10} \end{aligned}$$

5.2.4 Influence du mouvement des ions

Expérimentalement nous observons les photoélectrons détachés à partir d'ions en mouvement. Les ions F^- , ayant une énergie de $1,2 \text{ keV}$, parcourent environ un millimètre en 9 ns (durée approximative de nos impulsions laser),

ce qui est bien plus grand que la distance éclairée traversée, qui au waist de notre faisceau est toujours inférieure à 100 μm . Cela signifie que la population d'ions est renouvelée au cours du phénomène. La conséquence principale en est que le mouvement des ions "retarde" le phénomène de saturation.

Dans notre cas il est important de tenir compte de l'effet de mouvement. On peut le faire en remplaçant simplement x par $x_0 + vt$, où v est la vitesse des ions. Cela diminue le temps d'exposition de l'ion. La largeur temporelle de l'impulsion vue par l'ion ne sera plus τ mais $\tau \sqrt{\frac{\rho^2}{\rho^2 + v^2 \tau^2}}$ qui est inférieure à τ .

L'intégrale temporelle qui définit P equation 5.6 peut être calculée exactement. On obtient:

$$P = \sigma_n \left(\frac{I_M}{1 + \xi^2} \right)^n \left(\frac{\pi \rho^2 \tau^2}{n(\rho^2 + v^2 \tau^2)} \right)^{1/2} \exp\left[-n \left(\frac{x_0^2}{\rho^2 + v^2 \tau^2} + \frac{y^2}{\rho^2} \right)\right] \quad (5.8)$$

5.3 Les différents régimes de photodétachement d'ions en jet

Cette partie s'inspire de l'annexe de l'article de 1989 de Blondel *et al* [BLO89a], qui lui même s'appuie sur deux articles de Boulassier [BOU76] et Cervenán *et al* [CER75]. Les formules ont été réécrites en explicitant la dépendance en R , rayon du faisceau au waist.

5.3.1 Régime non-saturé dit "perturbatif"

Le régime non-saturé, ou régime perturbatif, est le régime où les intensités sont assez faibles pour qu'il n'y ait pas saturation, c'est à dire qu'on puisse négliger le phénomène de dépeuplement des populations d'ions. Dans ce cas, la probabilité de détachement reste faible, le signal de détachement va croître comme la puissance $n^{\text{ième}}$ de l'éclairement. Cela est vrai si $P < 1$. Pour que cette condition soit remplie, il faut que $I_M < I_S$ où I_S est l'intensité de saturation définie comme l'intensité pour laquelle $P = 1$ c'est à dire:

$$\sigma_n I_S^n \tau (\pi/n)^{1/2} = 1 \quad (5.9)$$

autrement dit:

$$I_S = \left(\sigma_n \tau \sqrt{\frac{\pi}{n}} \right)^{-1/n} \quad (5.10)$$

I_S est atteinte pour des valeurs de focalisation équivalant respectivement à $R = 80, 52, 36 \mu\text{m}$ pour le détachement à 3, 4, 5, photons.

Si I_M reste petit devant I_S , alors $P \ll 1$. On peut écrire:

$$1 - \exp(-P) \approx P \quad (5.11)$$

Avec cette approximation D se réécrit D_P (D "perturbatif"):

$$D_P = \int \int \int_{-\infty}^{+\infty} P dV \quad (5.12)$$

qui s'intègre analytiquement. On obtient:

$$D_P = \frac{2\pi^3 N R^4}{n\lambda} \frac{(2n-5)!!}{(2n-4)!!} \left(\frac{I_M}{I_S}\right)^n \quad (5.13)$$

On retrouve bien, comme attendu, que le signal de détachement croît comme la puissance $n^{\text{ième}}$ de I_M . Il reste à exprimer la dépendance en R .

Comme:

$$I_M = \frac{E}{\pi^{(3/2)} R^2 \tau} \quad (5.14)$$

D_P s'écrit finalement:

$$D_P(R) = \pi^{3-3n/2} \frac{2N}{n\lambda} \frac{(2n-5)!!}{(2n-4)!!} \left(\frac{E}{I_S \tau}\right)^n R^{4-2n} \quad (5.15)$$

Si on trace $D_P(R)$ sur un diagramme logarithmique, on obtient pour chaque voie de détachement une droite de pente $2(2-n)$, c'est à dire de pente -2, -4, -6 pour les détachements à 3, 4 et 5 photons. Les pentes sont décroissantes car plus R est petit et plus l'éclairement est fort, donc le détachement important dans le cadre du régime non-saturé ou régime perturbatif.

5.3.2 Régime saturé

Pour les grandes intensités, la plupart des photoélectrons sont produits par les ions situés dans les régions où P est plus grand que 1, c'est à dire là où tous les ions sont détachés. Le signal de détachement est dans ce cas proportionnel à la densité N multipliée par le volume V à l'intérieur duquel $P > 1$.

Il reste à déterminer V . On peut réécrire 5.8, en exprimant I_S . Il vient:

$$P = \left(\frac{I_M}{I_S(1+\xi^2)}\right)^n \left(\frac{\rho^2}{\rho^2 + v^2 \tau^2}\right)^{1/2} \exp\left[-n\left(\frac{x_0^2}{\rho^2 + v^2 \tau^2} + \frac{y^2}{\rho^2}\right)\right] \quad (5.16)$$

Le volume V est limité le long de l'axe (Ox) pour les $|\xi|$ plus petits que Z défini comme suit:

$$\left(\frac{I_M}{I_S(1+Z^2)}\right)^n \left(\frac{1+Z^2}{1+Z^2+a^2}\right)^{1/2} = 1 \quad (5.17)$$

où $a = v\tau/R$ est un paramètre qui tient compte du mouvement des ions. Dans le cas où l'on néglige le mouvement des ions ($a \ll 1$), la condition devient:

$$\frac{I_M}{I_S} = 1 + Z^2 \quad (5.18)$$

Si l'on se place dans le cas où la région de saturation est importante, c'est à dire $Z \gg 1$, alors on peut même écrire:

$$\frac{I_M}{I_S} = Z^2 \quad (5.19)$$

Le volume V ressemble à un sablier, composée de deux cônes de base circulaire. Son volume est égal à $\frac{8}{9}\pi^2 R^4 Z^3/\lambda$. On en déduit que:

$$D_S = \frac{8}{9}\pi^2 \frac{NR^4}{\lambda} \left(\frac{I_M}{I_S}\right)^{3/2} \quad (5.20)$$

Cette formule a été établie par différents auteurs (Cervenak et Isenor [CER75], Boulassier [BOU76]). L'Huillier *et al* [LHU83] ont vérifié expérimentalement cette dépendance en $I_M^{3/2}$. On peut l'écrire comme:

$$D_S = \frac{8}{9\pi^{1/4}} \frac{N}{\lambda} \left(\frac{E}{I_S\tau}\right)^{3/2} R \quad (5.21)$$

5.3.3 Régime intermédiaire

L'approximation $Z \gg a$, ne s'applique pas à notre cadre d'expérience. En effet, les ions fluor sont relativement rapides et la durée de l'impulsion du laser relativement longue. La figure 5.4 représente en diagramme logarithmique l'évolution des paramètres Z et a en fonction de R .

Pour des valeurs de R inférieures à $10 \mu\text{m}$, on a $Z \gg 1$. a est largement supérieur à Z . En négligeant 1 devant Z et a on peut écrire:

$$\frac{I_M}{I_S} = a^{1/n} Z^{(2n-1)/n} \quad (5.22)$$

Le volume vaut environ $a\pi^2 Z^2 \frac{2n-1}{n} \frac{R^4}{\lambda}$ (cf [BLO89a][A.13]). L'équation 5.17 se réécrit:

$$D_I = \pi^2 a^{(2n-3)/(2n-1)} \frac{2n-1}{n} \frac{NR^4}{\lambda} \left(\frac{I_M}{I_S}\right)^{2n/(2n-1)} \quad (5.23)$$

D'où en explicitant la dépendance en R :

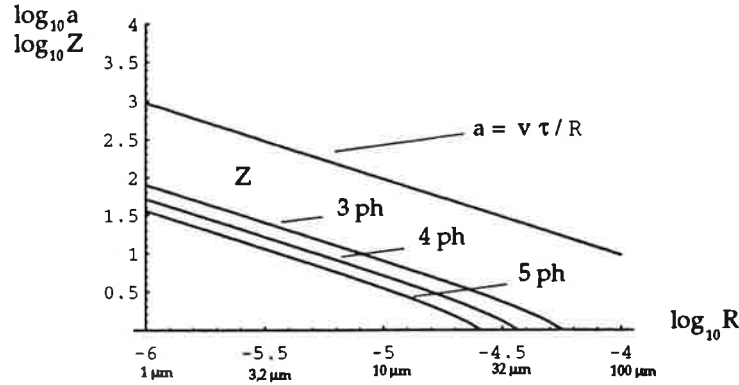


Figure 5.4: a et Z en fonction de R . En abscisse est représenté $\log_{10}(R)$ où R est exprimé en μm . Ici R varie entre 1 et 100 μm . En ordonnée sont représentés $\log_{10}(Z)$ (pour 5, 4, et 3 photons) et $\log_{10}(a)$.

$$D_I(R) = \pi^{(n-2)/(2n-1)} (v\tau)^{(2n-3)/(2n-1)} \frac{2n-1}{n} \frac{N}{\lambda} \left(\frac{E}{\tau I_S} \right)^{2n/(2n-1)} R \quad (5.24)$$

Si l'on trace $D_I(R)$ sur un diagramme logarithmique, on obtient une droite de pente 1, et ce, quel que soit l'ordre du processus.

5.3.4 Comparaison des calculs numériques avec les prévisions analytiques

Calculer numériquement D d'après la formule 5.7 ne pose pas de problèmes particuliers. On peut donc confronter ce calcul numérique aux régimes asymptotiques perturbatif et intermédiaire (le régime saturé, quant à lui, ne peut pas être observé avec nos types d'impulsions lasers).

$R = 10 \mu\text{m}$ est obtenu, en pratique (avant le changement des miroirs: cf 4.3.3), avec une lentille de 12,5 cm de longueur focale, et $R = 100 \mu\text{m}$ est réalisé pour $f = 125 \text{ cm}$.

On constate figure 5.5 qu'il existe bien des valeurs de R pour lesquelles le détachement est maximal. Plus l'ordre du phénomène est élevé et plus la valeur optimale de R est petite. Ce n'est pas surprenant si l'on se rappelle que l'intensité maximale varie en $1/R^2$ et que plus le phénomène est d'ordre élevé, plus il est favorisé par un fort éclaircissement.

On constate également que D_P est bien l'asymptote des courbes calculées numériquement. A faible intensité, le régime perturbatif est une excellente approximation. En revanche, pour les petites valeurs de R , D_I semble sous estimer le phénomène de photodétachement.

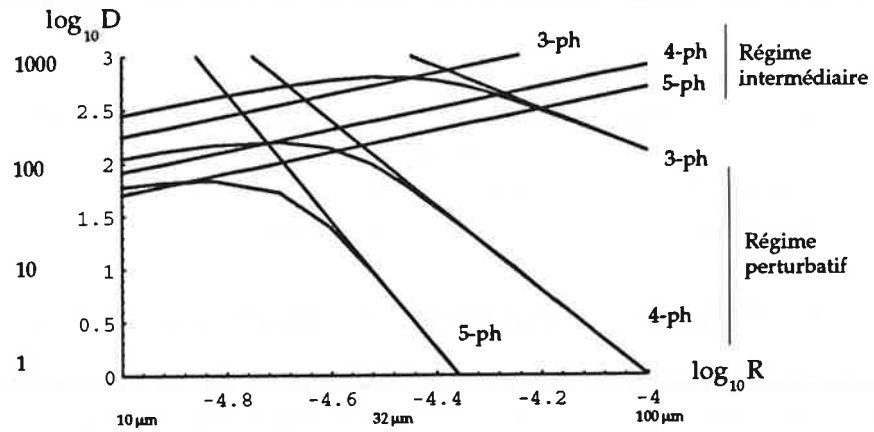


Figure 5.5: Comme pour toutes les figures $D(R)$ de ce chapitre, ce diagramme est logarithmique (à base 10). En abscisse est représenté R (en m) qui varie ici de 10 à $100\mu m$. En ordonnée est représenté le nombre d'électrons détachés, variant de 1 à 1000 . Le diagramme représente le nombre d'électrons détachés par 3 , 4 et 5 photons, en fonction de R . Les droites sont l'expression de D_I et D_P , et les courbes les résultats numériques issus de l'équation 5.7.

On peut se demander si même à $R=10 \mu m$ on est bien pleinement dans le régime intermédiaire. Bien que nous ne puissions atteindre de si petites valeurs de R , nous avons étendu les calculs vers les faibles valeurs de R , afin d'observer le comportement asymptotique des courbes

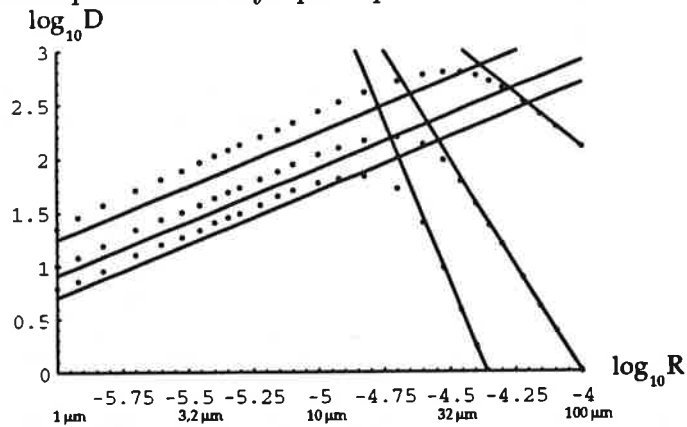


Figure 5.6: Idem à la figure précédente mais R varie de 1 à $100 \mu m$.

On constate figure 5.6 qu'effectivement les courbes obtenues par le calcul se rapprochent lentement des droites.

Dans l'approximation qui conduit à obtenir D_I , on ne considère que les régions où $P \gg 1$. Or cette condition n'est pas réalisée partout, même pour

de très fortes focalisations. En effet sur les "bords" du faisceau l'intensité n'est pas assez grande pour remplir la condition et il y a pourtant bien production d'électrons dont on ne tient pas compte. Cela explique peut être pourquoi l'approximation menant à D_I ne concorde pas avec les calculs numériques, même pour des valeurs de R très petites.

5.3.5 Effet de troncature dû au diamètre du jet d'ions

L'extension spatiale de la zone des éclaircissements élevés est beaucoup plus importante selon l'axe z que dans les autres directions. En effet la décroissance de l'éclaircissement suivant z est lorentzienne alors qu'elle est gaussienne suivant x et y .

La densité supposée de $5 \cdot 10^{11}$ ions par m^3 n'emplit pas tout l'espace, le jet d'ions a un volume fini. Il convient donc, si l'on veut prétendre reproduire la réalité, de ne tenir compte de la production de photoélectrons que sur une distance finie, ce qui est particulièrement sensible selon z . Sogard [SOG88] l'avait déjà montré et étudié en 1988.

Il faut limiter le domaine d'intégration au diamètre du jet (ce que nous avons appelé "troncature"). J'ai donc refait les mêmes calculs mais en ne prenant en compte que la région de l'espace située dans un cube de 2 mm de côté centré sur l'origine. Les résultats sont représentés graphiquement figure 5.7.

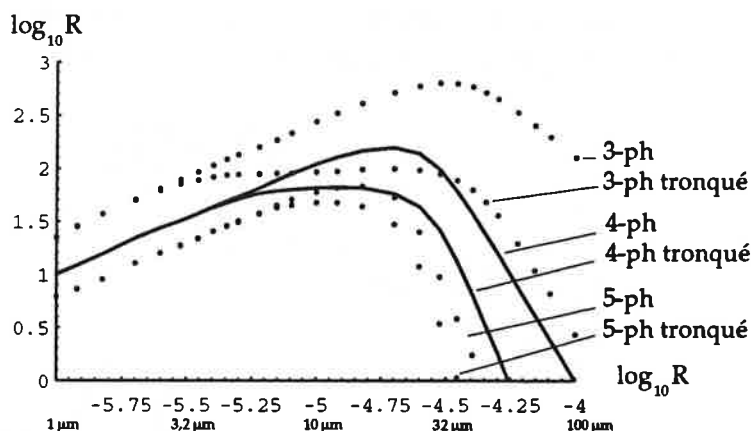


Figure 5.7: $D(R)$ en tenant compte et sans tenir compte de l'effet de troncature.

L'effet de troncature disparaît pour les faibles valeurs de R (les courbes se "rejoignent"). En effet, l'éclaircissement décroît beaucoup plus vite spatialement pour de faibles valeurs de R . Pour ces valeurs l'intensité à la cote $z = 1$ mm est déjà trop faible pour qu'un nombre significatif d'électrons soient détachés. L'essentiel du processus est contenu dans le cube autour de l'origine.

L'effet de troncature est surtout important pour des valeurs de R grandes. Sans troncature, la relative faiblesse d'intensité est compensée par la grande taille du volume éclairé et l'efficacité du détachement est en partie conservée. Lorsqu'on limite le volume, on réduit sérieusement le nombre d'événements.

On peut remarquer que, plus l'ordre du phénomène est élevé, plus l'effet de troncature apparaît pour une grande valeur de R . Il faut moins de $R = 2,5 \mu\text{m}$ pour que l'effet de troncature disparaisse pour le phénomène à 3 photons, alors que $R = 5 \mu\text{m}$ suffit pour le phénomène d'ordre 4.

Ceci s'explique par le fait que plus le phénomène est d'ordre élevé et plus il faut de grandes intensités. Les éclaircissements nécessaires pour les phénomènes d'ordre élevé sont confinés autour de l'origine, et ne sont donc que peu sujets à l'effet de troncature.

5.4 Compétition de voies de photodétachement

5.4.1 Mise en évidence

Les calculs précédents, (en tenant ou sans tenir compte de la troncature) supposent que les 3 phénomènes (détachement par 3, 4, 5 photons) sont indépendants. Or évidemment les trois phénomènes coexistent, et comme ils agissent sur la même population d'ions, leur évolution est couplée et devrait tenir compte des trois voies.

Le phénomène de compétition de voies de détachement ne doit pas être très sensible en régime perturbatif. En effet, pour ce régime, on suppose que le détachement ne dépeuple pas (beaucoup) la population d'ions initiale.

En revanche, dès qu'on entre dans le régime de saturation, on peut être certain qu'il y aura compétition de voies, puisque le nombre total d'ions détachables est limité. Les photoélectrons vont se répartir dans les trois voies.

Dans un premier temps, on peut se contenter de la compétition des deux premières voies de détachement. L'évolution de population est alors décrite par:

$$\begin{aligned} dn_3 &= \sigma_3 I^3 (N - n_3 - n_4) dt \\ dn_4 &= \sigma_4 I^4 (N - n_3 - n_4) dt \end{aligned} \quad (5.25)$$

où n_i est le nombre d'ions détachés par i photons qui est initialement nul. C'est cette condition aux limites qui permet de trouver une solution au système d'équations.

Nous avons résolu numériquement ce système pour $R=32\mu\text{m}$ et à l'origine ($x_0 = y_0 = z_0 = 0$), car c'est là que se situent les plus fortes intensités. Dans

ces conditions, on est sûr que la voie de détachement à 3 photons est dans le régime de saturation. Le résultat de ces calculs est représenté figure 5.8.

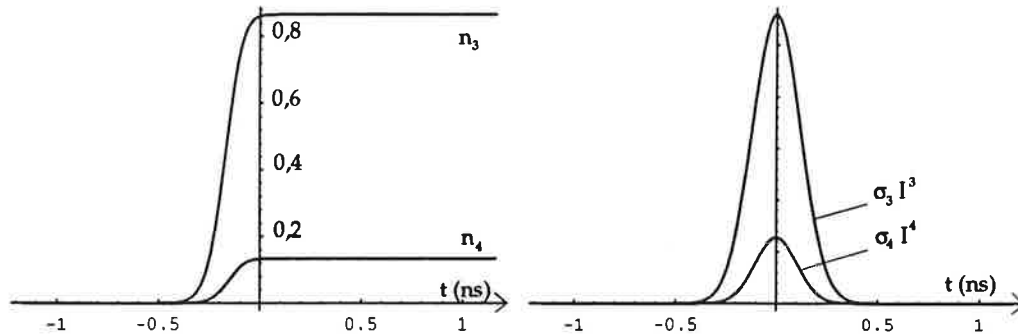


Figure 5.8: *a gauche: Evolution temporelle (en ns) des populations n_3 et n_4 . A droite: $\sigma_3 I^3$ et $\sigma_4 I^4$ (unités arbitraires) en fonction du temps (en ns). Les deux courbes sont calculées à l'origine pour $R = 32 \mu\text{m}$.*

Ces graphiques illustrent bien l'influence de la voie de détachement à 3 photons sur la voie de détachement à 4 photons. En effet, n_4 (n_3 aussi) arrête de croître avant que l'éclairement ne soit retombé à 0, ce qui s'explique par le fait que tous les ions ont déjà été détachés par l'autre voie.

5.4.2 Compétition des voies de détachement par 3 et 4 photons

On peut directement obtenir le nombre d'électrons détachés dans chaque voie en résolvant le système différentiel couplé 5.25. En effet, n_i à $t = \infty$ correspond au nombre d'électrons détachés par i photons. Il suffit alors d'intégrer le tout sur le volume (tronqué). Vu la quantité de calculs, ces estimations ont été menées avec une précision plus faible, c'est à dire avec des pas d'intégrations ajustables plus grands. L'imprécision résultante sur le graphique est au plus de l'ordre de grandeur de la taille des points.

Les résultats de ces calculs sont présentés figure 5.9.

Lorsque le phénomène à 3 photons quitte le régime perturbatif (c'est à dire qu'il commence à saturer car la probabilité P devient de l'ordre de 1), on observe moins de photoélectrons issus du phénomène d'ordre 4. Il y a compétition de voies.

On constate qu'il était important de tenir compte de la compétition de voies car la production de photoélectrons détachés par 4 photons est réduite de plus d'un facteur 5 pour R inférieur à $30 \mu\text{m}$.

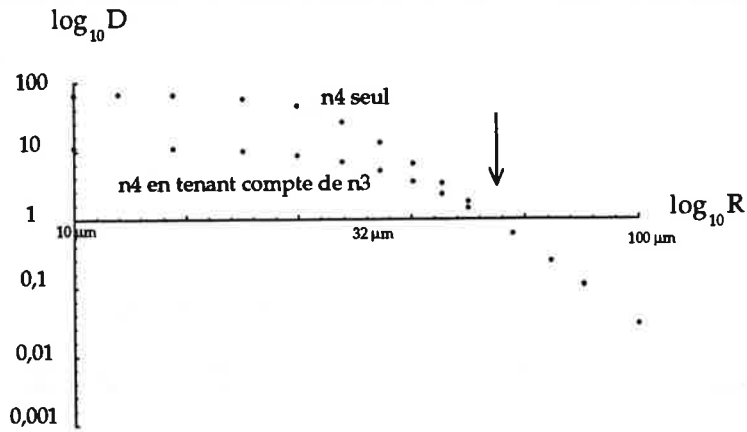


Figure 5.9: Diagramme $D(R)$. Nombre d'électrons détachés par 4 photons en tenant et sans tenir compte du phénomène à 3 photons. La flèche indique le point où le phénomène à 3 photons quitte le régime perturbatif.

5.5 Effet pondérateur

Un électron dans un champ électrique oscillant subit une force:

$$\vec{F} = q \vec{E} \cos \omega t \quad (5.26)$$

q est la charge électrique de l'électron, \vec{E} est l'amplitude du champ électrique, ω sa pulsation.

Soumis à cette force, l'électron oscille et acquiert l'énergie cinétique moyenne:

$$E_c = U_p = \frac{q^2 E^2}{4m_e \omega^2} \quad (5.27)$$

où m_e est la masse de l'électron. U_p est appelée énergie pondératrice. Pour détacher l'édifice atomique, il faudra non seulement lui apporter l'énergie de détachement, mais il faudra en plus lui fournir l'énergie pondératrice (on suppose que l'électron détaché oscille librement). Le seuil de détachement va donc être décalé de la quantité U_p : c'est l'effet pondérateur. Si l'effet pondérateur déplace suffisamment le seuil pour que l'énergie apportée par les photons ne suffise plus au détachement on dit qu'il y a fermeture de voie.

5.6 Fermeture de voie par effet pondérateur

5.6.1 Mise en évidence de l'effet de fermeture de voie

Pour le fluor négatif, 3 photons suffisent pour détacher un électron. Cependant ils n'apportent à ce dernier que 93 meV d'énergie excédentaire. Pour

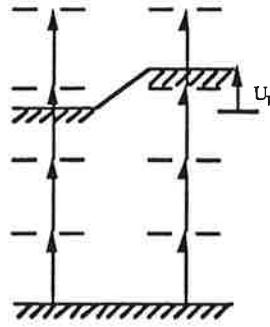
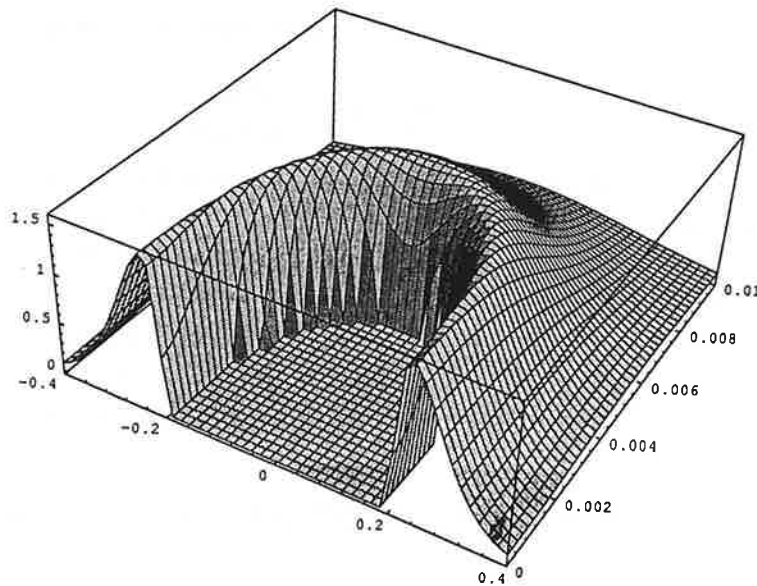


Figure 5.10: Fermeture de la voie à 3 photons par effet pondéromoteur.

$I = 8,8 \cdot 10^{15} \text{ Wm}^{-2}$, on prévoit la fermeture de la voie de détachement à 3 photons par effet pondéromoteur. Or les intensités produites par notre laser peuvent dépasser cette valeur, il faut donc tenir compte de l'effet pondéromoteur dans nos calculs. D'après le loi de Wigner au seuil, $\sigma_3 \propto \sqrt{\epsilon}$ où ϵ est l'énergie au dessus du seuil. Soit σ_{3T} la section efficace tenant compte de l'effet pondéromoteur, on a de même $\sigma_{3T} \propto \sqrt{\epsilon - U_p}$ ce qui donne finalement:

$$\sigma_{3T} = \sigma_3 \mathfrak{R} \left[\sqrt{1 - \frac{U_p}{\epsilon}} \right] = \sigma_3 \mathfrak{R} \left[\sqrt{1 - \frac{I}{\alpha}} \right] \text{ avec } \alpha = \frac{8\pi^2 m_e c \epsilon}{\mu_0 q^2 \lambda^2} \quad (5.28)$$


 Figure 5.11: $\sigma_{3T} I^3$ (u.a.) en fonction de t variant de 0.4 ns autour de l'origine, et z (en mètre) variant de 0 à 1cm.

On constate figure 5.11 que la carte de probabilité de détachement change considérablement quand on tient compte de la fermeture de voie. On peut noter à nouveau qu'il est important de "tronquer" le calcul car au delà de $z = 1$ mm la probabilité de détachement est encore importante.

On peut à nouveau résoudre numériquement le système différentiel couplé 5.25 d'évolution des populations en substituant σ_{3T} à σ_3 , pour $R=32\mu\text{m}$, à l'origine. Le résultat est illustré figure 5.12.

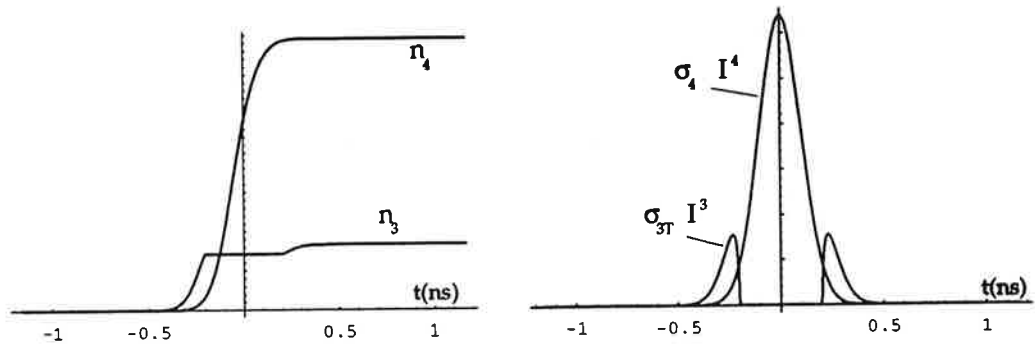


Figure 5.12: A gauche: Evolution temporelle (en ns) des populations n_3 et n_4 , tenant compte de la fermeture de voie. A droite: $\sigma_{3T} I^3$ et $\sigma_4 I^4$ (unités arbitraires) en fonction du temps (en ns). Les deux courbes sont calculées à l'origine pour $R = 32 \mu\text{m}$.

L'effet de la fermeture de voie est très important. En effet après l'impulsion laser il y a plus d'électrons détachés par 4 photons que par trois photons, contrairement au résultat obtenu dans le modèle sans fermeture de voie. On peut remarquer que le processus entier n'atteint pas la saturation, c'est à dire qu'il reste des ions à détacher puisqu'à la fin de l'impulsion laser des photoélectrons sont de nouveau produits dans la voie à 3 photons. Pourtant, à $R = 32 \mu\text{m}$ le phénomène à quatre photons a déjà quitté le régime perturbatif. Mais quitter le régime perturbatif ne signifie pas forcément détacher tous les ions. "Saturation" signifie simplement que l'on doit tenir compte de la diminution de population pour estimer le signal.

5.6.2 Influence de la fermeture de voie sur D_4

Pour obtenir le signal de détachement il suffit d'intégrer $n_4(t = \infty)$ sur le volume tronqué. La figure 5.13 montre le résultat de cette intégration.

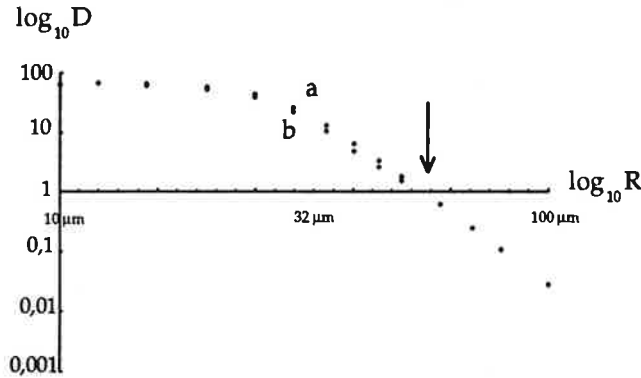


Figure 5.13: *Diagramme $D(R)$. Nombre d'électrons détachés par 4 photons: a) en sans tenir compte du phénomène à 3 photons b): en tenant compte du phénomène à 3 photons avec fermeture de voie. La flèche indique l'endroit où le phénomène à 3 photons quitte le régime perturbatif.*

On observe toujours bien le début de la compétition de voies quand le phénomène d'ordre 3 quitte le régime perturbatif, mais par la suite la fermeture de voie annule progressivement l'effet de compétition. A $R = 12 \mu\text{m}$ la présence du processus à 3 photons n'influe quasiment plus sur la production d'électrons détachés par 4 photons.

Tenir compte de la compétition entre voies de photodétachement et de la fermeture de la voie d'ordre trois par effet pondéromoteur est presque similaire à considérer que le phénomène d'ordre 4 se produit en l'absence du phénomène d'ordre 3. On peut penser que les mesures de σ_3 auraient dûes tenir compte du phénomène de fermeture de voie.

Pour $R = 32 \mu\text{m}$ (nos conditions expérimentales), il y a un facteur 5 entre D_4 obtenu en tenant compte de la fermeture de voie d'ordre 3, et D_4 obtenu sans en tenir compte. Si l'on en croit le calcul, un électron sur 5 correspond bien au phénomène de photon en excès dans le cas de F^- détaché par 4 photons et 4 électrons sur 5 sont produits en l'absence du phénomène à 3 photons.

5.6.3 Influence de la compétition de voie sur le processus d'ordre 5

Pour étudier l'évolution des 3 voies de détachement, il suffit d'introduire n_5 , la population d'ions détachée par 5 photons dans le système différentiel couplé 5.25, ce qui s'écrit:

$$\begin{aligned} dn_3 &= \sigma_3 I^3 (N - n_3 - n_4 - n_5) dt \\ dn_4 &= \sigma_4 I^4 (N - n_3 - n_4 - n_5) dt \\ dn_5 &= \sigma_5 I^5 (N - n_3 - n_4 - n_5) dt \end{aligned} \quad (5.29)$$

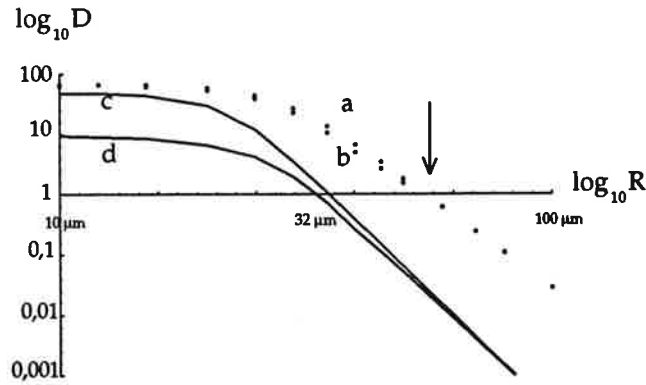


Figure 5.14: *Diagramme $D(R)$. Nombre d'électrons détachés par 4 (points) et 5 (traits) photons avec (b,d) et sans compétition de voie (a,c). La compétition tient compte de la fermeture de voie à 3 photons. La flèche indique le point où le phénomène à 3 photons quitte le régime perturbatif.*

On constate figure 5.14 que même pour les valeurs de R où se produit la fermeture de la voie à 3 photons, la production d'électrons détachés par 5 photons est amoindrie par la présence des deux autres voies de détachement.

Les photoélectrons de la voie à 5 photons sont essentiellement produits dans une région proche de l'origine, justement là où la fermeture de la voie à 3 photons est effective. C'est donc sûrement le phénomène à 4 photons qui dépeuple les populations d'ions proches de l'origine, avant que le phénomène d'ordre 5 ne soit efficace.

Pour le phénomène d'ordre 5 la fermeture de voie à 3 photons n'est donc pas capable de compenser la compétition de voies.

5.7 Conclusion

Ces calculs montrent que le détachement par 4 photons peut être considéré comme quasi indépendant des autres voies de photodétachement. Pour confirmer la mesure de σ_3 , il faudrait tenir compte de la fermeture de voie.

La mesure de distributions angulaires d'électrons détachés de F^- par 5 photons de $1,064 \mu\text{m}$ semble très difficile à réaliser dans nos conditions expérimentales. Le signal de détachement dans la voie d'ordre 5, déjà faible, est diminué par la compétition de voie.

L'intérêt d'enregistrer des distributions angulaires à 5 photons en polarisation elliptique est cependant renforcé par le fait que les électrons détachés par 4 photons (phénomène à un photon en excès) sont produits, 4 fois sur 5, alors que la voie d'ordre 3 est fermée par effet pondéromoteur.

Chapitre 6

Analyse des résultats

6.1 Détachement par 3 photons de I^- en lumière elliptique

6.1.1 Résultats obtenus antérieurement avec I^-

Avant cette étude de la distribution angulaire du photodétachement de l'iode en lumière elliptique dans l'infrarouge, le groupe avait déjà mesuré la section efficace totale de I^- [BLO89a]), ainsi que la distribution angulaire en lumière polarisée rectilignement [BLO92].

La distribution angulaire du détachement de l'iode négatif par deux photons de 532 nm, en lumière polarisée elliptiquement a déjà été réalisée [BLO93b].

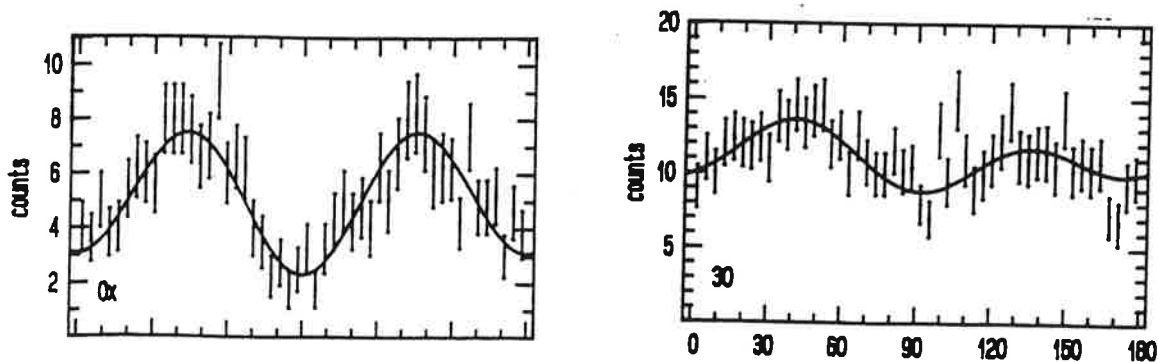


Figure 6.1: *Distribution angulaire de I^- détaché par deux photons de 532 nm en lumière polarisée rectiligne et en lumière elliptique: $\xi = 40^\circ$.*

La comparaison des deux distributions sur la figure 6.1 montre que les deux maximums ne sont plus à la même hauteur pour l'enregistrement en

lumière polarisée elliptiquement ($\xi = 40^\circ$). Cette propriété caractérise une asymétrie de la distribution angulaire en polarisation elliptique dans le cas du détachement à deux photons. L'objet de l'expérience de détachement à trois photons de I^- est de savoir si cette propriété se vérifie dans ce cas.

6.1.2 Conditions expérimentales

Les enregistrements des distributions angulaires de I^- détaché par trois photons en lumière elliptique ont été réalisés en mai 93, avec le laser dans sa configuration non gaussienne. La lentille avait une longueur focale de 30 cm.

Obtenir 15 à 30 nA de jet d'iode négatif ne nous a pas posé de difficultés. Ces intensités étaient très suffisantes pour obtenir un bon signal. En effet, l'iode a une section efficace relativement grande, principalement parce qu'il est le plus gros des halogènes.

Nous avons obtenu un taux de comptage de 800 à 2400 électrons par enregistrement. 2400 électrons par tour, correspondent à 0.34 électron détecté par coup de laser. Or notre système ne peut détecter qu'un électron par impulsion laser. Nous étions donc proches de la saturation, ce qui nous a encouragés à réduire la tension d'accélération entre la zone d'interaction et le tube de temps de vol à 1,5V pour certains enregistrements.

La seule difficulté expérimentale que nous avons rencontrée a été d'éliminer les électrons parasites par un réalignement adéquat du laser dans la zone d'interaction.

Ces conditions favorables nous font estimer que le rapport signal sur bruit de nos enregistrements est supérieur à 100.

6.1.3 Résultats expérimentaux

Courbes expérimentales

Nous avons enregistré les distributions angulaires du détachement de l'iode négatif par 3 photons pour 6 valeurs différentes d'ellipticité. Nous avons fait varier ξ de 0° (polarisation rectiligne) à -60° .

Nous n'avons enregistré que les électrons d'une énergie cinétique de 431.5 meV, qui laissent l'atome dans l'état $^2P_{3/2}$. Le tube de temps de vol est en effet suffisamment sélectif pour séparer les électrons laissant les cœurs neutres dans l'un des deux états de structure fine de l'iode.

Nous n'avons pas enregistré de distribution angulaire avec un angle d'ellipticité supérieur à 60° pour conserver une distribution au contraste significatif par rapport aux fluctuations de comptage. En effet, avec l'augmentation de ξ (jusqu'à 90°), on peut s'attendre à une diminution de contraste puisque

pour $\xi = 90^\circ$ (polarisation circulaire) on obtient une distribution isotrope (constant).

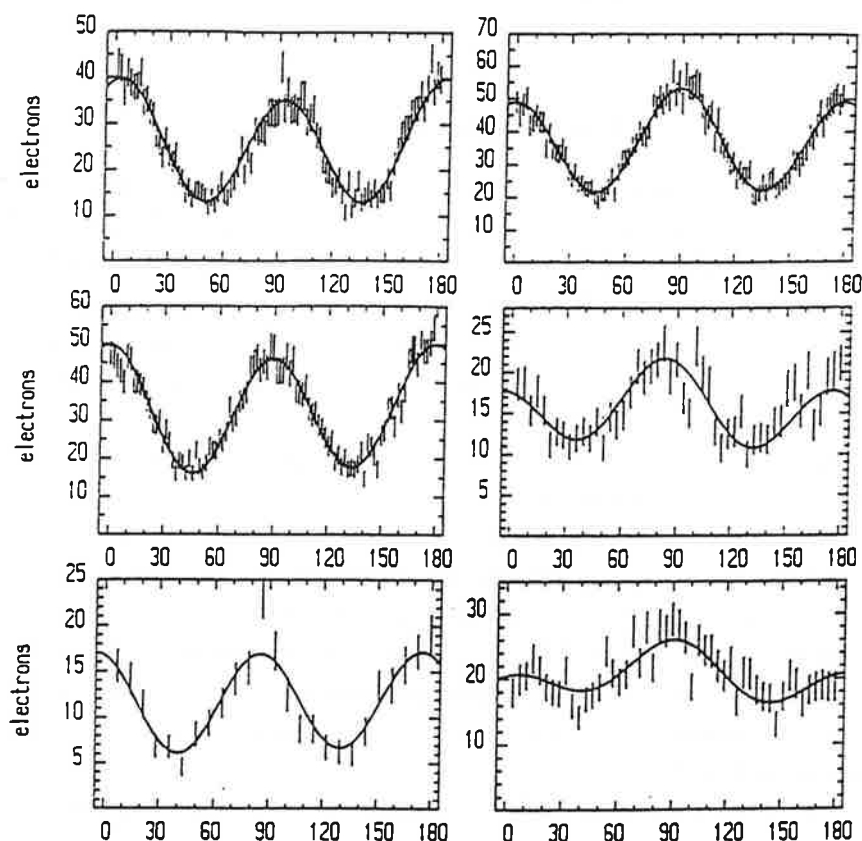


Figure 6.2: Distributions angulaires de I^- détaché par 3 photons de 1064 nm, pour a: $\xi = 0^\circ$, b: -12° , c: -20° , d: 30° , e: 46° et f: -60° .

Analyse qualitative

Au premier coup d'œil aucune asymétrie n'est apparente. En effet, les minima restent sensiblement à la même hauteur. On aperçoit tout de même un décalage pour les plus grandes valeurs de ξ , mais cela est dû en grande partie à la courbe continue. On peut ajuster cette distribution de manière très satisfaisante, sans pour autant faire apparaître ce décalage, .

Avec l'accroissement de l'ellipticité, nous assistons bien à la transition de la distribution en polarisation rectiligne (déjà connue), vers la distribution

isotrope (pour la polarisation circulaire). Ce phénomène se manifeste essentiellement par la diminution du contraste: les maxima et les minima sont de moins en moins marqués.

On constate que le pic principal (pic dans la direction principale du champ électrique c'est à dire du grand axe de l'ellipse (autour de $\theta = 0^\circ$)) diminue avec l'ellipticité. Il décroît au point de devenir plus petit que le pic secondaire. La direction principale du champ électrique, ne correspond donc pas toujours au maximum d'émission, contrairement au résultat donné par le modèle classique de l'électron élastiquement lié. Ce phénomène a déjà été observé par exemple dans la distribution angulaire du fluor détaché par 3 photons de 1064 nm.

L'atténuation du pic principal n'est pas une simple diminution de contraste, puisque ce pic devient moins marqué que le pic secondaire. Cette diminution relative du pic principal dans nos mesures est une signature de la cohérence du phénomène.

6.1.4 Analyse quantitative

Formule et paramètres d'ajustement

La forme analytique du détachement de l'iode par trois photons en lumière elliptique est donnée par la formule générale 3.28 déjà établie au chapitre 3. Elle s'écrit dans ce cas particulier:

$$\begin{aligned} \mathcal{A}_\xi^{(3)}(\theta) = & Z[\alpha_{00} + \alpha_{02} \cos^2 \xi \\ & + (\alpha_{11} \cos \xi + \alpha_{13} \cos^3 \xi) \cos 2\theta + \alpha_{12} \cos \xi \sin \xi \sin 2\theta \\ & + \alpha_{22} \cos^2 \xi \cos 4\theta + \alpha_{23} \cos^2 \xi \sin \xi \sin 4\theta \\ & + \alpha_{33} \cos^3 \xi \cos 6\theta] \end{aligned} \quad (6.1)$$

Nous allons déterminer les 8 paramètres α , en ajustant par la formule précédente nos 6 enregistrements. Il est important de préciser que les 6 séries de mesures sont traitées simultanément. Les courbes d'ajustements que l'on peut voir sur chacun des 6 graphiques de la figure 6.2, ne sont pas calculées avec les seuls points de chaque graphique, mais sont le fruit d'un traitement unique des 6 jeux de données.

Aux 8 paramètres d'ajustements α , il faut rajouter 6 facteurs de normalisation. Comme chaque enregistrement a son propre nombre d'électrons comptés, il faut ajouter un paramètre de normalisation pour chaque jeu de données.

Nous avons de plus ajouté 6 paramètres ajustables correspondant aux origines angulaires de chaque enregistrement. En effet, les trajectoires des électrons

sont légèrement déviées par le moindre champ électrique ou magnétique résiduel. L'angle θ que nous mesurons est en fait l'addition de l'angle réel entre la direction de polarisation et la direction de détection, et d'un petit décalage éventuel produit par la déformation de la trajectoire de l'électron.

Les champs résiduels peuvent varier légèrement d'un jour à l'autre et suivant les réglages. Il convient donc de rajouter, pour chaque enregistrement, un paramètre de décalage angulaire.

Il semble, à première vue, que ces nouveaux paramètres puissent perturber le rapport entre les termes en sinus et les termes en cosinus. En effet, le rapport entre un sinus et un cosinus à $\theta = 0^\circ$ est nul, et devient non nul avec un léger décalage. Heureusement, comme la fréquence angulaire 4θ est uniquement représentée par un cosinus, on peut déterminer exactement l'origine absolue. Il faut toutefois veiller à ce que le coefficient de $\cos 4\theta$ soit suffisamment grand pour être significatif et ainsi désigner précisément l'origine angulaire absolue.

Ajustements

Nous avons ainsi effectué l'ajustement et obtenu un χ^2 de 1.122; cette valeur satisfaisante légitime la possibilité d'ajuster les 6 enregistrements simultanément grâce à la formule 3.28 établie au chapitre 3.

Les paramètres α sont donnés par la seconde ligne du tableau 6.1.

Iode	α_{00}	α_{02}	α_{11}	α_{13}	α_{22}	α_{33}	α_{12}	α_{23}	χ^2
<i>complet</i>	1.77	-0.70	-0.62	0.73	0.52	-0.01	0.06	-0.84	1.122
<i>pairs</i>	0.87	0.20	-0.45	0.54	0.53	-0.01			1.143

Tableau 6.1: Paramètres elliptiques normalisés du détachement par 3 photons d'I⁻. La ligne "complet" regroupe les paramètres issus d'un ajustement avec tous les paramètres. La ligne "pairs" regroupe les paramètres issus d'un ajustement avec les termes impairs gelés à 0.

On constate que le terme α_{33} est petit. Or ce terme est essentiel dans la détermination de l'origine angulaire, qui est donc peu précise. Effectivement les corrections d'origine angulaire vont jusqu'à -18° pour le cas $\xi = 46^\circ$, correction trop importante pour être admissible.

Aussi, pour vérifier si les termes impairs ont réellement une importance, nous les avons gelés à 0, c'est à dire réalisé un ajustement uniquement avec les termes pairs.

Les valeurs des paramètres α obtenues sont données dans la troisième ligne du tableau précédent. Le χ^2 obtenu est de 1.14, ce qui est presque aussi

bon que pour le précédent ajustement. Cependant les variations d'origines angulaires sont beaucoup plus petites, la déviation maximale ne valant ici que -6° . Ce dernier argument nous fait définitivement penser que l'ajout des termes impairs dans la formule d'ajustement n'apporte pas d'amélioration significative.

On peut toutefois s'étonner de l'importance des différences entre les mêmes paramètres pairs α_{00} , α_{02} , α_{11} et α_{13} , pour les deux ajustements. En fait, ce sont les sommes $(\alpha_{00} + \alpha_{02})$ et $(\alpha_{11} + \alpha_{13})$, qui doivent être identiques, puisque ce sont ces sommes qui apparaissent dans l'ajustement de la distribution angulaire en lumière polarisée rectilignement. $(\alpha_{00} + \alpha_{02})$ et $(\alpha_{11} + \alpha_{13})$ valent respectivement 1.07 et 0.10 pour les deux séries. Cela nous montre que nos deux ajustements sont, malgré les apparences, très voisins.

En conclusion, la distribution angulaire de l'iode détaché par trois photons ne montre aucune sensibilité au sens de parcours de l'ellipse, puisqu'on peut très bien la décrire par des termes uniquement pairs.

6.1.5 Comparaison avec les résultats et les calculs précédents

Les distributions angulaires en polarisation rectiligne sont en général décrites par les paramètres d'asymétrie β définis par la formule de Yang (cf. Chapitre 3). On peut déduire ces paramètres β des paramètres α précédemment obtenus. Il suffit pour cela d'identifier les termes de la formule de Yang à ceux de la formule (pour $\xi = 0$) que nous avons utilisée pour l'ajustement.

On obtient finalement:

$$\begin{aligned}\beta_2 &= \frac{4}{3} \left(\alpha_{11} + \alpha_{13} - \frac{4}{7} \alpha_{22} - \frac{1}{7} \alpha_{33} \right) \\ \beta_4 &= \frac{64}{35} \left(\alpha_{22} - \frac{6}{11} \alpha_{33} \right) \\ \beta_6 &= \frac{512}{231} \alpha_{33}\end{aligned}\tag{6.2}$$

Nous pouvons donc directement comparer nos nouveaux résultats à ceux obtenus en 1991 en lumière polarisée rectilignement ([BLO92]). Nous pouvons également les comparer aux résultats des calculs menés par Michèle Crance dans l'approximation des ondes planes ([CRA88]) et à laquelle ont été rajoutés des effets de rediffusion par le cœur au premier ordre de l'approximation de Born ([BLO92]).

Pour le terme de fréquence angulaire la plus élevée β_6 , on constate que les valeurs expérimentales sont similaires et restent faibles. Pour les composantes principales β_2 et β_4 les nouvelles valeurs expérimentales sont 1,8 fois plus

Iode	β_2	β_4	β_6
calculs (0)	-1.01	1.49	-0.10
calculs (1)	-0.19	1.42	-0.11
mesures (95)	-0.27	0.98	-0.02
mesures (91)	-0.15	0.55	-0.03

Tableau 6.2: Valeurs des paramètres d'asymétrie de l'iode détaché par 3 photons. Ligne 1: paramètres issus du calcul avec approximation des ondes planes. Ligne 2: paramètres issus du calcul tenant compte de l'effet de rediffusion du cœur au premier ordre. Ligne 3: paramètres expérimentaux 1995. Ligne 4 paramètres expérimentaux 1991.

grandes, ce qui dénote un contraste plus fort. On peut penser qu'il y a un fond d'électrons parasites dans les mesures de 1991.

La différence entre les β_4 calculés et mesurés est réduite d'un facteur deux, ce qui n'empêche pas β_2 et β_4 d'être toujours surestimés par le calcul à l'ordre zéro alors que la correction de Born au premier ordre ramène le β_2 à une valeur proche des valeurs expérimentales. Sur la figure 6.3 sont représentées les 4 distributions angulaires que l'on peut tirer des 4 jeux de paramètres: deux expérimentaux et deux théoriques.

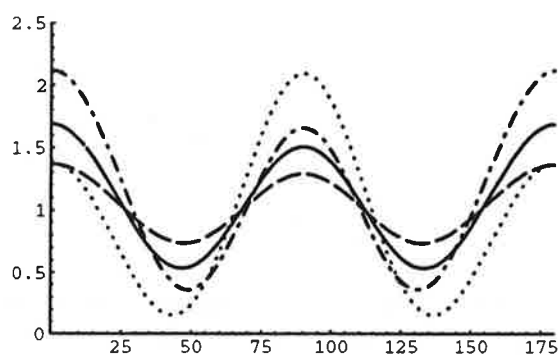


Figure 6.3: Distributions angulaires de l'iode détaché par 3 photons en polarisation rectiligne. En trait continu l'enregistrement de 95. En tireté l'enregistrement de 91. En pointillé le calcul (0). En traits et points le calcul (1).

6.1.6 Discussion

La distribution angulaire du détachement de l'iode par deux photons de 532 nm en lumière elliptique présente une asymétrie, ce qui tend à prouver que le détachement de l'iode négatif n'est pas bien décrit par l'approximation des ondes planes.

Ceci n'est pas nouveau et l'on savait déjà que les halogènes négatifs s'éloignent d'autant plus de ce modèle que leur masse s'accroît. Pourquoi n'observe-t-on pas d'asymétrie avec trois photons de 1064 nm? La question reste pour l'instant sans réponse claire: peut-être s'agit-il de l'annulation (modulo π) fortuite des différences de phases.

Quelle peut être alors l'importance du nombre de photons, puisque le comportement des distributions angulaires de I^- détaché par 2 et 3 photons ne semble pas être le même?

6.2 Détachement par 4 photons de Cl^- en lumière elliptique

6.2.1 Résultats obtenus antérieurement avec Cl^-

Avant cette étude de la distribution angulaire du photodétachement du chlore en lumière elliptique, seule la section efficace totale dans l'infrarouge avait déjà été mesurée (1989 [BLO89b]). La distribution angulaire du chlore détaché par 4 photons n'a jamais été mesurée, même en lumière polarisée rectilignement. Cependant, Michèle Crance a effectué les calculs correspondants [CRA91].

En ce qui concerne le chlore détaché par 2 photons de 532 nm en lumière elliptique, si aucune expérience n'a été menée, Vasilyeva et Kiyan [VAS93] ont effectué des calculs. Ils ont montré que la symétrie dans les distributions angulaires était quasiment conservée. Bien que les amplitudes ne soient pas non réelles (donc susceptibles d'entraîner une asymétrie), les différences de phases se trouvent être des multiples de π , ce qui annule les effets d'asymétrie.

6.2.2 Conditions expérimentales

Nous avons réalisé nos enregistrements avec le laser en configuration "gaussienne". La lentille utilisée avait une longueur focale de 15 cm, ce qui permettait d'atteindre des éclaircissements suffisants. Il nous a fallu faire quelques essais de précurseurs et de forme de filament (cf 4.2.1), pour obtenir un jet stable allant de 50 à 80 nA selon les jours.

Nous n'avons pu faire que deux enregistrements corrects à cause d'un fonctionnement défectueux du laser. La qualité spatiale du faisceau n'était pas satisfaisante, il y avait des "points chauds" (focalisation spontanée). Cela se traduisait non seulement par le bris accidentel d'éléments optiques, mais aussi par la présence de lumière parasite autour du faisceau. Cette lumière parasite (que les diaphragmes que nous avons placés parvenaient à réduire mais pas à éliminer) touchait les parois métalliques et produisait par effet photoélectrique de nombreux électrons.

Il nous a été impossible d'éliminer totalement ces électrons parasites. Peut être aurions-nous pu tenter de faire du filtrage spatial, mais il fallait réaliser le montage sous vide.

Bien que le taux de comptage soit assez bon (250 e⁻ par tour), il faut garder en mémoire que les enregistrements présentés ont un "fond" d'électrons parasites. Le rapport signal sur bruit est néanmoins supérieur à 5 pour les deux enregistrements.

6.2.3 Résultats expérimentaux

Courbes expérimentales

Nous avons enregistré les distributions angulaires du détachement du chlore par 4 photons pour deux valeurs d'ellipticité: $\xi = 0^\circ$ (polarisation rectiligne) et $\xi = 40^\circ$. Ces courbes sont présentées figure 6.4.

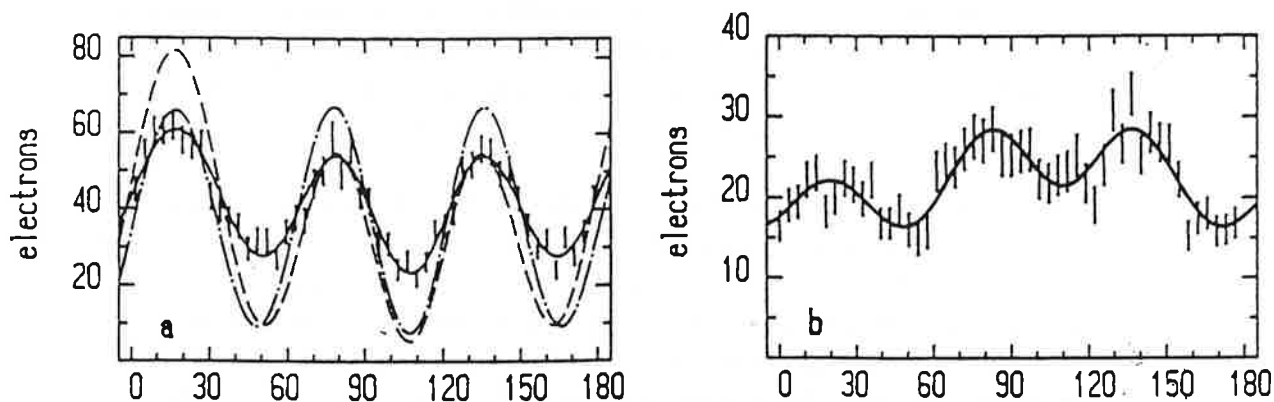


Figure 6.4: Distributions angulaires de Cl⁻ détaché par 4 photons de 1064 nm, pour a: $\xi = 0^\circ$ et b: 40° .

Notre technique de temps de vol ne peut séparer les électrons laissant des atomes dans les états $^2P_{3/2}$ et $^2P_{1/2}$. Nos enregistrements sont donc une superposition des deux types d'électrons d'énergie de 0,94 et 1,05 V, mais c'est peu important, car lorsque la structure fine est faible les énergies

cinétiques sont voisines donc les distributions angulaires très semblables pour les deux processus.

Analyse qualitative

Nous pouvons tirer les mêmes conclusions que pour le détachement de l'iode par 3 photons à savoir:

1. Diminution du contraste avec l'augmentation de l'ellipticité.
2. Diminution du pic principal qui devient plus petit que les pics secondaires, ce qui est une signature de la cohérence du phénomène.
3. Pas de flagrante asymétrie.

6.2.4 Analyse quantitative

Paramètres et formule d'ajustement

Voici la formule avec laquelle nous avons effectué nos ajustements:

$$\begin{aligned}
 \mathcal{A}_\xi^{(4)}(\theta) = & Z[\alpha_{00} + \alpha_{02} \cos^2 \xi + \alpha_{04} \cos^4 \xi \\
 & + (\alpha_{11} \cos \xi + \alpha_{13} \cos^3 \xi) \cos 2\theta \\
 & + (\alpha_{12} \cos \xi \sin \xi + \alpha_{14} \cos^3 \xi \sin \xi) \sin 2\theta \\
 & + (\alpha_{22} \cos^2 \xi + \alpha_{24} \cos^4 \xi) \cos 4\theta + \alpha_{23} \cos^2 \xi \sin \xi \sin 4\theta \\
 & + \alpha_{33} \cos^3 \xi \cos 6\theta + \alpha_{34} \cos^3 \xi \sin \xi \sin 6\theta \\
 & + \alpha_{44} \cos^4 \xi \cos 8\theta] \quad (6.3)
 \end{aligned}$$

Ceci conduit normalement à 13 paramètres α d'ajustement. Cependant deux distributions ne suffisent pas à déterminer les trois paramètres α_{0q} . Nous avons donc gelé le paramètre α_{04} à 0. En plus des 12 paramètres restants, il faut ajouter les deux coefficients de normalisation et les deux origines angulaires.

La faiblesse de notre échantillonnage, doit nous rendre prudents quant à l'interprétation et l'usage des α_{pq} obtenus.

Ajustements

Comme pour l'iode nous avons ajusté nos jeux de données expérimentales avec et sans termes impairs. Les origines angulaires dans un cas comme dans l'autre sont proches pour les deux enregistrements.

On note que la présence des termes impairs n'améliore pas la qualité de l'ajustement ce qui nous permet de conclure qu'il n'y a pas d'asymétrie significative dans la distribution angulaire du chlore détaché par 4 photons en lumière polarisée elliptiquement. Le tableau 6.3 nous donne le meilleur ajustement, celui pour lequel les termes impairs sont nuls.

Chlore	α_{00}	α_{02}	α_{11}	α_{13}	α_{22}	α_{24}	α_{33}	α_{44}	χ^2
pairs	0.72	0.33	-0.63	0.74	-0.08	0.14	0.38	-0.04	1.053

Tableau 6.3: Paramètres elliptiques normalisés du détachement par 4 photons de Cl^- . La ligne "pairs" regroupe les paramètres issus d'un ajustement avec les termes impairs gelés à 0.

6.2.5 Comparaison avec les calculs existants

Comme pour le détachement de l'iode on peut déduire les paramètres d'asymétrie β des paramètres α par la formule ci-dessous.

$$\begin{aligned}
 \beta_2 &= \frac{4}{3} \left(\alpha_{11} + \alpha_{13} - \frac{4}{7}(\alpha_{22} + \alpha_{24}) - \frac{1}{7}\alpha_{33} - \frac{16}{231}\alpha_{44} \right) \\
 \beta_4 &= \frac{64}{35} \left((\alpha_{22} + \alpha_{24}) - \frac{6}{11}\alpha_{33} - \frac{20}{143}\alpha_{44} \right) \\
 \beta_6 &= \frac{512}{231} \left(\alpha_{33} - \frac{8}{15}\alpha_{44} \right) \\
 \beta_8 &= \frac{16384}{6435}\alpha_{44}
 \end{aligned} \tag{6.4}$$

Il est possible de comparer nos valeurs expérimentales avec les calculs de Michèle Crance.

La structure fine du chlore n'est pas assez marquée pour que notre temps de vol résolve les contributions $^2P_{3/2}$ et $^2P_{1/2}$. Pour pouvoir comparer nos valeurs expérimentales, nous avons donc additionné les deux contributions calculées, simplement pondérées respectivement des facteurs 2/3 et 1/3.

Les calculs prenant en compte des effets de cœur exprimés par l'approximation de Born au premier ordre n'ont été effectués que pour la voie $^2P_{3/2}$. Le tableau 6.4 regroupe les valeurs des paramètres d'asymétrie β obtenus par les différentes méthodes.

Pour les paramètres β_2 , β_4 et β_8 , l'accord entre la théorie et l'expérience est satisfaisant. Cela ne suffit pas à éclipser le large désaccord du paramètre β_6 .

Chlore	β_2	β_4	β_6	β_8
calculs (0)	-0.16	-0.72	1.83	-0.15
calculs (1)	0.10	-0.26	2.00	-0.23
mesures (95)	0.02	-0.25	0.89	-0.11

Tableau 6.4: Valeurs des paramètres d'asymétrie pour Cl^- détaché par 4 photons. Ligne 1: paramètres issus du calcul avec approximation des ondes planes. Ligne 2: paramètres issus du calcul tenant compte de l'effet de rediffusion du cœur au premier ordre. Ligne 3: paramètres expérimentaux 1995.

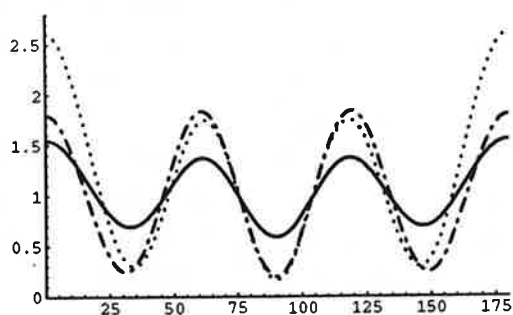


Figure 6.5: En trait continu l'enregistrement de 95. En traits et points le calcul (0). En pointillé le calcul (1).

Sur la figure 6.5 sont représentées les 3 distributions angulaires que l'on peut tirer des 3 jeux de paramètres: un expérimental et deux théoriques.

La faiblesse du contraste de nos mesures (comparée aux prévisions du calcul) est peut être due à la présence des électrons parasites que nous n'avons pas complètement pu éliminer cette fois.

6.2.6 Discussion

Même s'il s'agit d'un phénomène à 4 photons, les résultats obtenus pour le chlore sont à peu près similaires à ceux obtenus pour l'iode détaché par 3 photons.

Cependant, contrairement à ce dernier, le chlore ne semble pas être sujet à une forte asymétrie pour le détachement à 2 photons, si l'on se réfère aux prévisions de Vasilyeva et Kiyani [VAS93]. Cette symétrie à deux photons est due au fait que les différences de phases des amplitudes sont multiples de π , ce qui annule les effets d'asymétrie.

Pour expliquer l'apparente symétrie des résultats expérimentaux à 4 pho-

tons, on ne peut pas invoquer cet argument théorique puisque les calculs équivalents n'ont pas été menés.

6.3 Détachement par 4 photons de F^- en lumière elliptique

6.3.1 Résultats obtenus antérieurement avec F^-

Avant cette étude de la distribution angulaire du photodétachement du fluor en lumière elliptique, la section efficace absolue avait déjà été mesurée [BLO89b], ainsi que la distribution angulaire en lumière polarisée rectilignement 1992 [BLO92].

La distribution angulaire du détachement par deux photons de 532 nm du fluor négatif en lumière polarisée elliptiquement a également été enregistrée (Blondel et Delsart 1993 [BLO93b]). Aucune asymétrie n'a été constatée comme on peut le voir sur la figure 6.6.

Le fluor est le plus léger des halogènes et il a toujours été bien décrit par l'approximation des ondes planes. L'absence d'asymétrie ne constitue donc pas une réelle surprise. Les calculs de Vasilyeva et Kiyani (1993 [VAS93]) confirment d'ailleurs cette absence d'asymétrie.

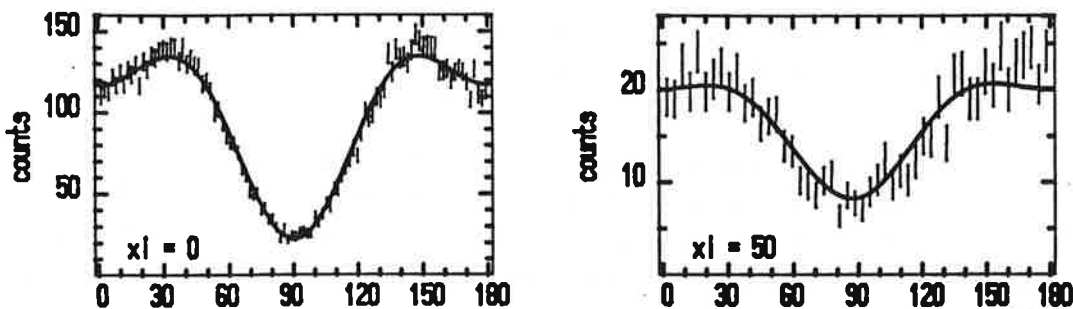


Figure 6.6: *Distribution angulaire de F^- détaché par deux photons de 532 nm en lumière polarisée rectiligne et en lumière elliptique: $\xi = 50^\circ$.*

6.3.2 Motivations particulières

A priori, puisque le détachement à deux photons n'a pas montré d'asymétrie et puisqu'il semble que le fluor soit bien décrit par l'approximation des ondes planes, il n'y a pas de raison d'observer un nouveau phénomène lors du détachement de F^- par 4 photons.

Cependant l'originalité du détachement à 4 photons de 1064 nm du fluor est d'être en principe un détachement à un photon en excès, puisque 3 photons suffisent pour détacher le fluor. Or Lambropoulos et Tang [LAM88] ont rappelé que les amplitudes d'excitation devenaient des nombres complexes quand on entrait dans le régime de photons en excès. Ceci conduit a priori à la présence de termes impairs dans la distribution angulaire en lumière elliptique.

L'enregistrement de la distribution angulaire du détachement de F^- par 4 photons (régime à un photon en excès) nous permet donc de tester un autre phénomène par rapport aux précédents enregistrements en lumière elliptique.

6.3.3 Conditions expérimentales

Les enregistrements des distributions angulaires de F^- détaché par quatre photons en lumière elliptique ont été réalisés en juin 93, avec le laser dans sa configuration "non-gaussienne". La lentille avait une focale de 30 cm. Le réglage du laser n'a présenté aucune difficulté.

Il a fallu quatre semaines pour obtenir 50 à 100 nA de F^- . Les enregistrements ont pris une semaine. La seule difficulté expérimentale que nous ayons rencontrée, a été la pollution par le fluor des têtes de jauges de mesure du vide. Une bonne mesure de la pression est indispensable, car la régulation d'injection d'argon en dépend. Nous avons surmonté la difficulté en changeant la tête de jauge, et en effectuant systématiquement de longs dégazages.

Avec une accélération de 3,5V avant d'arriver au tube de temps de vol, nous avons obtenu environ 170 électrons par tour. Le niveau des électrons parasites a été mesuré à 4 électrons par tour. Ces conditions expérimentales nous conduisent à une estimation du rapport signal sur bruit de nos enregistrements supérieur à 30.

6.3.4 Résultats expérimentaux

Courbes expérimentales

Nous avons enregistré les distributions angulaires du détachement du fluor par 4 photons pour 4 différentes valeurs d'ellipticité, ξ allant de -4° à -44° .

L'effet de spin-orbite étant encore plus petit pour le fluor que pour le chlore, nous avons donc enregistré une superposition d'électrons laissant des atomes dans les deux états de structure fine $^2P_{3/2}$ et $^2P_{1/2}$. L'énergie cinétique initiale des photons électrons étant de 1,2 V.

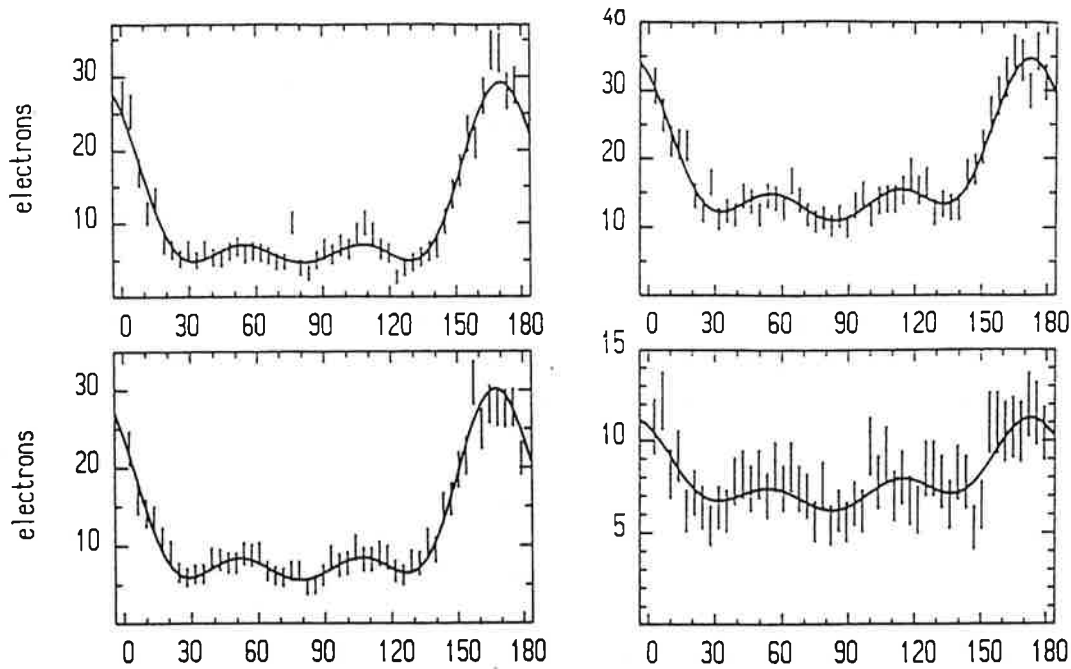


Figure 6.7: Distributions angulaires de F^- détaché par 4 photons de 1064 nm, pour $a: \xi = -4^\circ$, $b: -15^\circ$, $c: -30^\circ$, $d: -44^\circ$.

Analyse qualitative

On observe les phénomènes suivants:

1. Diminution du contraste avec l'avec l'accroissement de ξ .
2. Absence d'asymétrie. Les distributions angulaires semblent insensibles au sens de parcours de l'ellipse.

6.3.5 Analyse quantitative

Ajustements

Les paramètres d'ajustements sont les mêmes que pour le chlore à 4 photons. Curieusement nous n'avons pas pu faire converger la procédure d'ajustement en laissant α_{04} libre. Nous l'avons donc gelé à 0.

Ici aussi nous avons effectué l'ajustement en gelant les termes impairs, et il s'est révélé aussi bon que le premier.

Comme pour les analyses précédentes on peut relever que chaque somme des α_{pq} intervenant comme paramètres d'un cosinus, est plus stable que les α_{pq} pris séparément. Les résultats sont regroupés dans le tableau 6.5.

Fluor	α_{00}	α_{02}	α_{11}	α_{13}	α_{12}	α_{14}	α_{22}	α_{24}	α_{23}	α_{33}	α_{34}	α_{44}	χ^2
complet	1.93	-0.46	-0.32	1.52	0.12	-0.19	-0.25	1.09	-0.14	0.54	-0.30	0.06	0.9174
pairs	1.67	-0.20	-0.41	1.60			-0.28	1.11		0.53		0.05	0.9172

Tableau 6.5: Paramètres elliptiques normalisés du détachement par 4 photons de F^- . La ligne "complet" regroupe les paramètres issus d'un ajustement avec tous les paramètres sauf α_{04} gelé à 0. La ligne "pairs" regroupe les paramètres issus d'un ajustement avec les termes impairs et α_{04} gelés à 0.

6.3.6 Comparaison avec les résultats et les calculs précédents

Nous allons pouvoir directement comparer nos nouveaux résultats à ceux obtenus en 1991 [BLO92]. Nous pourrions également les comparer aux résultats des calculs menés par Michèle Crance, dans l'approximation des ondes planes [CRA88] et à laquelle a été rajouté l'effet de rediffusion par le cœur au premier ordre de l'approximation de Born [BLO92].

Fluor	β_2	β_4	β_6	β_8
calculs (0)	0.44	0.38	2.24	-0.23
calculs (1)	0.78	0.90	2.25	-0.32
mesures (95)	0.84	0.99	1.13	0.14
mesures (91)	0.69	0.62	1.01	-0.07

Tableau 6.6: Valeurs des paramètres d'asymétrie. Ligne 1: paramètres issus du calcul avec approximation des ondes planes. Ligne 2: paramètres issus du calcul tenant compte de l'effet de rediffusion du cœur au premier ordre. Ligne 3: paramètres expérimentaux 1995. Ligne 4: paramètres expérimentaux 1991.

Les écarts que l'on observe entre les mesures de 91 et celles de 95 nous donnent une idée de la précision de nos mesures de distributions angulaires.

En considérant que nos derniers enregistrements sont meilleurs que ceux de 91, on peut dire que les paramètres β_2 et β_4 sont correctement estimés par les calculs. En revanche, il reste encore un écart significatif entre l'expérience et la théorie pour la détermination des paramètres d'asymétrie des deux plus grandes fréquences angulaires.

La figure 6.8 représente graphiquement les 4 distributions angulaires que l'on peut tirer des 4 jeux de paramètres. On remarque, surtout au niveau des pics secondaires, la différence entre la théorie et l'expérience, et ce, quels que soient le modèle ou l'enregistrement.

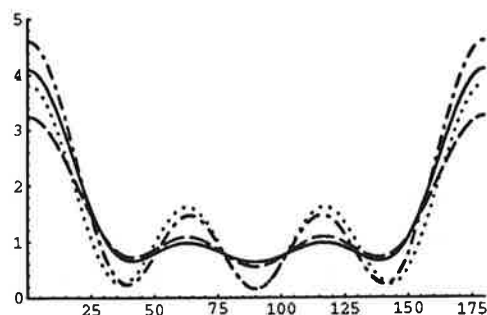


Figure 6.8: *En trait continu l'enregistrement de 95. En tireté l'enregistrement de 91. En pointillé le calcul (0). En traits et points le calcul (1).*

6.3.7 Discussion

Le fait que le détachement à 4 photons du fluor soit un phénomène à un photon en excès nous laissait croire qu'on pourrait observer une dissymétrie. Cela ne semble pas être le cas.

On peut penser qu'une fois encore les différences de phases des amplitudes annule l'asymétrie attendue. On peut également suspecter le fait que le détachement à 4 photons du fluor n'est pas réellement un phénomène à un photon en excès, et ceci en raison de la fermeture de la voie de détachement à 3 photons par effet pondérateur (cf. 5.5). Le processus à 3 photons est ainsi impossible et le détachement à 4 photons n'est en fait que la première voie de détachement possible. Dans ce cas on comprend plus aisément l'absence de dissymétrie. Cette conjecture s'appuie sur les résultats des calculs de la partie 5.

Pour la prouver, la connaissance des distributions angulaires du détachement du fluor par 5 photons aurait pu être très intéressante, cette voie de détachement étant indubitablement un phénomène à un photon en excès. Mais nous n'avons pas réussi, malgré de nombreuses et longues tentatives, à obtenir un rapport signal sur bruit suffisant pour faire des enregistrements exploitables.

6.4 Conclusion

Les distributions angulaires multiphotoniques d'ions négatifs d'halogènes que nous avons mesurées en polarisation elliptique avec une longueur d'onde de 1064.2 nm auraient pu être considérées comme une étude systématique. Mais les symétries des distributions angulaires obtenues sont surprenantes au vu des distributions angulaires précédemment réalisées avec 2 photons à

532 nm.

Résumé des résultats en lumière elliptique		
Ions	$\lambda = 532$ nm	$\lambda = 1064$ nm
Fluor	Distributions théoriques et expérimentales symétriques	Distributions expérimentales symétriques
Chlore	Distributions théoriques symétriques	Distributions expérimentales symétriques
Iode	Distributions expérimentales asymétriques	Distributions expérimentales symétriques

Tableau 6.7:

Ces symétries suscitent de nouvelles interrogations:

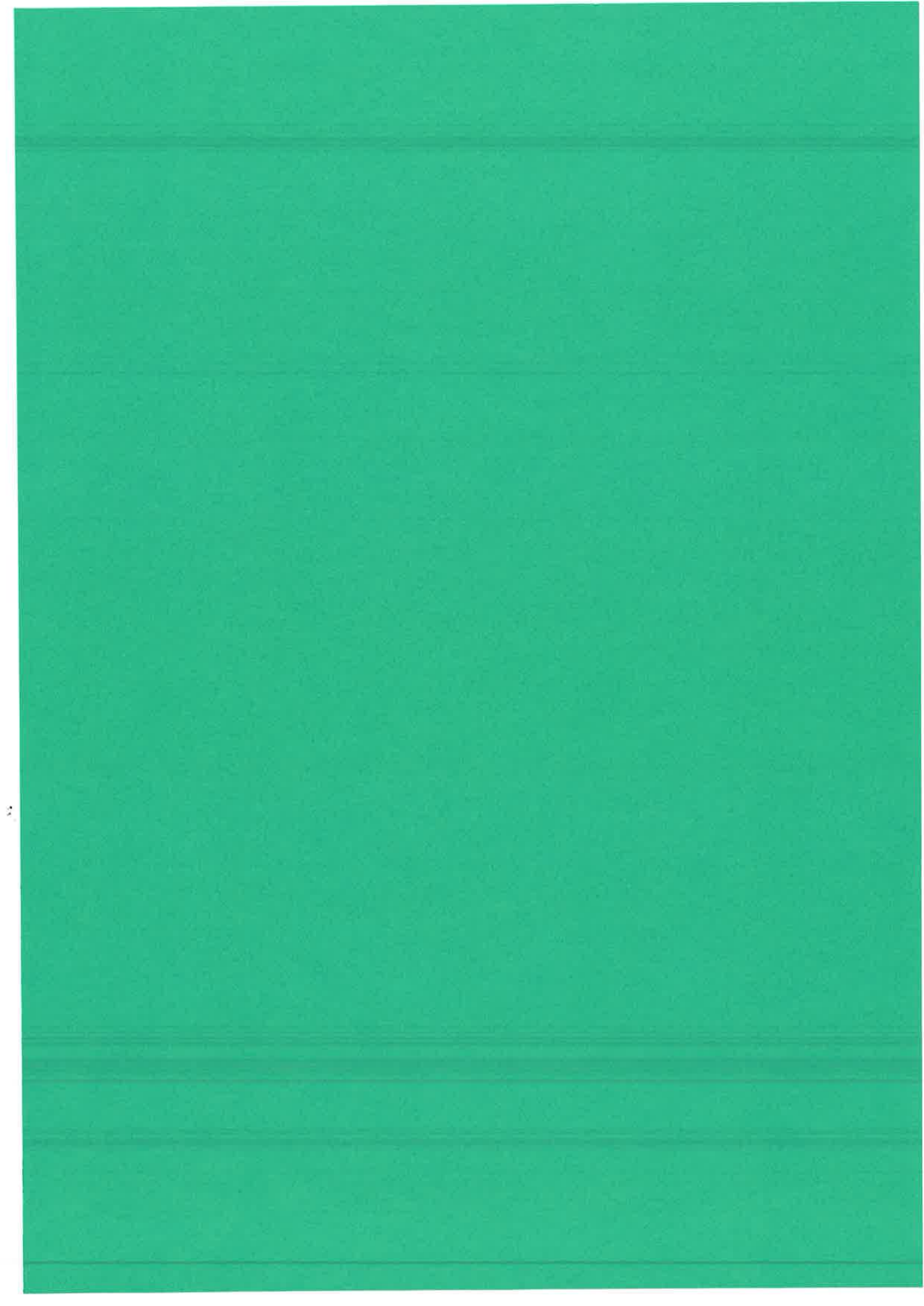
Pourquoi l'asymétrie dans les distributions angulaires de l'iode à deux photons disparaît-elle pour le processus à trois photons? Quel est l'importance du nombre de photons dans cette différence?

Y a-t-il des raisons fondamentales qui expliquent les cas où les différences de phases des amplitudes complexes s'annulent? Les calculs de Vasilyeva et Kiyani [VAS93] montrent que c'est le cas pour le chlore détaché par 2 photons de 532 nm. C'est peut être la raison pour laquelle on ne voit pas d'asymétrie dans nos mesures du détachement de l'iode par 3 photons et du chlore par 4 photons.

Contrairement au cas du fluor détaché par deux photons le détachement du fluor par 4 photons est un phénomène à un photon en excès. Suivant la remarque de Lambropoulos et Tang [LAM88], on s'attendrait à voir apparaître une dissymétrie dans la distribution angulaire du fluor. Ce n'est pas le cas. Peut être est-ce dû à la fermeture de la voie de détachement à 3 photons par l'effet pondéromoteur qui annule la possibilité offerte par le phénomène à un photon en excès.

Les questions que le travail expérimental que nous avons mené sur le détachement multiphotonique des halogènes en lumière elliptique a suscité restent sans réponses pour l'instant. Nos mesures ont cependant permis de préciser et de compléter les jeux de paramètres d'asymétrie liées aux distributions angulaires en lumière rectiligne et a apporté des données supplémentaires en polarisation elliptique, données susceptibles d'être confrontées à de nouveaux modèles théoriques.

Plutôt que d'enregistrer les distributions angulaires du brome en polarisation elliptique, nous avons préféré nous atteler à la réalisation du "microscope de photodétachement". Les chapitres suivants sont consacrés à cette nouvelle expérience.



Chapitre 7

Microscopie de photodétachement

7.1 Introduction

L'expérience "microscopie de photodétachement" vise en premier lieu à répondre à la question fondamentale: peut-on voir sur un détecteur, directement, une coupe de fonction d'onde atomique?

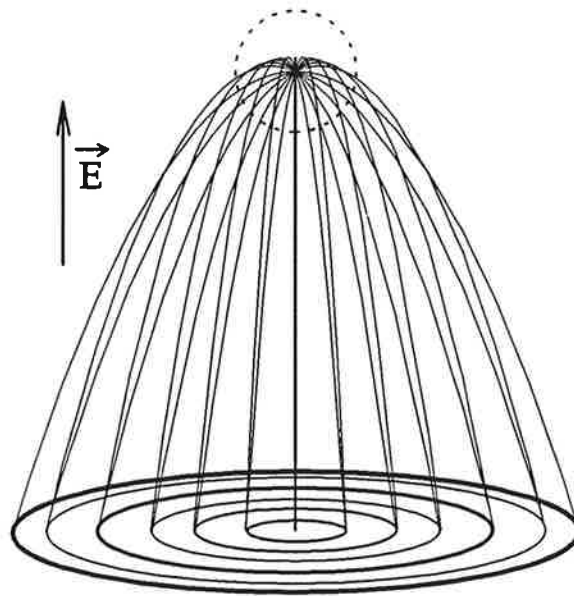


Figure 7.1: Trajectoires d'un électron photodétaché en présence d'un champ électrique. On observe des anneaux d'interférence sur un détecteur qui coupe les trajectoires.

Un électron arraché à un édifice atomique dans un champ électrique uniforme a une trajectoire classique similaire à celle d'une masse dans un champ de pesanteur. Pour atteindre un même point d'un détecteur situé dans un plan orthogonal au champ électrique (cf figure 7.1), l'électron peut emprunter deux chemins. Ces deux chemins donnent naissance à des interférences. On observera sur le détecteur des anneaux d'interférence alternativement constructive et destructive.

L'originalité de ces interférences est que la division de front d'onde qui les produit a lieu à la sortie de l'ion lui même. Ces interférences ne sont donc pas produites par un appareillage macroscopique extérieur telles que des fentes par exemple.

Si on considère les coordonnées "paraboliques" $\xi = r + z$ et $\eta = r - z$ où r est la coordonnée radiale et z la cote dans la direction du champ électrique, l'espace classiquement autorisé à l'électron est un paraboloïde de révolution de ξ constant. A grande distance de l'atome, le détecteur peut être assimilé à une surface de η constant. La distribution d'électrons reçus sur le détecteur constitue une mesure de la densité de probabilité associée à la fonction d'onde en ξ à une valeur particulière de η .

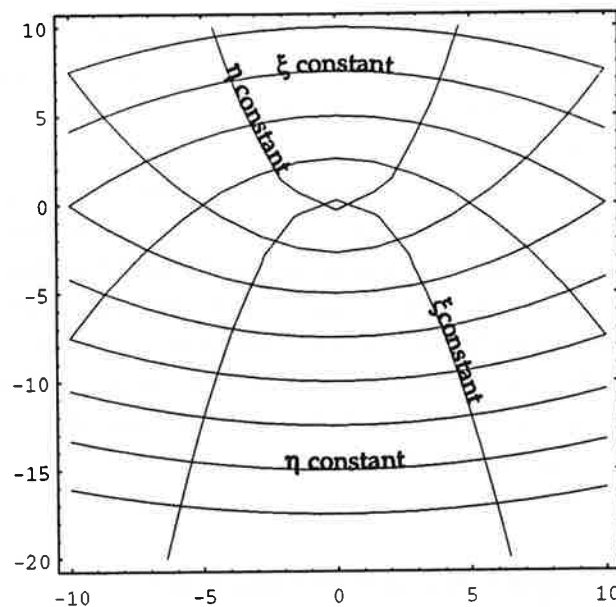


Figure 7.2: Courbes de η et ξ constants.

Dans le cas de l'hydrogène on sait que la fonction d'onde se factorise en ξ et η . La fonction d'onde au départ, au cœur de l'atome, est donc la même que celle mesurée au niveau du détecteur. On peut ainsi observer directement, à

distance macroscopique, l'un des deux facteurs de la fonction d'onde atomique. Les franges sombres observées sur le détecteur sont directement reliées au nombre quantique parabolique n_1 , qui représente également le nombre de nœuds de la fonction d'onde en ξ .

Si l'idée paraît simple, l'observation directe de tels anneaux d'interférences est ardue à cause de la taille de l'interfrange. Dans le cas d'atomes neutres, la dimension des interfranges est trop petite: pour H, l'ordre de grandeur de l'interfrange est $i = \sqrt{|z|} a_0$ ce qui donne $10 \mu\text{m}$ pour une hauteur de chute dans le champ électrique $|z| = 2\text{m}$. L'observation, dans l'état actuel des techniques, apparaît très difficile.

En revanche, une manifestation indirecte de ce type d'interférences en champ électrique uniforme a déjà été observée lors de l'étude des oscillations de la section efficace de photoionisation d'atomes en champ électrique [NIC90]. A chaque modulation a été associé un nombre quantique parabolique et les oscillations de la section efficace expliquées comme le résultat d'interférence.

Le même phénomène d'interférence a déjà été observé avec des ions négatifs [BAR91, GIB93, HAR90]. L'observation directe de la fonction d'onde n'a quant à elle jamais été réalisée. Elle est plus aisée si on emploie des ions négatifs.

Pour un ion négatif, comme l'interfrange dépend du champ électrique et de l'énergie de l'électron photodétaché, on peut choisir une combinaison de ces deux paramètres telle que l'interfrange atteigne $500 \mu\text{m}$ pour une hauteur de chute de l'ordre du mètre.

Le présent chapitre s'intéresse à l'étude détaillée des paramètres expérimentaux nécessaires pour observer les anneaux d'interférence. Après avoir précisé les paramètres qui apparaissent lors du calcul semi-classique de la densité de courant sur le détecteur [DEM81, FAB80], j'exposerai et discuterai les valeurs expérimentales finalement retenues pour la conception et la réalisation du montage. Enfin, j'étudierai quelques particularités expérimentales comme l'effet de l'étendue de la source d'électrons et celui du mouvement des ions en jet sur l'observation des interférences.

7.2 Description de principe

7.2.1 Notations

Soit un ion situé à l'origine d'un repère orthonormé (x, y, z) . Le champ électrique \vec{E} est orienté selon les z croissants. Le système est invariant par rotation autour de l'axe z , les coordonnées $(R = \sqrt{x^2 + y^2}, z)$ repèrent la

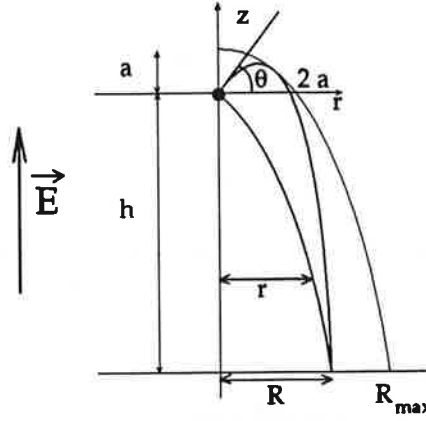


Figure 7.3: L'électron est photodétaché en $z = 0$ et $R = 0$ à $t = 0$. Il a une énergie cinétique ϵ . Après une chute $z = -z_0$, le rayon maximum atteint par l'électron est R_{max}

position de l'électron. L'angle d'éjection θ est repéré par rapport à (Oz) . Le plan de détection est situé en $z = -z_0$.

Un électron détaché d'un ion d'affinité électronique A , par un photon de fréquence ν a pour énergie cinétique $\epsilon = h\nu - A$.

On en déduit a la hauteur de remontée maximum de l'électron dont l'expression s'obtient en écrivant l'égalité entre le travail de la force électrique et l'énergie initiale: $aeE = \epsilon$; soit:

$$a = \frac{\epsilon}{eE} \quad (7.1)$$

La densité de courant recueilli sur le détecteur à une distance R est $J(R)$.

7.2.2 Rayon maximum

Les équations qui régissent le mouvement de l'électron de masse m_e en présence du champ électrique sont les suivantes:

$$\begin{cases} R = v_0 \sin \theta t = \sin \theta \sqrt{2\epsilon/m_e} t \\ z = -\frac{1}{2} \frac{eE}{m_e} t^2 + \cos \theta \sqrt{2\epsilon/m_e} t \end{cases} \quad (7.2)$$

On en déduit que:

$$R_{max} = 2\sqrt{a(a+z_0)} \sim 2\sqrt{az_0} \quad (7.3)$$

L'approximation proposée n'est valable que si $z_0 \gg a$. On vérifiera ultérieurement qu'elle est justifiée.

Les paramètres expérimentaux variables étant ϵ et E , retenons la loi de variation:

$$R_{max} \propto \sqrt{\frac{\epsilon}{E}} \quad (7.4)$$

On retrouve bien la variation intuitive: le rayon maximum croît avec l'énergie de l'électron. L'image de la tache se trouve pincée si l'on augmente le champ électrique.

7.2.3 Phase d'oscillation

La phase d'oscillation ΔS s'obtient en calculant la différence d'action le long des deux chemins qui mènent au même point du détecteur. Elle s'écrit:

$$\Delta S = \frac{8\pi\sqrt{2m_e}}{3h} \frac{\epsilon^{3/2}}{eE} \left(1 - \left(\frac{R}{R_{max}}\right)^2\right)^{3/2} \quad (7.5)$$

Le troisième facteur nous indique que ΔS s'annule pour $R = R_{max}$. L'extérieur de la tache n'est atteint que par les électrons dont l'angle d'éjection unique se rapproche de $\theta = \frac{\pi}{2}$ quand la hauteur de chute tend vers l'infini. On peut considérer que pour $R = R_{max}$ il y a deux trajectoires dégénérées dont la différence de phase est nulle.

Comme le troisième facteur varie entre 0 et 1, le nombre d'oscillation n est donné égal au quotient des deux premiers facteurs par 2π , soit :

$$n = \frac{4\sqrt{2m_e}}{3h} \frac{\epsilon^{3/2}}{eE} \propto \frac{\epsilon^{3/2}}{E} \quad (7.6)$$

L'interfrange n'est pas constant, mais son ordre de grandeur i peut s'estimer comme $i = \frac{R_{max}}{\lambda}$ qui s'écrit:

$$i = \frac{3h\sqrt{z_0}}{2\sqrt{2m_e}} \frac{\sqrt{eE}}{\epsilon} \propto \frac{\sqrt{E}}{\epsilon} \quad (7.7)$$

7.2.4 Projection d'une sphère sur un plan

En l'absence de champ électrique, du point de vue classique, des électrons photodétachés avec une énergie cinétique ϵ , ayant la même origine spatiale et temporelle nulle, forment une sphère de rayon $v_0 t$, en expansion uniformément chargée en surface.

En présence d'un champ électrique uniforme, en plus du phénomène d'expansion, va s'ajouter un mouvement global de chute dû à l'entraînement par le champ électrique.

L'image sur un détecteur placé sur la trajectoire de la sphère en expansion, est simplement la projection de cette sphère sur le plan du détecteur, si l'on suppose que la vitesse d'expansion est négligeable par rapport à la vitesse de chute. Cette approximation est valide si $\sqrt{\frac{2a}{a}} \gg 1$.

Analytiquement, si on considère la projection orthogonale sur un plan (x,y) d'une sphère uniformément chargée de charge Q de rayon R_{max} centrée en $(0, 0, z)$, on obtient:

$$\sigma(R) = \frac{Q}{2\pi R_{max}^2} \frac{1}{\sqrt{1 - \left(\frac{R}{R_{max}}\right)^2}} \quad (7.8)$$

Le premier facteur de la formule 7.8: $\frac{Q}{2\pi R_{max}^2}$ donne l'amplitude de la densité surfacique de charge. Elle est proportionnelle à la quantité de charge et inversement proportionnelle à la surface de la tache.

Le dénominateur du second facteur de la formule 7.8: $\sqrt{1 - \left(\frac{R}{R_{max}}\right)^2}$, n'est défini que pour $R < R_{max}$. La densité de charge tend vers l'infini lorsque $R \rightarrow R_{max}$ par valeurs inférieures, parce qu'en $R = R_{max}$ la surface de la sphère contient la direction de projection.

7.2.5 Expression semi-classique de la densité de courant

Le calcul semi-classique a été abordé par Fabrikant [FAB80] puis précisé par Demkov et al [DEM81]. Il considère une émission isotrope des électrons, qui, une fois photodétachés, se propagent librement dans le champ électrique. Il donne la densité de courant en fonction du rayon.

Les hypothèses de ce calcul s'appliquent au cas du photodétachement d'ions négatifs d'halogènes juste au dessus du seuil. En effet l'onde prédominante de l'électron photodétaché est une onde s , donc l'émission peut être considérée comme isotrope; de plus on peut considérer que les électrons photodétachés se propagent librement car l'interaction atome électron est négligeable.

Dans ce cadre on obtient comme densité de courant:

$$J(R) = \frac{I}{2\pi R_{max}^2} \frac{1 + \cos \Delta S}{\sqrt{1 - \left(\frac{R}{R_{max}}\right)^2}} \quad (7.9)$$

I est l'intensité de la source d'électrons.

On reconnaît la forme de l'équation 7.8 modulée par l'oscillation de phase.

La figure 7.4 est la représentation graphique d'un courant $J(R)$ que l'on obtient en prenant $R_{max} = 1055 \mu\text{m}$, $z_0 = 0,54 \text{ m}$ et $E = 120 \text{ V/m}$.

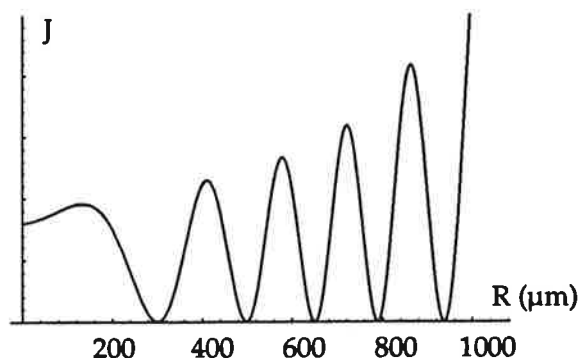


Figure 7.4: $J(R)$ pour $R_{max} = 1055 \mu m$, $z_0 = 0,54 m$ et $E = 120 V/m$. R est exprimé en μm et J en unités arbitraires.

L'expression $J(R)$ varie avec le champ électrique, la hauteur de chute et l'énergie de photodétachement.

7.2.6 Calcul quantique

En toute rigueur, et clairement lorsque les nombres quantiques mis en jeu sont petits un calcul quantique devient indispensable. La dépendance en R est déterminée par le carré d'une fonction d'Airy [DEM81]. Le calcul quantique peut rendre compte de la présence d'électrons dans une zone d'énergie cinétique négative, avec une probabilité exponentiellement décroissante, mais non nulle, au delà de R_{max} .

La formule semi-classique 7.9 doit cependant rester valable au centre de l'image, et on peut s'en satisfaire pour de premières expériences.

7.2.7 A propos des unités

La plupart des auteurs qui ont écrit sur le sujet ont utilisé les unités atomiques. Mais les unités de longueur et de champ électrique de ce système ne conviennent pas à notre pratique expérimentale. J'utiliserai donc le Système International.

Les énergies mises en jeu sont trop petites pour que le joule convienne tout à fait. Même si l'affinité électronique est traditionnellement exprimée en électron-volt, le nombre d'onde par centimètre a été préféré. Comme je parlerai souvent de fractions de cm^{-1} , j'utiliserai l'unité usuelle des spectroscopistes qui expriment ces énergies en millikaiser (mk), égal au millième de cm^{-1} .

7.2.8 Choix des paramètres expérimentaux E et ϵ

On peut en pratique réaliser un champ électrique uniforme sur une hauteur z_0 de 50 cm. C'est un bon compromis entre la recherche de la plus grande hauteur et la difficulté de réalisation. Dans une telle colonne le champ électrique peut prendre des valeurs comprises entre 10 V/m et 10000 V/m.

On peut, à l'aide des équations 7.6 et 7.7, donner une estimation de l'énergie ϵ autorisant l'observation des anneaux d'interférence.

Pour observer des anneaux d'interférence, il faut au moins une modulation sur l'image, soit $n > 1$. Il faut également que l'interfrange soit au moins de l'ordre de 100 μm , puisque les meilleurs détecteurs actuels, dont le nôtre, ont une résolution de 65 μm .

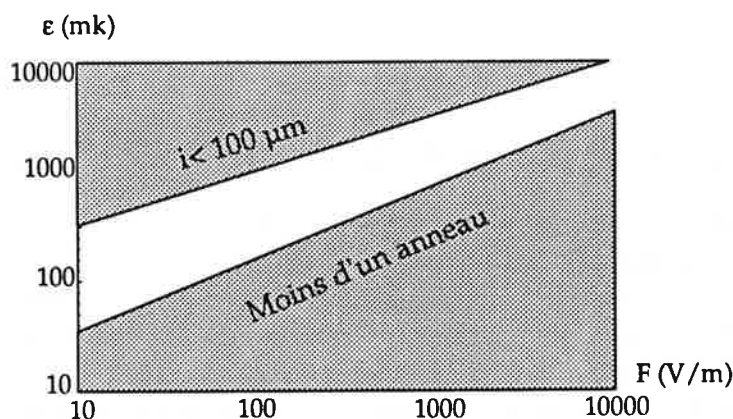


Figure 7.5: Diagramme logarithmique $\epsilon(E)$. ϵ est exprimé en mk et E en V/m . Les conditions $i > 100 \mu\text{m}$ et $n > 1$ restreignent la plage d'observation des anneaux d'interférence.

La figure 7.5 montre que les interférences ne peuvent être observées que pour des énergies de détachement proches du seuil, variant de quelques dizaines de mk à quelques cm^{-1} . Pratiquement, à ces faibles énergies, et par effet centrifuge, les seuls états finals accessibles à l'électron photodétaché sont ceux de moment cinétique nul (onde s).

Dans les conditions d'observation des interférences l'approximation $z_0 \gg a$ est vérifiée; en effet ici z_0 vaut 0.5 m et a n'excède jamais 4 μm .

La dimension de la tache R_{max} est comprise entre 0,3 et 3 mm.

7.3 Choix du type d'ions négatifs utilisés

Les ions négatifs d'halogènes ont un niveau fondamental non dégénéré et se photodétachent en suivant la loi de Wigner. Juste au-dessus du seuil, on

peut considérer que les électrons sont photodétachés en onde s , ce qui en fait une source isotrope. L'approximation des ondes planes peut s'appliquer aux ions négatifs d'halogènes. Ces quatre ions rentrent donc dans le cadre des hypothèses du calcul précédent.

Le laboratoire possède une source laser adaptée au photodétachement au seuil de Br^- . Notre choix s'est donc porté sur cet ion.

On pourrait penser que le fluor, mieux décrit par l'approximation des ondes planes, s'écarte moins du modèle, cependant son utilisation expérimentale est plus astreignante. Non seulement F^- pollue rapidement les enceintes, mais la rapidité de ces ions, liée à leur plus faible masse, pose des problèmes que j'exposerai à la section suivante.

7.4 Autres paramètres expérimentaux

7.4.1 Dimension de la zone d'émission des électrons

Le calcul utilisé précédemment suppose la source des électrons ponctuelle. Expérimentalement la source d'électrons, définie par l'intersection du faisceau laser et du jet d'ions, est étendue. L'image observée sur le détecteur sera la somme incohérente des images produites en chaque point de la zone d'émission. Pour que l'on observe encore les anneaux d'interférence il faut que l'effet d'élargissement dû à cette zone étendue soit plus petit que l'interfrange.

Considérons séparément les écarts de la position initiale des ions δz , écart parallèle au champ électrique, et δR , écart dans la direction transverse. L'élargissement provoqué par un écart δR est une simple translation de la source, la hauteur de chute est inchangée, la structure de l'image également. Une dispersion δR de la source provoque un élargissement δR de l'image.

Pour un écart δz , c'est la hauteur de chute qui va être modifiée. On va avoir la superposition de deux images presque identiques mais de R_{max} différents, la dilatation sera ΔR_{max} . Or $R_{max} \propto \sqrt{z_0}$ donc l'écart résultant sur le détecteur sera $\Delta R = R_{max} \frac{\delta z}{2z_0}$ soit environ $10^{-3} \delta z$ pour une tache typique de rayon d'un millimètre.

Le brouillage des images est donc beaucoup plus sensible à une dispersion transverse des émetteurs qu'à un étalement longitudinal de l'origine des électrons.

L'émission des électrons a lieu à l'intersection du jet d'ions et du faisceau laser; on peut donc limiter la taille de la source en positionnant le waist du faisceau laser focalisé sur le jet d'ions. Dans la direction de propagation du laser, l'émission des électrons n'est limitée que par la taille du jet, plus importante que le waist. On a donc intérêt à placer le faisceau laser pa-

rallèle au champ électrique. Dans cette configuration, l'élargissement de la résolution de l'image n'est pratiquement du qu'à la taille du waist, que l'on peut réduire à $50\mu\text{m}$ en focalisant correctement.

7.4.2 Angle entre le faisceau laser et le champ électrique

La coïncidence entre le faisceau laser et la direction du champ électrique n'est pas possible; un angle de 3° est nécessaire pour séparer laser et détecteur. La fréquence du laser perçue par les ions est décalée par l'effet Doppler.

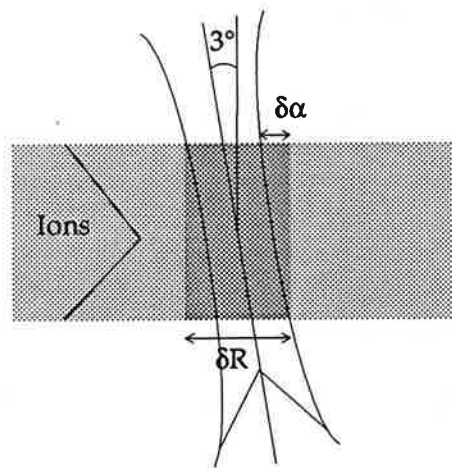


Figure 7.6: *Élargissement de la source dû à l'angle de 3° l'étendue de la source δR (transverse au champ électrique), initialement due à la largeur du faisceau laser, est agrandie d'un décalage $\delta\alpha$ produit par l'angle de 3° entre le faisceau laser et le jet d'ions.*

L'angle de 3° est aussi un facteur d'élargissement de la source des ions. En effet, comme l'illustre la figure 7.6, on doit ajouter à la largeur initiale de la source, due à la largeur du faisceau laser, la contribution de la projection du faisceau laser sur la direction de propagation des ions pour toute la hauteur du jet d'ions. Avec un diamètre mesuré du jet D_j de $600\mu\text{m}$, l'élargissement $\delta\alpha = D_j \sin 3^\circ \sim 30\mu\text{m}$. Cet élargissement n'est pas négligeable si on le compare aux $50\mu\text{m}$ de largeur du faisceau laser. L'angle de 3° , indispensable pour faire passer le faisceau laser hors du détecteur, a deux inconvénients principaux, un élargissement de la zone d'origine des électrons, et une incertitude sur la détermination de la longueur d'onde du laser dans le référentiel des ions.

7.4.3 Effet d'entraînement dû au jet

Les ions en jet ont une vitesse $v_{ion} = \sqrt{2eU/m_{ion}}$ où U est le potentiel d'accélération des ions. Les électrons qui en sont détachés possèdent également cette vitesse d'entraînement. Comme le champ électrique est perpendiculaire au jet, il y a un mouvement transverse du nuage d'électrons qui s'ajoute au mouvement de chute imprimé par le champ électrique. A première vue, il n'aura d'autre effet que de décaler l'image. D'autres effets seront détaillés au paragraphe 9.3. Si τ_c est le temps de chute des électrons, cette dérive D peut s'écrire:

$$D = v_{ion} \tau_c \quad (7.10)$$

Or $\tau_c = 2\sqrt{\frac{m_e z_0}{eE}}$; on en déduit que

$$D = \sqrt{2\frac{m_e}{m_{ion}}} \sqrt{\frac{z_0 U}{E}} \quad (7.11)$$

Dans le cas de Br^- , si l'on veut éviter une dérive supérieure à 10 mm, il faut que $U < 8E$ où U est exprimé en V et E en V/m.

Or pour augmenter l'intensité du faisceau d'ions et réduire $\frac{\Delta U}{U}$, on cherche habituellement à travailler avec la plus grande valeur de U possible, en pratique entre 1 et 3 kV.

Pour observer les figures d'interférence avec de faibles valeurs de champ électrique, il faut donc pouvoir ralentir le jet.

[Faint, illegible text, likely bleed-through from the reverse side of the page]

Chapitre 8

Montage expérimental de l'expérience de microscopie de photodétachement

8.1 Introduction

L'expérience de microscopie de photodétachement a des contraintes spécifiques telles qu'il était très difficile d'aménager l'ancien dispositif expérimental pour réaliser le nouveau projet. Le choix a donc été fait de bâtir entièrement un nouveau montage spécialement étudié pour cette expérience. Les seuls éléments issus de l'ancien dispositif sont la source, le filtre de Wien et le quadripôle de focalisation. Chaque détail du montage a fait l'objet d'une étude particulière, cependant je ne décrirai dans ce chapitre que les éléments les plus importants.

Le paragraphe 8.2 présente l'ensemble du bâti. La partie 8.3 a trait aux nouvelles caractéristiques des éléments de pilotage du jet, en particulier au ralentisseur et au virage quadripolaire, techniques nouvelles. Le paragraphe 8.4 est consacré à l'étude de l'ensemble de la zone de détection. La partie 8.5 présente la source laser et les moyens de caractérisation qui lui sont liés. Le paragraphe 8.6 étudie les problèmes expérimentaux spécifiques à ce nouveau montage.

8.2 Nouvelles chambres

8.2.1 Présentation générale

La source de l'ancien montage a été adaptée à une nouvelle chambre appelée "chambre source". Une nouvelle chambre dite "chambre d'interaction" abrite la colonne de détection. Pour épurer le jet des atomes neutres formés par collisions dans la chambre source, on utilise un virage électrostatique. Nous avons choisi la technique assez répandue du virage quadrupolaire, permettant un virage à angle droit. Par soucis de standardisation des enceintes, ce qui facilite les adaptations éventuelles, nous avons décidé de placer ce virage quadrupolaire dans une enceinte intermédiaire ressemblant aux deux premières.

La photographie page 123 nous montre l'expérience. On peut y apercevoir les trois chambres séparées par des vannes. A la date de la réalisation du cliché, la troisième enceinte n'était pas encore raccordée aux deux premières. Chaque enceinte est montée sur rails, ce qui facilite le démontage. Le bâti est le plus compact possible pour éviter de transporter les ions sur une trop grande distance (en raison des collisions détachantes). L'essentiel de l'électronique a été disposé de telle sorte que l'on puisse effectuer les réglages du même endroit, en contact visuel avec tous les cadrans de contrôle.

8.2.2 Le circuit de pompage

Le détecteur étant très sensible à son environnement, la pompe à diffusion de l'ancien montage a été remplacée par la pompe turbomoléculaire à double flux à roulements céramiques du montage précédent. Sous la chambre de virage a été montée une autre pompe turbomoléculaire dont le palier inférieur est un roulement céramique et le palier supérieur est magnétique. Comme les pompes turbomoléculaires à paliers entièrement magnétiques produisent très peu de vibrations, une pompe de ce type a été installée sous la zone d'interaction. Ces pompes ne produisent pas de champ magnétique extérieur plus important que le champ magnétique terrestre.

Le pompage primaire des pompes turbomoléculaires est réalisé par une unique pompe primaire qui est située dans une autre pièce afin d'éviter bruit et vibrations. Les pompes turbos lui sont reliées par un tuyau en cuivre de 50 mm de diamètre de 3 m de long. Ce diamètre est le diamètre minimum qui évite des pertes de charges susceptibles de limiter la performance des pompes secondaires.

La commande des pompes et des vannes d'isolement du circuit primaire est effectuée par un automate électropneumatique que nous avons réalisé de

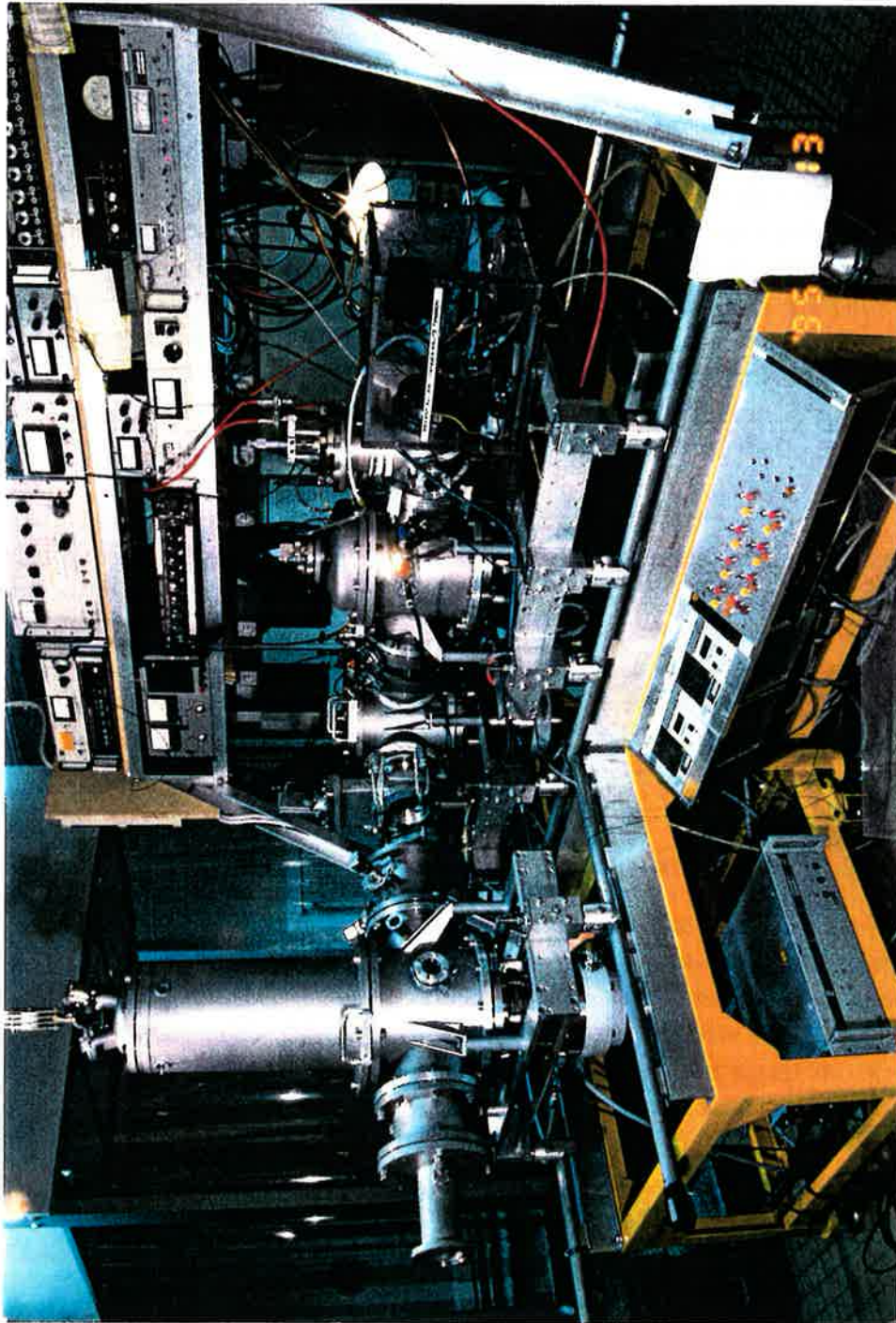


Figure 8.1: Photographie du montage prise au mois de septembre 95. On aperçoit la chambre source contre laquelle est appuyée une boîte en plexiglas qui isole de la haute tension négative de la source. Le virage quadrupolaire est situé dans l'enceinte du centre. La chambre d'interaction est surmontée d'un grand cylindre qui contient la colonne de champ électrique uniforme. Chaque chambre est pompée par une pompe turbomoléculaire et est isolée des autres par des vannes à tiroir.

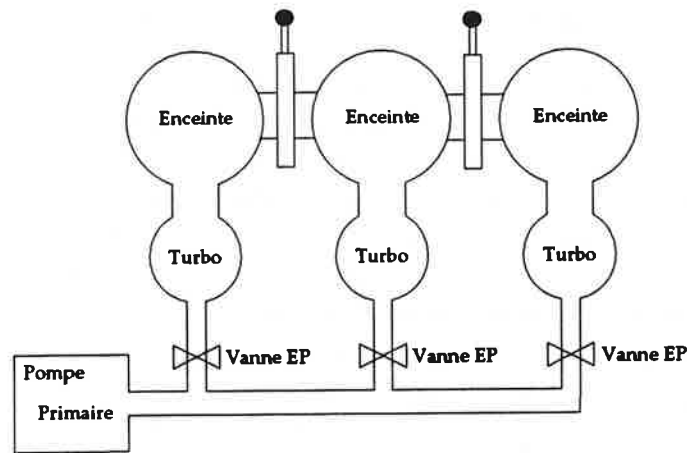


Figure 8.2: Schéma du circuit de pompage.

telle sorte qu'il remplisse les critères de sécurités suivants:

- Quoiqu'il se passe, les pompes secondaires refroidies par eau ne peuvent fonctionner tant que l'eau ne circule pas.
- En cas de remontée du vide secondaire dans une chambre, la pompe secondaire de cette chambre est arrêtée et la vanne d'isolement fermée.
- En cas de remontée du vide primaire, toutes les vannes se ferment et les pompes s'arrêtent.
- En cas d'arrêt d'une pompe, la vanne couplée l'isole du circuit primaire.
- En cas de fermeture d'une vanne, la pompe secondaire correspondante s'arrête.
- Quand les sécurités sont désactivées on peut manœuvrer manuellement toutes les pompes et les vannes électropneumatiques. Cela sert essentiellement lors des phases de vidage.

En cas d'arrêt, les pompes moléculaires à paliers magnétiques ont besoin d'être "remises à l'air" pour assurer le ralentissement efficace du rotor. Pour éviter une entrée d'air atmosphérique qui rend le repompage suivant plus difficile, nous avons simplement relié des boudruches remplies d'azote pur aux orifices d'entrée d'air.

8.2.3 Pompage d'appoint par pièges à azote

Un premier vase à azote liquide est situé dans la chambre source. Il a pour rôle d'augmenter la capacité de pompage quand le jet fonctionne. Plus le pompage initial est efficace et moins l'argon injecté par la source se répand dans l'ensemble du dispositif. Pour la même même raison un pompage différentiel a été réalisé en plaçant un diaphragme entre la chambre de source et la chambre de virage. Cela a eu pour effet de diviser par 5 la pression en fonctionnement dans la chambre d'interaction.

Un second réservoir à azote liquide entoure l'ensemble de la colonne de détection pour améliorer le pompage autour de la zone d'interaction. Le pompage différentiel plus le refroidissement par azote permettent d'obtenir un vide de quelques micropascals ($\sim 2 \cdot 10^{-8}$ Torr).

8.3 Réalisation du nouveau jet

8.3.1 Description du jet

Page 126 se trouve le schéma du nouveau jet. Je vais énumérer les éléments qui le composent:

1. La source est celle du montage précédent.
2. La position de la première lentille double peut être changée grâce à 3 vis de réglage $x y z$. Cela permet de centrer la couronne extractrice, mais également de modifier sa distance, donc de changer la façon dont sont extraites les particules négatives.
3. Le premier diaphragme sert essentiellement à protéger le reste de la chambre de la pollution de la source. Le diamètre des diaphragmes décroît de 2 mm à 1mm tout au long du parcours du jet. Les diaphragmes suivants sont essentiellement destinés au centrage du jet.
4. La succession des deux couples de plaques, de la lentille et du diaphragme permet au jet d'entrer dans le filtre de Wien suivant son axe.
5. Le filtre de Wien est celui du montage précédent. Il est suivi par une fente et un iris réglables destinés à accroître la résolution angulaire du filtre, donc la résolution en vitesse.
6. La chambre source n'est en communication avec la suivante qu'au travers du diaphragme de sortie ce qui permet un pompage différentiel.

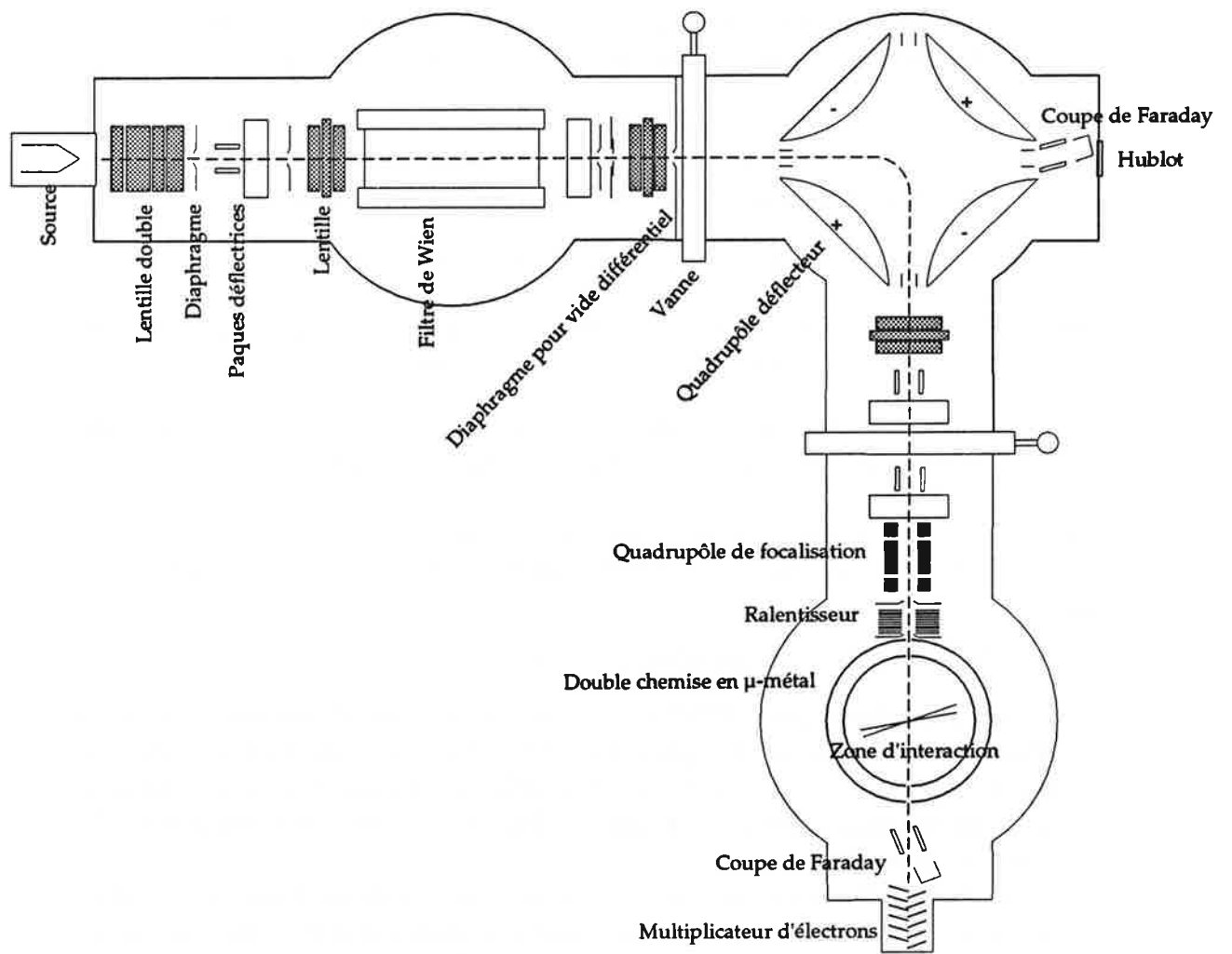


Figure 8.3: Schéma du nouveau jet.

7. Le virage quadrupolaire est constitué de 4 défecteurs principaux et de 8 couteaux secondaires. Je reviendrai sur le fonctionnement de ce nouvel élément.
8. Une coupe de Faraday située dans l'axe des deux premières chambres permet de faire des essais de jet sans polluer la chambre de détection. La coupe est décalée (le jet est dévié par des plaques électrostatiques) de manière qu'on puisse voir la source au travers d'un hublot. Cette disposition est très pratique pour l'alignement mécanique initial du jet.
9. Les plaques défectrices qui suivent le virage servent à recentrer le jet. La lentille peut compenser une éventuelle défocalisation due au virage.
10. L'ensemble du quadrupôle de focalisation est issu du précédent montage. Dans cette zone ont été adjoints des diaphragmes afin de s'assurer que le jet rentre parfaitement dans l'axe du ralentisseur.
11. Le ralentisseur à ions sera détaillé ultérieurement.
12. La zone d'interaction est entourée d'une double chemise en μ -métal qui la protège des champs magnétiques extérieurs.
13. La mesure de l'intensité de courant du jet est réalisée par une coupe de Faraday désaxée pour permettre le passage des neutres.
14. Un multiplicateur d'électrons sert à mesurer le courant d'atomes neutres dont une partie est produite par le processus de photodétachement.

8.3.2 Le virage quadrupolaire

Le virage quadrupolaire [ZEM77] est composé de quatre électrodes défectrices principales. La face qu'elles présentent à l'intérieur du virage est un cylindre ayant pour base un arc de cercle. Les défectrices opposées sont polarisées de la même façon. Idéalement deux défectrices voisines ont des potentiels exactement opposés.

A chaque électrode principale sont associés les deux couteaux les plus proches. Ils sont à un potentiel intermédiaire entre celui de l'électrode principale et le potentiel zéro (qui se situe sur les deux axes d'entrée et de sortie du jet). Ils ont pour but de guider les lignes de champs proches des axes.

En pratique on peut faire varier 4 potentiels, celui des deux électrodes positives, celui des 4 couteaux positifs, celui des 2 électrodes négatives et celui des 4 couteaux négatifs.

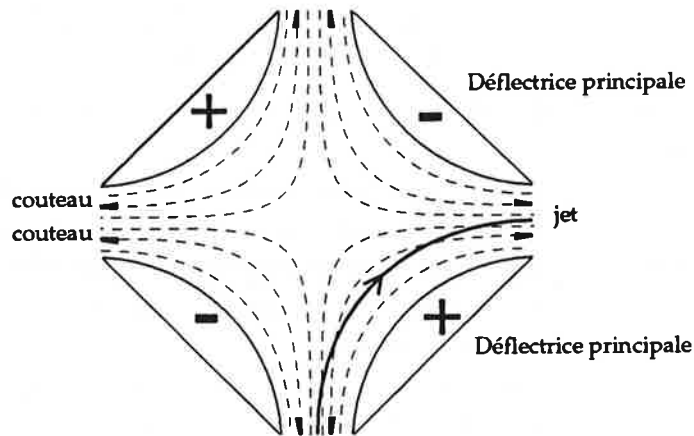


Figure 8.4: *Virage quadrupolaire. Les quatre électrodes déflectrices principales ainsi que les 8 couteaux sont représentés. Les traits pointillés représentent des lignes équipotentiellles. Le trait plein représente le parcours des ions*

Le virage quadrupolaire fonctionne bien même avec des valeurs légèrement dissymétriques. En revanche les meilleures performances n'ont pas du tout été obtenues avec le rapport théorique entre potentiel d'électrode et de couteaux. Plus ce rapport est petit et mieux le virage fonctionne.

Dans tous les cas de figure, on est obligé de corriger la trajectoire des ions à l'aide des plaques déflectrices placées à la sortie du jet. Quand le jet d'ions est à nouveau dans l'axe on constate qu'il tourne trop. Ce mauvais fonctionnement est peut être dû à un écart géométrique du montage mécanique ou à des effets de bords. A cet égard, l'utilisation du virage quadrupolaire n'est pas encore pleinement satisfaisante.

8.3.3 Le ralentisseur

L'usage d'un ralentisseur est nécessaire quand l'effet d'entraînement du jet décale la tache d'électrons hors de la zone de détection, ce qui se produit quand on diminue le champ électrique dans la zone d'interaction.

Pour ralentir un jet d'ions négatifs on le fait pénétrer dans une zone où le potentiel décroît. Le rôle du ralentisseur consiste à amener les ions du potentiel 0 au potentiel négatif désiré en minimisant les effets de champ transverse.

Le ralentisseur est composé de 11 électrodes espacées régulièrement. Ces 11 électrodes ont des potentiels dont les valeurs suivent la loi exponentielle

suivante.

$$V(i) = \frac{10}{9} V_r \left[1 - \exp\left\{-\frac{\ln 10}{10}(i - 1)\right\} \right] \quad (8.1)$$

où i est le numéro de l'électrode et V_r le potentiel de freinage en sortie du ralentisseur.

Le potentiel exponentiellement variable est connu pour donner des trajectoires exactement calculables. Il minimise les effets de vergence inévitablement associés aux changements de champ longitudinal. En effet, comme les ions rapides sont moins sensibles aux courbures de champ, les fortes variations de champ sont au début du ralentisseur.

La forme et le nombre des électrodes ont été évalués grâce à des simulations réalisées avec le logiciel "Simion". L'effet qui a été le plus étudié est la focalisation ou la divergence du faisceau. On a adopté la solution qui a donné les meilleurs résultats au cours des simulations. Cependant, même en supposant que le ralentisseur ne communique pas de vitesse transverse aux ions, le simple fait de les ralentir amplifie la divergence initiale du jet.

La dernière électrode forme un diaphragme de 1 mm pour sélectionner les ions qui rentrent bien dans l'axe de la zone d'interaction, et pour éliminer les éventuels ions désaxés. C'est essentiel car sinon ces ions hors d'axe peuvent heurter une paroi à proximité du champ électrique statique et les électrons issus de la collision augmentent le bruit résiduel de façon sensible. Nous l'avons vérifié expérimentalement car au cours de nos premiers essais nous n'avions pas mis ce diaphragme. Il s'avère indispensable.

Le ralentisseur fonctionne de façon tout à fait satisfaisante, il permet de ralentir les ions jusqu'à des vitesses correspondant à des énergies cinétiques de moins de 1000 eV sans modifier trop sensiblement les autres réglages. En deçà de 800V, on perd le signal de mesure de l'intensité du courant (ce qui ne veut pas dire que le jet ne soit plus présent dans la zone d'interaction). Cette perte est vraisemblablement due à la réaccélération des ions après la zone d'interaction. Il suffit en effet d'un petit écart à l'axe à la sortie de la zone de potentiel négatif, pour que les ions regagnent le potentiel 0 hors d'axe, et ne soient plus détectés.

8.3.4 Réglages du jet d'ions

Le nouveau jet d'ions est sensible à plus d'une trentaine de paramètres réglables, dont une vingtaine sont très souvent réoptimisés. Comme toute source de réglage est aussi source de dérèglement, le premier signal de jet est parfois long à obtenir. Heureusement, le jet de brome négatif est remarquablement stable. Ceci est peut-être dû au fait que le nouveau dispositif

est beaucoup moins sensible à la pollution, ce que nous pensons être lié au remplacement de la pompe à diffusion par une pompe turbomoléculaire.

L'intensité du jet obtenue avec notre nouveau dispositif est 5 fois moins importante que dans l'ancien, mais elle est suffisante pour nos expériences.

8.4 Détection

8.4.1 Le détecteur

Le détecteur (Quantar Technology 3391A) est sensible à la position d'arrivée des électrons. Il est schématisé figure 8.5. Le signal électrique d'un électron incident est amplifié d'un facteur 10^7 dans une série de 5 galettes de microcanaux.

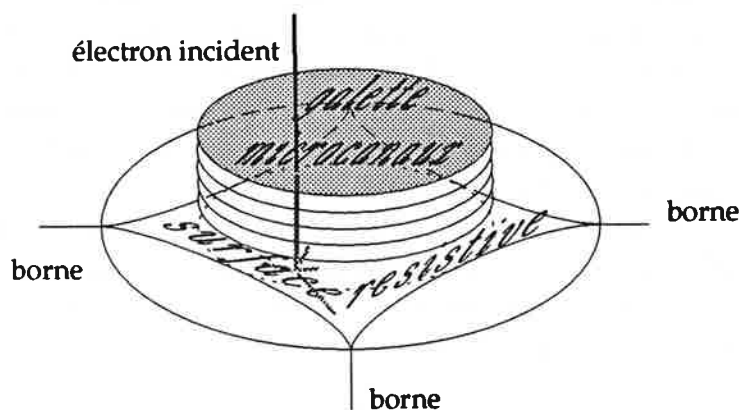


Figure 8.5: Schéma du détecteur. Un électron est amplifié au travers des 5 galettes de microcanaux. Le paquet d'électrons se divise en 4 paquets. En effectuant le rapport entre les courants reçus aux quatre bornes, on peut connaître la position d'impact de l'électron.

L'ensemble du signal électrique est mesuré aux quatre coins d'une surface uniformément résistive. La mesure de la répartition relative des quatre intensités permet de déduire la position initiale du paquet d'électrons.

Le signal délivré par les 4 bornes est très faible et donc particulièrement sensible aux parasites. Un blindage électromagnétique est indispensable. Les quatre signaux sont amplifiés dès la sortie de l'enceinte.

Les signaux amplifiés sont analysés par un discriminateur qui élimine les "coups de bruit" (qui se caractérisent par exemple par un signal sur une seule des quatre bornes). Les coordonnées des vrais événements sont digitalisées et stockées dans une carte à mémoire implantée dans un PC.

Un programme d'acquisition et de traitement sommaire affiche en temps réel les événements sur l'écran. Grâce à une échelle de couleur on obtient la carte des électrons tombés sur le détecteur.

La surface active du détecteur est un disque inscrit dans un carré d'un pouce de côté. Chaque pixel représente environ 25 microns. La résolution du détecteur est donnée pour $64 \mu\text{m}$.

Le détecteur, l'électronique d'acquisition, la carte et le logiciel d'acquisition ont été achetés ensemble. Leur mise en œuvre n'a pas posé de difficulté.

Ce type de détecteur est parfaitement adapté à un signal continu de faible intensité. En effet, la durée du traitement des événements est telle que la cadence maximale de détection est d'environ 100 kHz. Si plusieurs électrons arrivent simultanément (c'est à dire à moins de $10 \mu\text{s}$ d'intervalle), c'est la position du barycentre qui sera repérée. On ne peut donc pas, avec ce type de détecteur, utiliser des lasers pulsés où le paquet d'électrons arrive groupé. La technique utilisée pour ce genre de mesures consiste à enregistrer à l'aide d'une caméra CCD la fluorescence d'un écran de phosphore. Cette technique fonctionne également en continu, mais nous avons préféré notre type de détecteur car quelle que soit la durée de l'enregistrement toute l'information tient en une image.

La zone de détection dans son ensemble est schématisée figure 8.7.

Le champ électrique uniforme est réalisé par un empilement de 27 électrodes dont la forme l'espacement et le nombre ont été déterminés par des simulations avec le logiciel Simion.

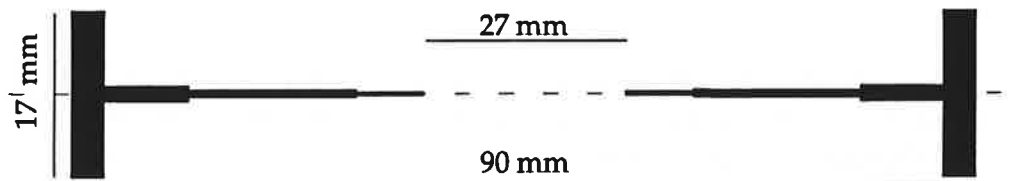


Figure 8.6: Schéma des électrodes composant la colonne de champ électrique. L'épaisseur de l'électrode diminue quand on se rapproche du centre pour finir à 0.5 mm . Les rebords verticaux servent à isoler de l'influence des champs extérieurs.

8.4.2 La zone de détection

Comme le montre la figure 8.6 une coupe verticale d'une électrode est composée d'une partie horizontale et d'une partie verticale. La partie verticale sert de barrière aux potentiels extérieurs. Comme les lignes de potentiel

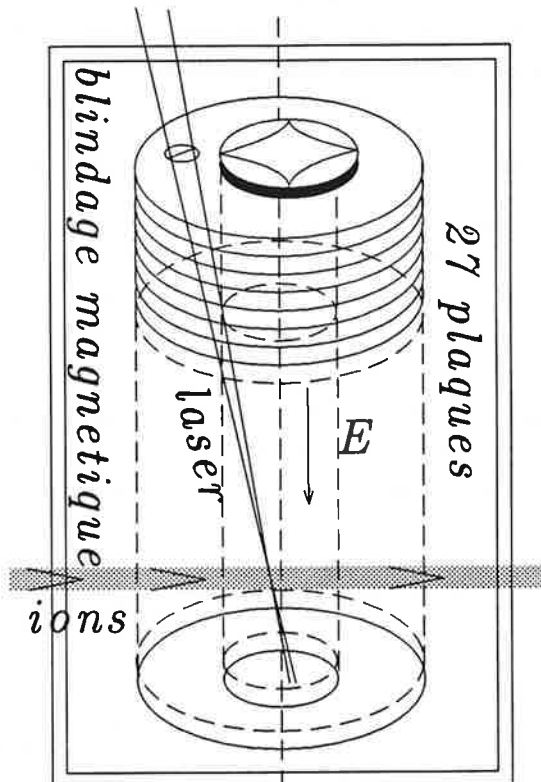


Figure 8.7: La zone de détection est entourée d'une double chemise en μ -métal. Le champ électrique uniforme se trouve au centre de l'empilement de 27 électrodes. Le détecteur situé en haut de la colonne est légèrement désaxé pour laisser passer le faisceau laser qui fait un angle de \mathcal{P} avec l'axe du champ électrique.

suivent la surface des électrodes, elles sont déformées aux extrémités rectangulaires. Plus l'électrode est mince et plus le champ électrique tend à être uniforme. Dans ce but, la partie horizontale est amincie par palliers successifs pour atteindre un demi millimètre. Cette méthode est un bon compromis entre l'assurance d'une bonne rigidité mécanique (qui s'accommode mal de longues parties minces) et une épaisseur minimale.

Le détecteur, situé en haut de la colonne de détection, est légèrement décentré pour que le faisceau laser puisse passer. Toutes les électrodes qui sont sur le trajet de la lumière sont percées.

8.4.3 Polarisation de la zone de détection

La figure 8.8 précise la localisation et la hauteur relative des potentiels de la zone de détection. V_r est le potentiel de freinage (voir 8.3.3). V_a et V_b sont respectivement les potentiels de la plaque du haut de la colonne et de la plaque du bas. V_e est le potentiel d'entrée du détecteur et V_d est le potentiel du haut du détecteur. L'électrode de champ électrique uniforme directement supérieure à l'axe du jet d'ions est au potentiel V_{sup} et celle directement inférieure au potentiel V_{inf} ; z_1 (respectivement z_2) est la hauteur qui sépare le bas (haut) de la colonne de l'axe du jet d'ions.

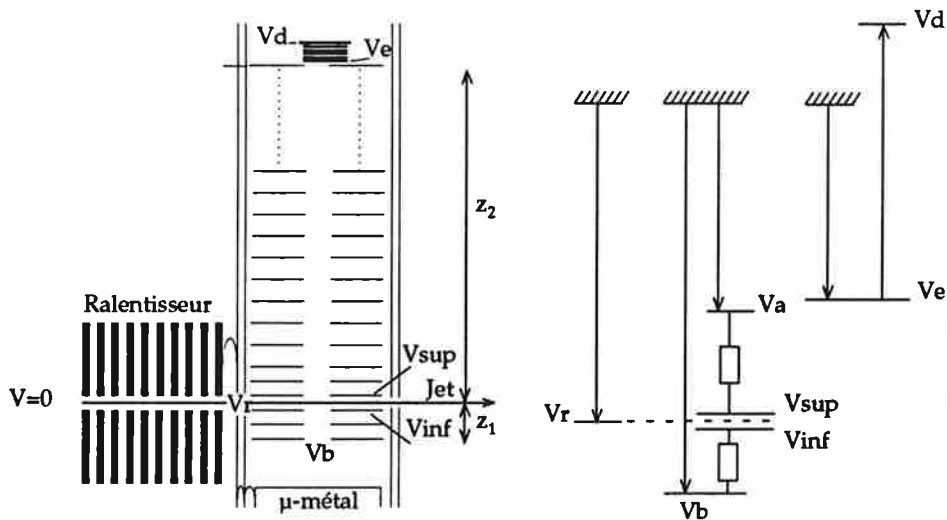


Figure 8.8: Schéma des potentiels de la zone de détection. Le jet d'ions avant le ralentisseur est au potentiel 0. Il est ralenti par le potentiel V_r . Ce potentiel est conservé le long de la traversée de la zone d'interaction. V_b et V_a sont les potentiels des deux plaques extrêmes de la colonne. V_e est le potentiel d'entrée du détecteur et V_d est le potentiel du haut du détecteur.

On choisit V_e pour que le champ reste aussi uniforme que possible, en lui

donnant une valeur légèrement supérieure à V_a . $V_d - V_e$ est la différence de potentiel qui polarise le détecteur pour permettre l'amplification du signal électrique dans les galettes de microcanaux. Sa valeur vaut normalement 3200V.

Pour que les ions restent à une vitesse constante à la sortie du ralentisseur il faut que tout le trajet des ions dans la zone d'interaction soit au même potentiel que le potentiel ralentisseur V_r . La chemise en μ -métal est donc en contact électrique avec la dernière électrode du ralentisseur. De même on a:

$$V_r = \frac{V_{sup} + V_{inf}}{2} \quad (8.2)$$

et

$$\frac{V_a - V_r}{z_2} = \frac{V_r - V_b}{z_1} = E \quad (8.3)$$

L'étude et la conception des alimentations électriques pouvant respecter toutes ces contraintes, (ainsi que des contraintes de stabilité, de débit et de fiabilité de mesure) ont été réalisées en collaboration avec le bureau d'électronique du laboratoire, par l'entreprise Sefelec.

8.5 La source laser

La source de lumière utilisée pour le photodétachement de Br^- au seuil est un laser saphir titane accordable doublé intracavité qui fournit 20 mW en continu à 368 nm. Le cristal amplificateur de saphir-titane est pompé par un laser à argon ionisé de 15 W. La cavité en anneau est longue d'environ 2 m.

Les quatre miroirs de la cavité ont un coefficient de réflexion maximum pour que l'énergie dans la cavité soit la plus grande possible. car l'efficacité de conversion croît proportionnellement au carré de l'éclairement. Un cristal doubleur d'iodate de lithium convertit une partie du faisceau fondamental en fréquence doublée. LA lumière U. V. ainsi produite est extraite par une séparatrice située juste après le cristal.

La fréquence d'oscillation de la cavité est sélectionnée par un filtre de Lyot, un étalon mince, et un étalon épais. La cavité est asservie par le biais d'une cavité externe et n'oscille que sur le mode sélectionné.

Une fraction du faisceau fondamental qui est transmise par un miroir sert à caractériser le faisceau. Une partie est dirigée vers un analyseur de mode qui nous permet de vérifier que le laser reste bien monomode. Une autre partie est injectée dans une fibre qui transporte le faisceau jusqu'à un lambda-mètre, un double interféromètre de Michelson, qui permet de faire des

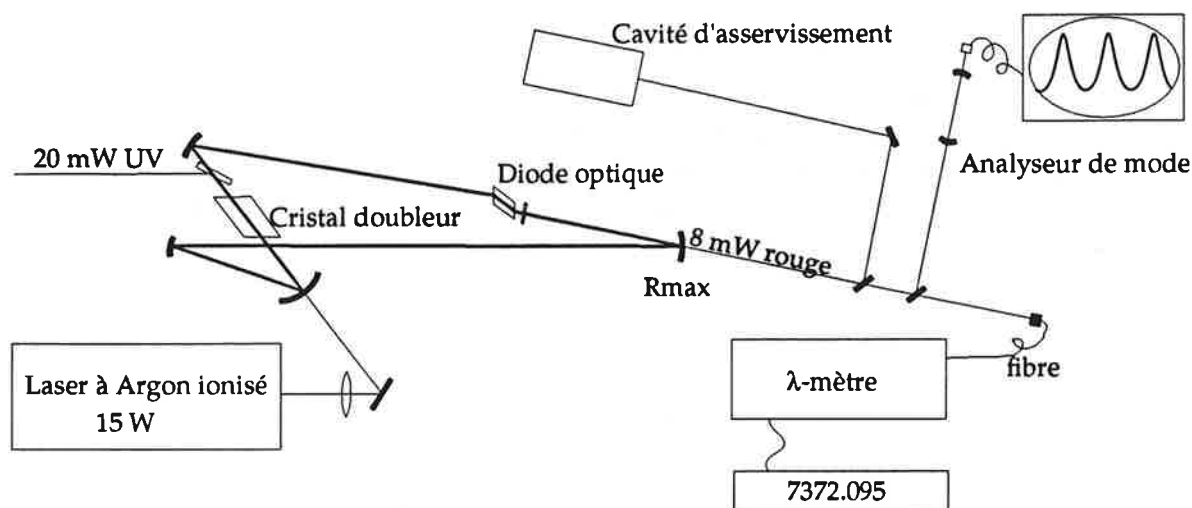


Figure 8.9: *Laser saphir titane doublé intra cavité. Un laser à argon ionisé de 15 W pompe un cristal de saphir-titane placé dans une cavité en anneau quasiment fermée. Un cristal de LiIO_3 double une partie du faisceau fondamental. La fréquence doublée est extraite par une séparatrice. Une partie du faisceau fondamental est transmise, malgré le pouvoir de réflexion maximum du miroir de sortie. Ce faisceau est en parti partagé entre une cavité d'asservissement, un analyseur de mode qui permet de contrôler son fonctionnement monomode et un lambdamètre qui mesure sa longueur d'onde.*

rapports précis d'ordres d'interférences. Le laser de référence est un hélium-néon non stabilisé qui ne permet de faire des mesures précises qu'au dixième de picomètre près.

8.6 Difficultés expérimentales

8.6.1 Les électrons parasites

La longueur d'onde du laser est trop grande et sa puissance crête trop petite pour arracher des électrons au métal de la zone d'interaction.

La plus grande partie des électrons parasites vient donc des collisions des ions. Le fond parasite est proportionnel à l'intensité du jet, qui n'est plus un facteur rentrant en ligne de compte pour l'augmentation du rapport signal sur bruit. Cela veut dire qu'on peut, même avec de faibles intensités de jet, espérer un bon rapport signal sur bruit, au prix toutefois d'un allongement

du temps de comptage et avec la limite inférieure imposée par le bruit de fond du détecteur.

Le vide limite dans la zone d'interaction dans le nouveau montage est 10 fois inférieur à celui du premier, cependant la mesure étant faite en continu et en présence de champ électrique, tous les électrons parasites sont comptés. Le vide résiduel est donc un paramètre plus critique pour la nouvelle expérience car de lui provient la majorité des électrons parasites.

Les images que nous enregistrons ne couvrent souvent qu'une petite surface du détecteur. Les électrons parasites sont isotropes. Ceux qui sont détectés à l'extérieur de la zone de l'image utile ne sont absolument pas gênants. Ceux qui arrivent dans la zone sont également facilement déductibles si on le souhaite, puisqu'on a une excellente mesure du fond à l'extérieur de la tache. Les électrons parasites, n'ont donc pour seul défaut que d'augmenter la fluctuation de comptage, contrairement aux mesures précédentes où les électrons pouvaient avoir une distribution angulaire propre.

8.6.2 Détection du signal de photodétachement

Le microscope de photodétachement utilise un détachement à un seul photon, ce qui signifie que le signal de détachement sera insensible à la position du waist: pourvu qu'il reste à l'intérieur du jet, seul le volume éclairé compte. Le seul moyen de connaître la position du waist est de minimiser la perte de résolution de l'image. Cette mesure est différée et peu sensible.

Le signal de photodétachement dans le précédent montage était détecté par le faisceau de neutre produit. On éliminait la plupart des neutres produits par collisions par l'observation durant une plage temporelle réduite. Le signal de détachement sortait nettement du bruit de fond et était facilement mesurable. Dans le nouveau montage, qui ne bénéficie pas de restriction temporelle, le signal de neutres photodétachés est petit par rapport au signal de neutres détachés par collisions: on ne peut pas actuellement mesurer le signal de photodétachement.

L'optimisation du nombre d'électrons utiles n'est pas encore pleinement satisfaisante dans notre nouveau montage, même si elle a suffi à nos premières expériences.

8.7 Chronologie

La réalisation d'un nouveau dispositif expérimental est une tâche très diversifiée, c'est également un travail de longue haleine. Voici quelques étapes de la réalisation de cette expérience:

- 1980, 1981 I.I. Fabrikant et Demkov et al suggèrent le principe.
- janvier 1983, Ch. Blondel propose l'expérience dans la conclusion de sa thèse de 3ème cycle.
- 1993, le dessin de principe du dispositif est réalisé
- 1993 et 1994, le bureau de dessin du laboratoire réalise l'étude du projet.
- 1994, La plupart des pièces sont fabriquées par l'atelier de mécanique et soudées à la chaudronnerie du laboratoire Aimé Cotton. Sous-traitance des autres pièces.
- janvier 1995, premiers assemblages du montage.
- mars 1995: étude avec le service d'électronique du système de polarisation de l'optique électrostatique. Réalisation par la société Sefelec octobre 95.
- juin 1995: jet de Br^- dans les deux premières chambres.
- novembre 95: jet de Br^- dans la zone d'interaction.
- janvier 96: mise en place du détecteur.
- février 96: premières expériences avec un laser à argon ionisé. Observation de la projection sphérique des électrons.
- 27 février 96: première observation des interférences.

Chapitre 9

Analyse des premiers résultats

9.1 Expérience préliminaire avec une raie UV d'un laser à argon.

Le laser à argon ionisé (beamlock Spectra-Physics), muni d'un prisme intracavité, peut produire un rayonnement de longueur d'onde $\lambda = 363,78$ nm réparti sur plusieurs raies, d'une puissance totale d'un watt. L'énergie du photon est de $\epsilon = 351.5$ cm⁻¹ au dessus du seuil de Br⁻. Quel que soit le champ appliqué, on est dans un domaine où on ne peut observer d'anneaux d'interférence avec notre dispositif. Pour un champ électrique de 1500 V/m on attend $R_{max} = 7,6$ mm et $i < 3$ μm.

Nous avons obtenus plusieurs images pour différentes valeurs de champ électrique. L'une d'entre elle est présentée figure 9.1. Aucune interférence n'est visible, en revanche la forme de l'image est bien une forme en "cuvette" caractéristique de la projection d'une sphère sur un plan.

9.1.1 Information radiale

Théoriquement une image est de symétrie circulaire, ce qui signifie que toute l'information peut être résumée dans une distribution du nombre d'électrons en fonction du rayon. Dans un premier temps on peut se contenter d'une coupe, mais on n'utilise alors qu'une faible partie de l'information contenue dans l'image.

Nous avons réalisé un programme qui calcule le barycentre d'une image, puis classe par pas de un pixel tous les points de l'image en fonction de leur distance au centre. A chaque valeur moyenne est associée une barre de fluctuation de comptage.

La figure 9.2 montre la représentation radiale de l'information contenue

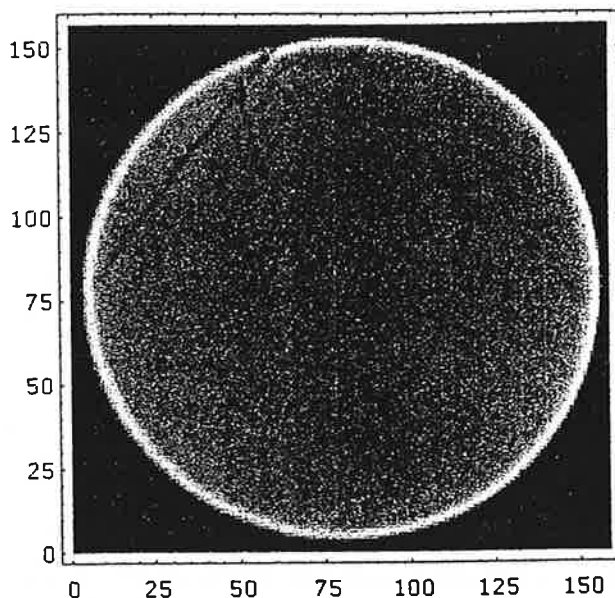


Figure 9.1: Coupe d'une image obtenue avec la raie à 363,78 nm du laser à argon ionisé pour $E=1500$ V/m. Les traits sombres sont des défauts du détecteur.

dans l'une des images précédentes. L'ordonnée exprime le nombre moyen d'électrons compté par points situés à la distance correspondante de l'origine.

Les barres de fluctuations sont importantes au centre ce qui s'explique par le fait que seulement 4 points de l'image se trouvent à moins d'un pixel du centre et donc le comptage est faible. Sur les bords le phénomène peut être similaire. L'image est rectangulaire, le nombre des points les plus loins du centre (qui se trouvent dans les coins du rectangle) diminue.

Si l'image d'origine n'est pas tout à fait circulaire, l'histogramme radial des taux de comptage perd un peu en résolution.

9.1.2 Largeur d'appareil

Théoriquement la distribution de courant sur le détecteur contient une singularité quand $R = R_{max}$. Cette divergence disparaît si on associe au plan de détection une largeur d'appareil. La résolution de notre détecteur est donnée pour $64 \mu\text{m}$. L'origine des électrons s'étale sur les $50 \mu\text{m}$ du waist du laser auxquels on doit ajouter les $30 \mu\text{m}$ dûs à l'angle de 3° entre le champ électrique et le laser. Il existe peut-être d'autres sources d'élargissement telle que l'inhomogénéité du champ électrique uniforme. Modélisons cet

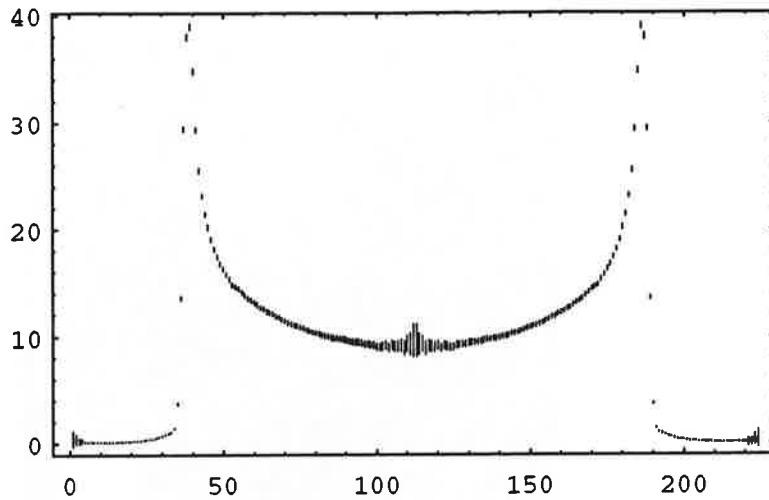


Figure 9.2: *Distribution radiale d'une image. Les abscisses sont comptées en pas de 4 pixels (100 μm). Les ordonnées représentent le nombre d'électrons détectés en fonction de la distance au centre. La symétrie est obtenue par construction.*

élargissement par une fonction d'appareil globale de la forme:

$$f_a(R) = e^{-\frac{R^2}{L_a^2}} \quad (9.1)$$

où L_a représente la résolution globale du système de détection. Puisque l'image est bidimensionnelle la convolution devrait l'être également. Lorsque que le rayon est grand devant la largeur d'appareil, considérer que la fonction d'appareil n'est qu'une fonction radiale est justifié.

Pour obtenir $J_a(R)$, le courant perçu sur le détecteur tenant compte de la largeur d'appareil du système de détection, il faut calculer la convolution de J par f_a :

$$J_a(R_0) = \int_{-\infty}^{\infty} f_a(R) J(R_0 - R) dR \quad (9.2)$$

Cette intégrale n'a pas d'expression analytique. On peut toutefois l'estimer numériquement. Un exemple de ce calcul est donné page 142.

Les images que nous observons sur le détecteur comportent une accumulation d'événements sur un anneau extérieur qui est un pur effet de la projection du nuage électronique sur le détecteur. En première approximation, la largeur de cet anneau peut être interprétée comme la résolution du microscope. Les images obtenues avec le laser à argon ionisé nous apprennent que la résolution du microscope peut atteindre 125 μm . On constate également un élargissement de la couronne extérieure de quelques pixels supplémentaires, pour les électrons dont les trajectoires sont très proches du bord des électrodes, mais la résolution reste meilleure que 200 μm .

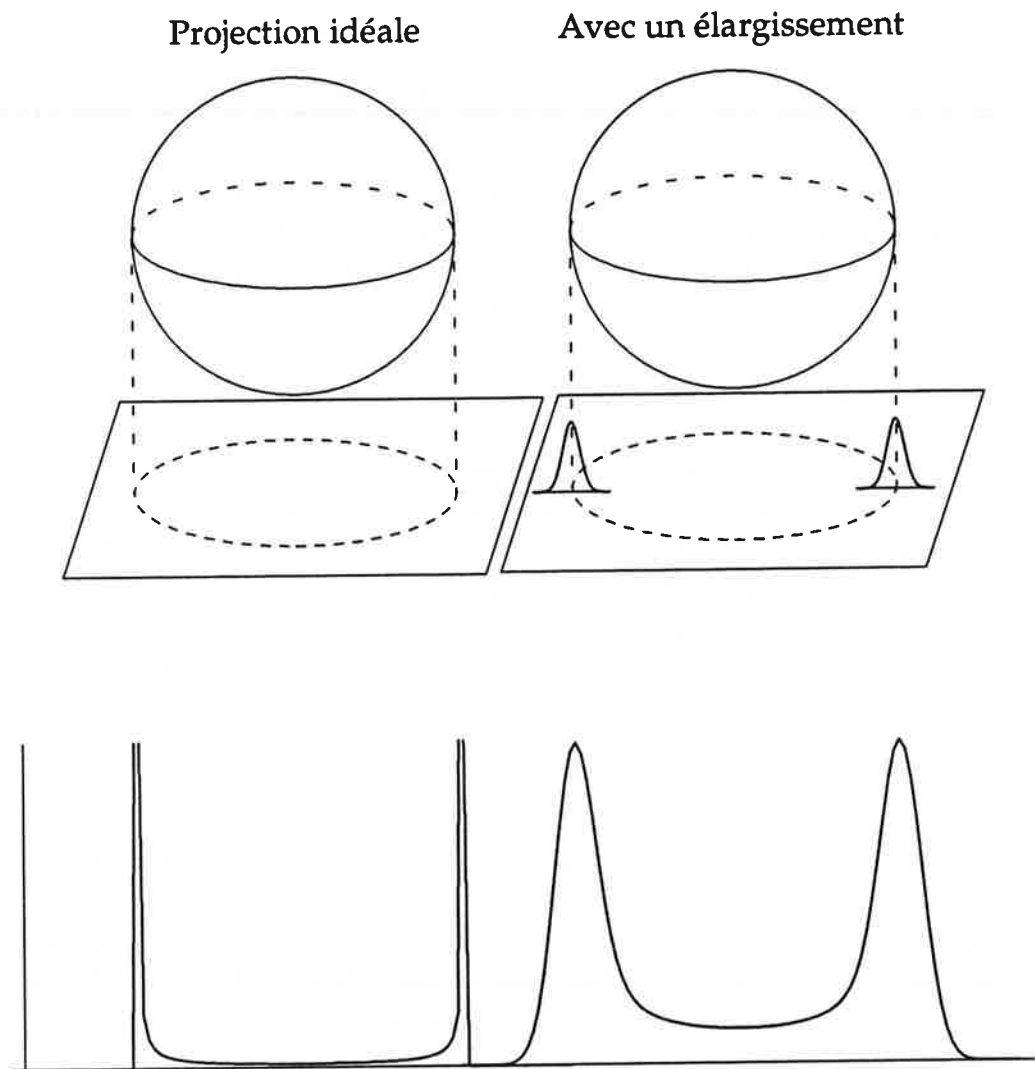


Figure 9.3: Effets dus à la projection du nuage électronique sur le plan de détection. La colonne de gauche représente une projection idéale, la colonne de droite une projection élargie par une certaine largeur d'appareil. Les deux dessins du haut schématisent la projection. Les deux images centrales sont les images que l'on obtiendrait en sur le détecteur. Le nombre d'événements peut se lire sur l'échelle des gris à droite. En bas figurent les représentations de $J(R)$ et $J_a(R)$.

Ces résultats préliminaires sont encourageants, car la résolution attendue avec un laser monomode sera forcément meilleure. En effet, le laser à argon ionisé émet sur plusieurs modes longitudinaux. Une image est la superposition de plusieurs types de structures correspondant à des énergies ϵ différentes.

9.1.3 Effet de la dispersion de l'énergie des électrons

Dans la largeur d'appareil L_a précédemment définie, la résolution en énergie a volontairement été ignorée. La convolution basée sur L_a ne fait qu'ajouter plusieurs images de la même forme mais décalées entre elles. En revanche, un écart en énergie provoque une variation du rayon maximum, qui modifie la structure même de l'image. Il convient donc de traiter séparément ces deux formes de perte de résolution.

Avec le laser saphir titane, monomode, l'essentiel de la distribution en énergie des électrons photodétachés provient de la dispersion des vitesses des ions du jet. Dans une expérience aux conditions très similaires [BLO89c] elle a été estimée à 300 MHz, soit 10 mk. Etant donné les paramètres (ϵ , E) choisis pour nos premières expériences, la dispersion en énergie joue un rôle secondaire. En revanche, il convient d'étudier les effets d'un élargissement de la fonction d'appareil, dont on sait qu'elle a une valeur comprise entre 100 et 200 μm .

9.1.4 Effet de l'augmentation de la largeur d'appareil

Pour observer les anneaux d'interférence il est nécessaire que la résolution du système de détection soit supérieure à l'interfrange. Mais l'interfrange n'est pas une distance fixe d'un anneau sur l'autre.

En effet, le terme oscillant ne suit pas une loi linéaire en R . Il est donc possible qu'on puisse observer des anneaux au centre, sans les observer tous.

La figure 9.4 nous montre qu'en observant un phénomène identique on peut apercevoir un ou deux anneaux d'interférence selon la résolution. Il y a une différence nette selon que la résolution vaut 100 ou 200 μm . Ces valeurs extrêmes sont a priori toutes deux envisageables pour notre système de détection.

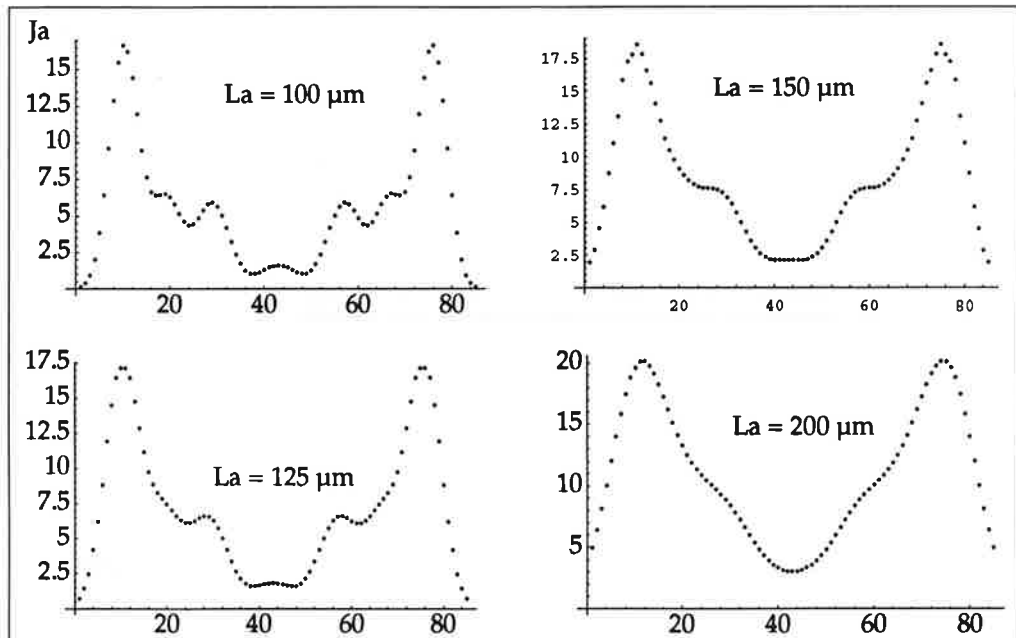


Figure 9.4: *Forme de $J_a(R)$ pour L_a valant 100, 125, 150, 200 μm , dans les conditions envisagées pour l'observation des interférences ($E=120$ V/m, $\epsilon = 375$ mk).*

9.2 Premières images de coupe de fonction d'onde

9.2.1 Description qualitative

Nous avons enregistré les premières images de photodétachement de Br^- contenant les deux isotopes, pour différentes valeurs de champ électrique et à différentes énergies de photon. Nous avons finalement observé dans certaines conditions des anneaux d'interférences. Nous avons vérifié que les expériences étaient reproductibles.

La largeur de l'anneau intense extérieur étant de plus de 200 μm nous avons exploré la région où théoriquement l'interfrange est de l'ordre de 500 μm , c'est à dire la région de faible champ électrique et faible énergie cinétique des électrons.

Le comportement qualitatif avec l'augmentation du champ électrique et l'augmentation de l'énergie est satisfaisant puisqu'on a vu le pic central des images varier avec ces paramètres. Nous n'avons cependant pas enregistré d'images contenant plus de 2 anneaux.

Certaines de nos images sont elliptiques et non circulaires comme prévu.

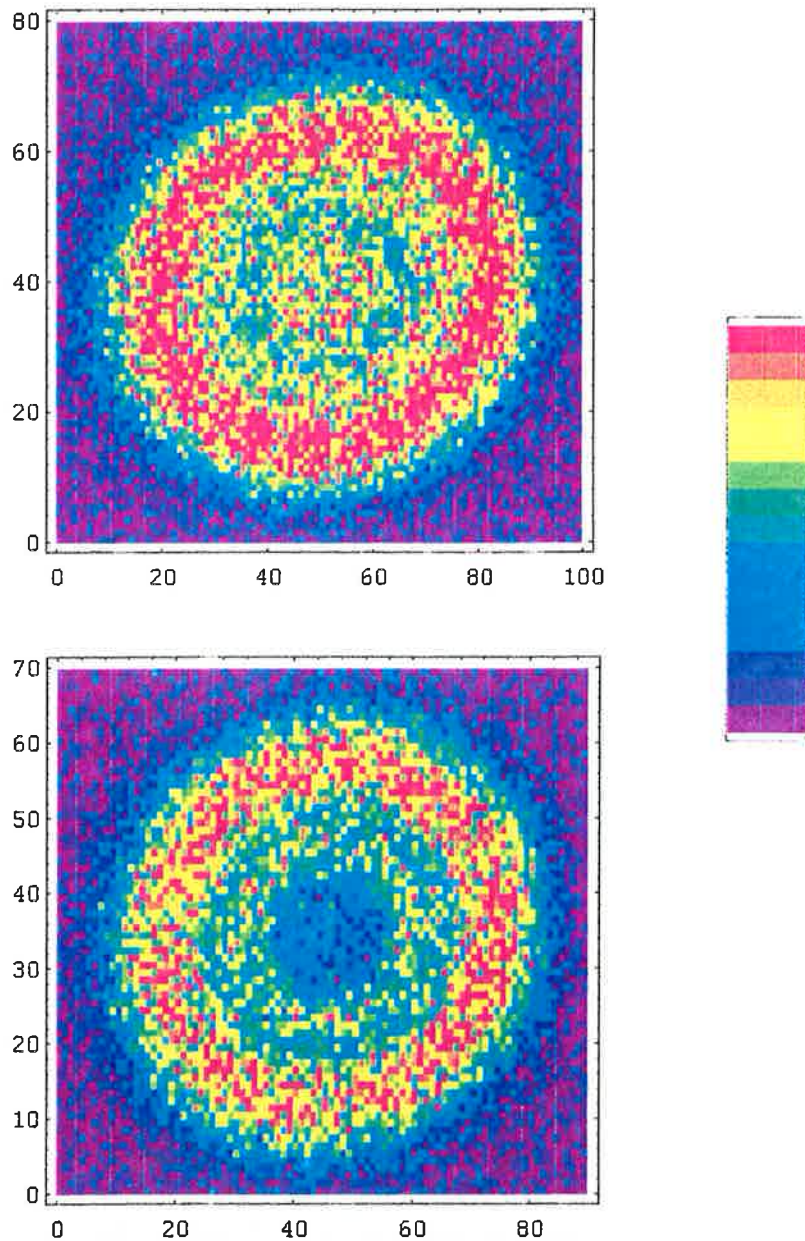


Figure 9.5: Enregistrements réalisés sur $^{81}\text{Br}^-$ pour une longueur d'onde de 368,499 nm et des champs électriques $E=100$ V/m (image du haut) et $E=120$ V/m (image du bas). L'anneau extérieur est un pur effet d'accumulation. L'interférence apparaît sur l'image du haut sous la forme d'un pic plus intense: il y a interférence constructive. Sur l'image du bas apparaît au moins un anneau. Les images étant légèrement ellipsoïdales, les échelles d'abscisse et d'ordonnée, exprimées en pixel, ne sont pas les mêmes.

Nous avons ensuite séparé isotopiquement $^{81}\text{Br}^-$ de $^{79}\text{Br}^-$ et fait des enregistrements avec $^{81}\text{Br}^-$. Nous avons constaté une légère amélioration du contraste ainsi que l'observation d'anneaux plus fins. Nous avons arrêté nos séries de mesures pour analyser nos premières images et pour tenter de comprendre et de remédier à leur déformation .

La figure 9.5 montre deux enregistrements réalisés sur $^{81}\text{Br}^-$ pour une longueur d'onde de 368.499 nm et des champs de $E=100$ V/m et $E=120$ V/m.

Sur la figure 9.2, les "pieds" du pic dû à la projection d'une sphère sur un plan semblent indiquer que la résolution du système de détection est supérieure à $200 \mu\text{m}$; la netteté de l'anneau nous incline à penser que la résolution est bien meilleure. Ce paradoxe apparent peut être expliqué si l'on tient compte de la structure hyperfine du brome neutre.

9.3 Déformation des images

L'allongement des images se produit dans la direction de propagation du jet. On peut donc penser que la dispersion d'énergie cinétique des ions en est la principale responsable. Comme l'effet de dérive est plus important pour un ion rapide que pour un ion lent, il en résulte un décalage du centre des images, ce qui allonge les images dans la direction du jet .

Cette hypothèse est confirmée par le fait que plus l'effet d'entraînement est important et plus la déformation s'accroît. Nous avons fait une étude spécifique afin de déterminer si un élément particulier du dispositif (frein, valeur de U , filtre de Wien) était la cause de ces déformations. Le faible nombre d'échantillons étudiés jusqu'ici ne permet cependant pas de faire ressortir autre chose qu'une tendance générale conforme à la première explication.

9.4 Effet de la structure hyperfine du brome

Le niveau fondamental de l'atome de brome possède quatre sous états de structure hyperfine. Les caractéristiques de ^{81}Br et de ^{79}Br sont données dans le tableau 9.1.

Ces quatre sous-niveaux de structure hyperfine vont donner lieu à quatre énergies cinétiques de l'électron de photodétachement.

L'image que l'on observe est en fait la superposition de quatre images distinctes. Comme l'ordre de grandeur des écarts d'énergie des sous-niveaux de structure hyperfine est comparable à celui des énergies des électrons photodétachés, ce décalage ne peut pas être considéré comme une source

F		$F=0$	$F=1$	$F=2$	$F=3$
g		1	3	5	7
ΔE_s (en mk)	^{79}Br	0	42,3	114,2	189,9
	^{81}Br	0	42,5	116,9	201,61

Tableau 9.1: Caractéristiques de la structure hyperfine de Br. g est le degré de dégénérescence. ΔE_s représente l'écart en énergie par rapport au niveau $F = 0$.

d'élargissement ordinaire.

La figure 9.6 montre les différentes formes de $J_a(R)$ obtenus pour quatre énergies de photoélectrons correspondant aux quatre sous-niveaux de structure hyperfine. Les quatre graphiques ne se ressemblent pas, leur nombre d'anneaux diffère.

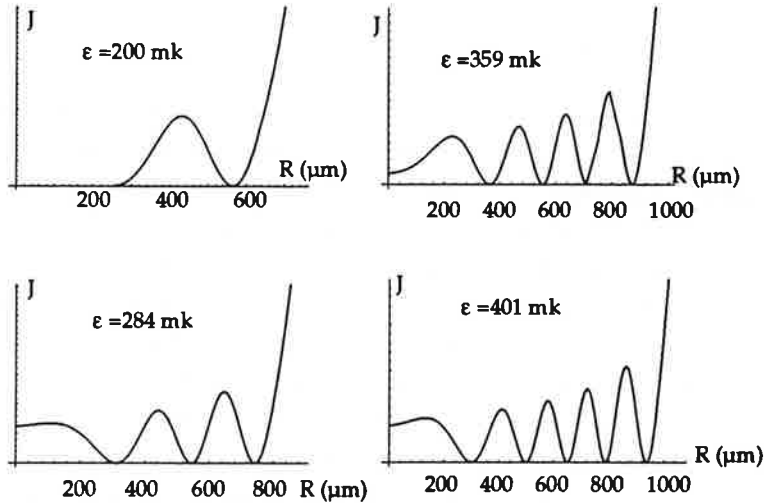


Figure 9.6: Forme de $J_a(R)$ pour différentes valeurs de ϵ correspondant aux quatre types d'électrons liés aux quatre états de structure hyperfine de ^{81}Br pour une énergie de photon de 401 mk au dessus du seuil.

Pour tenir compte des 4 contributions, il faut connaître leur poids relatif. Ce poids relatif est proportionnel au degré de dégénérescence du sous-niveau de structure hyperfine correspondant et à la section efficace dont la dépendance en fonction de l'énergie au dessus du seuil est en première approximation donnée par la loi de Wigner. Une meilleure approximation, que nous laissons à des études ultérieures, consisterait à tenir compte de la modulation de section efficace induite par le champ électrique en plus de la loi de Wigner.

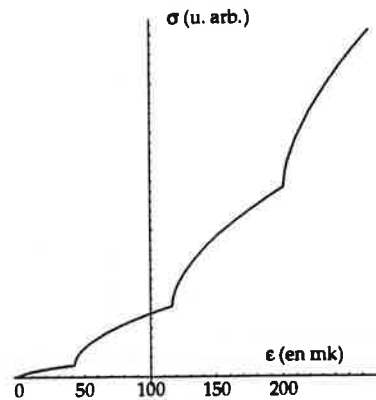


Figure 9.7: Section efficace au seuil de ^{81}Br en fonction de l'énergie. L'origine des énergies est choisie au barycentre des seuils.

On peut même se demander si les anneaux que l'on voit ne peuvent pas être simplement interprétés comme l'apparition successive des seuils de photodétachement.

Pour comparer les hauteurs relatives des anneaux extérieurs il faut considérer trois effets: la taille de l'anneau, la loi de Wigner et la dégénérescence.

1. En supposant que la même proportion d'électron (quel que soit R_{max}) compose l'anneau d'accumulation extérieur considéré comme fin, la hauteur du pic est inversement proportionnelle à son écartement au centre.
2. La loi de Wigner croît en $\sqrt{\epsilon}$ et $R_{max} \propto \sqrt{\epsilon}$, cela signifie que la hauteur du pic augmente linéairement avec le rayon.
3. La dégénérescence est maximum pour le seuil le plus haut, donc l'anneau le plus petit reçoit le plus d'électrons.

En combinant ces trois effets on peut affirmer que si les images que nous observons étaient uniquement le fait de la superposition des quatre types d'électrons, alors le pic central devrait être plus intense que les pics extérieurs, ce qui n'est pas le cas dans les enregistrements.

J'ai calculé la contribution des quatre types d'électrons en supposant qu'il n'y avait pas d'interférences, c'est-à-dire prenant $\Delta S = 0$. Le résultat du calcul est présenté sous forme graphique figure 9.8. Il confirme sans ambiguïté que les oscillations que l'on observe à l'intérieur de l'anneau brillant sont bien issues des interférences.

De plus, la présence des quatre types d'électrons peut parfaitement expliquer l'élargissement des "pieds" des images. En effet, les contributions

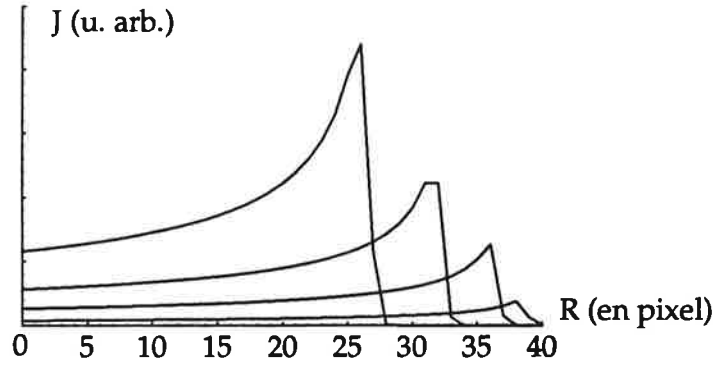


Figure 9.8: Densités de courant des quatre contributions, en l'absence de terme oscillant.

des électrons rapides, plus faibles et plus étalées se situent à l'extérieur du premier anneau intense.

9.5 Simulation d'une image

Une image enregistrée est composée d'une superposition d'images obtenues avec des énergies de photoélectrons variables. On commence par évaluer avec quelle distribution d'énergie est composée une image. Soit $P(\epsilon)$ le poids relatif de la contribution des électrons en fonction de leur énergie: $P(\epsilon)$ rend compte de la loi de Wigner, du degré de dégénérescence ainsi que de la largeur de la raie excitatrice. ϵ_0 est l'énergie de l'électron au dessus du seuil, c'est à dire l'énergie centrale de la raie d'excitation moins l'affinité électronique. ΔE_{si} est l'écart d'énergie du niveau $F = i$ avec le niveau $F = 0$, $\delta\epsilon$ est la largeur de la répartition d'énergie d'excitation. N_ϵ est le facteur de normalisation.

$$P(\epsilon) = \frac{1}{N_\epsilon} \sum_{i=0}^3 g_i \sqrt{\epsilon} \exp - \left(\frac{\epsilon - \epsilon_0 - \Delta E_{si}}{\delta\epsilon} \right)^2 \quad (9.3)$$

Cette distribution normalisée en énergie $P(\epsilon)$ est transformée en distribution en rayon maximum de tache $P'(R_{max})$. Pour chaque valeur de R sont additionnées toutes les contributions des taches définies par $P'(R_{max})$ pour obtenir un courant tenant compte des effets de la structure hyperfine et de la largeur d'excitation.

$$J_h(R) = \int_0^\infty P'(R_{max}) J_{R_{max}}(R) \frac{d\epsilon}{dR_{max}} dR_{max} \quad (9.4)$$

On convolue J_h par la largeur de la fonction d'appareil:

$$J_{ha}(R_0) = \int_{-\infty}^{\infty} f_a(R) J_h(R_0 - R) dR \quad (9.5)$$

La figure 9.9 nous montre la comparaison entre un enregistrement expérimental et la simulation.

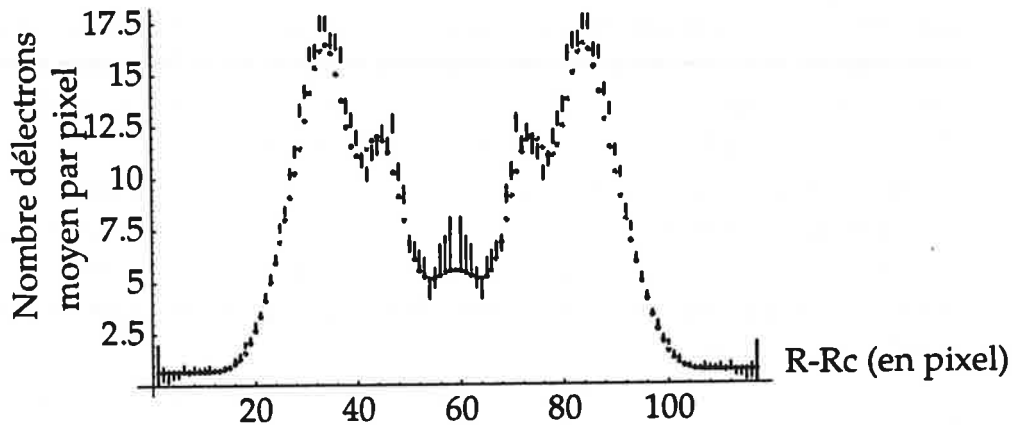


Figure 9.9: *Comparaison des résultats et de la simulation.* $\epsilon_0 = 405 \text{ mk}$. $\delta E = 9 \text{ mk}$. $L_a = 120 \mu\text{m}$. La largeur d'un pixel a été considérée comme valant $26 \mu\text{m}$.

On peut estimer que le modèle reproduit correctement les données. Il nous apprend que la résolution du microscope est de $120 \mu\text{m}$. Dans cette simulation on a choisi les paramètres suivants:

1. La longueur d'onde du laser.
2. La dispersion de l'énergie d'excitation
3. La largeur d'appareil.
4. La largeur du pixel.
5. Le champ électrique

Le champ électrique est une donnée expérimentale, que l'on connaît avec précision. La dispersion de l'énergie n'a pas beaucoup d'influence car ses effets sont faibles et sont dominés par la largeur d'appareil. Son estimation expérimentale, même grossière suffit.

La largeur d'appareil est un paramètre sensible comme le montre la figure 9.4. Sa détermination en pixels s'obtient par mesure de la finesse des anneaux.

L'énergie du photon n'est pas connue expérimentalement avec précision, à cause de l'incertitude sur le décalage Doppler provoqué par l'erreur sur l'angle de 3° . De plus, c'est la différence avec l'affinité électronique qui importe réellement. Or l'affinité électronique du brome négatif n'est mesurée qu'avec une incertitude de 15 mk. Nous avons donc une certaine latitude sur ce paramètre.

La largeur d'un pixel est de $26 \pm 1 \mu\text{m}$. L'incertitude a comme conséquence que l'on ne peut pas déterminer R_{max} de façon absolue. Or R_{max} est lié à ϵ . Cela signifie que l'on peut choisir plusieurs couples de la longueur d'onde du laser et de la taille du pixel pour représenter un jeu de données expérimentales. Bien sûr, ces couples sont liés, et les valeurs sont proches.

Notre simulation présente un jeu de paramètres choisis empiriquement pour que la simulation rende compte des données. Pour choisir le meilleur jeu de paramètres, il faudrait utiliser une procédure d'ajustement. Cette procédure serait trop longue en temps de calcul si on la réalisait directement à partir de la simulation.

Cette simulation préliminaire montre que le calcul semi-classique suffit à décrire qualitativement nos résultats actuels, et il n'est pas réellement important d'augmenter la détermination des meilleurs paramètres qui reproduisent l'expérience au travers de ce modèle. La prochaine étape consistera à utiliser le modèle quantique également proposé par Demkov *et al* [DEM81], afin de le confronter à nos mesures.

9.6 Perspectives

9.6.1 Améliorations immédiates

Nous allons réaliser quelques modifications du jet. La première changera la disposition des éléments de conduite du jet juste après le virage, de façon à compenser ses défauts. La seconde consistera à modifier la détection des ions après la zone d'interaction afin que la mesure du courant soit moins sensible à la réaccélération hors d'axe. On pourrait éventuellement réaliser une détection synchrone pour mesurer convenablement le signal de photodétachement.

Nous allons également modifier la forme de la colonne de détection en élargissant l'ouverture des électrodes du haut pour pouvoir détecter des électrons entraînés par une dérive plus importante.

9.6.2 Modèle quantique ?

Nous avons utilisé un modèle semi-classique qui permet de décrire très convenablement nos expériences. Les plus visibles des effets quantiques se situent dans la zone $R > R_{max}$, zone classiquement interdite. On peut les associer à un effet d'onde électronique évanescence.

Nos mesures sur le brome négatif ne permettent pas de mettre en évidence de tels phénomènes car la présence des 4 seuils brouille la structure de l'image dans la région où $R > R_{max}$.

On peut imaginer détacher Br^- entre le premier et le second seuil. Mais l'écart n'est que de 42 mk, comparé à la largeur effective de l'énergie d'excitation de 10 mk. De plus, à une telle valeur d'énergie il faudrait un champ électrique de 12 V/m pour observer plus d'un anneau; cela implique qu'il faudrait ralentir le jet jusqu'à ce que les ions n'aient plus une énergie cinétique de 100 eV, ce qui est difficile à réaliser.

Pour observer directement de façon sûre des électrons dans la zone classiquement interdite, il faut une espèce dont ni l'ion négatif ni l'atome neutre n'ait de structure hyperfine, condition satisfaite pour $I = 0$. C'est le cas par exemple de l'oxygène négatif. Cet ion se photodétache au seuil également en une onde s et son affinité électronique de 1,4 eV rentre dans le domaine fondamental du saphir titane. L'oxygène naturel est isotopiquement pur à plus de 99%.

L'oxygène négatif pourrait donc constituer un prolongement particulièrement intéressant de nos études. Y -verrons nous des électrons d'énergie cinétique transversale négative, c'est à dire dans la région classiquement interdite ?

9.6.3 Microscopie de photoïonisation ?

Le microscope de photodétachement fonctionne et a permis d'observer la première coupe d'une fonction d'onde atomique. Un modèle semi classique suffit pour décrire les premières images enregistrées.

Ce ne sont cependant que des résultats préliminaires, et une étude plus systématique va être réalisée, afin d'améliorer les performances du microscope et notre connaissance du photodétachement des ions négatifs.

Mais le principe du microscope n'est pas limité à l'étude des ions négatifs. Le système d'anneaux d'interférence est invariant, au grandissement près, lors de l'accélération dans un champ électrique uniforme. Cette propriété pourrait être conservée dans certaines configurations de champ électrique non uniforme. Si on arrive à agrandir le système d'anneaux par effet de lentille électrostatique, on pourrait alors observer une coupe de la fonction

d'onde d'atome neutre au seuil de photoïonisation.

De façon générale toute espèce atomique et moléculaire susceptible d'émettre des électrons de basse énergie pourrait être analysée par le microscope de photodétachement ou de photoïonisation. Soumettre par exemple des agrégats au microscope de photoïonisation permettrait de connaître l'ordre de grandeur des nombres quantiques de leurs électrons externes. La comparaison de la fonction d'onde d'un atome déposé sur une surface, par rapport à celle du même atome libre, permettrait d'étudier le couplage de l'atome avec la surface. On pourrait même envisager l'étude directe de surfaces bien que dans ce cas la division du front d'onde de la fonction d'onde soit plus contrainte que pour des espèces libres.

La technique du microscope de photodétachement semble offrir de nombreuses perspectives. L'exploration de ces nouvelles voies passe par la mise au point expérimentale de configurations de champ électrique permettant l'agrandissement des images électroniques, mais également par des progrès théoriques, notamment par le traitement de la propagation de la fonction d'onde dans des champs non uniformes.

Bibliographie

- [AGO79] Agostini P., Fabre F., Mainfray G, Petite G. and Rahman N. K., Free-Free Transitions Following Six-Photons Ionisation of Xenon Atoms, *Phys. Rev. Lett.*, 1979, **42** 1127.
- [BAR91] M.C. Baruch, W. G. Sturru, N. D. Gibson, and D. J. Larson, Electric-field effects in photodetachment from Cl^- and S^- ions in a microwave field. *Phys. Rev. A*, 1991, **45** 5 2825.
- [BAS91] Bashkansky M., Bucksbaum P.H. and Schumacher D.W. 1988, Asymetries in Above-Threshold Ionization, *Phys. Rev. Lett.*, 1991, **60** 2458.
- [BAS88] Basile S., Trombetta F. and Ferrante G., Twofold Symmetric Angular Distributions in Multiphoton Ionization with Elliptically Polarized Light *Phys. Rev. Lett.* 1988, **61** 2435.
- [BLO87] Blondel C., Champeau R. J., Delsart C., H. T. Duong and Marinescu D., Three-Photon detachment of Iodine Negative Ions. *Europhysics Letters*, 1987, **4** 1267-1271.
- [BLO89a] Blondel C., Champeau R.-J., Crance M., Crubellier A., Delsart C. and Marinescu D., Measurement of three-photon detachment cross sections of negative ions of iodine, bromine and fluorine at the wave length $1.0642 \mu\text{m}$. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1989, **22** 1335.
- [BLO89b] Blondel C. and Trainham R., Measurement of the four-photon detachment cross section of Cl^- at $1.064 \mu\text{m}$, *J. Opt. Soc. Am. B*, 1989, **6** 1774.
- [BLO89c] Blondel C., Cacciani P., Delsart C. and Trainham, High-resolution determination of the electron affinity of fluorine and bromine using crossed ion and laser beams, *Phys. Rev. A*, 1989, **40** 3698.

- [BLO91] Blondel C., Crance M., Delsart C. and Giraud A., Excess-photon absorption in a negative ion. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1991, **24** 3575.
- [BLO92] Blondel C., Crance M., Delsart C. and Giraud A., Angular distributions in multiphoton detachment of negative halogens, *J. Phys. II France*, 1992, **2** 839.
- [BLO93a] Blondel C. and Delsart C., Two-photon detachment from the negative ions of F^- and I^- : angular distributions with elliptically polarised light, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. (proceedings of the 12th International Conference on the Applications of Accelerators in Research and Industry, Denton, 1992)* **B79** 156.
- [BLO93b] Blondel C. and Delsart C., Multiphoton Detachment of Negative Ions: How Many Parameters Can We Measure about the Elementary Process? *Laser Physics*, 1993, **3** 699.
- [BOU76] Boulassier J. C., Etude de la production d'ions par ionisation multiphotonique dans la région focale d'une onde gaussienne, *Nouv. Rev. Opt.*, 1976, **7** 329-40.
- [BRA58] Branscomb M. M., Burch D. S., Smith S. J. and Gelman S., Photodetachment Cross Section and the Electron Affinity of Atomic Oxygen, *phys. Rev.* 1958, **11**, 504.
- [CER75] Cervenán M. R. and Isenor N. R., Multiphoton ionization yield curves for gaussian laser beam. *Opt. Commun.*, 1975, **13** 174-8.
- [CHI70] Chin S. L. and Isenor N. R., Multiphoton ionization in atomic gases with depletion of neutral atoms *Can. J. Phys.*, 1970, **48** 1445.
- [CRA88] Crance M., Multiphoton detachment from negative ions of halogens, angular distributions and excess photon absorption, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1988, **21** 3559.
- [CRA91] Crance M. 1991, communication privée.
- [DAV91] M.D. Davidson, H. G. Muller, and H. B. van Linden van den Heuvell, 1991, Experimental observation of excess-photon detachment of negative ions, *Phys. Rev. Lett.* **67**1712.

- [DEM81] Yu. N. Demkov, V. D. Kondratovich, and V. N. Ostrovskii, Interference of electrons resulting from the photoionisation of an atom in an electric field, *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **34** 425 (1981). *JETP Lett.* **34** 4203 (1981).
- [DU 89] Du L. M., Oscillations of electron flux in photodetachment of H^- in an electric field, *Phys. Rev. A*, 1989, **40** 4983.
- [DUL95a] Dulieu F., Blondel C. and Delsart C., Multiphoton angular distributions with elliptically polarized light: I. Analytic ellipticity dependence of photoelectron distributions in the polarization plane, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1995, **28**, 3845-3859.
- [DUL95b] Dulieu F., Blondel C. and Delsart C. 1995, Multiphoton angular distributions with elliptically polarized light: II. Three- and four-photon detachment of halogen negative ions, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1995, **28**, 3861-3871.
- [DYE89] P. E. Dyer, in *The Physics and Technology of Laser Resonators* ed. by D. R. Hall and P. E. Jackson, Adam Hilger, Bristol, p.27, 1989.
- [FAB80] Interference effects in photodetachment and photoionization of atoms in a homogeneous electric field, *Sov. Phys JETP* **52** (1980) 1045.
- [GIB93] N. D. Gibson, B. J. Davies and D. J. Larson, *Phys. Rev. A* **47**, 1993, 1946-52.
- [HAL65] Hall J. L., Robinson E. J., and Branscomb L. M., 1965, Laser double-quantum photodetachment of I^- . *Phys. Rev. Lett.*, 1965, **14** 1013.
- [HAN92] Hanstorp D. and Gustafsson M., 1992, Determination of the electron affinity of iodine, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 1992, **25** 1773.
- [HAR90] P.G. Harris, H. C. Bryant, A. H. Mohagheghi, C. Tang, J. B. Donahue, C. R. Quick, R. A. Reeder, S. Cohen, W. W. Smith, J.E. Stewart and Carol Johnstone, *Phys. Rev. A* **41** (1990) 5968-73.
- [HEL93] Helm H., Bjerre N., Dyer M.J., Huestis D.L. and Saeed M., Images of Photoelectrons Formed in Intense Laser Fields, *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **70** 3221.

- [HEL94] Helm H. and Dyer M.J., Resonant and nonresonant multiphoton ionization of helium, *Phys. Rev. A*, 1994, **49** 2726.
- [KAS88] Kassaei A., Rustgi M.L. and Long S.A.T., Two-photon ionization of atomic hydrogen with elliptically polarized light, *Phys. Rev. A*, 1988, **37** 999, and erratum 1992, *Phys. Rev. A* **46** 4453.
- [KAI61] Kaiser W. and C. G. B. Garrett, Two-photon excitation in $\text{CaF}_2:\text{Eu}^{2+}$, *Phys. Rev. Lett.*, 1961, **7** 229.
- [KRS91] Krstić P. and Mittleman M.H., Angular distribution of electrons from multiphoton ionization by an elliptically polarized laser field, *Phys. Rev. A*, 1991, **44** 5938.
- [KOG66] H. Kogelnik and T. Li, Laser Beams and Resonators, *Proc. IEEE*, 1966, **54** 1312.
- [LAM88] Lambropoulos P. and Tang X. , Comment on "Asymmetries in Above-Threshold Ionization", *Phys. Rev. Lett.*, 1988, **61** 2506.
- [LHU83] L'Huilier A., Lompré L.A., Mainfray G., and Manus C., 1983, Multiply charged ions induced by multiphoton absorption process in rare-gas atoms at $1.064 \mu\text{m}$, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1983, **16** 1363-81.
- [MAI60] Maiman, *Nature*, 1960, **187** 493.
- [MUL83] Muller H. G., Tip A. and van der Wiel M. J., Ponderomotive force and AC Stark shift in multiphoton ionisation. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 1983, **16** L679.
- [MUL88] Muller H.G., Petite G. and Agostini P., Comment on "Asymmetries in Above-Threshold Ionization" , *Phys. Rev. Lett.*, 1988, **61** 2507.
- [NIC90] "Atoms in strong fields", proceeding of a NATO advanced study institute, Kos 9-21 October 1988, edited by C.A. Nicolaides, C. W. Clark and M. H. Nayfeh (Plenum, New-Tork, 1990).
- [NOV91] Novoa J. J., Mota F. and Arnau F., *J. Chem. Phys.* **95** 3096.
- [PAN91] Pan C. and Starace A. F., Angular distribution of electrons following two-photon ionization of the Ar atom and two-photon detachment of the F^- ion, *Phys. Rev. A*, 1991, **44** 324.

- [ROT59] Rotenberg M., Bivins R., Metropolis N. and Wooten J.K. Jr. 1959 *The 3-j and 6-j symbols* (Cambridge (U.S.A.): Massachusetts Institute of Technology).
- [SAM75] Samson J.A.R. and Starace A.F. , Effect of elliptically polarized light on the angular distribution of photoelectrons, *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.*, 1975, **8** 1806, with corrigendum 1979 *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* **12** 3993.
- [SOG88] Sogard M.R., Nonresonant multiphoton-ionization yields from Gaussian laser beams, *J. Opt. Soc. Am. B*, 1988, **5** 9-1890
- [STA91] Stapelfeldt H., Balling P., Brink C. and Haugen H. K., Excess-Photon Detachment in the Negative Gold Ion. *Phys. Rev. Lett.*, 1991, **67**1731.
- [STA92] Stapelfeldt H. and Haugen H. K., Observation of Resonant Excess-Photon Detachment via a Window Resonance in the Cesium Negative Ion, *Phys. Rev. Lett.*, 1992, **69** 2638.
- [TAN89] Tang C. Y., Harris P. G., Mohagheghi A. H., and Bryant H. C., Observation of multiphoton detachment of the H^- ion, *Phys. Rev. A*, 1989, **39** 6068
- [TRA87a] Trainham R., Fletcher G. D., Larson D. J., One- and two-photon detachment of the negative chlorine ion. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 1987, **20** L777-L784.
- [TRA87b] Trainham R., Fletcher G. D., Mansour N. B. and Larson D. J., Photodetachment Threshold Shift in a Strong Laser Field. *Phys. Rev. Lett.*, 1987, **56** 2291.
- [TRO88] Trombetta F., Ferrante G. and Basile S., Asymmetric angular distributions in multiphoton ionisation of helium by elliptically polarised light, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1988, **21** L539.
- [VAS93] Vasilyeva E.V. and Kiyani I. Yu., Angular Distribution of Photoelectrons in Two-Photon Detachment of the F^- and Cl^- Ions, *Laser Physics*, 1993, **3** 1033.
- [WIG48] Wigner E. P., On the Behavior of Cross sections Near Thresholds, *Phys. Rev.*, 1948, **73** 1002.
- [YAN48] Yang C.N., On the Angular Distribution in Nuclear Reactions and Coincidence Measurement. *Phys. Rev.*, 1948, **74** 764.

- [ZEM77] H. D. Zeman, Deflection of an ion beam in the two-dimensional electrostatic quadrupole field, *Rev. Sci. Instrum.*, 1977, **48** 8 1079.

Liste des figures

1.1	Principe d'interférence.	10
2.1	Puits de potentiel d'un atome et d'un ion négatif.	14
2.2	Illustration de la Loi de Wigner.	16
2.3	Schéma de niveaux des ions négatifs d'halogènes	17
2.4	Puits de potentiel unidimensionnel d'un ion négatif en champ électrique.	20
2.5	Section efficace totale de photodétachement en champ électrique.	20
3.1	θ en lumière polarisée rectiligne	22
3.2	θ pour la polarisation elliptique	24
3.3	Diagramme d'excitation à un photon, à partir de $J = 0$	27
3.4	Diagrammes d'excitation à deux photons, à partir de $J = 0$	28
4.1	Dispositif expérimental	49
4.2	Schéma de la source	51
4.3	Formes des filaments utilisés.	52
4.4	Schéma du jet	53
4.5	Schéma du montage optique utilisé	55
4.6	Refocalisation accidentelle	56
4.7	Cavité instable type "donut"	57
4.8	Image de la tache laser prise au waist	57
4.9	Montage destiné à évaluer le faisceau laser	58
4.10	Waists mesurés le long de l'axe z	60
4.11	W_{eff} d'une structure à deux ordres	61
4.12	Mode Laguerre-gaussien TEM_{10}	61
4.13	Diffraction par une transmission annulaire	62
4.14	Coupe de l'image laser et modèle de la diffraction	63
4.15	Image de la tache laser en configuration gaussienne	64
4.16	Coupe du faisceau laser et profil gaussien théorique	64
4.17	θ et l'angle d'entraînement	66
4.18	Optimisation du jet	70

5.1	3 voies de détachement de F^- : à 3, à 4 et à 5 photons	73
5.2	Schéma du jet et du faisceau laser	73
5.3	Focalisation d'un faisceau gaussien par une lentille de longueur focale f	74
5.4	a et Z en fonction de R	79
5.5	$D(R)$, Comparaison analytique	80
5.6	$D(R)$, Comparaison analytique asymptotique	81
5.7	$D(R)$ en tenant compte de l'effet de troncature.	81
5.8	Evolution de population à l'origine	83
5.9	Effet de la compétition sur D_4	84
5.10	Fermeture de voie par effet pondéromoteur.	85
5.11	σ_{3T}	88
5.12	Evolution de population à l'origine tenant compte de la fermeture de voie	88
5.13	$D_4(R)$ en tenant et sans tenir compte de la voie 3 (avec effet pondéromoteur).	89
5.14	$D_4(R)$ et $D_5(R)$	89
6.1	Distribution angulaire de I^- à deux photons	91
6.2	I^- détaché par 3 photons en lumière elliptique	93
6.3	Distributions angulaires de l'iode pour les différents jeux de β	97
6.4	Distributions angulaires de Cl^- détaché par 4 photons	99
6.5	Distribution pour les différents jeu de β de Cl^-	102
6.6	Distribution angulaire de F^- détaché par deux photons	103
6.7	Distributions angulaires de F^- détaché par 4 photons	105
6.8	Distributions angulaires de F^- pour différents jeux de β	107
7.1	Principe de microscopie de photodétachement	109
7.2	η et ξ	110
7.3	Notations	112
7.4	$J(R)$	115
7.5	Zone d'observation des interférences.	116
7.6	Elargissement de la source d'électrons dû à l'angle de 3°	118
8.1	Photo du montage.	123
8.2	Circuit de pompage.	124
8.3	Schéma du jet	126
8.4	Virage quadrupolaire	128
8.5	Détecteur	130
8.6	Electrodes	131
8.7	Zone de détection.	132

8.8	Potentiels de la zone de détection.	133
8.9	Laser saphir titane doublé intra cavité.	135
9.1	Image avec une raie du laser argon.	140
9.2	Distribution radiale d'une image.	141
9.3	Projection d'une sphère sur un plan.	142
9.4	Effet de la résolution.	144
9.5	Images du microscope.	145
9.6	Forme de $J_a(R)$ pour les quatre contributions de la structure hyperfine.	147
9.7	Section efficace au seuil de ^{81}Br	148
9.8	Représentation des 4 contributions	149
9.9	Comparaison des résultats et de la simulation.	150

1911-1912

...

...

...

...

...

Liste des tableaux

3.1	Paramètres d'asymétrie à $p + q$ pair pour 2 photons	38
3.2	Paramètres d'asymétrie à $p + q$ impair pour 2 photons	39
3.3	Paramètres d'asymétrie à $p + q$ pair pour 3 photons	42
3.4	Paramètres d'asymétrie à $p + q$ impair pour 3 photons	43
3.5	Paramètres d'asymétrie à $p + q$ pair pour 4 photons	43
3.6	Paramètres d'asymétrie à $p + q$ impair pour 4 photons	44
3.7	Nombre de coefficients a_{pq}	46
6.1	Paramètres elliptiques normalisés du détachement par 3 photons d'I ⁻	95
6.2	Valeurs des paramètres d'asymétrie de l'iode détaché par 3 photons	97
6.3	Paramètres elliptiques normalisés du détachement par 4 photons de Cl ⁻	101
6.4	Valeurs des paramètres d'asymétrie pour Cl ⁻	102
6.5	Paramètres elliptiques normalisés du détachement par 4 photons de F ⁻	106
6.6	Valeurs des paramètres d'asymétrie	106
6.7	Résumé des résultats en lumière elliptique.	108
9.1	Caractéristiques de la structure hyperfine de Br.	147

the 1990s, the number of children in foster care in the United States has increased from 100,000 to 200,000 (Kane & Garfield, 1998). The number of children in foster care in the United Kingdom has also increased from 10,000 in 1980 to 25,000 in 1995 (Department of Health, 1997).

There are a number of reasons why the number of children in foster care has increased. One reason is that the number of children in need has increased. In the United States, the number of children in need has increased from 100,000 in 1980 to 200,000 in 1995 (Kane & Garfield, 1998). In the United Kingdom, the number of children in need has increased from 10,000 in 1980 to 25,000 in 1995 (Department of Health, 1997).

Another reason why the number of children in foster care has increased is that the number of children who are adopted has decreased. In the United States, the number of children who are adopted has decreased from 100,000 in 1980 to 20,000 in 1995 (Kane & Garfield, 1998). In the United Kingdom, the number of children who are adopted has decreased from 10,000 in 1980 to 2,000 in 1995 (Department of Health, 1997).

A third reason why the number of children in foster care has increased is that the number of children who are in residential care has decreased. In the United States, the number of children who are in residential care has decreased from 100,000 in 1980 to 20,000 in 1995 (Kane & Garfield, 1998). In the United Kingdom, the number of children who are in residential care has decreased from 10,000 in 1980 to 2,000 in 1995 (Department of Health, 1997).

There are a number of reasons why the number of children in residential care has decreased. One reason is that the number of children who are in foster care has increased. In the United States, the number of children in foster care has increased from 100,000 in 1980 to 200,000 in 1995 (Kane & Garfield, 1998). In the United Kingdom, the number of children in foster care has increased from 10,000 in 1980 to 25,000 in 1995 (Department of Health, 1997).

Another reason why the number of children in residential care has decreased is that the number of children who are adopted has increased. In the United States, the number of children who are adopted has increased from 20,000 in 1980 to 100,000 in 1995 (Kane & Garfield, 1998). In the United Kingdom, the number of children who are adopted has increased from 2,000 in 1980 to 10,000 in 1995 (Department of Health, 1997).

A third reason why the number of children in residential care has decreased is that the number of children who are in foster care has decreased. In the United States, the number of children in foster care has decreased from 200,000 in 1980 to 100,000 in 1995 (Kane & Garfield, 1998). In the United Kingdom, the number of children in foster care has decreased from 25,000 in 1980 to 10,000 in 1995 (Department of Health, 1997).

1900

1901

Annexe A

Article 1

Multiphoton angular distributions with elliptically polarized light: I. Analytic ellipticity dependence of photoelectron distributions in the polarization plane

F Dulieu, C Blondel and C Delsart

Laboratoire Aimé-Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, F-91405 Orsay Cedex, France

Received 10 April 1995

Abstract. Multiphoton excitation with elliptically polarized light brings out more information in the photodetachment or photoionization processes than linearly polarized light. This information can only be reached, however, by recording photoelectron angular distributions for several values of the ellipticity angle, and fitting the data with a common formula. But the analytic dependence of photoelectron angular distributions on the ellipticity has been unknown up to now, except for the one- and two-photon excitation cases. Here we give a demonstration of a general formula, valid for any number N of exciting photons, with the assumptions of (i) an initially even and momentumless ($J = 0$) atom or ion and (ii) that after excitation of an electron, the residual core is left in an odd state. Slight modifications in the demonstration would make it possible to extend the general formula to any $J = 0$ initial atomic state.

1. Introduction

As long as experimentalists have been dealing with one-photon detachment or ionization only, they have not paid much attention to the possibility of using elliptically polarized light. The reason for that is quite simple: one-photon angular distributions obtained with elliptic light do not convey more information than those recorded with linearly polarized light. Elliptic polarization, in this case, is just equivalent to an incoherent superposition of linear components (Samson and Starace 1975).

The situation becomes very different as soon as one considers multiphoton excitation. A multiphoton excitation scheme with a superposition of circular components σ^+ and σ^- inevitably contains several paths that lead to the same final states. It then becomes significant that the light components have a well defined phase relationship. New features can appear in photoelectron angular distributions, that cannot be extrapolated from linear polarization angular distributions.

The quantitative analysis of multiphoton angular distributions, however, appears as a challenge. Following Yang's formula (Yang 1948), the angular distributions obtained by N -photon detachment from a spherically symmetric ion ($J = 0$) with linearly polarized light already yield N asymmetry parameters β , reading as

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\sigma}{4\pi} \left(1 + \sum_{p=1}^N \beta_{2p} P_{2p}(\cos\theta) \right) \quad (1)$$

where θ is the angle of detection with respect to the electric field (i.e. polarization) direction, P_{2p} are the Legendre polynomials of even order and σ is the cross section.

Elliptically polarized light is characterized by the ellipticity angle ξ , the precise definition of which will be given in section 2; ξ is zero in the particular case of linear polarization, $\xi = \pm\frac{\pi}{2}$ produces circular polarization.

In a majority of experiments, photoelectrons are detected orthogonally to the photoexcitation laser beam, so the differential cross section is measured in the plane of polarization only. With this restriction, taking the major axis of the polarization ellipse as the angular origin, we had conjectured the general differential cross section formula to be (Blondel and Delsart 1993b)

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = u_0(\xi) + \sum_{p=1}^N u_p(\xi) \cos 2p\theta + \sum_{p=1}^{N-1} v_p(\xi) \sin 2p\theta. \quad (2)$$

Without additional precision in the analytic form of the $u_p(\xi)$ and $v_p(\xi)$ coefficients, this only gives as an order of magnitude that angular distributions obtained with elliptically polarized light call on at least twice as many coefficients as was necessary with linear polarization. In particular cases, this conjecture has already been checked. A complete calculation of two-photon ionization of hydrogen (Kassae *et al* 1988) with elliptically polarized light showed that the three-dimensional angular distribution actually depends on four independent parameters.

But hydrogen, with its *s* electron, is a particular case. The case of two-photon detachment of halogen negative ions, initially a $p^6\ ^1S_0$ shell, also leads to angular distributions which depend on four dimensionless elliptic parameters (Blondel and Delsart 1993b). These parameters can be used to reconstruct the two usual asymmetry parameters β_2 and β_4 (Blondel and Delsart 1993a) that appear with linear polarization. In this way, two-photon detachment of F^- and I^- at the wavelength $\lambda = 532$ nm with elliptically polarized light could be used as a test of previous measurements done with linearly polarized light only (Blondel *et al* 1992).

As the following paper (Dulieu *et al* 1995) shows, we have now recorded three- and four-photon detachment angular distributions from the negative ions F^- , Cl^- and I^- . Quantitative analysis of such data made it necessary to extend conjecture (2) to the cases of three- and four-photon excitation. This was the opportunity to change the conjecture into a definite formula, that holds for any number N of photons used in the excitation. This formula shows the general symmetries of multiphoton excitation with elliptically polarized light. It can be used for multiphoton detachment or ionization as well.

2. Analytic form of elliptic multiphoton angular distributions

2.1. Transition operator and multiphoton excitation amplitudes

Linearly polarized light and the electric dipole approximation have always dictated a quantization axis along the electric field vector. With elliptic light, the symmetry of the problem appears different, and we take the quantization axis orthogonal to the plane of polarization. This makes it possible to consider the elliptically polarized field as the sum of two components of circular polarization.

If one writes the electric field $E = E_0(\hat{X} \cos \frac{\xi}{2} \cos \omega t + \hat{Y} \sin \frac{\xi}{2} \sin \omega t)$, thus defining the ellipticity angle ξ , the transition operator T can be more strictly decomposed on the basis of two components of a standard vector operator, as $T = cT_1^{(1)} + sT_{-1}^{(1)}$, with $c = \cos(\frac{3\pi}{4} + \frac{\xi}{2})$ and $s = \sin(\frac{3\pi}{4} + \frac{\xi}{2})$.

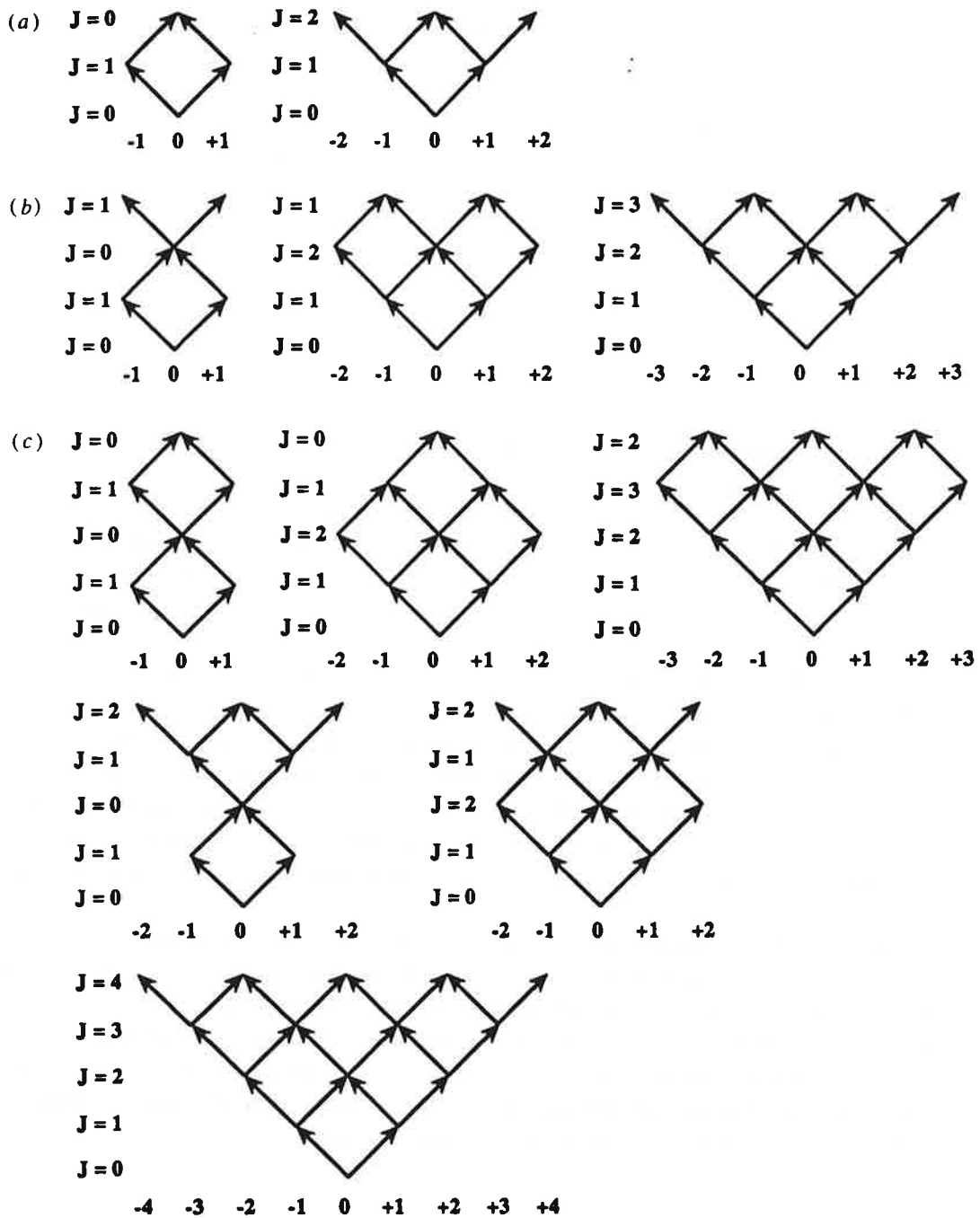


Figure 1. Excitation diagrams for (a) two-, (b) three- and (c) four-photon excitation of a $J = 0$ ion or atom with elliptically polarized light. Intermediate and final values of the total angular momentum J and of the magnetic quantum number M are indicated. Diagrams that lead to identical J final values actually lead to the same final state, and thus contribute to a common excitation amplitude. Every J final value is underlaid by two possible ℓ values of the photoelectron, except for $J = 0$, which can only occur with a final p-state. One can check at a glance that the number of independent $A_{J,\ell}$ amplitudes will be three, four and five for two-, three- and four-photon excitation, respectively.

The possible transition diagrams for two-, three- and four-photon excitation from a $J = 0$ atom or ion are given by figure 1. As for the intermediate levels, we do not have to go into all the details of the internal angular momenta, since thanks to the Wigner-Eckart

theorem we know that from any intermediate state in the diagram, the two possible one-photon excitation amplitudes $|J, M\rangle \rightarrow |J', M+1\rangle$ and $|J, M\rangle \rightarrow |J', M-1\rangle$ are in the same ratio as $c \begin{pmatrix} J & 1 & J' \\ M & +1 & -M-1 \end{pmatrix}$ and $s \begin{pmatrix} J & 1 & J' \\ M & -1 & -M+1 \end{pmatrix}$ respectively.

The last excitation stage brings the atom or ion to a continuum state $|\Psi_f(\xi)\rangle$, which results from the coherent addition of the states produced through all the excitation diagrams:

$$|\Psi_f(\xi)\rangle = \sum_{\text{diagrams } (k)} A_J^{(k)} |\psi_J^{(k)}(\xi)\rangle \quad (3)$$

where index J recalls that every diagram ends in a state of well defined angular momentum. $A_J^{(k)}$ is the excitation amplitude (or reduced matrix element) attached to diagram (k) .

More precisely, $|\psi_J^{(k)}(\xi)\rangle$ can be written on a standard basis of angular momentum eigenvectors

$$|\psi_J^{(k)}(\xi)\rangle = \sum_{M=-J, M \equiv N[2]}^J C_{J,M} c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}} |k, J, M\rangle \quad (4)$$

(the sum over M having only terms of the same parity as N). All the ξ dependence of the final state reached by diagram (k) is contained in the $c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}}$ factors, which of course make the modulus $|\psi_J^{(k)}(\xi)|$ itself a function of ξ . This is how the multiphoton cross section depends on the ellipticity.

Some normalization of the $|\psi_J^{(k)}\rangle$ vector is required, however, to make (3) a non-ambiguous definition of the amplitudes. Normalization can at least be imposed in a particular case, say $\xi = 0$, i.e. the case of linear polarization: $\langle \psi_J^{(k)}(0) | \psi_J^{(k)}(0) \rangle = 1$. In this way coefficients $C_{J,M}$ are completely determined, except for the multiplication by a common phase factor, and $|A_J^{(k)}|^2$ appears as the exact branching ratio of the multiphoton detachment process to diagram (k) , when $\xi = 0$.

Moreover, the particular case of linear polarization can be considered from the usual point of view of a quantization axis parallel to the electric field vector, i.e. parallel to Ox . Since linear polarization cannot bring a quantum of angular momentum around this axis,

$$|\psi_J^{(k)}(0)\rangle = \sum_{M=-J, M \equiv N[2]}^J C_{J,M} (-1)^{\frac{N+M}{2}} 2^{-\frac{N}{2}} |k, J, M\rangle \quad (5)$$

must be equal to $|k, J, M=0\rangle_x$, an eigenvector of J_x with zero eigenvalue. Coefficients $C_{J,M}$ thus actually do not bear a (k) index, for they can be deduced from the coefficients of a standard rotation matrix. The expression of $|\psi_J^{(k)}(\xi)\rangle$ on a $(|k, J, M\rangle)$ standard basis does not depend on the details of the excitation diagram.

2.2. Angular momentum of the photoelectron and complete definition of the final state

Although the outgoing electron is the object of the angular distribution measurement it is still necessary to know its orbital angular momentum ℓ . We shall thus project every final state of a given J value onto the subspaces of possible ℓ values.

The ℓ values that are allowed for the photoelectron are determined by the usual rules of angular momentum addition. The final value of J results from adding the angular momentum ℓ of the photoelectron and the angular momentum L of the residual core ($L = 1$ if we detach a halogen negative ion and leave a neutral atom in a $p^5 P^0$ state). The parity

selection rule also reduces the choice to values of ℓ with the same parity. In our example, the possible final states can be either $\ell = J - 1$ (except for $J = 0$) or $\ell = J + 1$.

Because $(|k, J, M\rangle)$ is a standard basis of angular momentum eigenstates, all its $|k, J, M\rangle$ vectors are decomposed in the same way on the $(|\ell, J, M\rangle)$ bases, which makes it possible to define partial excitation amplitudes $A_{J,\ell}^{(k)}$ and write the multiphoton detachment final state

$$|\Psi_f(\xi)\rangle = \sum_{\text{diagrams } (k)} \sum_{\ell} A_{J,\ell}^{(k)} \sum_{M=-J, M \equiv N[2]}^J C_{J,M} c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}} |\ell, J, M\rangle. \quad (6)$$

The above formula shows that the partial excitation amplitudes are the only parameters left in the formula that depend on the particulars of the excitation diagram, whereas all other parameters only depend on the angular quantum numbers of the final state. In other words, it is not so important to know which excitation diagrams can reach a given angular momentum couple (J, ℓ) , but to know the total excitation amplitude $A_{J,\ell} = \sum_{(k)} A_{J,\ell}^{(k)}$, in which the sum is, of course, restricted to those diagrams that reach J . From this point of view, equation (6) can be simplified to

$$|\Psi_f(\xi)\rangle = \sum_J \sum_{\ell} A_{J,\ell} \sum_{M=-J, M \equiv N[2]}^J C_{J,M} c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}} |\ell, J, M\rangle. \quad (7)$$

In the linear polarization case amplitudes $A_{J,\ell}$ are still coefficients of normalized $|\ell, J\rangle$ eigenvectors, we shall thus have $\langle \Psi_f(\text{linear}) | \Psi_f(\text{linear}) \rangle = \sum_{(J,\ell)} |A_{J,\ell}|^2$.

Neglecting the spin of both the atomic core and the photoelectron is partially justified by the zero-spin character of our negative ion's ground state, and the fact that the transition operator does not act on the spin. This is, rigorously speaking, not enough. As an inescapable fact the final state of the system is not well represented in a basis of total spin eigenstates, for the atomic core has to be left in a $^2P_{3/2}$ state. The corresponding projection will likely not upset the analytic form of the angular distributions, but it may reduce its degrees of freedom.

2.3. The example of two-photon detachment atomic amplitudes

The two-photon detachment case has already been described (Blondel and Delsart 1993b). Starting from a $J = 0$ state, two two-photon excitation schemes can be drawn (figure 1), the latter corresponding to two possible values of ℓ . Namely the final state has components in the $(\ell = 1, J = 0)$, $(\ell = 1, J = 2)$ and $(\ell = 3, J = 2)$ spaces of angular momentum, as already found for two-photon excitation with linear polarization, but these components are now combinations of different $|M_J\rangle$ states.

We use the spectroscopic notation, namely p for $\ell = 1$, f for $\ell = 3$, and to be concise we shall write, for instance, $|p, 2, M = 0\rangle$ instead of $|\epsilon, \ell = 1, J = 2, M = 0\rangle$. The final state of two-photon detachment can then be written, according to (7):

$$\begin{aligned} |\Psi_f(\xi)\rangle = & 2A_{0,p} cs |p, 0, M = 0\rangle \\ & + A_{2,p} \left(\sqrt{\frac{3}{2}} s^2 |p, 2, M = -2\rangle + cs |p, 2, M = 0\rangle + \sqrt{\frac{3}{2}} c^2 |p, 2, M = +2\rangle \right) \\ & + A_{2,f} \left(\sqrt{\frac{3}{2}} s^2 |f, 2, M = -2\rangle + cs |f, 2, M = 0\rangle + \sqrt{\frac{3}{2}} c^2 |f, 2, M = +2\rangle \right). \end{aligned} \quad (8)$$

Equation (8) explicitly shows the $C_{J,M}$ coefficients. Amplitudes $A_{0,p}$, $A_{2,p}$ and $A_{2,f}$ are related to the amplitudes U , V and W of Blondel and Delsart (1993b) by $A_{0,p} = \sqrt{\frac{1}{3}} U$, $A_{2,p} = \sqrt{\frac{2}{15}} V$ and $A_{2,f} = \sqrt{\frac{2}{15}} W$. It can be checked that the new amplitudes are the coefficients of normalized vectors in the linear polarization case ($\xi = 0$), namely,

$$\begin{aligned} |\Psi_f(\text{linear})\rangle = & -A_{0,p} |p, 0, M = 0\rangle \\ & + A_{2,p} \left(\sqrt{\frac{3}{8}} |p, 2, M = -2\rangle - \frac{1}{2} |p, 2, M = 0\rangle + \sqrt{\frac{3}{8}} |p, 2, M = +2\rangle \right) \\ & + A_{2,f} \left(\sqrt{\frac{3}{8}} |f, 2, M = -2\rangle - \frac{1}{2} |f, 2, M = 0\rangle + \sqrt{\frac{3}{8}} |f, 2, M = +2\rangle \right) \end{aligned} \quad (9)$$

and the square modulus of the final state vector has the very simple form

$$\langle \Psi_f(\text{linear}) | \Psi_f(\text{linear}) \rangle = |A_{0,p}|^2 + |A_{2,p}|^2 + |A_{2,f}|^2. \quad (10)$$

2.4. The general form of N -photon angular distributions

On the basis of (7), appendix A shows how to calculate the probability $\mathcal{P}_\xi(\theta)$ of detecting the electron in direction θ of the polarization plane. A more convenient function, however, is $\mathcal{A}_\xi(\theta) = 4\pi \mathcal{P}_\xi(\theta)$ which we shall call the 'angular distribution'. In the linear polarization case, normalization of the angular distribution is settled provided that $Z = \int \mathcal{P}_{\xi=0}(\theta) d\Omega = \frac{1}{2} \int_0^\pi \mathcal{A}_{\xi=0}(\theta) \sin \theta d\theta = 1$. The amplitude $\mathcal{A}_0(\theta)$, when normalized, is just the factor by which the signal deviates from the average, in direction θ , due to the angular distribution anisotropy. It will be checked that in the two-photon case, $Z = |A_{0,p}|^2 + |A_{2,p}|^2 + |A_{2,f}|^2$.

From appendix A, starting from an even $J = 0$ ion, if the residual neutral is left in an odd state, the angular distribution in the plane of polarization can be written as

$$\begin{aligned} \mathcal{A}_\xi^{(N)}(\theta) = & \sum_{p=0}^N \sum_{q=p, p+q \text{ even}}^N a_{pq} \cos^q \xi \cos 2p\theta \\ & + \sum_{p=1}^{N-1} \sum_{q=p+1, p+q \text{ odd}}^N a_{pq} \cos^{q-1} \xi \sin \xi \sin 2p\theta. \end{aligned} \quad (11)$$

Normalization of this formula can be obtained by replacing all a_{pq} coefficients by the corresponding

$$\alpha_{pq} = Z^{-1} a_{pq} = \left(\sum_{p'=0}^N \frac{1}{1-4p'^2} \sum_{q'=p', p'+q' \text{ even}}^N a_{p'q'} \right)^{-1} a_{pq}. \quad (12)$$

Formula (11) is enough to make a quantitative analysis of experimental data, since it can be used very conveniently to fit the measured angular distributions. Experimental results will have the form of measured sets of a_{pq} or α_{pq} parameters. The latter, reduced asymmetry parameters, are dimensionless and the least correlated to overall signal fluctuation.

Since we have performed complete calculations along the excitation scheme, we also know the explicit expressions of coefficients a_{pq} as quadratic functions of the atomic amplitudes (these expressions are given in appendix B for two-, three- and four-photon

detachment). However, these expressions cannot be easily used to go from coefficients a_{pq} back to the atomic amplitudes, because inverting a set of quadratic equations always leads to several possible roots. In other words, a given angular distribution should not be thought of as the unambiguous signature of a linear combination of angular momentum states. On the contrary, the general rule is that a given angular distribution can result from very differently balanced final states, as was already discussed with the help of a geometric representation in the two-photon case (Blondel and Delsart 1993b).

2.5. General symmetries of the elliptic angular distributions

Remarkably, many conspicuous features of (11) can be justified by very general symmetry considerations, without going into the details of the demonstration of appendix A.

(a) $\mathcal{A}_\xi(\theta)$ must be periodic as a function of θ , with period π , and also periodic as a function of ξ , with period 2π . \mathcal{A} thus belongs to the space generated by the basis of functions $\cos^q \xi \cos 2p\theta$, $\cos^q \xi \sin 2p\theta$, $\cos^{q-1} \xi \sin \xi \cos 2p\theta$ and $\cos^{q-1} \xi \sin \xi \sin 2p\theta$ with p and q positive integers.

(b) Changing the sense of the ellipse ($\xi \mapsto -\xi$) has to be exactly compensated by changing θ into $-\theta$: $\mathcal{A}_{-\xi}(\theta) = \mathcal{A}_\xi(-\theta)$. This condition implies that only functions of the form $\cos^q \xi \cos 2p\theta$ and $\cos^{q-1} \xi \sin \xi \sin 2p\theta$ can be kept from the above basis.

(c) The transformation ($\xi \mapsto \xi + \pi$) rotates the polarization ellipse by $\frac{\pi}{2}$ and reverses its orientation. Consequently, \mathcal{A} must still have the property that $\mathcal{A}_{\xi+\pi}(\theta) = \mathcal{A}_\xi(-\theta - \frac{\pi}{2})$. This implies that the indices of cosine (respectively sine) terms are such that $(p + q)$ is even (respectively odd).

(d) Complete evidence that (11) holds for N -photon angular distributions from any spherically symmetric atom or ion would only require that we justify the variation limits of integer indices p and q . Some limitations are trivial, e.g. odd values of q can be dismissed for $p = 0$. Additional remarks can make the limits more precise, for instance taking into account the necessary constancy of $\mathcal{A}(\theta)$ for circular polarization:

(i) with $\xi = \frac{\pi}{2}$, the even part of $\mathcal{A}(\theta)$ is just $\sum_{p \text{ (even)}} a_{p0} \cos 2p\theta$. It is a constant only if all a_{p0} with ($p \geq 2$ and p even) are zero. On the other hand, if p is odd, $q = 0$ is excluded because a negative power of $\cos \xi$ would be nonsense. The only non-zero a_{p0} coefficient is a_{00} . It is the constant value of \mathcal{A} for circular polarization.

(ii) with $\xi = \frac{\pi}{2}$, the odd part of $\mathcal{A}(\theta)$ is just $\sum_{p \text{ (even)}} a_{p,1} \sin 2p\theta$. This has to be zero, meaning that (p even) $\Rightarrow (a_{p,1} = 0)$.

The variation intervals of indices p and q are determined more closely in appendix A. The demonstration proposed, however, only applies to the case of an initially even $J = 0$ ion or atom, when the residual atom or ion is left in an odd state. The fact that nearly everything in (11) can be demonstrated without resorting to this hypothesis suggests that it may apply to any spherically symmetric system. The next step would thus be a general demonstration that would make (11) a complete generalization of Yang's theorem for the case of elliptic polarization.

3. Conclusion

A general formula has been established, that gives the analytic dependence of photoelectron angular distributions both on the detection and ellipticity angles. This formula makes it possible to reduce measured N -photon angular distributions to a set of α elliptical asymmetry parameters. The number of independent ones is $\frac{N^2+2N}{2}$ when N is even, or $\frac{N^2+2N-1}{2}$ when N is odd.

This is much more precise than the only N asymmetry parameters usually obtained with linearly polarized light. Expressions of the α asymmetry parameters as functions of the excitation amplitudes have also been calculated in the particular cases of two-, three- and four-photon excitation. Inverting these equations, in order, e.g., to deduce branching ratios from the measured angular distributions, however means inverting a quadratic system, which inevitably leads to several possible roots.

Appendix A. Calculation of the general form of N -photon angular distributions in the plane of polarization of elliptically polarized light, assuming an even $J = 0$ initial state, and an odd residual atom (for detachment) or ion (for ionization)

A.1. General form of elliptic angular probabilities

The $|\ell, J, M\rangle$ components of the final state in (7) can be decomposed, using standard Clebsch–Gordan coefficients, on the basis of orbital eigenstates $|\ell, m\rangle$ of the freed electron in the presence of an atomic core, itself in state $|L, m_C\rangle$:

$$|\Psi_f(\xi)\rangle = \sum_J \sum_{\ell} A_{J,\ell} \sum_{M=-J, M \equiv N[2]}^J c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}} C_{J,M} \sum_{m_C} |L, m_C; \ell, m\rangle \langle L, m_C; \ell, m | J, M\rangle \quad (\text{A1})$$

where summations run assuming that quantum numbers obey the usual angular momentum addition rules (particularly $M = m_C + m$).

In this way, $|\Psi_f(\xi)\rangle$ is prepared to be projected onto the space that corresponds to detecting the outgoing electron in a well defined direction (η, θ) : with $P_{\eta,\theta}$ the corresponding projector and \mathcal{Y}_{ℓ}^m a spherical harmonic, we have

$$P_{\eta,\theta} |L, m_C; \ell, m\rangle = \mathcal{Y}_{\ell}^m(\eta, \theta) |L, m_C\rangle \otimes |\eta, \theta\rangle. \quad (\text{A2})$$

For the complete vector $|\Psi_f(\xi)\rangle$, equation (A2) takes the form

$$P_{\eta,\theta} |\Psi_f(\xi)\rangle = |\xi, \eta, \theta\rangle_C \otimes |\eta, \theta\rangle \quad (\text{A3})$$

and the square modulus of vector $|\xi, \eta, \theta\rangle_C$ (a state vector of the residual core) is the angular probability $\mathcal{P}_{\xi}(\eta, \theta)$ of finding the electron in direction (η, θ) .

Combining equations (A1)–(A3), we can more explicitly write

$$|\xi, \eta, \theta\rangle_C = \sum_{m_C} \left[\sum_{\ell, m} c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}} \left(\sum_J A_{J,\ell} C_{J,M} \langle L, m_C; \ell, m | J, M\rangle \right) \mathcal{Y}_{\ell}^m(\eta, \theta) \right] |L, m_C\rangle. \quad (\text{A4})$$

Spherical harmonics can be factorized in the form of $\mathcal{Y}_{\ell}^m(\eta, \theta) = Z_{\ell}^m(\eta) e^{im\theta}$, so we obtain the rigorous expression of the angular probability, with an explicit angular and ellipticity dependence (via coefficients c and s):

$$\mathcal{P}_{\xi}(\eta, \theta) = \sum_{m_C} \left| \sum_m \sum_{\ell=|m|}^{L+N} c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}} \left(\sum_J A_{J,\ell} C_{J,M} \langle L, m_C; \ell, m | J, M\rangle \right) Z_{\ell}^m(\eta) e^{im\theta} \right|^2. \quad (\text{A5})$$

If we examine the more specific case of our experiment, because the detector stands in the polarization plane, this formula will be used only with $\eta = \frac{\pi}{2}$. But spherical harmonics with ℓ and m of opposite parities are all equal to zero in this equatorial ($\eta = \frac{\pi}{2}$) plane. The sum over m thus only runs over values with the same parity as ℓ .

A new variable $X_{m_c \ell m} = \mathcal{Z}_\ell^m(\frac{\pi}{2}) \sum_J A_{J, \ell} C_{J, M} \langle L, m_C; \ell, m | J, M \rangle$ can be defined, which does not depend on any angle. All the ξ and θ dependence of the equatorial angular probability is thus described by

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_\xi(\theta) &= \sum_{m_c} \left| \sum_{m=-L-N}^{L+N} \left(\sum_{\ell=|m|}^{L+N} c^{\frac{N+M}{2}} s^{\frac{N-M}{2}} X_{m_c \ell m} \right) e^{im\theta} \right|^2 \\ &= \sum_{m_c} \sum_{m, m'} \left(\sum_{\ell, \ell'} c^{N+\frac{M+M'}{2}} s^{N-\frac{M+M'}{2}} X_{m_c \ell m} X_{m_c \ell' m'}^* \right) e^{i(m-m')\theta}. \end{aligned} \tag{A6}$$

A.2. Angular frequencies and parities in the angular probability

The most conspicuous property of (A6) concerns the angular frequencies that can appear in the equatorial plane. $\mathcal{P}_\xi(\theta)$ is a linear combination of $e^{i(m-m')\theta}$ exponentials. Since $M = m_c + m$ and $M' = m_c + m'$ (with the same m_c value), $m - m' = M - M'$. Since then M and M' belong to the interval $[-N, N]$, their difference belongs to the interval $[-2N, 2N]$.

The parities of all angular quantum numbers that appear in (A6) are well defined. As figure 1 shows, every absorbed photon is either σ^+ or σ^- , and thus changes the parity of M , the final value of M necessarily has the parity of N . All M and M' values thus have the same parity. The angular probability is a linear combination of $\cos 2p\theta$ and $\sin 2p\theta$ with $p \in [0, N]$.

With the additional hypothesis that we start from an even ion, and after detachment leave the halogen atom in an odd state, the outgoing electron must have a parity (the parity of ℓ) opposite to the parity of N . All m values that contribute to the angular distribution will thus also have a parity opposite to the parity of N .

Combining the parity properties of M and m , since $M = m_c + m$ only odd values of m_c will contribute to the equatorial angular distribution. With an $L = 1$ atomic core, $m_c = \pm 1$ are the only cases to take into account.

Finally, the hypothesis (a fact for halogen negative ions) that the initial state is a $J = 0$ state can be used to show that the parity of J itself changes after every photon absorption. This is demonstrated by the fact that in the linear polarization case, with the quantization axis along the polarization vector, no $|J, M = 0\rangle_x \rightarrow |J, M = 0\rangle_x$ transition can occur. This change of parity implies that the 3- j coefficients that appear as the relative amplitudes along symmetric branches of the excitation diagram are all of even character, i.e. invariant under a change of all m -magnetic quantum numbers into their opposite. And so coefficients $C_{J, M}$ have the same property.

A.3. Ellipticity dependence of the angular form

In order to determine the ellipticity dependence of the angular probability, a parity property of the $X_{m_c \ell m}$ coefficients (A6) is still needed. Actually changing m_c and m into their opposite multiplies all the $X_{m_c \ell m}$ that appear in (A6) by $(-1)^{L+J} = (-1)^{L+N}$, which is the same factor for all the terms in the sum. This parity property of the $X_{m_c \ell m}$ can be easily demonstrated from the last parity property shown for the $C_{J, M}$.

Every product $X_{m_c \ell m} X_{m_c \ell' m'}^*$ is thus left unchanged when m and m_c are changed into their opposite, a property that we shall use in the following.

Inside the $\sum_{m, m'} \sum_{\ell, \ell'}$ sum of (A6), the simplest terms are the square ones, i.e. those with $\ell = \ell'$ and $m = m'$. They give a contribution which is of course a constant as a function of θ , of the form $\sum_{m, \ell} c^{N+M} s^{N-M} |X_{m_c \ell m}|^2$. When added with the term of opposite m in the sum of opposite m_c , every square term yields a $(cs)^{N-|M|} (c^{2|M|} + s^{2|M|}) |X_{m_c \ell m}|^2$. But $cs = -\cos \xi$, and

$$c^{2|M|} + s^{2|M|} = \frac{1}{2^{|M|}} \sum_{k=0}^{|M|} [1 + (-1)^k] C_{|M|}^k \sin^k \xi$$

a sum in which only the even terms are not cancelled by the $[1 + (-1)^k]$ factor. So the constant contribution of every square term appears as a polynomial of $\cos \xi$, with powers that are $N - |M|$ plus an even $k \in [0, |M|]$. Since N and $|M|$ are of equal parities, and since $|M|$ can actually have the same value as N , we finally obtain terms of the form $\cos^q \xi$ with q even and $q \in [0, N]$, i.e. $q \in [p, N]$.

The $\sum_{m, m'} \sum_{\ell, \ell'}$ sum of (A6) of course also has rectangle terms, i.e. terms for which $(\ell, m) \neq (\ell', m')$. These rectangle terms can be arranged by groups of four, two from the the $m_c > 0$ sum, the other two with the opposite value of m_c . With the notation $(m - m')\theta = \delta$, every group of this kind yields a

$$c^{N+\frac{M+M'}{2}} s^{N-\frac{M+M'}{2}} [X_{m_c \ell m} X_{m_c \ell' m'}^* e^{i\delta} + X_{m_c \ell m}^* X_{m_c \ell' m'} e^{-i\delta}] + c^{N-\frac{M+M'}{2}} s^{N+\frac{M+M'}{2}} [X_{m_c \ell m} X_{m_c \ell' m'}^* e^{-i\delta} + X_{m_c \ell m}^* X_{m_c \ell' m'} e^{i\delta}].$$

This contribution can be split in two parts, the first, that we call the cosine part

$$(cs)^{N-\frac{|M+M'|}{2}} (c^{|M+M'|} + s^{|M+M'|}) \Re [X_{m_c \ell m} X_{m_c \ell' m'}^*] \cos \delta \quad (\text{A7})$$

and the sine part

$$(cs)^{N-\frac{|M+M'|}{2}} \epsilon (c^{|M+M'|} - s^{|M+M'|}) \Im [X_{m_c \ell m} X_{m_c \ell' m'}^*] \sin \delta \quad (\text{A8})$$

where \Re (respectively \Im) stands for the real (respectively imaginary) part of a complex number and $\epsilon = -\frac{M+M'}{|M+M'|}$.

Equation (A6) has already shown us that the angular distribution is a linear combination of $\cos 2p\theta$ and $\sin 2p\theta$ with $p \in [0, N]$. But the maximum value $p = N$ is reached only by terms such that $|M - M'| = 2N$, which is possible only if $M + M' = 0$. In this case, no sine term is left, and we can more precisely tell now that the angular distribution shall be a linear combination of $\cos 2p\theta$ with $p \in [0, N]$ and $\sin 2p\theta$ with $p \in [1, N - 1]$ only (for obviously $p = 0$ is also excluded). This apparently accessory restriction has important practical consequences, for it generalizes what had been noted about the one-photon excitation case. The angular probability in this case just consists of a superposition of two linear angular distributions, which of course preserves the symmetry with respect to the axes of the polarization ellipse. Now in the case of multiphoton excitation, the maximum angular frequency of the angular distribution can, in principle, always be used to find the polarization axes.

Since M and M' are always of the same parity, we can introduce an integer n such that $|M + M'| = 2n$. The cosine term (A7) can then be transformed into

$$(cs)^{N-n} \frac{1}{2^{|M|}} \sum_{k=0}^n [1 + (-1)^k] C_n^k \sin^k \xi \Re [X_{m_c \ell m} X_{m_c \ell' m'}^*] \cos \delta$$

which is a linear combination of $\cos^q \xi \cos 2p\theta$ with $q \in [N - n, N]$, q of the same parity as $N - n$ and $p = \frac{|M - M'|}{2}$. Because necessarily $\frac{|M + M'|}{2} + \frac{|M - M'|}{2} \leq N$, all these q values satisfy $q \geq p$. A case by case examination also shows that the parity of q must be the same as the parity of p .

Under a similar transformation, the sine term (A8) can be written as

$$(cs)^{N-n} \frac{\epsilon}{2^{|M|}} \sum_{k=0}^n [1 - (-1)^k] C_n^k \sin^k \xi \Im [X_{m_c \ell m} X_{m_c \ell' m'}^*] \sin \delta.$$

The only difference with the cosine term is that only odd powers of $\sin \xi$ are left in the $\sum_{k=1}^n$, so sine terms exactly produce a linear combination of $\cos^{q-1} \xi \sin \xi \sin 2p\theta$, with q and p of opposite parities and $q \in [1, N]$. This clinches the demonstration of (11).

A.4. Asymmetry of the angular distribution and the plane-wave approximation

Equation (A8) shows directly that the only terms that can break the symmetry of the angular distribution with respect to the polarization axes are those proportional to the imaginary parts of the XX^* products. But $X_{m_c \ell m}$ is a linear combination with real coefficients of the amplitudes $A_{J,\ell}$. If it so happens that all the relative phases of these amplitudes are integer multiples of π , then all the XX^* products will be real numbers. The angular distribution, with all its sine terms equal to zero, will then remain symmetric with respect to the axes of the ellipse. Such a situation is supposed to occur in the plane-wave approximation. The symmetry just described, which can also be interpreted as the insensitivity of the equatorial angular probability to the sense of the polarization ellipse, is thus a straightforward test of the plane-wave approximation.

Appendix B. Asymmetry parameters as functions of the excitation amplitudes

B.1. Two-, three- and four-photon excitation asymmetry parameters

In the two-photon excitation scheme, both $|m_c = \pm 1\rangle$ core states have a coefficient that consists of a linear combination of six non-zero spherical harmonics. The primary angular distribution thus appears as a quadratic form of spherical harmonics, quadratic also as a function of amplitudes $A_{0,p}$, $A_{2,p}$ and $A_{2,f}$, with $2 \times 6^2 = 72$ terms. Sorting out these coefficients makes the form given by (11) appear.

Table B1 is transposed from the matrix that gives the $a_{pq}^{(2)}$ ($p+q$ even) parameters from the elementary quadratic forms of the amplitudes (the space required to print the analogous tables at higher orders makes the transposition necessary). This is to be read for instance as $a_{00} = \frac{9}{4}|A_{2,p}|^2 + \frac{39}{16}|A_{2,f}|^2 - \frac{3}{4}\sqrt{\frac{3}{2}}\Re(A_{2,p}A_{2,f}^*)$ and so on. This table can be used to check that the normalization integral is equal to the square modulus of the final state $|\Psi_f(0)\rangle$, for

Table B1. This table, if transposed, would be the matrix that gives the two-photon elliptic asymmetry parameters $a_{pq}^{(2)}$ ($p+q$ even) as linear functions of the elementary quadratic forms of the excitation amplitudes (the space required to print the analogous tables at higher orders makes the transposition necessary). The 'Mult' column recalls the number of different diagrams that contribute to the respective amplitudes. The Σ column is just the sum of the a_{pq} on the row (see the text).

Real	Mult	$a_{0,0}$	$a_{0,2}$	$a_{1,1}$	$a_{2,2}$	Σ
$A_{0,p}A_{0,p}^*$	1×1	0	1	0	0	1
$A_{2,p}A_{2,p}^*$	1×1	$\frac{9}{4}$	-1	$\frac{3}{4}$	0	2
$A_{2,f}A_{2,f}^*$	1×1	$\frac{39}{16}$	$-\frac{33}{32}$	$\frac{9}{8}$	$\frac{15}{32}$	3
$\Re(A_{0,p}A_{2,p}^*)$	1×1	0	$-\frac{1}{\sqrt{2}}$	$-\frac{3}{\sqrt{2}}$	0	$-2\sqrt{2}$
$\Re(A_{0,p}A_{2,f}^*)$	1×1	0	$\frac{\sqrt{3}}{2}$	$\frac{3\sqrt{3}}{2}$	0	$2\sqrt{3}$
$\Re(A_{2,p}A_{2,f}^*)$	1×1	$-\frac{3}{4}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$\frac{1}{8}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$-\frac{3}{2}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$-\frac{15}{8}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$-2\sqrt{6}$

Table B2. Analogous to table B1 for writing odd parameter a_{12} as a function of the quadratic forms $\Im(A_{J,\ell}A_{J',\ell'}^*)$.

Imaginary	Mult	$a_{1,2}$
$\Im(A_{0,p}A_{2,p}^*)$	1×1	$-\frac{3}{\sqrt{2}}$
$\Im(A_{0,p}A_{2,f}^*)$	1×1	$\frac{3\sqrt{3}}{2}$

Table B3. Analogous to table B1 for three-photon excitation (see the text).

Real	Mult	$a_{0,0}$	$a_{0,2}$	$a_{1,1}$	$a_{1,3}$	$a_{2,2}$	$a_{3,3}$	Σ
$A_{1,s}A_{1,s}^*$	2×2	0	1	0	0	0	0	1
$A_{1,d}A_{1,d}^*$	2×2	0	$\frac{5}{4}$	0	$\frac{3}{4}$	0	0	2
$A_{3,d}A_{3,d}^*$	1×1	$\frac{75}{16}$	$-\frac{105}{32}$	$\frac{15}{8}$	$-\frac{3}{4}$	$\frac{15}{32}$	0	3
$A_{3,g}A_{3,g}^*$	1×1	$\frac{625}{128}$	$-\frac{861}{256}$	$\frac{285}{128}$	$-\frac{435}{512}$	$\frac{195}{256}$	$\frac{175}{512}$	4
$\Re(A_{1,s}A_{1,d}^*)$	2×2	0	$-\frac{1}{\sqrt{2}}$	0	$-\frac{3}{\sqrt{2}}$	0	0	$-2\sqrt{2}$
$\Re(A_{1,s}A_{3,d}^*)$	2×1	0	$\frac{\sqrt{3}}{2}$	$\frac{5\sqrt{3}}{2}$	$-\sqrt{3}$	0	0	$2\sqrt{3}$
$\Re(A_{1,s}A_{3,g}^*)$	2×1	0	$-\frac{9}{16}$	$-\frac{5}{8}$	$-\frac{5}{8}$	$-\frac{35}{16}$	0	-4
$\Re(A_{1,d}A_{3,d}^*)$	2×1	0	$-\frac{5}{8}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$-\frac{5}{4}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$-\frac{1}{4}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$-\frac{15}{8}\sqrt{\frac{3}{2}}$	0	$-2\sqrt{6}$
$\Re(A_{1,d}A_{3,g}^*)$	2×1	0	$\frac{27}{16\sqrt{2}}$	$\frac{55}{8\sqrt{2}}$	$-\frac{17}{8\sqrt{2}}$	$\frac{25}{16\sqrt{2}}$	0	$4\sqrt{2}$
$\Re(A_{3,d}A_{3,g}^*)$	1×1	$-\frac{25\sqrt{3}}{32}$	$\frac{21\sqrt{3}}{64}$	$-\frac{45\sqrt{3}}{32}$	$\frac{51\sqrt{3}}{128}$	$-\frac{75\sqrt{3}}{64}$	$-\frac{175\sqrt{3}}{128}$	$-4\sqrt{3}$

$Z = a_{00} + a_{02} - \frac{1}{3}a_{11} - \frac{1}{15}a_{22}$ and this linear combination of the columns actually yields $Z = |A_{0,p}|^2 + |A_{2,p}|^2 + |A_{2,f}|^2$.

In a similar way table B2 gives the coefficients of the quadratic forms $\Im(A_{J,\ell}A_{J',\ell'}^*)$ of the amplitudes in coefficient a_{12} .

Table B3 gives the coefficients of the $\Re(A_{J,\ell}A_{J',\ell'}^*)$ forms in the three-photon $a_{pq}^{(3)}$ ($p+q$ even) parameters. The 'mult', i.e. multiplicity, column shows the product of the numbers of diagrams that yield the (J, ℓ) and (J', ℓ') couples, respectively. This multiplicity

Table B4. Analogous to table B2 for three-photon excitation (see the text).

Imaginary	Mult	$a_{1,2}$	$a_{2,3}$
$\Im(A_{1,s}A_{3,d}^*)$	2×1	$\frac{5\sqrt{3}}{2}$	0
$\Im(A_{1,s}A_{3,g}^*)$	2×1	$-\frac{5}{8}$	$-\frac{35}{16}$
$\Im(A_{1,d}A_{3,d}^*)$	2×1	$-\frac{5}{4}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$-\frac{15}{8}\sqrt{\frac{3}{2}}$
$\Im(A_{1,d}A_{3,g}^*)$	2×1	$\frac{55}{8\sqrt{2}}$	$\frac{25}{16\sqrt{2}}$

is just the number of terms that would appear if the $A_{J,\ell}A_{J',\ell'}^*$ product was expressed as a sum of $A_{J,\ell}^{(k)}A_{J',\ell'}^{(k)*}$ elementary products.

Table B4 gives the expressions of the $a_{pq}^{(3)}$ parameters of the $\sin 2p\theta$ terms as functions of the $\Im(A_{J,\ell}A_{J',\ell'}^*)$ quadratic forms.

Table B5 is analogous to tables B1 and B3 for the four-photon case. Table B6 is analogous to tables B2 and B4.

B.2. Sum rules in the tables of asymmetry parameters

The last column of the 'real' tables (coefficients of a_{pq} ($p+q$ even)) shows the sum of the coefficients for every line. The sum of the coefficients has a very simple meaning, if one refers to the general formula (11): $\sum_{p,q} a_{pq}$ ($p+q$ even) is just equal to $\mathcal{A}_0(0)$, the factor by which the angular distribution deviates from the average in the direction of the electric field, in the linear polarization case.

This polarization case is again better described with a quantization axis Ox , parallel to the polarization vector. Following the remarks of section 2.1 we can write

$$|\Psi_f(0)\rangle = \sum_{(k)} \sum_{\ell} A_{J,\ell}^{(k)} |k, J, M=0\rangle_x = \sum_{(J,\ell)} A_{J,\ell} |\ell, J, 0\rangle_x \tag{B1}$$

and the core state vector $|\xi, \eta, \theta\rangle_C$ produced after a measurement is, in a similar way as with (A4),

$$|0, (\eta, \theta)_x\rangle_C = \sum_{m_C} \left[\sum_{(J,\ell)} A_{J,\ell} \langle L, m_C; \ell, m | J, 0 \rangle \mathcal{Y}_{\ell}^m(\eta, \theta) \right] |L, m_C\rangle_x \tag{B2}$$

where index x recalls, where necessary, that we use a special quantization axis.

The angular probability of finding the electron at a given angular position is just the square modulus of the last vector. For direction $\eta = 0$, the only non-zero spherical harmonic is $\mathcal{Y}_{\ell}^0(0) = \sqrt{\frac{2\ell+1}{4\pi}}$, so only $m_C = 0$ is to be considered. We obtain

$$\mathcal{A}_0(0) = \left| \sum_{(J,\ell)} A_{J,\ell} \langle L, 0; \ell, 0 | J, 0 \rangle \sqrt{2\ell+1} \right|^2. \tag{B3}$$

$\mathcal{A}_0(0)$ is thus a quadratic form of the amplitudes. In the particular case where $L = 1$, the Clebsch–Gordan coefficient has a simple expression. If we note $j = \sup(J, \ell)$, then $\langle L, 0; \ell, 0 | J, 0 \rangle = (-1)^{j-L+\ell} \sqrt{\frac{j(2j+1)}{(2j+1)(2j-1)}}$ (Rotenberg *et al* 1959, formula (1.57)). It then follows that

$$\mathcal{A}_0(0) = \sum_{(J,\ell)} f_{J\ell} |A_{J,\ell}|^2 + \sum_{1(J,\ell),(J',\ell')} g_{JJ'\ell\ell'} \Re(A_{J,\ell}A_{J',\ell'}^*)$$

Table B5. Analogous to table B1 for four-photon excitation.

Real	Mult	$a_{0,0}$	$a_{0,2}$	$a_{0,4}$	$a_{1,1}$	$a_{1,3}$	$a_{2,2}$	$a_{2,4}$	$a_{3,3}$	$a_{4,4}$	Σ
$A_{0,p}A_{0,p}^*$	2×2	0	0	1	0	0	0	0	0	0	1
$A_{2,p}A_{2,p}^*$	3×3	0	$\frac{9}{4}$	-1	0	$\frac{3}{4}$	0	0	0	0	2
$A_{2,r}A_{2,r}^*$	3×3	0	$\frac{39}{16}$	$-\frac{33}{32}$	0	$\frac{9}{8}$	0	$\frac{15}{32}$	0	0	3
$A_{4,r}A_{4,r}^*$	1×1	$\frac{1225}{128}$	$-\frac{2325}{256}$	$\frac{33}{32}$	$\frac{525}{128}$	$-\frac{1395}{512}$	$\frac{315}{256}$	$-\frac{15}{32}$	$\frac{175}{512}$	0	4
$A_{4,h}A_{4,h}^*$	1×1	$\frac{10045}{1024}$	$-\frac{9465}{1024}$	$\frac{8535}{8192}$	$\frac{1155}{256}$	$-\frac{3015}{1024}$	$\frac{1575}{1024}$	$-\frac{1155}{2048}$	$\frac{595}{1024}$	$\frac{2205}{8192}$	5
$\Re(A_{0,p}A_{2,p}^*)$	2×3	0	0	$-\frac{1}{\sqrt{2}}$	0	$-\frac{3}{\sqrt{2}}$	0	0	0	0	$-2\sqrt{2}$
$\Re(A_{0,p}A_{2,r}^*)$	2×3	0	0	$\frac{\sqrt{3}}{2}$	0	$\frac{3\sqrt{3}}{2}$	0	0	0	0	$2\sqrt{3}$
$\Re(A_{0,p}A_{4,r}^*)$	2×1	0	0	$-\frac{9}{16}$	0	$-\frac{5}{4}$	$-\frac{35}{8}$	$\frac{35}{16}$	0	0	-4
$\Re(A_{0,p}A_{4,h}^*)$	2×1	0	0	$\frac{9\sqrt{5}}{32}$	0	$\frac{5\sqrt{5}}{8}$	$\frac{35\sqrt{5}}{16}$	$-\frac{35\sqrt{5}}{32}$	0	0	$2\sqrt{5}$
$\Re(A_{2,p}A_{2,r}^*)$	3×3	0	$-\frac{3}{4}\sqrt{\frac{3}{2}}$	$\frac{1}{8}\sqrt{\frac{3}{2}}$	0	$-\frac{3}{2}\sqrt{\frac{3}{2}}$	0	$-\frac{15}{8}\sqrt{\frac{3}{2}}$	0	0	$-2\sqrt{6}$
$\Re(A_{2,p}A_{4,r}^*)$	3×1	0	$\frac{45}{16\sqrt{2}}$	$-\frac{9}{8\sqrt{2}}$	$\frac{105}{8\sqrt{2}}$	$-\frac{67}{8\sqrt{2}}$	$\frac{35}{16\sqrt{2}}$	$-\frac{5}{8\sqrt{2}}$	0	0	$4\sqrt{2}$
$\Re(A_{2,p}A_{4,h}^*)$	3×1	0	$-\frac{9}{16}\sqrt{\frac{5}{2}}$	$\frac{9}{64}\sqrt{\frac{5}{2}}$	$-\frac{21}{32}\sqrt{\frac{5}{2}}$	$-\frac{31}{128}\sqrt{\frac{5}{2}}$	$-\frac{35}{32}\sqrt{\frac{5}{2}}$	$-\frac{7}{64}\sqrt{\frac{5}{2}}$	$-\frac{189}{128}\sqrt{\frac{5}{2}}$	0	$-2\sqrt{10}$
$\Re(A_{2,r}A_{4,r}^*)$	3×1	0	$-\frac{5\sqrt{3}}{8}$	$\frac{11\sqrt{3}}{64}$	$-\frac{35\sqrt{3}}{32}$	$\frac{11\sqrt{3}}{128}$	$-\frac{35\sqrt{3}}{32}$	$-\frac{5\sqrt{3}}{64}$	$-\frac{175\sqrt{3}}{128}$	0	$-4\sqrt{3}$
$\Re(A_{2,r}A_{4,h}^*)$	3×1	0	$\frac{19\sqrt{15}}{32}$	$-\frac{29\sqrt{15}}{128}$	$\frac{161\sqrt{15}}{64}$	$-\frac{389\sqrt{15}}{256}$	$\frac{35\sqrt{15}}{64}$	$-\frac{13\sqrt{15}}{128}$	$\frac{49\sqrt{15}}{256}$	0	$2\sqrt{15}$
$\Re(A_{4,r}A_{4,h}^*)$	1×1	$-\frac{245\sqrt{5}}{256}$	$\frac{165\sqrt{5}}{256}$	$-\frac{87\sqrt{5}}{2048}$	$-\frac{105\sqrt{5}}{64}$	$\frac{225\sqrt{5}}{256}$	$-\frac{315\sqrt{5}}{256}$	$\frac{195\sqrt{5}}{512}$	$-\frac{245\sqrt{5}}{256}$	$-\frac{2205\sqrt{5}}{2048}$	$-4\sqrt{5}$

Table B6. Analogous to table B2 for four-photon excitation.

Imaginary	Mult	$a_{1,2}$	$a_{1,4}$	$a_{2,3}$	$a_{3,4}$
$\Im(A_{0,p}A_{2,p}^*)$	2×3	0	$-\frac{3}{\sqrt{2}}$	0	0
$\Im(A_{0,p}A_{2,r}^*)$	2×3	0	$\frac{3\sqrt{3}}{2}$	0	0
$\Im(A_{0,p}A_{4,r}^*)$	2×1	0	$-\frac{5}{4}$	$-\frac{35}{8}$	0
$\Im(A_{0,p}A_{4,h}^*)$	2×1	0	$\frac{5\sqrt{5}}{8}$	$\frac{35\sqrt{5}}{16}$	0
$\Im(A_{2,p}A_{4,r}^*)$	3×1	$\frac{105}{8\sqrt{2}}$	$-\frac{7}{2\sqrt{2}}$	$\frac{35}{16\sqrt{2}}$	0
$\Im(A_{2,p}A_{4,h}^*)$	3×1	$-\frac{21}{32}\sqrt{\frac{5}{2}}$	$\frac{35}{128}\sqrt{\frac{5}{2}}$	$-\frac{35}{32}\sqrt{\frac{5}{2}}$	$-\frac{189}{128}\sqrt{\frac{5}{2}}$
$\Im(A_{2,r}A_{4,r}^*)$	3×1	$-\frac{35\sqrt{3}}{32}$	$\frac{49\sqrt{3}}{128}$	$-\frac{35\sqrt{3}}{32}$	$-\frac{175\sqrt{3}}{128}$
$\Im(A_{2,r}A_{4,h}^*)$	3×1	$\frac{161\sqrt{15}}{64}$	$-\frac{175\sqrt{15}}{256}$	$\frac{35\sqrt{15}}{64}$	$\frac{49\sqrt{15}}{256}$

with $f_{j\ell} = j$ and $g_{j\ell j'\ell'} = (-1)^{j+j'} 2\sqrt{jj'}$. These are exactly the values found in the \sum column of tables B1, B3 and B5.

References

- Blondel C, Crance M, Delsart C and Giraud A 1992 *J. Physique II* **2** 839
 Blondel C and Delsart C 1993a *Nucl. Instrum. Methods B (Proc. 12th Int. Conf. on the Applications of Accelerators in Research and Industry (Denton 1992))* **79** 156
 Blondel C and Delsart C 1993b *Laser Phys.* **3** 699
 Dulieu F, Blondel C and Delsart C 1995 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **28** 3861
 Kassaei A, Rustgi M L and Long S A T 1988 *Phys. Rev. A* **37** 999 and erratum 1992 *Phys. Rev. A* **46** 4453
 Rotenberg M, Bivins R, Metropolis N and Wooten J K Jr 1959 *The 3-j and 6-j Symbols* (Cambridge, MA: Massachusetts Institute of Technology)
 Samson J A R and Starace A F 1975 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **8** 1806, with corrigendum 1979 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **12** 3993
 Yang C N 1948 *Phys. Rev.* **74** 764

Annexe B

Article 2

Multiphoton angular distributions with elliptically polarized light: II. Three- and four-photon detachment of halogen negative ions

F Dulieu, C Blondel and C Delsart

Laboratoire Aimé-Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, F-91405 Orsay Cedex, France

Received 10 April 1995

Abstract. The negative ions F^- , Cl^- and I^- have been submitted to multiphoton excitation by elliptically polarized light from a Nd:YAG laser at $\lambda = 1064$ nm. Photoelectron angular distributions measured in the polarization plane with various ellipticities are fitted by the analytic formula that was established in the previous paper. Elliptic asymmetry parameters are obtained for three-photon detachment of I^- and four-photon detachment of Cl^- and F^- . Ordinary 'linear' asymmetry parameters can be deduced from these elliptic asymmetry parameters, which makes it possible to compare the present results with those of previous measurements and calculations.

1. Introduction

In the preceding paper (Dulieu *et al* 1995), hereafter referred to as I, we explained how elliptically polarized light makes it possible to get the most multiphoton detachment. Photoelectron angular distributions obtained with elliptic light are characterized by a much greater number of independent coefficients than those recorded with linearly polarized light. Elliptically polarized light, especially with large numbers of photons, should then provide much improved tests of existing theories of multiphoton detachment or ionization.

The algebra that connects elliptical asymmetry parameters to the excitation amplitudes is rather intricate (I). But a surprisingly simple result comes out of the calculations. If all excitation amplitudes are real numbers, as they should be if the negative ion under study is properly described by the plane-wave approximation, then all the orientation dependence of the photoelectron angular distributions vanishes. In other words, angular distributions recorded in the plane of polarization remain symmetrical with respect to both axes of the polarization ellipse.

Elliptic angular distributions can thus show very directly if the plane-wave approximation fails for a given negative ion. For instance a two-photon detachment experiment at 532 nm already showed that I^- departs conspicuously from this approximation (Blondel *et al* 1993a), while F^- always produces symmetrical angular distributions. Symmetry can be conserved, however, if the amplitudes, though not real, keep by chance a phase difference such as $n\pi$, with n an integer, as calculations predict for two-photon detachment of Cl^- (Vasilyeva and Kiyani 1993). Thus while symmetry breaking of photodetachment angular distributions can be considered as evidence for a discrepancy with the plane-wave approximation, unperturbed symmetry should not lead to the converse conclusion that the plane-wave approximation holds.

Elliptically polarized light can also be used for multiphoton ionization studies, with the same wealth of possibilities. As for the relative phase properties of the outgoing

waves in a photoionization problem, however, the plane-wave approximation is irrelevant (Muller *et al* 1988). It should thus not be a surprise that multiphoton ionization angular distributions of noble gases actually show a marked sensitivity to the sense of the polarization ellipse (Bashkansky *et al* 1988). Since the experiment was carried out in the excess-photon absorption regime, the excitation amplitudes had to be complex numbers anyway (Lambropoulos and Tang 1988). Several complete calculations (Basile *et al* 1988, Trombetta *et al* 1988, Krstić and Mittleman 1991) have still illustrated that elliptically polarized light generally reduces the geometry of the multiphoton ionization angular distributions from a four- to a two-fold symmetry.

We present new photoelectron angular distributions measured with elliptically polarized light on the negative ions I^- , Cl^- and F^- . These angular distributions are analysed quantitatively, in order to yield sets of asymmetry parameters that can be compared to calculated values, and be commented on qualitatively along the general lines just explained, about their relationship to the plane-wave representation of the continuum states of negative ions.

2. Experimental set-up

The experiment is performed on an ion beam, with an injection-seeded Nd:YAG laser, at the wavelength 1064.2 nm. A complete description of our apparatus was given by Blondel *et al* (1992).

Briefly, an ion beam is produced from a hot cathode discharge source, under an acceleration voltage of 1200 V, and brought to a field-free region by means of electrostatic optics. A laser beam, orthogonal to the ion beam, is focused into the same region by a 0.2 or 0.15 m plano-convex anti-reflection coated BK7 lens. The ion current which crosses the interaction region is typically 50 nA.

The laser pulses are shot at a rate of 10 Hz. Their full width at half-maximum is 12 ns, greater than the transit time of the ions through the light beam. Electrons are detected at the top of a 0.4 m time-of-flight tube, which makes it possible to eliminate spurious electrons of different energies. Multiphoton detachment takes place in a region which has been carefully shielded against electric and magnetic fields. In order to increase the collection efficiency (since the average number of detected electrons is always less than 1 per pulse), the photoelectrons that come out of the zero-field region are accelerated by 2–3 V into the time-of-flight tube. The angular resolution is thus reduced, but the effective diameter of the detector never exceeds 5° of angular aperture.

Measuring the photoelectron angular distribution requires, in principle, that the detector be rotated with respect to the polarization pattern. We, of course, prefer to rotate the polarization pattern with respect to the detection direction, by rotating a half-wave plate set in the light beam just before the focusing lens. Before the half-wave plate, a quarter-wave plate (the only element added since the linear polarization experiments) can be set at different angles to produce any value of the ellipticity.

The half-wave plate mount is monitored by the same microcomputer that records the electron counts. The resolution of the counting channels is 0.1° of rotation, i.e. 0.2° of polarization, much higher than the angular resolution of the detector. The recorded contents of adjacent channels can thus be added so as to find a better compromise between resolution and signal-to-noise ratio.

Several complete rotations of the half-wave plate are performed, so as to eliminate the perturbations that the slow shifts of the ion current, laser intensity and detection efficiency

would produce. Each half-wave plate full rotation corresponds to four periods of the angular distribution, so the corresponding records are folded and finally added into a 180° interval so as to make a one-period set of data.

3. Results

3.1. Three-photon detachment of I^-

I^- was already the subject of total cross section (Blondel *et al* 1989) and linear polarization angular distribution (Blondel *et al* 1992) measurements. The experimental set-up just described has been used to measure the angular distribution of three-photon detached electrons from I^- with ellipticities ranging from $\xi = 0$ (linear) to $\xi = -60^\circ$. The results are shown on figure 1.

From formula (11) of I, the analytic form of a three-photon detachment angular distribution is

$$A_\xi^{(3)}(\theta) = Z[\alpha_{00} + \alpha_{02} \cos^2 \xi + (\alpha_{11} \cos \xi + \alpha_{13} \cos^3 \xi) \cos 2\theta + \alpha_{12} \cos \xi \sin \xi \sin 2\theta + \alpha_{22} \cos^2 \xi \cos 4\theta + \alpha_{23} \cos^2 \xi \sin \xi \sin 4\theta + \alpha_{33} \cos^3 \xi \cos 6\theta] \quad (1)$$

with the explicit forms of the $a_{pq} = Z\alpha_{pq}$ as quadratic functions of the amplitudes given in appendix B of I.

Electron trajectories from the interaction region to the detector are always bent by unknown residual fields, so we cannot completely rely on polarization measurements to determine the angular origins. All six angular origins of the curves of figure 1 have thus to be considered as additional unknowns. This would of course introduce some redundancy with the unknown sine-to-cosine balance in the formula, were it not for the slight differences of ξ dependence between sine and cosine terms. Moreover, as we have stressed, the highest angular frequency is represented only by a cosine form. If this component actually has a non-negligible amplitude, it will give a clear determination of the angular origin.

Six free angular origins, in addition to six different Z normalization factors and a single set of seven independent α_{pq} parameters have been used to fit the experimental data. The continuous curves of figure 1 show the result of this fitting procedure graphically. The essential information of course consists in the α_{pq} that have been found, which are given in table 1. As a measurement of the quality of the fit, the corresponding chi-squared value is 1.122.

This apparently consistent result shows a significant admixture of odd, i.e. sine components, but the angular corrections are surprisingly large ones, maximum as to the absolute value with -18° for the $\xi = -46^\circ$ case.

This prompts us to observe that the $\frac{\pi}{3}$ period component (α_{33} coefficient) actually found is a very small one, which makes the angular origin determination questionable. The $\xi = 0$ recording, which has to be even with respect to its angular origin, is of course an exception.

Table 1. Measured normalized elliptic parameters for three-photon detachment of I^- . Case a is letting all parameters be free, b is when odd parameters (i.e. coefficients of the sine terms) are frozen to zero.

Iodine	α_{00}	α_{02}	α_{11}	α_{13}	α_{22}	α_{33}	α_{12}	α_{23}	χ^2
a	1.77	-0.70	-0.62	0.73	0.52	-0.01	0.06	-0.84	1.122
b	0.87	0.20	-0.45	0.54	0.53	-0.01			1.143

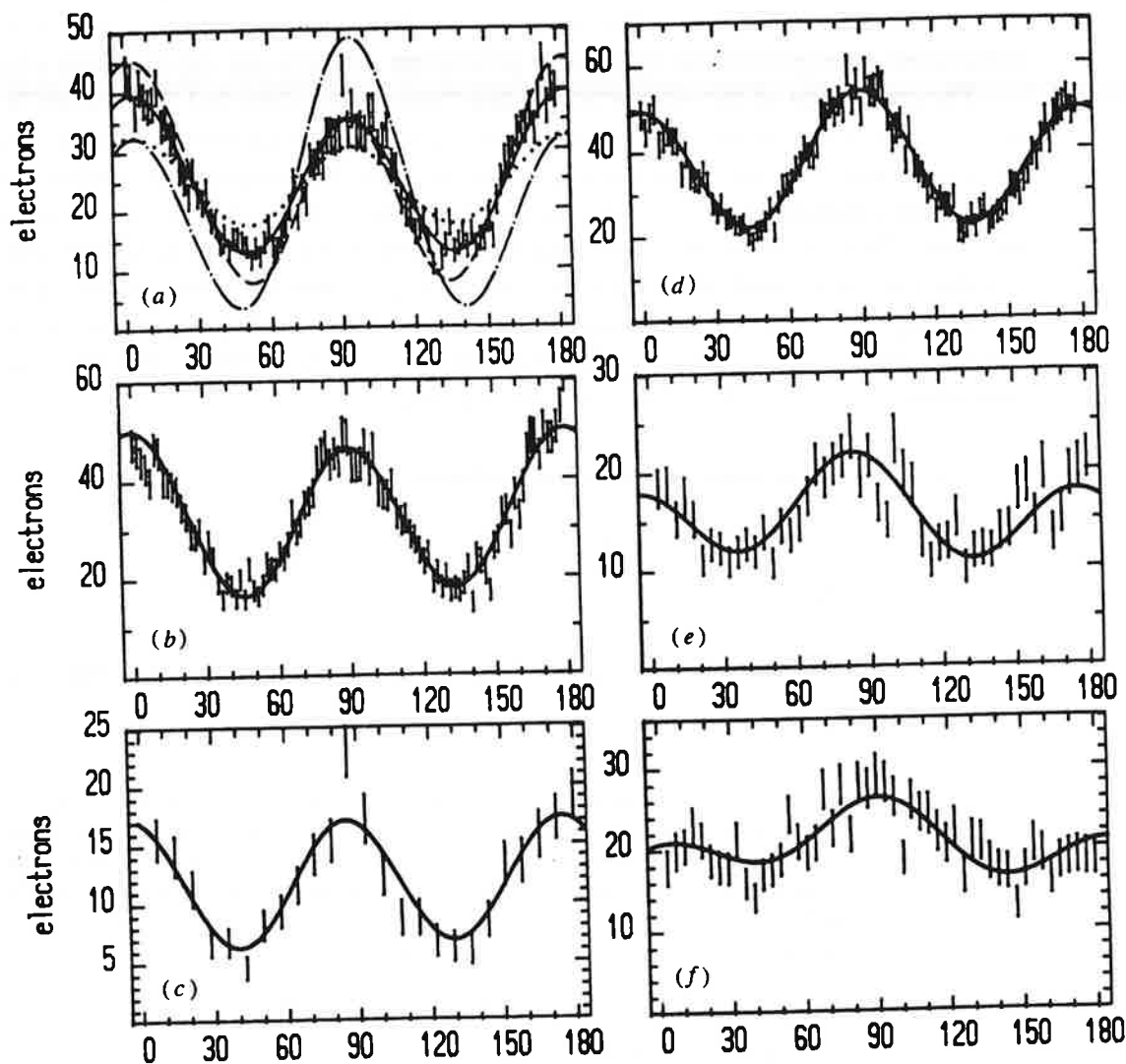


Figure 1. Three-photon detachment of I^- . The diagrams show the number of counted electrons as a function of the detection angle with respect to the major axis of the polarization ellipse, as determined *a priori* by polarization measurements. Cases (a)–(f) are for an ellipticity angle ξ of 0, -12° , -20° , -30° , -46° and -60° , respectively. The full curves are the result of a single fitting procedure, according to the general formula (11) of I. In the linear polarization case, the chain curve is what the plane-wave approximation predicts, the broken curve shows how this approximation is improved by the first-order Born correction, the dotted curve is the 1991 measurement.

So rather than just looking at the standard deviation matrix given by the fitting procedure, we shall have an idea of the reliability of the parameters obtained by looking at the results of another fit, also shown in table 1, with odd parameters α_{12} and α_{23} frozen to zero. Not only is the chi-squared nearly as good as for the former fit, with a value of 1.143, but the corrections to the angular origins are also found to be much smaller, with a maximum (as for the absolute value) of -6° . This second fit is probably the more reliable one, though the former was, in principle, less biased.

Of course both sets of parameters have to agree about the description of the $\xi = 0$ case, which does not suffer so much from origin uncertainty. So despite the first α_{pq} parameters looking very different between both fits, the sums $\alpha_{00} + \alpha_{02}$ and $\alpha_{11} + \alpha_{13}$, which are essential parameters for fitting the linear polarization record alone remain nearly constant,

at 1.07 and 0.10, respectively. This shows better than a correlation matrix what the essential correlations of experimental asymmetry parameters are with our experimental constraints.

The conclusion of this comparison is that three-photon detached I^- does not fit so badly with no sine terms at all. Actually no conspicuously large asymmetry can be observed on the experimental curves. This is a surprise in the sense that all previous studies have shown that iodine exhibited the largest discrepancy from the plane-wave approximation among all halogens. Of course, absence of the sine terms could be the result of accidental cancellation, and does not necessarily correspond to a perfect agreement with this approximation.

Finally, the parameters obtained with elliptic light can be used to check the results formerly obtained with linearly polarized light (Blondel *et al* 1992). The linear asymmetry parameters β_2 , β_4 and β_6 should obey the equalities

$$\begin{aligned}\beta_2 &= \frac{4}{3}(\alpha_{11} + \alpha_{13} - \frac{4}{7}\alpha_{22} - \frac{1}{7}\alpha_{33}) \\ \beta_4 &= \frac{64}{35}(\alpha_{22} - \frac{6}{11}\alpha_{33}) \\ \beta_6 &= \frac{512}{231}\alpha_{33}.\end{aligned}\tag{2}$$

The corresponding values are given in table 2, together with the 1991 experimental and theoretical values.

Table 2. Linear asymmetry parameters for three-photon detachment of I^- . The first row is the zeroth-order plane-wave approximation (Crance 1988), the second row is its improvement by first-order scattering (Blondel *et al* 1992). The 1995 measured values are directly deduced from table 1, (a and b fits yield very similar values), whereas the 1991 values are from Blondel *et al* (1992).

Iodine	β_2	β_4	β_6
Calculated (0)	-1.01	1.49	-0.10
Calculated (1)	-0.19	1.42	-0.11
Measured (95)	-0.27	0.98	-0.02
Measured (91)	-0.15	0.55	-0.03

As for the highest frequency component, the new measurement appears quite consistent with the former one, β_6 keeps a very small value anyway. The main components β_2 and β_4 appear roughly a factor of 1.8 larger than previously measured. This increased contrast may be interpreted, as for the two-photon measurements, by the presence of an unknown background in the former experiments with I^- (Blondel and Delsart 1993a). As a result, the discrepancy between the calculated and measured β_4 is reduced by a factor of two, but theory still significantly overestimates the absolute values of both β_2 and β_4 .

3.2. Four-photon detachment of Cl^-

Before the present work, four-photon detachment of Cl^- at $\lambda = 1064$ nm had only been the subject of a total cross section measurement (Blondel and Trainham 1989). The corresponding angular distribution of photoelectrons had nevertheless been calculated by Michèle Crance, with other angular distributions from halogen ions detached with the linearly polarized Nd:YAG laser (Crance 1988).

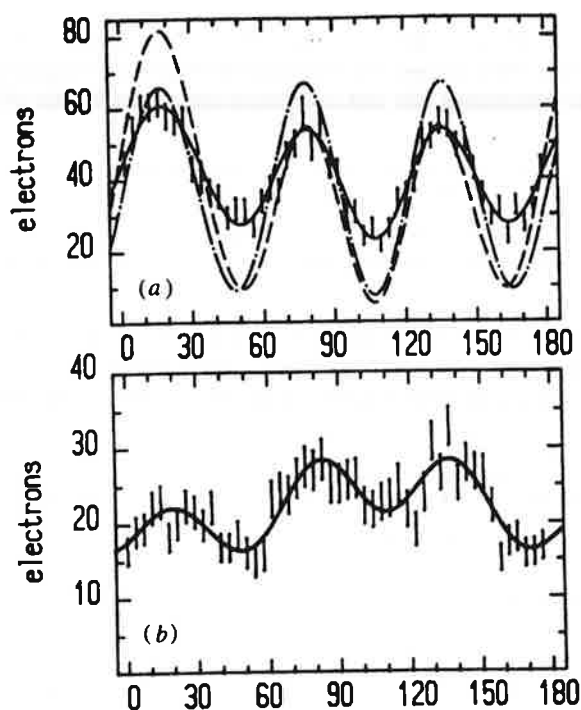


Figure 2. Four-photon detachment of Cl^- . Same conventions as in figure 1. Cases (a) and (b) are with $\xi = 0$ and $\xi = 40^\circ$, respectively.

From equation (11) of I, the analytic form of four-photon detachment angular distributions is

$$\begin{aligned}
 A_{\xi}^{(4)}(\theta) = Z[& \alpha_{00} + \alpha_{02} \cos^2 \xi + \alpha_{04} \cos^4 \xi \\
 & + (\alpha_{11} \cos \xi + \alpha_{13} \cos^3 \xi) \cos 2\theta + (\alpha_{12} \cos \xi \sin \xi + \alpha_{14} \cos^3 \xi \sin \xi) \sin 2\theta \\
 & + (\alpha_{22} \cos^2 \xi + \alpha_{24} \cos^4 \xi) \cos 4\theta + \alpha_{23} \cos^2 \xi \sin \xi \sin 4\theta \\
 & + \alpha_{33} \cos^3 \xi \cos 6\theta + \alpha_{34} \cos^3 \xi \sin \xi \sin 6\theta + \alpha_{44} \cos^4 \xi \cos 8\theta] \quad (3)
 \end{aligned}$$

with the explicit forms of $a_{pq} = Z\alpha_{pq}$ as quadratic functions of the amplitudes given in appendix B of I.

Figures 2(a) and (b) show two angular distributions recorded with $\xi = 0$ and $\xi = 40^\circ$, respectively. Technical problems at the time we were working with chlorine unfortunately prevented us from studying other cases. As a consequence, elementary algebra shows that we cannot determine α_{04} via a fitting procedure. This parameter thus had to be frozen, and we set it at $\alpha_{04} = 0$. Consequently, the other α_{pq} parameters are effective parameters only, that should not be directly interpreted along the lines of I.

We can at least observe that the $\xi = 40^\circ$ record with chlorine does not exhibit any significant asymmetry. The 17° shift of the origin (as it comes out of the fitting procedure) affects the $\xi = 0$ data as well, it thus has to be of purely instrumental origin. Indeed, when the origins of the two records are independently left free, using only cosines in the fitting formula yields a shift of only 2.6° , for the second record with respect to the former, which is the order of magnitude of the day-to-day shifts of the angular origin.

In a more quantitative way, allowing non-zero values for the odd α_{pq} parameters does not improve the quality of the fit. This is the strongest argument to conclude that four-photon detachment of Cl^- does not exhibit any sensitivity to the sense of the polarization ellipse, within the limits set by the precision of angular distribution measurements. The numerical results are thus given in table 3 as a set of even α_{pq} parameters only, since we

Table 3. Measured normalized elliptic parameters for four-photon detachment of Cl^- . Because only two values of the ellipticity were studied, α_{04} could not be used as a fitting parameter and is thus supposed to be zero. Introducing any odd component only degrades the χ^2 value, all odd α_{pq} are thus supposed to be zero too.

Chlorine	α_{00}	α_{02}	α_{11}	α_{13}	α_{22}	α_{24}	α_{33}	α_{44}	χ^2
	0.72	0.33	-0.63	0.74	-0.08	0.14	0.38	-0.04	1.053

Table 4. Linear asymmetry parameters for four-photon detachment of Cl^- . The first and second rows are the zeroth-order plane-wave approximation (Crance 1988), and its improvement when photoelectron rescattering is taken into account at first order (Crance 1991), respectively.

Chlorine	β_2	β_4	β_6	β_8
Calculated (0)	-0.16	-0.72	1.83	-0.15
Calculated (1)	0.10	-0.26	2.00	-0.23
Measured (95)	0.02	-0.25	0.89	-0.11

assume the odd ones to be zero. The corresponding χ^2 , the best one we could find whatever set of free α_{pq} was used to fit the data, has a value $\chi^2 = 1.053$.

In the same way as in table 1, because of the relatively poor sampling of the ξ variations when compared to the θ sampling of the $\xi = 0$ angular distribution, the combinations $\sum_{q=p, p+q \text{ even}}^N \alpha_{pq}$ for every p are determined with a better precision than individual α_{pq} . Numerically $\alpha_{00} + \alpha_{02} \simeq 1.05$ (this can be read as the actual value of $\alpha_{00} + \alpha_{02} + \alpha_{04}$) and $\alpha_{11} + \alpha_{13} = 0.103$.

As for three-photon detachment, the parameters obtained with elliptic light can be used to determine the asymmetry parameters used with linearly polarized light. These beta parameters are given by

$$\begin{aligned}
 \beta_2 &= \frac{4}{3}(\alpha_{11} + \alpha_{13} - \frac{4}{7}(\alpha_{22} + \alpha_{24}) - \frac{1}{7}\alpha_{33} - \frac{16}{231}\alpha_{44}) \\
 \beta_4 &= \frac{64}{35}((\alpha_{22} + \alpha_{24}) - \frac{6}{11}\alpha_{33} - \frac{20}{143}\alpha_{44}) \\
 \beta_6 &= \frac{512}{231}(\alpha_{33} - \frac{8}{15}\alpha_{44}) \\
 \beta_8 &= \frac{16384}{6435}\alpha_{44}.
 \end{aligned} \tag{4}$$

The corresponding values are given in table 4, together with the values calculated according to the plane-wave approximation (Crance 1988). Since the fine structure of chlorine is too small to be analysed by our crude time-of-flight technique, the $^2\text{P}_{3/2}$ and $^2\text{P}_{1/2}$ contributions have been added with their relative weights $\frac{2}{3}$ and $\frac{1}{3}$, respectively. Also shown is the improvement of the plane-wave approximation when scattering by the residual core is taken into account at the first order of the Born approximation, but the figures given by Crance (1991) in this case only deal with detachment into the $^2\text{P}_{3/2}$ channel. A satisfactory agreement between the calculated and measured β_2 , β_4 and β_8 should not conceal that a rather large discrepancy remains about β_6 .

3.3. Four-photon detachment of F^-

The fluorine negative ion detaches with three photons of the Nd:YAG laser. The corresponding total cross section (Blondel *et al* 1989) and angular distribution with linearly polarized light (Blondel *et al* 1992) have been measured previously. Because of the

smallness of the excess energy in the three-photon detachment scheme, F^- also has a particularly important probability of absorbing an extra photon. In fact, F^- was the first negative ion on which the excess-photon detachment process could be observed (Blondel et al 1991).

All previous comparisons between F^- and other halogen negative ions have always been consistent with the assumption that fluorine quite precisely obeys the plane-wave approximation. For instance, two-photon angular distributions measured with elliptically polarized light (Blondel and Delsart 1993a) showed no sensitivity to the sense of the polarization ellipse, in agreement with the calculations (Vasilyeva and Kiyani 1993).

Yet even in the plane-wave approximation, the excitation amplitudes are expected to become complex numbers as soon as one enters the excess-photon detachment regime (Lambropoulos and Tang 1988). Testing the sensitivity of excess-photon detachment angular distributions to the sense of the polarization ellipse was thus a tentative experiment, especially in the case of F^- which has always appeared as conformable as possible to the simplest models.

Moreover, three 1064.2 nm photons only bring the outgoing electron a kinetic energy of 93 meV, so F^- detachment very easily enters the channel closure regime (when the first detachment channel becomes energetically forbidden because of the ponderomotive threshold shift). At common laboratory intensities, a qualitative distinction can thus be made between four-photon detachment, which becomes the lowest allowed channel, and five-photon detachment, which according to some authors is the only process of the two that deserve the name 'excess-photon detachment'. Elliptically polarized light could appear as a means to illustrate this qualitative difference. A real experiment is required, because the prediction of complex amplitudes actually relies on perturbation theory, which does not encompass the possibility of ponderomotive threshold shifting.

Unfortunately, we could not reach a signal-to-noise ratio high enough to record reliable data in the five-photon detachment case, with elliptically polarized light. Linearly polarized light produces an angular distribution with three secondary maxima, between 0 and 180°, which has been published already.

Four-photon detachment was the subject of four recordings, with ellipticities ranging from $\xi = -4^\circ$ to $\xi = -44^\circ$. The corresponding data, fitted by the general formula, are shown in figure 3. As for chlorine, but for less obvious reasons, it appeared impossible to let parameter α_{04} be free, so the results are given assuming this coefficient to be zero. Table 5 shows a comparison of fitting with and without sine terms. As with previous examples, this comparison shows that for $p \leq 2$, the natural combinations $\sum_{q=p, p+q \text{ even}}^N \alpha_{pq}$ are more stable, from one fit to another, than the α_{pq} taken individually.

Since the χ^2 value does not show any improvement when the odd parameters are left free, it can still be concluded that the data do not contain any significant sensitivity to the sense of the polarization ellipse. With fluorine, which has always given experimental results close to the plane-wave approximation, this is not so much of a surprise.

Table 5. Measured normalized elliptic parameters for four-photon detachment of F^- . Rows a and b are again with and without odd components, respectively. The coefficient α_{04} had to be frozen to zero in order to prevent the fitting procedure from going to unacceptable values of the other parameters.

Fluorine	α_{00}	α_{02}	α_{11}	α_{13}	α_{12}	α_{14}	α_{22}	α_{24}	α_{23}	α_{33}	α_{34}	α_{44}	χ^2
a	1.93	-0.46	-0.32	1.52	0.12	-0.19	-0.25	1.09	-0.14	0.54	-0.30	0.06	0.9174
b	1.67	-0.20	-0.41	1.60			-0.28	1.11		0.53		0.05	0.9172

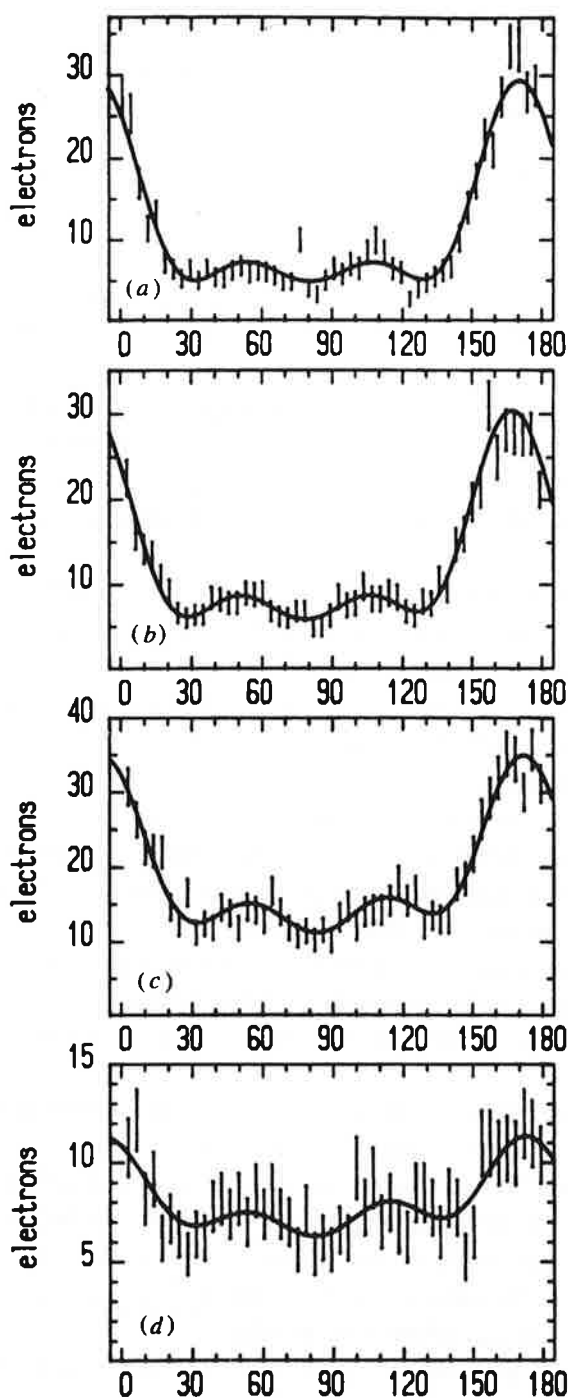


Figure 3. Four-photon detachment of F^- . Cases (a)–(d) are for an ellipticity angle ξ of -4 , -15 , -30 and -44° , respectively.

As for chlorine, the parameters obtained with elliptic light can be used to determine the asymmetry parameters of linear angular distributions. The corresponding values are given in table 6, together with the values calculated according to the plane-wave approximation (Crance 1988), and their corrections when scattering of the detached electron has been taken into account at first order (Born approximation, Crance 1991).

Table 6 also recalls previous experimental values of the β asymmetry parameters. This may be of some help since they have only been published in the form of relative amplitudes, for every partial wave involved in the final state (Blondel *et al* 1991). Moreover, these amplitudes appear to have been perverted by sign inversion of all those with $m_l = \pm 1$. The

Table 6. Linear asymmetry parameters for four-photon detachment of F^- . The first and second row are the zeroth-order plane-wave approximation (Crance 1988) and its improvement when photoelectron rescattering is taken into account at first order (Crance 1991), respectively. The 1995 measured values are deduced directly from table 5 (a and b fits yield very similar values) and the 1991 values are from (Blondel *et al* 1991).

Fluorine	β_2	β_4	β_6	β_8
Calculated (0)	0.44	0.38	2.24	-0.23
Calculated (1)	0.78	0.90	2.25	-0.32
Measured (95)	0.84	0.99	1.13	0.14
Measured (91)	0.69	0.62	1.01	-0.07

β asymmetry parameter reconstruction is not affected, but the amplitudes to (ℓ, J) channels (second part of table 2 in Blondel *et al* 1991) are wrong. The calculated and measured values of the amplitudes, in this second part of the table, have also been inverted.

For the sake of avoiding any confusion with the final state amplitudes, we thus prefer to give the result of angular distribution measurements only in the form of asymmetry parameters. Asymmetry parameters contain all the information that can be extracted from the experimental data. Converting asymmetry parameters back into relative amplitudes would bring additional difficulties out anyway, since it consists of inverting a set of quadratic equations, which always produces several possible roots (Blondel and Delsart 1993b).

The difference between the 1991 and 1995 measured asymmetry parameters can be considered as a good estimate of the precision of the angular distribution measurements. Considering the latter measurement as the more reliable, we can now say that β_2 and β_4 are quite correctly given by the calculation. However, the two higher angular frequencies still show a large discrepancy between theory and experiment.

4. Conclusion

Three- and four-photon detachment angular distributions have been recorded for different values of the light ellipticity. These angular distributions could be analysed quantitatively by means of a general formula that gives both the angular and ellipticity dependence of the signal.

In principle, four-photon detachment of F^- belongs to the excess-photon absorption regime. Despite fluorine never failing in the plane-wave approximation predictions, asymmetric angular distributions could have appeared with elliptically polarized light. Such an asymmetry was not found. We leave theorists the task of finding whether this is a consequence of the closure of the three-photon detachment channel, or whether four-photon detachment angular distributions of F^- would have remained symmetrical even if we had been able to record them with intensities small enough not to induce any troublesome ponderomotive effect.

Recording elliptic angular distributions with higher numbers of photons than in previous studies has also shown that increasing the number of photons makes the coefficients of the lowest angular frequencies in the angular distribution themselves high-frequency functions of the ellipticity angle ξ . As a consequence, analysing the four-photon sets of data actually brought out some difficulties in making a precise estimate of the ξ dependence of these low-frequency coefficients. If elliptic multiphoton detachment experiments were to be continued, we would thus recommend a higher density sampling of the ξ variations. This

would be the only way to significantly improve the accuracy of elliptic asymmetry parameter measurements. In this case, elimination of unwanted shifts and backgrounds would probably require recording the data with a rapid, periodic, variation of the quarter-wave plate setting.

In an ideal experiment, the quarter-wave plate would naturally be rotated by a computer-controlled system, as the half-wave plate already was. The path along which the (θ, ξ) couple would be varied during data acquisition could then be chosen so as to minimize the final uncertainty on the asymmetry parameters. One could even think of choosing the sampling points so as to diagonalize the variance matrix, to make the interpretation of the results easier. But determining such a (θ, ξ) path certainly deserves a lot of algebraic work in itself, which we leave to further studies.

New techniques have also appeared, that make it possible to record whole photoelectron angular distributions at once, thanks to position-sensitive electron detectors (Helm *et al* 1993, Helm and Dyer 1994). This is about three orders of magnitude improvement with respect to conventional techniques. Making use of this improvement to increase the accuracy of the ellipticity sampling by an equivalent factor appears very tentative. But the angular distribution measurements with the 'photoelectron imaging detector' (Helm *et al* 1993) rely on the assumption that the angular distributions are only one-dimensional ones, because of the cylindrical symmetry around the polarization axis.

In contrast elliptic angular distributions have a real two-dimensional dependence. Yet their analytic representation may not require more asymmetry parameters than the equatorial distribution studied so far. It may thus be possible that proper deconvolution methods would still make it possible to reconstruct the angular distributions from their recorded electric-field projections. This conjecture could be the subject of future studies.

References

- Bashkansky M, Bucksbaum P H and Schumacher D W 1988 *Phys. Rev. Lett.* **60** 2458
Basile S, Trombetta F and Ferrante G 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2435
Blondel C, Champeau R-J, Crance M, Crubellier A, Delsart C and Marinescu D 1989 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **22** 1335
Blondel C, Crance M, Delsart C and Giraud A 1991 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **24** 3575
— 1992 *J. Physique II* **2** 839
Blondel C and Delsart C 1993a *Nucl. Instrum. Methods B (Proc. 12th Int. Conf. on the Applications of Accelerators in Research and Industry (Denton 1992))* **79** 156
— 1993b *Laser Phys.* **3** 699
Blondel C and Trainham R 1989 *J. Opt. Soc. Am. B* **6** 1774
Crance M 1988 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **21** 3559
— 1991 Private communication
Dulieu F, Blondel C and Delsart C 1995 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **28** 3845
Helm H, Bjerre N, Dyer M J, Huestis D L and Saeed M 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 3221
Helm H and Dyer M J 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2726
Krstić P and Mittleman M H 1991 *Phys. Rev. A* **44** 5938
Lambropoulos P and Tang X 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2506
Muller H G, Petite G and Agostini P 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2507
Trombetta F, Ferrante G and Basile S 1988 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **21** L539
Vasilyeva E V and Kiyani I Yu 1993 *Laser Phys.* **3** 1033

Nom: DULIEU
Prénom : François
Titre : Photodétachement d'ions négatifs d'halogènes: distributions angulaires multiphotoniques en polarisation elliptique; microscopie au seuil dans un champ électrique uniforme.

Résumé: Ce travail étudie deux aspects du photodétachement des ions négatifs d'halogènes.

L'étude expérimentale du détachement multiphotonique d'ions négatifs d'halogènes dans le cas général de la polarisation elliptique a été complétée par la mesure des distributions angulaires de l'ion I^- détaché par trois photons, et des ions F^- et Cl^- détachés par 4 photons ($1.06 \mu m$ à chaque fois). La conservation de la symétrie par rapport au sens de parcours de l'ellipse dans ces distributions, contrairement à ce qu'on attendait, constitue le résultat expérimental le plus marquant.

Pour analyser ces mesures, une extension du théorème de Yang a été établie. Elle donne la forme mathématique des distributions angulaires de photoélectrons détachés par N photons issus d'un système atomique ayant un moment cinétique total nul et dont le cœur est laissé dans un état impair, dans le cas général de la polarisation elliptique. Une étude numérique du signal de détachement de F^- détaché par 3,4 et 5 photons a été réalisée. Elle prend en compte le phénomène de compétitions de voies de photodétachement et l'effet pondérateur.

Le second aspect de ce travail concerne la construction d'une expérience dite de "microscopie de photodétachement". Son principe, jusqu'alors jamais mis en pratique, est le suivant: un électron détaché dans un champ électrique peut atteindre le détecteur par deux chemins possibles, on peut donc observer des interférences électroniques. On peut interpréter ces interférences comme une coupe radiale de fonction d'onde de photodétachement.

L'étude de la faisabilité, la description de l'expérience, ainsi que les premières images obtenues avec l'ion Br^- sont présentées. On vérifie que les résultats expérimentaux sont en accord qualitatif avec la théorie semi-classique.

Mots clés :

Photodétachement
Distributions angulaires
Détachement multiphotonique
Microscopie au seuil

Jet d'ions négatifs d'halogènes
Polarisation elliptique
Interférences électroniques
Fonction d'onde atomique