

ORSAY

N° D'ORDRE :

UNIVERSITÉ PARIS XI
U.F.R. SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THÈSE

présentée pour obtenir

Le GRADE de DOCTEUR EN SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ PARIS XI ORSAY

Par

Christophe VALLI

Sujet

MICROSCOPIE DE PHOTODÉTACHEMENT DE O⁻ ET F⁻ : MESURE
DES AFFINITÉS ÉLECTRONIQUES ET DES DÉPHASAGES PAR
IMAGERIE DE FONCTION D'ONDE

Soutenue le vendredi 26 novembre 1999 à Orsay devant la commission d'examen

Mr. Peter Balling,

Mr. Christian Bordas, Rapporteur

Mr. Christophe Blondel Directeur de thèse

Mr. Christian Delsart,

Mr. Jean-Pierre Gauyacq

Mr. Serge Reynaud, Rapporteur

Je tiens à remercier d'abord Christophe Blondel et Christian Desaut qui m'ont accueilli au sein de leur équipe. Je les remercie pour leur patience, leurs encouragements, leurs conseils tout au long de ces trois années. J'ai beaucoup apprécié leur faculté à communiquer leur enthousiasme pour la recherche et le fait qu'ils me considèrent, dès le début de notre collaboration, comme un membre à part entière de l'équipe et non comme un simple étudiant. Merci pour ces trois années inoubliables.

J'aimerais remercier M^r Colliex, le directeur, pour m'avoir accueilli dans le laboratoire et d'avoir pris en compte les quelques absences que j'ai pu faire.

Je voudrais remercier Laurence Pailvest, René-Jean Champeau, Pierre Pillet, Jean Vergeès, Mireille Aymon, Roger Leroux, Jean-François Wyant, Anne Gubelier, Roland "Le Capitaine" Damascini pour toutes nos discussions scientifiques ou non, leurs conseils, leur aide et l'intérêt qu'ils ont toujours porté à mon travail.

Je ne veux pas oublier l'ensemble des membres du laboratoire, des I.T.A. -aux-chercheurs, pour leur gentillesse et leur aide quand j'en ai eu besoin.

J'adresse tous mes remerciements à Serge Reynaud et Christian Bordas pour avoir accepté d'être les rapporteurs de mon travail mais également à Jean-Pierre Gaujacq et Peter Balling pour avoir accepté de faire partie de mon jury.

Enfin, je tiens à remercier mes parents et ma famille pour m'avoir toujours soutenu même si cela n'a pas toujours été facile. Je leur serai éternellement reconnaissant de m'avoir permis d'arriver à ce niveau.

Table des matières

1	Introduction	9
2	Atomes ou ions négatifs ? Le choix	13
2.1	Introduction	13
2.2	Le cas des atomes neutres	16
2.3	Une alternative : les ions négatifs	19
2.4	Une structure plus simple	20
2.5	La loi de seuil de Wigner	21
2.6	Application d'un champ électrique.....	22
2.6.1	Abaissement du seuil de détachement.....	23
2.6.2	Changement dans la loi de seuil de Wigner.....	23
2.7	Diagramme de faisabilité.....	25
3	Description quantitative de la microscopie de fonction d'onde	29
3.1	Conditions de l'étude.....	29
3.2	Etude classique	30
3.2.1	Mouvement de l'électron	30
3.2.1.1	Equations du mouvement et trajectoires.....	30
3.2.1.2	Caractéristiques des trajectoires	31
3.2.2	Densité de courant.....	33
3.2.2.1	Définition	33
3.2.2.2	Modèle de la sphère projetée.....	35
3.3	Etude semi-classique.....	37
3.3.1	Description qualitative de l'effet	37

3.3.2 Calcul semi-classique de la densité de courant.....	37
3.3.2.1 Action, action réduite	38
3.3.2.2 Description semi-classique de l'électron.....	38
3.3.2.3 Densité de courant.....	39
3.4 Description quantique du phénomène.....	40
3.4.1 Coordonnées paraboliques.....	41
3.4.2 Résolution en coordonnées paraboliques	42
3.4.3 Expression de la densité de courant	44
3.4.4 Relation avec la loi de Wigner.....	47
3.4.5 Relation avec la section efficace totale	47
3.4.6 Paramètres caractéristiques des taches d'interférence	48
4 Réalisation expérimentale.....	51
4.1 Introduction	51
4.2 L'oxygène et le fluor comme ions sources tests.....	53
4.2.1 L'oxygène	53
4.2.2 Le fluor	55
4.3 Le jet d'ions.....	56
4.3.1 La source	56
4.3.2 Le traitement du faisceau.....	60
4.3.2.1 Description.....	61
4.3.2.2 Réglage du jet.....	63
4.4 Le faisceau laser	64
4.4.1 Obtention	64
4.4.1.1 Faisceau pour l'oxygène	65
4.4.1.2 Faisceau pour le fluor	65
4.4.2 Mesure de la longueur d'onde	65
4.5 La zone d'interaction	68
4.5.1 La colonne	68
4.5.1.1 Description générale.....	68
4.5.1.2 Polarisation de la colonne.....	70
4.5.2 L'interaction jet-laser	71
4.5.2.1 Types d'expérience	71
4.6 L'acquisition.....	75

5	Images de photodétachement	79
5.1	Un exemple d'image axiale.....	79
5.2	Variation de l'énergie cinétique	82
5.3	Modification du champ électrique.....	86
5.4	Les expériences en double passage.....	88
5.5	Photodétachement de ^{18}O , ^{17}O et de ^{19}F	90
5.6	Défauts du dispositif de détection.....	92
6	Analyse des images.....	95
6.1	Introduction.....	95
6.2	Choix de la stratégie d'ajustement.....	96
6.2.1	Taches issues d'une configuration axiale.....	96
6.2.2	Taches transversales.....	97
6.3	Obtention des fonctions d'ajustement.....	97
6.3.1	Expériences axiales	97
6.3.1.1	Obtention de la géométrie de la figure	99
6.3.1.2	Influence de l'étendue de la source	99
6.3.1.3	Autres causes de perte de résolution spatiale.....	102
6.3.1.4	Résolution en énergie	104
6.3.2	Expériences transverses.....	106
6.4	La méthode d'ajustement	108
6.4.1	Critère d'exactitude d'un ajustement.....	108
6.4.2	L'algorithme d'ajustement.....	109
6.4.2.1	Méthode par développement de Taylor (type I).....	110
6.4.2.2	Méthode "de plus grande pente" (type II).....	110
6.4.2.3	Algorithme de "Levenberg-Marquardt"	111
6.5	Le programme d'ajustement.....	112
6.5.1	Evaluation des différentes fonctions	112
6.5.1.1	Les fonctions $Ai(x)$ et $\int_{-\infty}^{\infty} Ai^2(u^2+x) du$	113
6.5.1.2	Les dérivées.....	114
6.5.1.3	Les convolutions.....	115
6.5.2	Caractéristiques des convolutions	117
6.5.2.1	Effet sur le contraste des franges.....	117

6.5.2.2 Effet de dilatation des images	118
6.5.3 Le protocole d'ajustement.....	119
6.5.3.1 L'ajustement bidimensionnel.....	119
6.5.3.2 l'ajustement unidimensionnel.....	124
7 Résultats	127
7.1 Photodétachement de $^{16}\text{O}^-$ dans une configuration axiale à un passage.	127
7.1.1 Ajustement d'une figure d'interférence.....	127
7.1.2 Validité du modèle théorique.....	130
7.1.3 Un champ parasite?	133
7.2 Détermination des affinités électroniques.	135
7.2.1 Expression des énergies de seuil.....	135
7.2.1.1 Configuration transversale.....	135
7.2.1.2 Configuration axiale	137
7.2.2 Expression de l'énergie de seuil.....	142
7.2.3 Estimation des incertitudes.....	142
7.2.3.1 Incertitude sur la longueur d'onde	142
7.2.3.2 Le champ électrique	143
7.2.3.3 La valeur du pixel.....	143
7.2.3.4 La vitesse du jet d'ions.....	144
7.2.3 Résultats	144
7.2.3.1 Affinités électroniques.....	144
7.2.3.2 Ecart de structure fine dans l'oxygène	148
7.2.3.3 Déplacement isotopique.....	148
7.4 Robustesse des affinités électroniques mesurées vis-à-vis des variations de vitesse des ions et de champ.....	150
7.5 Vérification de la taille du pixel grâce aux affinités	152
8 Conclusion.....	153
Annexe.....	157
Bibliographie.....	163
Liste des figures	169

Chapitre 1

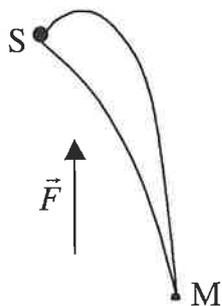
Introduction

Cette thèse expose pour la première fois un travail d'analyse quantitative des interférences électroniques qui apparaissent lors du photodétachement d'ions négatifs en présence de champ électrique extérieur. Le photodétachement, en l'occurrence, résulte de l'excitation de l'ion négatif par un laser. Cette thèse a été effectuée dans le groupe de C. Blondel et C. Delsart au laboratoire Aimé-Cotton, sur le campus d'Orsay de l'université Paris-Sud.

La physique atomique s'est, depuis l'origine, plus intéressée aux atomes et ions positifs qu'aux ions négatifs. Tout d'abord, l'obtention d'ions négatifs isolés et leur utilisation expérimentale est délicate en raison de la grande fragilité de ces édifices. De plus, l'étude théorique de leur structure électronique est compliquée par la force des corrélations qui existent entre les électrons du nuage électronique.

Pourtant les ions négatifs sont des édifices aux propriétés à certains égards plus simples que celles des atomes. Ils n'ont en général que peu de niveaux liés. Le détachement d'un électron nécessite beaucoup moins d'énergie que l'ionisation d'un atome. En outre, l'électron détaché peut être considéré comme libre car il ne laisse derrière lui qu'un atome neutre alors que l'électron provenant d'une ionisation est soumis, même loin du noyau, à l'attraction coulombienne. On peut ainsi, grâce aux ions négatifs, expérimentalement se rapprocher de certaines situations théoriques idéales, en particulier produire des sources d'électrons libres quasi-ponctuelles et étudier le mou-

vement d'un électron issu de telles sources dans différentes situations de champs externes.



Pour le mouvement d'une particule chargée en présence d'un champ électrique uniforme, la mécanique classique montre qu'un électron émis avec une énergie cinétique ε à partir d'un point source S peut atteindre un point M donné de l'espace par deux trajectoires différentes (voir la représentation en figure 1.1). Si l'électron est issu d'un processus atomique, la source est cohérente ; c'est une onde électronique qui alimente à la fois toutes les trajectoires. Le temps de parcours entre la source et le point M variant selon la trajectoire, les ondes partielles qui ont suivi chacune des deux trajectoires se trouvent déphasées au point M et interfèrent.

La distribution de courant photoélectronique sur l'ensemble des points de l'espace doit former finalement une figure d'interférence comme les théoriciens l'ont suggéré au début des années 80. Dans des conditions de champ électrique et d'énergie cinétique réalisables expérimentalement, cette figure peut avoir un interfrange suffisamment grand (plus de $100 \mu\text{m}$) pour qu'il puisse être résolu. Bien que le phénomène existe également pour un électron soumis à la fois au champ électrique et au champ coulombien, il reste pour l'instant impossible à observer ; l'interfrange de la figure serait de l'ordre de $10 \mu\text{m}$ dans des conditions expérimentales réalistes.

Dans le cas du photodétachement, l'interféromètre électronique réalisé est un interféromètre à deux ondes. Il a ceci d'original qu'aucun dispositif macroscopique extérieur n'est requis pour produire la séparation et la recombinaison du front d'onde, le champ d'accélération extérieur suffit à les produire.

Nous exposons au chapitre 2 comment les expériences de mesure de section efficace d'ionisation ou de détachement et la théorie avaient permis d'obtenir une première signature du phénomène d'interférence induit par le champ électrique. Les variations de ces sections efficaces en fonction de l'énergie cinétique des électrons avaient été caractérisées sur plusieurs ions mais la distribution spatiale de courant photoélectronique n'avait jamais été étudiée. Nous montrerons qu'il est possible dans le cas des ions négatifs d'imager cette distribution.

L'étude théorique du photodétachement en champ électrique uniforme est l'objet du chapitre 3. Les études classique, semi-classique et quantique permettent de donner les caractéristiques essentielles de la figure d'interférence et fournissent même la forme analytique qui permet de la reproduire.

La mise en évidence des figures nécessite quelques attentions expérimentales notamment pour le champ électrique uniforme et la zone d'interaction entre les ions et le laser excitateur. Le chapitre 4 est consacré à la description du dispositif expérimental utilisé pour produire les figures d'interférences.

Les plus belles et les plus représentatives des images acquises au cours de cette thèse sont exposées dans le chapitre 5. Nous en faisons une analyse qualitative.

La confrontation des images expérimentales au modèle théorique ainsi que leur analyse quantitative nécessitent l'adaptation des expressions théoriques aux réalités expérimentales et la mise au point d'un programme d'ajustement spécifiquement étudié pour réduire le plus possible les temps d'analyse. Les choix retenus pour obtenir ce résultat sont détaillés au chapitre 6.

Le chapitre 7 analyse les résultats obtenus. On y expose comment la théorie est validée par les mesures effectuées et dans quelle mesure le dispositif permet d'effectuer des mesures précises d'affinités électroniques.

Le huitième chapitre conclut cette thèse par un exposé des futures améliorations susceptibles d'être apportées au dispositif et des prochains objectifs visés par l'expérience. Nous évoquerons enfin quels pourraient être à plus long terme les objectifs de la microscopie de photodétachement.

Chapitre 2

Atomes ou ions négatifs? Le choix.

2.1 Introduction

L'étude de la modification du spectre d'un atome sous l'effet d'un champ électrique uniforme \vec{F} a commencé au début de ce siècle. La démonstration expérimentale de ce phénomène fut réalisée sur l'hydrogène en 1913 à la fois par J. Stark [STA13] et A. Lo Surdo [LOS13]. Ils montrèrent que les raies $H\beta$ et $H\gamma$ de la série de Balmer (qui correspondent respectivement aux transitions $n=2 \rightarrow n=4$ et $n=2 \rightarrow n=5$, n désignant le nombre quantique principal) se scindent en plusieurs composantes sous l'effet du champ électrique appliqué. K. Schwarzschild et P. Epstein en 1916 puis W. Pauli et E. Schrödinger en 1926 [SCH27] en démontrèrent les fondements théoriques : les premiers en utilisant la théorie des quanta, les seconds par le biais de la mécanique quantique et de la théorie des perturbations. L'effet fut nommé *effet Stark* en l'honneur de celui qui, le premier, publia cette découverte. Pour notre part et conformément à une recommandation de H. S. Silverstone [SIL90], nous le nommerons *effet LoSurdo-Stark*.

Le spectre discret n'est pas le seul à subir cet effet. L'effet LoSurdo-Stark existe aussi dans le continuum. Sa première mise en évidence a été réalisée sur les atomes neutres dans une expérience de photoionisation du rubidium par Freeman *et al.* [FRE78]. Cet effet se caractérise par l'oscillation de la section efficace en fonction de l'énergie dans la région de continuum d'états (voir figure 2.1 ci-dessous). Le sodium [LUK81], l'ytterbium

[BLO85] et l'hydrogène [GLA85] présentent également ce comportement pour le continuum.

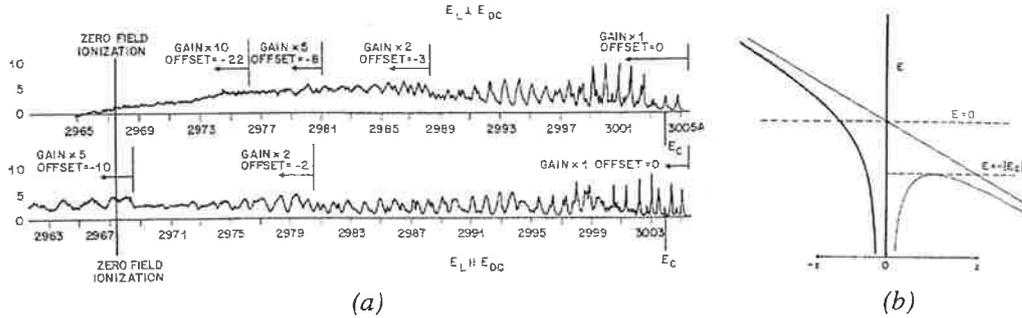


figure 2.1 : (a) représentation de la section efficace de photoionisation du rubidium en fonction de la longueur d'onde du laser. (b) Potentiel subi par l'électron éjecté. $E=0$ représente la limite d'ionisation en champ électrique nul, E_c la limite en champ électrique [FRE78].

Les oscillations se produisent au-dessus de la limite d'ionisation en champ électrique, notée E_c , mais aussi au-delà de la limite en champ nul, notée E_0 et prise comme origine des énergies sur la figure 2.1. Elles s'interprètent naturellement lorsqu'on utilise, pour décrire le mouvement de l'électron éjecté, les coordonnées paraboliques.

Les coordonnées paraboliques (ξ, η, φ) sont définies de la manière suivante en fonction des coordonnées cartésiennes (x, y, z) :

$$\xi = r + z, \quad \eta = r - z, \quad \tan \varphi = \frac{y}{x} \quad (2.1)$$

$$\text{avec } r = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2} = \sqrt{\rho^2 + z^2}$$

Dans ce système de coordonnées, les états liés du spectre de l'hydrogène, en champ électrique nul ou non, sont caractérisés par trois nombres quantiques (n, n_l, m) : n et m sont les nombres quantiques principal et magnétique usuels, n_l , le nombre quantique parabolique, représente le nombre de nœuds de la fonction d'onde en ξ . De tels états, en s'ionisant par effet tunnel, donnent les pics étroits situés sous la limite E_c . Pour $E_c < E < E_0$, la section efficace présente des oscillations plus larges. Il a pu être montré [HAR81 ; LUC79, 80a, b] que la description d'un état par les trois nombres quantiques est toujours valable. A un maximum de la section efficace correspond un état (n, n_l, m) que l'on peut connecter à l'état de Rydberg de mêmes nombres quantiques de l'atome non soumis au champ. Le plus inattendu vient de la présence des oscillations au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul ; il

ne devrait y avoir qu'un continuum plat. L'explication quantique [LUC79, 80a, b] en est que les nombre quantique n_l est encore valable pour les états électroniques au-dessus du seuil et que la force d'oscillateur entre les états initial et final présente des maxima aux énergies correspondant au maximum de chaque section efficace partielle à n_l fixé pour l'état final. La théorie permet alors de reproduire les positions des maxima et la largeur des oscillations.

Un comportement similaire a été observé pour le photodétachement d'ions négatifs en ondes p sur l'hydrogène [BRY87] et l'or [GIB93b], et pour celui en ondes s sur le rubidium [GRE88], le chlore et le soufre [BAR92 ; GIB93a]. La section efficace de photodétachement présente des oscillations autour d'une valeur moyenne représentée par la section efficace en champ nul (voir figure 2.2).

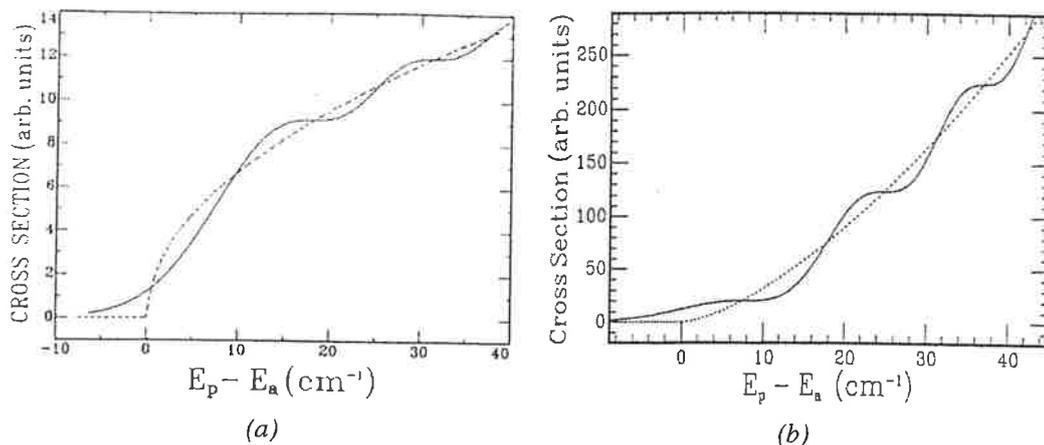


figure 2.2 : section efficace de photodétachement fonction de l'énergie cinétique ϵ de l'électron. Dans le cas du chlore (a) [BAR92], l'électron est éjecté dans une onde s. Pour l'or (b) [GIB93], l'électron est éjecté dans une onde p. La courbe en pointillé représente la section efficace en champ électrique nul.

En 1980, I. I. Fabrikant [FAB80] propose d'interpréter, pour les atomes et les ions, ces oscillations comme un phénomène d'interférence ; l'électron soumis au champ électrique extérieur peut, pour aller du noyau vers un autre point de l'espace, emprunter différents chemins ce qui crée un phénomène d'interférence et provoque l'oscillation de la section efficace totale. L'effet doit même affecter les sections efficaces partielles, c'est-à-dire les densités locales de courant angulaires ou spatiales de photoélectrons. Le phénomène d'interférence doit alors se manifester en chaque point de détec-

tion possible. Ceci conduit à prévoir l'existence, dans l'espace de détection et plus précisément dans un plan perpendiculaire au champ, d'une figure d'interférence. Demkov *et al.* [DEM81] montrent théoriquement en 1981 que cette figure d'interférence peut, dans le cas des ions négatifs, être observable.

2.2 Le cas des atomes neutres

Nous nous limitons ici à l'étude de l'atome d'hydrogène. La simplicité de sa structure permet d'établir les principales caractéristiques de la figure d'interférence pour la photoionisation en champ électrique. Nous montrerons également dans quelle mesure les conclusions obtenues sont applicables aux autres atomes.

Lors de l'ionisation d'un atome en champ électrique, l'électron éjecté est soumis à la fois au champ coulombien du cœur positivement chargé restant et au champ électrique extérieur. K. D. Kondratovich et V. N. Ostrovsky [KON84] ont montré que les équations du mouvement de l'électron sont exactement intégrables. Elles mènent à l'existence d'une infinité de trajectoire qui vont du cœur atomique vers un point donné de l'espace. Ceci permet d'expliquer l'apparition des oscillations de la section efficace totale au-dessus du seuil d'ionisation en champ nul par un phénomène d'interférence et de prévoir l'existence d'une figure d'interférence à plusieurs ondes dans l'espace classiquement accessible à l'électron. C. Bordas [BOR98] a montré que l'enveloppe classique de cette figure fait déjà apparaître plusieurs rayons d'accumulation de trajectoires, parce que le rayon atteint sur le détecteur en fonction de l'angle d'éjection n'est plus une fonction à un maximum mais à plusieurs.

Pour montrer l'existence de la figure d'interférence, on doit décrire de façon quantique le mouvement de l'électron soumis au champ $\vec{F} = F \vec{z}$ extérieur et au champ coulombien du noyau. L'équation de Schrödinger correspondante s'écrit :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} + eFz \right) \psi(\vec{r}) = \epsilon \psi(\vec{r}).$$

où $\psi(\vec{r})$ représente la fonction d'onde de l'électron en un point, m_e la masse de l'électron et e la charge élémentaire.

En utilisant les coordonnées paraboliques (ξ, η, φ) et en écrivant la forme de la fonction d'onde comme le produit $(2\pi\xi\eta)^{-1/2}X_1(\xi)X_2(\eta)e^{im\varphi}$, où m représente le nombre quantique magnétique, on peut séparer l'équation ci-dessus en deux équations différentielles [LAN75] :

$$-\frac{\hbar^2}{2m_e} \frac{d^2 X_1}{d\xi^2} + \left(\frac{\hbar^2}{2m_e} \frac{m^2 - 1}{4\xi^2} - \frac{Z_1 e^2}{8\pi\epsilon_0 \xi} + \frac{eF\xi}{8} \right) X_1 = \frac{\epsilon}{4} X_1,$$

$$-\frac{\hbar^2}{2m_e} \frac{d^2 X_2}{d\eta^2} + \left(\frac{\hbar^2}{2m_e} \frac{m^2 - 1}{4\eta^2} - \frac{Z_2 e^2}{8\pi\epsilon_0 \eta} - \frac{eF\eta}{8} \right) X_2 = \frac{\epsilon}{4} X_2.$$

Le terme entre parenthèses dans les expressions précédentes représente le potentiel effectif le long de la coordonnée étudiée, V_ξ ou V_η . Z_1 et Z_2 sont appelés "constantes de séparation de charge" et sont liées par la relation $Z_1 + Z_2 = Z$, où Z est le nombre de charge de l'atome ; pour l'hydrogène, bien entendu, $Z_1 + Z_2 = 1$.

Les premières expériences de mesure de section efficace de photoïonisation en champ électrique [FRE78] montrent que l'oscillation semble se produire exclusivement quand la polarisation du laser et le champ électrique sont parallèles. Les électrons excités par le laser ne peuvent qu'être dans des états dont la probabilité de présence est majeure le long de l'axe du champ ; ces états correspondent à un nombre quantique magnétique m égal à 0. Blondel *et al.* [BLO85] montrent dans des expériences de photoïonisation à étages que le phénomène existe également en polarisation perpendiculaire au champ. Par contre les états finals impliqués, dans les cas où les oscillations sont les plus visibles, sont bien des états de $m=0$, les constantes de séparation de charge sont alors comprises entre 0 et 1. Nous nous limitons dans la suite au cas où $m = 0$.

L'allure des potentiels effectifs est représentée dans la figure (2.3) pour trois valeurs de la constante de séparation correspondante 0, 1/2, 1.

Pour le potentiel en η , l'effet principal du champ électrique est d'abaisser la limite d'ionisation. Le seuil d'ionisation en champ électrique, noté ϵ_c , est inférieur au seuil en champ nul $\epsilon = 0$. L'abaissement maximal du seuil est obtenu lorsque $Z_2 = 1$; ϵ_c est alors égal à $-2e[eF/(4\pi\epsilon_0)]^{1/2}$ en négligeant les termes en $1/\eta^2$; pour un champ de 400 V.m^{-1} , ϵ_c est de l'ordre de $-12,2 \text{ cm}^{-1}$. Lorsqu'on ionise l'atome au-dessus du seuil ϵ_c , *a fortiori* au-dessus du seuil d'ionisation en champ nul, la fonction d'onde en η est une onde progressive.

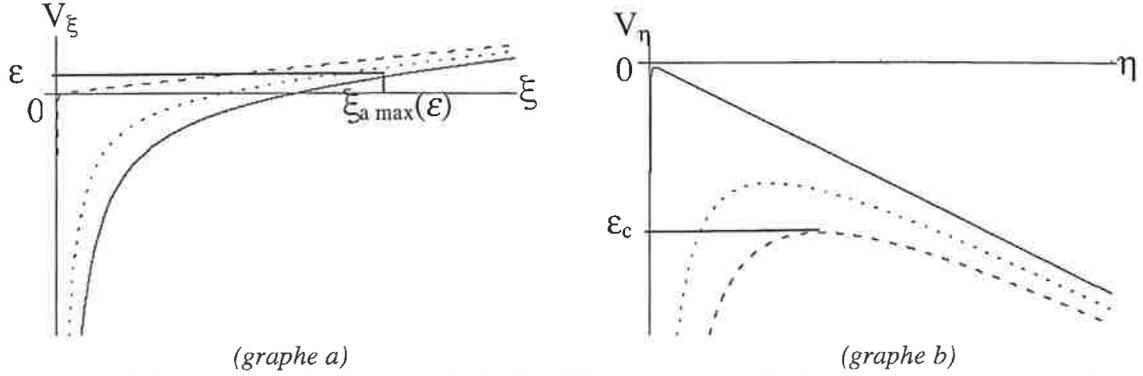


Figure 2.3 : représentation des potentiels effectifs V_ξ (graphe a) et V_η (graphe b) dans le cas $m=0$ et pour $Z_1=1$ $Z_2=0$ (trait plein), $Z_1=Z_2=0,5$ (points) et $Z_1=0$ $Z_2=1$ (trait pointillé). Le mouvement de l'électron selon la coordonnée ξ (graphe a) est confiné, à énergie ε donnée, entre les limites $\xi=0$ et $\xi=\xi_{a \max}(\varepsilon)$. Le mouvement en η (graphe b) est libre pour des énergies supérieures à ε_c qui correspond à la limite d'ionisation en champ électrique ; ce seuil vaut : $\varepsilon_c = -2e(Z_2 e F / 4\pi\epsilon_0)^{1/2}$.

L'état de mouvement selon la coordonnée ξ est toujours un état lié. A une énergie ε fixée, la région de l'espace classiquement autorisée pour l'électron est limitée par $\xi=0$ (pour les états $m=0$) et $\xi=\xi_a(\varepsilon, Z_1)$. La valeur maximale de ξ_a , $\xi_{a \max}$, correspond à $Z_1=1$ et vaut, en négligeant les termes en $1/\xi^2$:

$$\xi_{a \max}(\varepsilon) = a + \sqrt{a^2 + \frac{4b}{eF}} \text{ avec } a = \frac{\varepsilon}{eF} \text{ et } b = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}.$$

Sur un détecteur placé à la cote $z=-z_0$, les électrons ne peuvent aller au-delà de $\xi_{a \max} = (\rho_{\max}^2 + z_0^2)^{1/2} - z_0$. Pour une ionisation en champ électrique de l'ordre de 400 V.m^{-1} au-dessus du seuil en champ nul, l'électron éjecté possède une énergie cinétique supérieure à $12,2 \text{ cm}^{-1}$. Dans ces conditions, $a=\varepsilon/eF$ est petit devant z_0 et a^2 est du même ordre de grandeur que $4b/eF$. Le rayon maximum ρ_{\max} atteignable par les électrons est alors donné par :

$$\rho_{\max} = \sqrt{2az_0} \sqrt{1 + \left(1 + \frac{4b}{eF a^2}\right)^{1/2}}.$$

On montre également que la première résonance (n_1, m) qui apparaît au-dessus de $\varepsilon = 0$ est caractérisée par un nombre quantique parabolique n_1 de l'ordre de $F^{-1/4}$ en unités atomiques, plus précisément $n_1 = 667 F^{-1/4} - 1/2$ [HAR81], si l'on exprime F en V.m^{-1} . Pour des champs électriques d'intensité supérieure à 100 V.m^{-1} , le terme contenant le champ électrique est bien supérieur à $1/2$ de sorte que le nombre quantique parabolique minimum s'écrit $n_1 = 667 F^{-1/4}$ à une bonne approximation.

L'ionisation d'un atome d'hydrogène en champ électrique au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul produit un électron dont la fonction d'onde possède n_1 nœuds dans la direction ξ . La densité locale de courant traversant un détecteur placé en $z=-z_0$ (ceci correspond aussi, dans l'approximation du détecteur éloigné, à une surface $\eta=\text{const}$) est donnée par :

$$j_\eta \propto \left(\psi \frac{\partial \psi^*}{\partial \eta} - \psi^* \frac{\partial \psi}{\partial \eta} \right).$$

En remplaçant ψ par son expression en tant que produit de $X_1(\xi)$ et $X_2(\eta)$, on montre que la densité est proportionnelle au carré du module de $X_1(\xi)$. La figure d'interférence est donc une image de la fonction d'onde en ξ , qui a au minimum $n_1 = 667F^{-1/4}$ anneaux. La valeur moyenne de l'interfrange, i , est donnée par le rapport entre le rayon maximum de la figure et le nombre d'anneaux. Pour l'atome d'hydrogène, cet interfrange est $i \approx \rho_{\max} / n_1 \cong 2,5 z_0^{1/2}$ en unité atomique, soit $i \cong 2,5 (a_0 z_0)^{1/2}$ où a_0 représente le rayon de Bohr. Ainsi, l'interfrange ne dépend pas de l'intensité du champ électrique mais seulement de la hauteur de chute. Pour une hauteur de 1 mètre, l'interfrange n'est que de 18 μm , bien en-dessous de la résolution des détecteurs d'électrons en position actuels. Un interfrange de 100 μm , que les détecteurs pourraient commencer à résoudre, nécessite une hauteur de détection de l'ordre de 30 m.

Dans le cas d'atomes non hydrogénoïdes, le nombre quantique parabolique n'est plus un bon nombre quantique et les différentes voies de n_1 sont couplées. Cependant, les ordres de grandeur de l'interfrange restent identiques et la technologie actuelle ne permet pas davantage sa détection.

2.3 Une alternative : les ions négatifs

La présence de l'attraction coulombienne n'est donc pas favorable à l'observation des anneaux d'interférence caractérisant le mouvement quantique de l'électron libéré en présence de champ électrique. Les ions négatifs constituent des systèmes atomiques qui permettent, en ce qui concerne le mouvement de l'électron extérieur, de s'affranchir de cette attraction. Les propriétés générales des ions négatifs sont les suivantes.

Un atome est un édifice électriquement neutre qui se compose d'un noyau, comportant notamment Z protons de charge $+e$, autour duquel gravi-

tent Z électrons de charge $-e$. Pour comprendre comment un tel objet existe, retirons un électron à un atome. Nous avons alors un ion positif de charge $+e$. Une telle charge crée autour d'elle un champ de Coulomb, champ à longue portée, qui peut attirer un électron qui se lie alors à l'ion positif pour former un atome.

Pour former un ion négatif, il faut pouvoir rajouter un électron à l'atome. Comme l'atome est neutre, aucune interaction de Coulomb ne peut se créer entre l'électron et l'atome. A priori, ce nouvel édifice ne semble pas pouvoir exister. En fait, lorsque l'électron se rapproche de l'atome neutre, les électrons externes du nuage électronique de l'atome se réorganisent pour minimiser la répulsion électrostatique. Ceci permet de répartir l'attraction coulombienne du noyau entre tous les électrons et de stabiliser le nouvel édifice. Mais cette organisation est fragile. La moindre perturbation au sein du nuage fait qu'un des électrons ne partage plus l'attraction et est éjecté de l'ion. *L'affinité électronique* correspond à la différence d'énergie qui existe entre l'ensemble atome-électron libre et l'ion négatif (d'énergie inférieure si l'édifice est stable).

Tous les atomes n'ont pas la même capacité à former des ions négatifs. Suivant l'atome considéré, les couplages vont être plus ou moins capables de stabiliser la structure. Les gaz rares ne peuvent pas donner d'ions négatifs. Le groupe VII de la classification, nommé aussi groupe des halogènes, (fluor, chlore, brome, iode, astate), donnent les ions négatifs les plus stables ; le groupe VI des chalcogènes (oxygène, soufre, sélénium, tellure, polonium) vient ensuite. L'élément qui possède la plus forte affinité électronique est le chlore avec 3,6127 eV [BER95]. L'affinité électronique connue avec la meilleure précision est celle de l'oxygène avec 1,46111 eV [NEU85].

2.4 Une structure plus simple

La grande différence entre les atomes et les ions négatifs tient donc principalement à la portée du potentiel liant l'électron.

Le potentiel coulombien de l'atome ionisé est inversement proportionnel à la distance r entre le cœur chargé et l'électron. Ce potentiel étend son action loin du cœur ; il est dit à longue portée. Ceci implique qu'il existe une infinité d'états liés possibles. La densité d'états, nombre d'états par unité

d'intervalle énergétique, augmente au fur et à mesure qu'on s'approche du seuil d'ionisation. Près du seuil, cette densité est très importante ; ces états forment ce qu'on appelle les états de Rydberg. Ils sont caractérisés par un nombre quantique principal grand ; les fonctions d'onde correspondantes ont un grand nombre de nœuds. Les images d'interférence par ionisation d'atomes auront donc beaucoup d'anneaux, ce qui, comme nous l'avons vu précédemment, nous interdit de pouvoir les discerner.

Pour l'ion négatif, il n'y a pas réellement, comme on l'a vu précédemment, de potentiel de liaison. Toutefois, on peut modéliser, en première approximation, l'édifice comme le résultat du piégeage d'un électron dans un puits de potentiel carré sphérique dont la largeur est égale au rayon de l'ion. Ce type de potentiel ne donne, dans le cas de l'ion, qu'un seul niveau lié discret dû à une configuration électronique ; ce niveau peut éventuellement posséder une structure fine ou hyperfine. L'exception pourrait être l'ion lanthane négatif, La^- , qui aurait plusieurs niveaux liés issus de configurations électroniques différentes. Hormis peut-être pour ce dernier ion, les seules transitions électroniques possibles sont celles entre les états liés de l'ion et ceux du continuum de détachement, au-dessus de la limite de détachement. Comme il n'existe pas de série de Rydberg, le détachement se fait vers des états dont le nombre quantique principal reste petit ; c'est pourquoi la fonction d'onde a peu de nœuds.

A cause de la courte portée du potentiel, l'électron éjecté ne voit plus, lors d'un détachement, le cœur que comme une perturbation très locale. Les états du continuum peuvent donc en outre être considérés comme des états d'électrons libres. Cette approximation, dite de l'électron libre, est le fondement de la loi de seuil de Wigner pour le photodétachement.

2.5 La loi de seuil de Wigner

E. P. Wigner a montré [WIG48] que lorsqu'une particule effectue une transition vers un continuum d'états libres, la section efficace partielle, pour la formation d'états finals de moment cinétique orbital ℓ bien déterminé, peut s'écrire en fonction de l'énergie sous la forme :

$$\sigma_{\ell} \propto \varepsilon^{\ell + \frac{1}{2}}$$

où ε représente l'énergie de la particule. Cette description peut s'appliquer au photodétachement. Elle est valide jusqu'à des énergies ε de l'ordre de 10^{-2} eV [HOT85, CAL96]. Au-delà, des termes de correction dus à la polarisation du cœur apparaissent.

L'expression de la loi de Wigner montre que la section efficace de détachement est nulle au seuil. De plus, la loi de puissance en $\ell+1/2$ favorise, juste au-dessus du seuil, le détachement d'électrons avec le plus petit moment cinétique que les règles de sélection permettent. Par exemple, si l'ion et l'atome correspondant ont des parités opposées et que l'électron part d'un état p de l'ion, l'électron est éjecté avec un moment angulaire égal à 0 (onde s) ou 2 (onde d). Les sections efficaces correspondantes croissent respectivement comme $\varepsilon^{1/2}$ et $\varepsilon^{5/2}$. Les pentes respectives en $\varepsilon=0$ (infinie pour les électrons s, nulle pour l'électron d) montrent que, juste au-dessus du seuil, σ_0 est très grande par rapport à σ_2 . L'électron est ainsi éjecté à près de 100% en une onde s. Cette brusque augmentation de la section efficace au seuil est très favorable pour la mesure de l'affinité. Cette propriété a été utilisée par Neumark *et al.* [NEU85] pour la mesure précise de l'affinité électronique de l'oxygène (figure 2.4 ci-dessous).

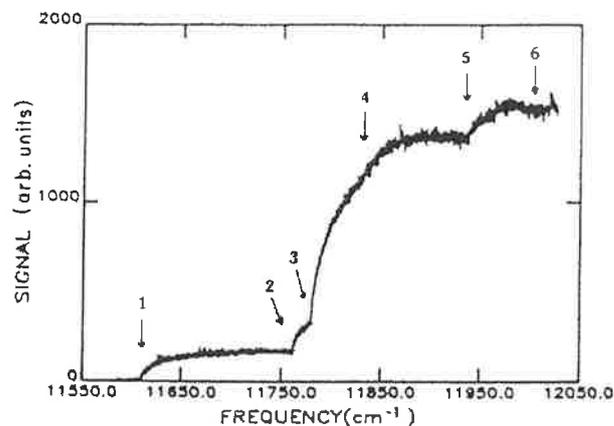


figure 2.4 : Section efficace de photodétachement de l'oxygène en fonction de l'énergie d'excitation laser [NEU85]. Les nombres désignent chaque seuil de photodétachement de ^{16}O . La variation brutale de la section efficace au passage de chaque seuil est nettement visible.

2.6 Application d'un champ électrique

2.6.1 Abaissement du seuil de détachement

En champ électrique, l'électron est soumis, dans notre modèle, à la somme du potentiel à courte portée et de celui dont dérive le champ extérieur. La figure 2.5 en donne une représentation.

En présence de champ électrique extérieur, le seuil de détachement est abaissé, comme dans le cas d'un atome. Pour un puits de potentiel de largeur de l'ordre de 0,2 nm et un champ électrique d'une intensité de 400 V.m^{-1} , le seuil est abaissé de 8.10^{-8} eV , soit environ $6.10^{-4} \text{ cm}^{-1}$. Cet abaissement peut être considéré comme négligeable dans notre expérience ; cela ne serait pas le cas dans les atomes neutres puisque l'abaissement de seuil dans le même champ est, on l'a vu, de 12 cm^{-1} . Ainsi, une mesure de l'affinité électronique en champ électrique peut donner, avec une précision limitée à 10^{-3} cm^{-1} , directement une mesure de l'affinité en champ nul.

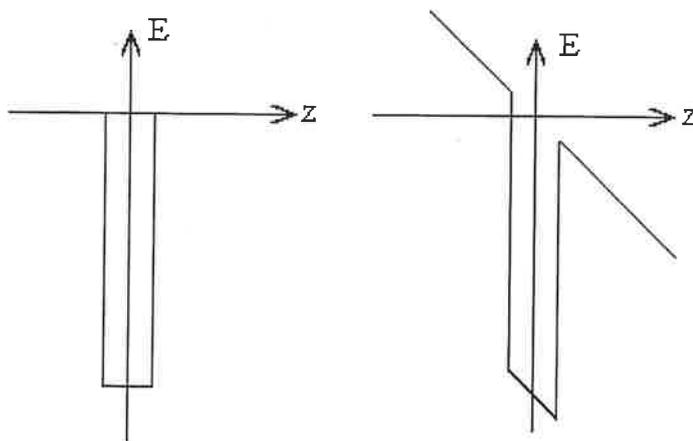


figure 2.5 : représentation schématique du modèle de potentiel décrivant la liaison d'un électron dans un ion négatif sans et en champ électrique. Le champ abaisse le seuil de détachement comme dans l'atome. Toutefois le seuil reste très proche du cœur atomique et est moins abaissé.

2.6.2 Changement dans la loi de seuil de Wigner

Le champ électrique a aussi un effet sur le profil de la section efficace de détachement au voisinage du seuil. Outre l'abaissement du seuil, le détachement peut se produire en dessous du seuil par effet tunnel (figure 2.5).

Par voie de conséquence, la section efficace, pour une onde s, démarre moins abruptement qu'en champ nul.

Le champ électrique fait en outre apparaître une structure oscillante dans le profil spectral de la section efficace. La première mise en évidence de ce phénomène a été faite par Bryant *et al.* [BRY87] sur l'hydrogène négatif (onde p). Cependant en 1978, une expérience de section efficace de photodétachement sur le rubidium [FRB78] montrait clairement le phénomène pour les ondes s, mais il fallut attendre 1988 pour en avoir l'interprétation correcte [GRE88]. Les premières mesures de section efficace en champ sur des ondes s ont été menées par Baruch *et al.* [BAR92] avec Cl⁻ et S⁻. La figure (2.6) représente l'allure de la section efficace en fonction de l'énergie. Des études plus précises sur les sections efficaces ont été entreprises par la suite [GIB93a,b] mais aucune étude quantitative de la dépendance spatiale du phénomène n'avait été entreprise avant nous.

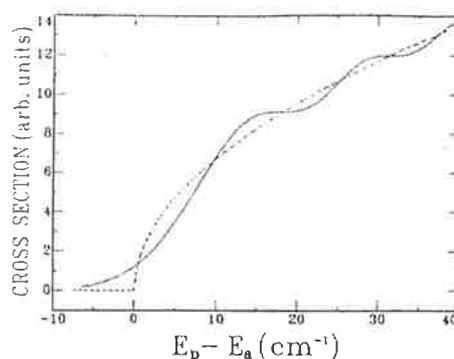


figure 2.6 [BAR92] : Le graphe donne la section efficace en fonction de l'énergie d'excitation laser pour un détachement de l'électron en onde s à partir de Cl⁻. La section efficace ne démarre plus abruptement au seuil à cause de la possibilité de détachement sous le seuil par effet tunnel et oscille pour des énergies supérieures au seuil (voir figure 2.6 pour le comportement de la section efficace dans le cas d'une onde p)

La structure des oscillations est particulière : la pente de la section efficace passe successivement par des minima nuls et par des maxima. Cette structure des oscillations s'explique par le phénomène d'interférence décrit plus haut. Le profil de la section efficace en onde s est donné [BAR92] par :

$$\sigma_F(u) = DE_p (eF)^{1/3} \int_{-\infty}^u Ai^2(-x) dx \quad \text{avec} \quad u = \frac{(2m)^{1/3} \epsilon}{\hbar^{2/3} (eF)^{2/3}} \quad (2.2)$$

où D est une constante ne dépendant ni de E_p , ni de F ni de ε ; E_p représente l'énergie du photon excitateur, F désigne l'intensité du champ électrique. Cette formule étend la formulation de la loi de Wigner en champ électrique. La modulation est une conséquence, comme on le verra au chapitre suivant, de la structure spatiale de la densité de courant qu'on se propose d'observer.

Avant de terminer ce chapitre, nous allons montrer dans quelles conditions il est possible de voir cette structure spatiale de la densité de courant.

2.7 Diagramme de faisabilité

Bien que la nature du phénomène laisse *a priori* prévoir qu'il existe dans toutes les expériences de photoionisation ou de photodétachement en champ électrique, l'observation de la figure d'interférence correspondante est, de façon paradoxale, soumise à des conditions très strictes.

En effet pour que la structure spatiale en anneaux de la figure d'interférence soit effectivement observable, il faut :

a) que l'image ait "plus d'un anneau", c'est à dire au moins une frange noire visible ; ceci implique la condition suivante[†] :

$$\varepsilon \geq (3\pi)^{2/3} \frac{(\hbar e F)^{2/3}}{2m^{1/3}} \quad (2.3).$$

b) que l'interfrange soit plus grand que la résolution spatiale attendue du détecteur. Cette résolution limite est notée i_{min} . L'énergie doit se conformer à l'inégalité suivante :

$$\varepsilon \leq \frac{3\pi\hbar}{i_{min}} \sqrt{\frac{eFz_0}{2m}} \quad (2.4).$$

c) que la résolution énergétique du système d'excitation soit suffisante. L'image est en effet la superposition incohérente de plusieurs images correspondant aux différentes énergies comprises dans la bande spectrale d'excitation et subit un brouillage d'autant plus fort que la largeur énergétique $\Delta\varepsilon$ en question est grande. En choisissant comme critère que la phase ne

[†] Nous utilisons ici les expressions du nombre d'anneaux sombres et de l'interfrange qui seront établies rigoureusement dans le chapitre suivant. Le tableau 3.2 résume ces formules.

doit pas varier de plus de 2 quand ε varie de $\Delta\varepsilon$ (ce choix simplifie la formule ci-après), nous trouvons l'inégalité à laquelle doivent satisfaire ε et F :

$$\varepsilon \leq \frac{1}{2} \frac{(\hbar e F)^2}{m \Delta\varepsilon^2} \quad (2.5)$$

Ces trois relations exprimant une limite en énergie en fonction d'une puissance de F , elles peuvent commodément être représentées dans un diagramme log-log de ε en fonction du champ électrique F . La figure 2.7 représente les trois conditions sur un tel diagramme pour $i_{min} = 100 \mu\text{m}$ et $h^{-1}\Delta\varepsilon = 900 \text{ MHz}$. La droite donnant la limite inférieure du nombre d'anneaux est notée (a) (trait en tiretés larges). Celle donnant la limite supérieure en interfrange est notée (b) (trait en tiretés moyens). Enfin, la limite de résolution en énergie correspond à la droite (c) en tiretés court. Les zones grisées sont celles où l'observation est compromise.

Le domaine accessible expérimentalement est compris entre les trois droites en tiretés. Le point B correspond aux plus petites valeurs expérimentales que peuvent prendre le champ et l'énergie telles qu'on puisse voir encore un anneau noir (droite a) à la limite de résolution en énergie (droite c). Les coordonnées du point B sont : $F = 80 \text{ V.m}^{-1}$ et $\varepsilon = 0,14 \text{ cm}^{-1}$.

Les valeurs maximales du champ et de l'énergie sont données par le point H non représenté sur la figure, intersection entre la limite où un anneau noir est visible et la limite de résolution de l'interfrange de la tache d'interférence (droite b) : $F = 7,2 \cdot 10^6 \text{ V.m}^{-1}$ et $\varepsilon = 200 \text{ cm}^{-1}$.

Enfin, le point pour lequel la figure d'interférence a le plus grand nombre d'anneaux possibles est M. Il est à l'intersection de la limite de résolution de l'interfrange et de la limite de résolution énergétique. Ses coordonnées sont : $F = 284 \text{ V.m}^{-1}$ et $\varepsilon = 1,78 \text{ cm}^{-1}$.

Le nombre d'anneaux noirs visibles se situe alors entre 12 et 13. Le domaine expérimental utilisable sans qu'on soit rapidement gêné par les limites de résolution s'étend de 200 à 500 V.m^{-1} en champ électrique et de 0,3 à 2 cm^{-1} en énergie. Les expériences effectuées l'ont été principalement avec un champ de 423 V.m^{-1} . Des champs de 536 V.m^{-1} , 350 V.m^{-1} , 225 V.m^{-1} , 150 V.m^{-1} , 121 V.m^{-1} et 101 V.m^{-1} ont été aussi utilisés.

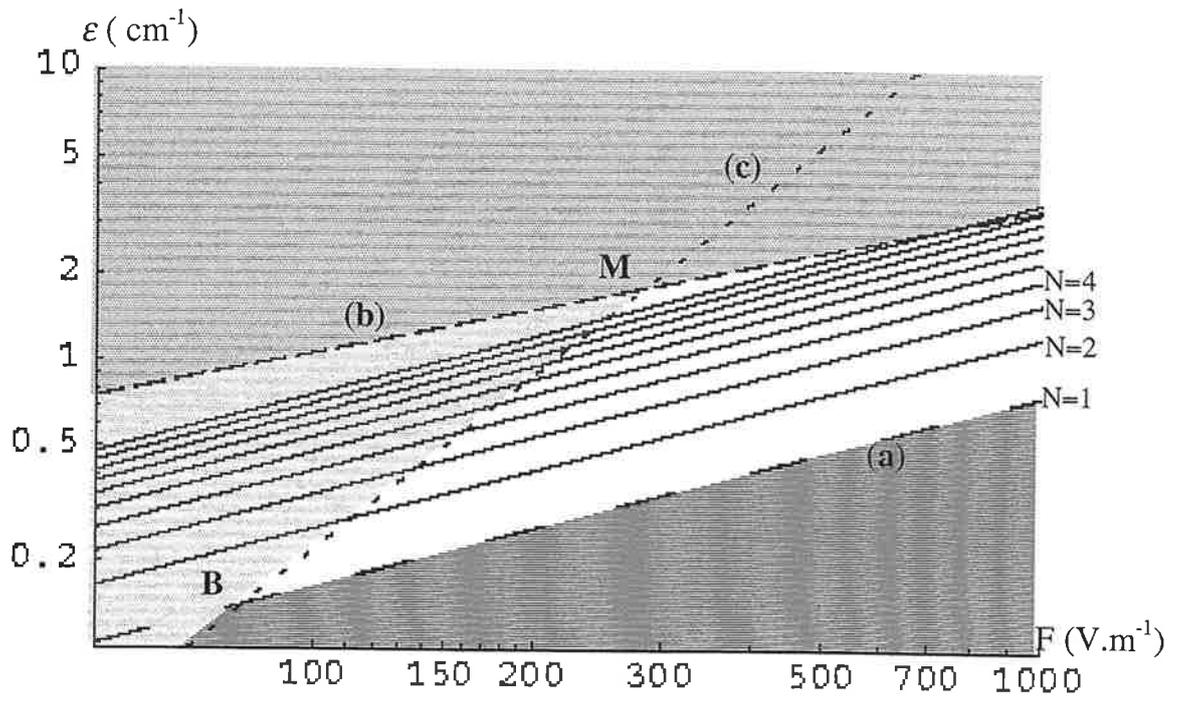


figure 2.7 : diagramme log-log de l'énergie cinétique ϵ de l'électron en fonction du champ électrique F . Les zones ne permettant pas l'observation aisée des anneaux d'interférence sont en grisé. Les droites en trait plein représentent les cas d'obtention d'un nombre N entier d'anneaux.

Chapitre 3

Description quantitative de la microscopie de fonction d'onde

3.1 Conditions de l'étude.

On considère un ion négatif initialement dans un état lié $\varepsilon_{el} < 0$. L'énergie du seuil de détachement de l'ion en champ nul sert d'origine des énergies de l'électron, $\varepsilon = 0$.

Une excitation laser d'énergie E_L détache de l'ion un électron qui se trouve initialement dans un état p vers un état du continuum d'énergie $\varepsilon > 0$. L'électron est détaché, compte tenu des règles de sélection, sous la forme d'une onde s ou d'une onde d. L'électron éjecté possède une énergie cinétique égale à $\varepsilon = E_L + \varepsilon_{el}$. Nous négligeons ici toute interaction entre l'électron dans l'état final et le cœur atomique restant. Nous restons donc dans l'approximation de l'électron libre. La loi de Wigner assure que l'électron est éjecté principalement en une onde s. Nous ne considérerons ici qu'une onde s pure.

On suppose l'ion initialement placé à l'origine \mathbf{O} du repère (\mathbf{Oxyz}) dans le référentiel du laboratoire en présence d'un champ électrique uniforme orienté selon l'axe \mathbf{Oz} et d'intensité F (voir figure 3.1).

L'ion est donc une source isotrope (onde s) d'électron d'énergie cinétique ε . L'électron éjecté possède un vecteur vitesse de module $v_0 = (2\varepsilon / m)^{1/2}$. Pour l'étude classique ce vecteur fait avec l'axe \mathbf{Oz} un angle α et sa projection sur le plan \mathbf{Oxy} fait un angle β avec l'axe \mathbf{Ox} . L'expression du courant de photodétachement sera calculée dans un plan parallèle à \mathbf{Oxy} situé à la coordonnée $z = -z_0$.

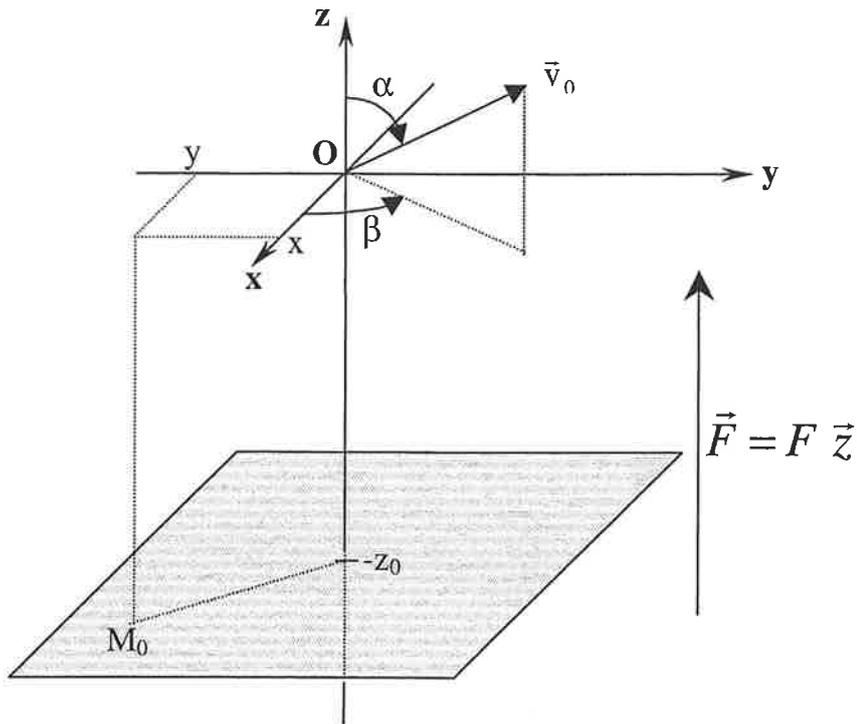


Figure 3.1 : définition des coordonnées, du repère d'étude et des angles d'éjection de l'électron.

3.2 Etude classique

3.2.1 Mouvement de l'électron

3.2.1.1 Equations du mouvement et trajectoires

L'électron éjecté avec une vitesse \vec{v}_0 et une énergie cinétique $\varepsilon = mv_0^2/2$ ne subit que l'effet du champ électrique uniforme. Il est par conséquent soumis à une force électrostatique égale à $-eF\vec{z}$. L'origine des temps pour chaque trajectoire est prise au moment de l'éjection. Les lois horaires du mouvement sont alors données, par symétrie de révolution autour de \mathbf{Oz} , par :

$$\begin{cases} \rho = v_0 \sin \alpha t \\ z = -\frac{eF}{2m} t^2 + v_0 \cos \alpha t \end{cases} \quad \text{où } \alpha \in [0, \pi] \quad (3.1).$$

Le mouvement de cet électron est analogue à la chute libre ; il suffit pour passer du mouvement de l'électron à celui d'une masse m dans le champ de pesanteur de remplacer $-eF\vec{z}$ par $-mg\vec{z}$. Pour un angle d'éjection α et une énergie cinétique ε donnés, la trajectoire est une parabole d'équation :

$$z = -\frac{eF}{4\varepsilon} \left(\frac{\rho}{\sin \alpha} \right)^2 + \rho \cotg \alpha \quad \text{pour } \alpha \neq 0 \text{ ou } \pi \quad (3.2).$$

Pour α égal à 0 ou π , la trajectoire est restreinte à l'axe \mathbf{Oz} .

L'équation (3.2) montre que la coordonnée z est une fonction quadratique du temps. Cette fonction est passe par un maximum à $t = mv_0 \cos \alpha / (eF)$ et vaut $z = \varepsilon \cos \alpha / (eF)$. Ceci permet de dire qu'aucune trajectoire ne peut dépasser la cote :

$$z_{max} = a = \frac{\varepsilon}{eF} \quad (3.3)$$

Cette distance est l'altitude dont peut remonter un électron éjecté vers les $z > 0$ avant que le travail de la force électrostatique ne compense exactement son énergie cinétique initiale.

3.2.1.2 Caractéristiques des trajectoires

Si nous considérons un point $M(x, y, -z_0)$, les valeurs que doit prendre l'angle α pour l'atteindre sont données par la résolution de l'équation du second degré en $\cotg \alpha$ tirée de (3.2) :

$$-\frac{\rho^2}{4a} \cotg^2 \alpha + \rho \cotg \alpha - \left(\frac{\rho^2}{4a} - z_0 \right) = 0 \quad (3.4).$$

Cette équation possède des racines réelles si son discriminant est positif ou nul ; cela mène à la condition suivante :

$$\rho^2 \leq 4a^2 + 4az_0 \quad (3.5)$$

Ainsi, tout point de l'espace situé à l'intérieur du paraboloïde de révolution autour de \mathbf{Oz} , d'équation $4a z + \rho^2 = 4a^2$, est atteint par deux trajectoires dif-

férentes qui se confondent sur ce parabolôide. En balistique, le parabolôide est appelé "parabolôide de sécurité" ; aucun électron classique ne peut sortir de cette zone. En coordonnées paraboliques, la condition (3.5) s'écrit :

$$\xi \leq 2a \quad (3.5 \text{ bis})$$

Pour une cote fixée z , la région de l'espace classiquement accessible pour les électrons est limitée par le rayon maximum :

$$\rho_{\max}(z) = 2\sqrt{a^2 - az} \quad (3.6)$$

Pour atteindre un point situé sur le plan de détection en $z = -z_0$, les solutions de l'équation (3.4) sont, avec $k = 0$ ou 1 ,

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{pour } \rho = 0, \quad \alpha_k = k\pi \\ \text{pour } \rho \neq 0, \quad \cotg \alpha_k = \frac{2a}{\rho} [1 + (-1)^k u(\rho)] \\ \text{avec } u(\rho) = \sqrt{1 + \frac{z_0}{a} - \left(\frac{\rho}{2a}\right)^2} \\ \text{pour } \rho = \rho_{\max}(-z_0), \quad \tg \alpha = \sqrt{1 + \frac{z_0}{a}} = \frac{\rho}{2a} \end{array} \right. \quad (3.7)$$

Chaque point est atteint par deux trajectoires : l'une est montante, $k=0$, et l'autre descendante, $k=1$. Les temps respectifs de parcours de ces trajectoires sont donnés par :

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{pour } \rho = 0, \quad t_k(0) = \frac{2a}{v_0} \left(\sqrt{1 + \frac{z_0}{a}} + (-1)^k \right) \\ \text{pour } \rho \neq 0, \quad t_k(\rho) = \frac{2a}{v_0} \sqrt{2 + \frac{z_0}{a} + 2(-1)^k \sqrt{1 + \frac{z_0}{a} - \left(\frac{\rho}{2a}\right)^2}} \\ \text{pour } \rho = \rho_{\max}(-z_0), \quad t_k(\rho_{\max}) = 2\sqrt{2} \frac{v_0}{a} \sqrt{1 + \frac{z_0}{a}} \end{array} \right. \quad (3.8)$$

Dans une expérience typique, l'énergie cinétique initiale ε est d'environ 1 cm^{-1} , le champ électrique F de l'ordre de 400 V.m^{-1} et la hauteur z_0 entre la source et le détecteur est égale à $0,51 \text{ m}$. Nous avons la relation suivante $z_0 \gg \rho_{\max} \gg a$ ($z_0 = 0,51 \text{ m}$, $\rho_{\max} \approx 1 \text{ mm}$ et $a \approx 1 \text{ }\mu\text{m}$). Les formules ci-

dessus peuvent alors être simplifiées par développement des expressions (3.6), (3.7) et (3.8) à l'ordre 1 en $[(a/z_0)(1 - \rho^2/\rho_{\max}^2)]^{1/2}$:

$$(3.6) \Rightarrow \rho_{\max}(z) = 2\sqrt{az_0} \quad (3.6 \text{ bis})$$

$$(3.7) \Rightarrow \begin{cases} \sin \alpha_k = \frac{\rho}{\rho_{\max}} \text{ avec } 0 < \alpha_1 < \frac{\pi}{2}, \alpha_2 = \pi - \alpha_1 \\ \rho = \rho_{\max}, \quad \sin \alpha_k = 1 \Rightarrow \alpha_k = \frac{\pi}{2} \end{cases} \quad (3.7 \text{ bis})$$

$$(3.8) \Rightarrow t_k(\rho) = \sqrt{\frac{2mz_0}{eF}} \left[1 + (-1)^k \sqrt{\frac{a}{z_0}} \sqrt{1 - \frac{\rho^2}{\rho_{\max}^2}} \right] \quad (3.8 \text{ bis})$$

Dorénavant, les formules seront données dans cette approximation. Les expressions exactes sont regroupées en annexe.

3.2.2 Densité de courant

3.2.2.1 Définition

Nous allons maintenant nous intéresser à l'expression de la densité de courant sur le détecteur. Lors d'une expérience réelle, le nombre moyen d'électrons détectés par unité de surface dans un temps donné est proportionnel à cette densité de courant.

Les électrons arrivant sur le plan de détection ne peuvent dépasser le rayon maximum ρ_{\max} défini en (3.6 bis). La densité de courant classique n'est donc pas définie au-delà de ce rayon.

Afin d'établir l'expression de la densité de courant à travers le plan de détection, nous y définissons un élément de surface δs (voir figure 3.2). Nous entourons en outre la source d'une surface sphérique S dont le rayon tend vers zéro. Les électrons traversant la surface δs du détecteur ont deux origines :

- les électrons émis selon des trajectoires montantes et ayant traversé un élément d'angle solide $\delta\Omega_0$

- ceux émis en trajectoires descendantes et ayant traversé $\delta\Omega_l$.

Comme il n'y a pas de pertes d'électrons entre la source et le plan, l'intensité δI_k passant dans l'angle solide $\delta\Omega_k$ traverse également δs . En posant j la densité angulaire de courant définie au voisinage de la source et $j_{z,\{0,1\}}$ la densité surfacique de courant définie sur le détecteur pour les trajectoires montantes, 0, et descendantes, 1, nous pouvons écrire pour chacun des deux types de trajectoire :

$$\delta I_0 = j\delta\Omega_0 = j_{z,0}\delta s \qquad \delta I_1 = j\delta\Omega_1 = j_{z,1}\delta s.$$

Les quantités $\delta\Omega_{0,1}$ et δs représentent des éléments d'angle solide et d'aire ; ils sont donc positifs. Nous relierons leur expression aux variations infinitésimales des coordonnées par :

$$\delta\Omega_{1,2} = \sin\alpha_{1,2} \left| \frac{d\alpha_{1,2}}{d\rho} \right| |d\varphi| \qquad ds = \rho |d\rho| |d\varphi|$$

où les éléments $\delta\Omega_{1,2}$ et δs sont décrits respectivement en coordonnées sphériques et en coordonnées polaires.

On note I l'intensité, supposée constante, de la source. La densité de courant classique totale, $j_z^{clas.}$, est égale à la somme des densités partielles :

$$j_z^{clas.} = \frac{I}{4\pi} \left(\frac{\sin\alpha_1}{\rho} \left| \frac{d\alpha_1}{d\rho} \right| + \frac{\sin\alpha_2}{\rho} \left| \frac{d\alpha_2}{d\rho} \right| \right) \qquad (3.9).$$

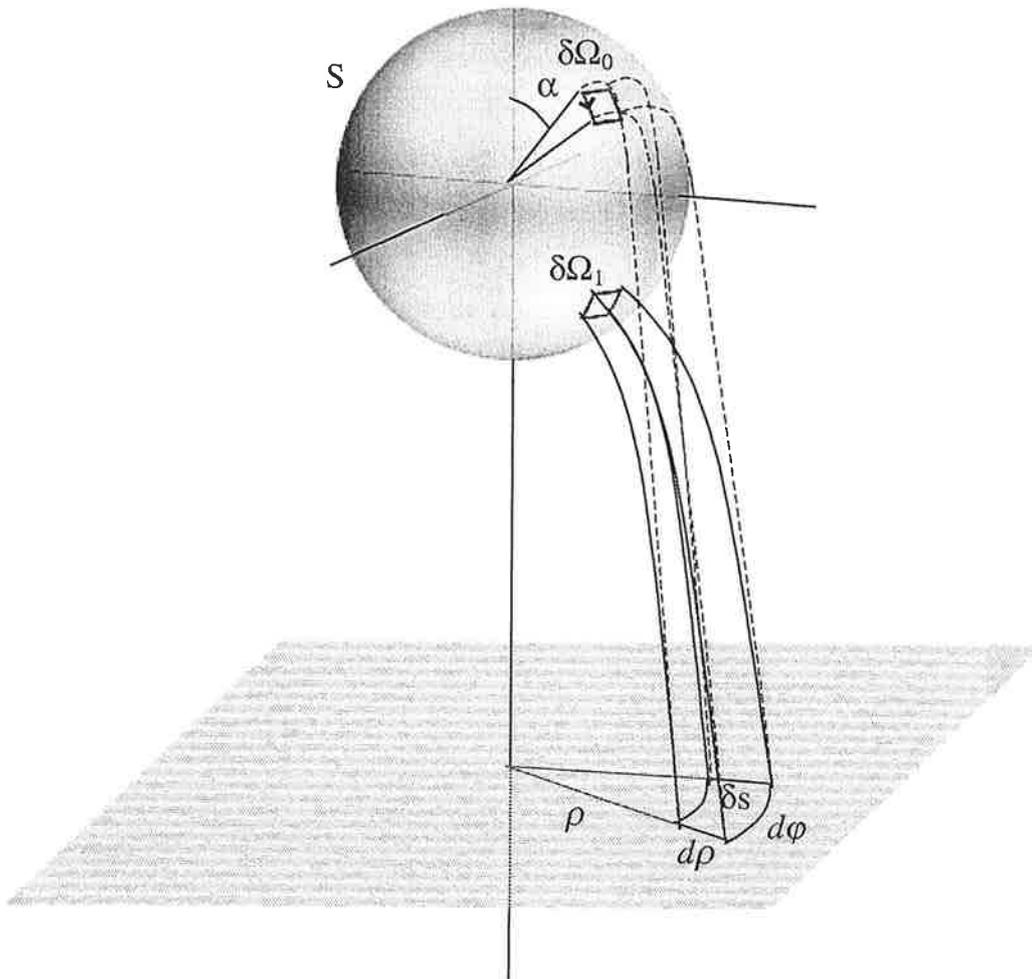


figure 3.2 : représentation des éléments d'angle solide $\delta\Omega_0$ et $\delta\Omega_1$ et de l'élément de surface δs intervenant dans la définition des densités de courant classiques. Définition des coordonnées sphériques et polaires.

3.2.2.2 Modèle de la sphère projetée

On montre, en prenant l'expression de la formule (3.8 bis) à l'ordre zéro en $(a/z_0)^{1/2}$, que loin du détecteur, en première approximation, tout se passe comme si les électrons arrivaient tous en même temps sur le détecteur, au temps $t = (2mz_0/eF)^{1/2}$. Cette approximation correspond à la situation suivante. Imaginons que la charge électrique est éjectée à $t=0$ uniformément dans toutes les directions à la fois. En éliminant l'angle dans les équations (3.1), on montre que cette charge se répartit uniformément, à l'instant $t>0$,

sur une sphère de rayon $\rho = v_0 t$ dont le centre est animé d'un mouvement rectiligne uniformément accéléré d'équation $z_c = - eF t^2 / (2m)$. Le module de la vitesse d'expansion du rayon, v_r , et celui de la vitesse de chute du centre, v_c , sont égaux à :

$$v_r = v_0 \quad v_c = \frac{eF}{m} t \approx \sqrt{\frac{2eFz_0}{m}} = \sqrt{\frac{2\varepsilon}{m}} \sqrt{\frac{z_0}{a}} = v_0 \sqrt{\frac{z_0}{a}} \quad (3.10)$$

Comme z_0 est grand devant a , la vitesse de chute de la sphère sur le détecteur est beaucoup plus grande que la vitesse d'expansion de son rayon ; pour des valeurs expérimentales typiques (voir p.33), $v_c \approx 2.10^6 v_r$. Ainsi, la répartition de charge sur le plan de détection peut être vue comme le résultat de la projection d'une sphère uniformément chargée de rayon fixé égal à ρ_{max} sur le plan. Le rayon ρ , en tout point du détecteur, est donné en fonction de l'angle d'éjection par les relations (3.7 bis).

L'expression de la densité de courant classique dans l'approximation de la sphère projetée se déduit de l'expression (3.9) en y injectant les dérivées des angles d'éjection :

$$j_z^{clas.} = \frac{I}{2\pi\rho_{max}^2} \frac{1}{\sqrt{1 - \left(\frac{\rho}{\rho_{max}}\right)^2}} \quad (3.11).$$

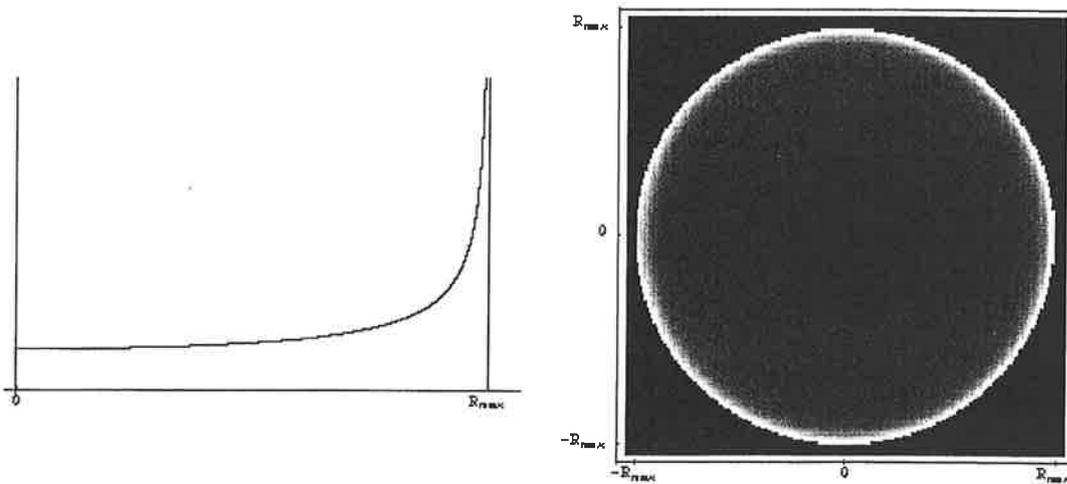


figure 3.3 : représentation de la densité de courant en fonction du rayon (à gauche) et simulation de l' image calculée (à droite). Les cercles concentriques sont des lignes de niveau d'intensité.

3.3 Etude semi-classique

3.3.1 Description qualitative de l'effet

La source n'est pas une source d'électrons qui auraient, chacun, un vecteur vitesse bien déterminé au départ mais d'électrons émis chacun dans une onde qui alimente de façon cohérente toutes les trajectoires. L'existence de plusieurs trajectoires menant à un même point, dans l'espace balayé par cette onde, produit un phénomène d'interférence.

L'interférence est toujours constructive pour les points situés sur le "paraboloïde de sécurité" ; les deux trajectoires étant alors dégénérées, les temps de parcours sont identiques et la différence de phase entre les deux ondes se réduit à zéro. Dans tous les autres cas, selon la différence de phase acquise, l'interférence sera destructive si la différence de phase entre les deux ondes arrivant en un même point du détecteur est un multiple impair de π , constructive pour une différence multiple de 2π , intermédiaire entre ces deux états pour toute autre valeur.

Nous nous attendons à voir sur le détecteur une figure ayant comme enveloppe la densité de courant classique mais dont l'intensité est modulée par l'effet d'interférence.

En utilisant les expressions du temps de parcours des trajectoires (3.8 bis), on montre que la différence de temps entre deux trajectoires arrivant en un point du détecteur est, dans l'approximation du détecteur éloigné :

$$\Delta t = \sqrt{\frac{2m}{eF z_0}} \sqrt{\frac{4z_0}{eF} \varepsilon - \rho^2}$$

La plus grande différence de temps de parcours apparaît pour $\rho = 0$, c'est-à-dire entre les trajectoires parallèles au champ (correspondant respectivement aux angles d'éjection 0 et π). La différence de phase est alors également maximale. La différence de temps croît avec l'énergie cinétique de l'électron ε et décroît à champ électrique croissant. Comme on va le voir, il en est de même pour la différence de phase.

3.3.2 Calcul semi-classique de la densité de courant

3.3.2.1 Action, action réduite

Le mouvement classique d'une particule peut être décrit au moyen de son lagrangien, $\mathcal{L}(q, \dot{q})$, fonction implicite du temps, dans laquelle q désigne les coordonnées de position. L'action le long d'une trajectoire est définie comme l'intégrale sur le temps du lagrangien. A partir de la définition $\mathcal{H} = p\dot{q} - \mathcal{L}$ du hamiltonien qui représente l'énergie totale du système, avec p égal à la dérivée du lagrangien par rapport à \dot{q} , le lagrangien se réécrit $\mathcal{L} = p\dot{q} - \mathcal{H}$. L'action s'exprime donc également :

$$S = \int_{\text{trajet}} \mathcal{L} dt = \int_{\text{trajet}} p\dot{q} dt - \int_{\text{trajet}} \mathcal{H} dt = \int_{\text{trajet}} p dq - \int_{\text{trajet}} \mathcal{H} dt.$$

La circulation de p est égale à l'action réduite A . Dans le problème de l'électron soumis au champ électrique, l'énergie totale de l'électron est une constante et est égale à sa valeur à $t=0$, qui est, si l'on prend l'énergie potentielle nulle au point source, l'énergie cinétique initiale ε . Pour un trajet commençant à $t=t_a$ et finissant à $t=t_b$, l'action réduite s'exprime finalement par :

$$A = \int_{t_a}^{t_b} \mathcal{L}(t) dt + \varepsilon (t_b - t_a) = S + \varepsilon (t_b - t_a). \quad (3.12)$$

3.3.2.2 Description semi-classique de l'électron

Pour aller de la source en un point du détecteur, l'onde électronique emprunte simultanément deux trajectoires. La fonction d'onde ψ correspondant au mouvement est alors la somme des deux termes ψ_k :

$$\psi = \sum_{k=0}^1 \psi_k \quad \text{avec} \quad \psi_k = \varphi_k \exp\left(\frac{i}{\hbar} S_k\right) \quad (3.13)$$

où le module φ_k est une fonction lentement variable et où S_k représente l'action le long de la trajectoire k [FEY65].

Considérons une source rayonnant une onde $\exp(-i\varepsilon t_a/\hbar)$. Chaque terme ψ_k le long de la trajectoire k est alors :

$$\psi_k \propto \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \varepsilon t_a\right) \exp\left(\frac{i}{\hbar} S_k\right).$$

En écrivant $S_k = A_k - \varepsilon (t_b - t_a)$, on peut encore exprimer ces termes :

$$\psi_k \propto \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \varepsilon t_b\right) \exp\left(\frac{i}{\hbar} A_k\right)$$

avec A_k l'action réduite le long de la trajectoire k , définie en (3.12). Ainsi, l'état relatif des ondes partielles, à instant d'observation t_b fixé, dépend de l'action réduite et non de l'action totale. On réécrit les fonctions d'ondes partielles, en éliminant le terme de phase globale $\exp(-i \varepsilon t_b/\hbar)$, comme :

$$\psi_k \propto \varphi_k \exp\left(\frac{i}{\hbar} A_k\right)$$

A partir de la fonction d'onde, la densité de courant à travers la surface de détection placée en $-z_0$ est donnée par la relation suivante :

$$j_{-z_0} = -e \operatorname{Re} \left(\psi^* \frac{\hbar}{i m} \frac{d\psi}{dz} \right)_{-z_0}$$

En introduisant l'expression de la fonction d'onde (3.13) et en faisant l'approximation que les dérivées des φ_k par rapport à z sont négligeables par rapport à $\frac{\varphi_k}{\hbar} \frac{dA_k}{dz}$, on déduit l'expression de la densité de courant :

$$j_{-z_0} = \frac{-e}{m} \left(\varphi_0^2 \frac{dA_0}{dz} + \varphi_1^2 \frac{dA_1}{dz} + \varphi_0 \varphi_1 \frac{d(A_0 + A_1)}{dz} \cos\left(\frac{A_0 - A_1}{\hbar}\right) \right)_{-z_0} \quad (3.14)$$

Le phénomène d'interférence est contenu dans le terme en cosinus de (3.14). Cette interférence est une modulation d'un terme non-oscillant représenté par $\tilde{\varphi}_0^2 \frac{dA_0}{dz} + \tilde{\varphi}_1^2 \frac{dA_1}{dz}$ et sa phase est donnée par la différence entre les actions réduites calculées le long des deux trajectoires.

Le lagrangien du système peut s'écrire à partir de sa définition, grâce à la conservation de l'énergie totale, $\mathcal{L}(t) = \varepsilon - 2 e F z(t)$. L'action réduite A_k a pour expression exacte (cf. annexe A) :

$$A_k = \frac{4\sqrt{meF}a^{3/2}}{3} \sqrt{1 + \frac{z_0}{2a} + (-1)^k u(\rho)} \left[2 + \frac{z_0}{a} - (-1)^k u(\rho) \right] \quad (3.15)$$

3.3.2.3 Densité de courant

Pour trouver l'expression de la densité de courant, nous injectons les expressions des actions réduites (3.15) dans la relation (3.14). Seules les

fonctions φ_k sont encore inconnues ; leur valeur est définie par identification de la partie non-oscillante de la densité de courant avec la densité classique. Ceci donne l'expression exacte de la densité de courant semi-classique trouvée en 1980 par I. I. Fabrikant [FAB80]. Cette formule est donnée dans l'annexe. On trouve son expression dans l'approximation du détecteur éloigné en développant le terme classique et le facteur d'amplitude du cosinus à l'ordre 1 en $(a/z_0)(1-\rho^2/\rho_{max}^2)$ et en développant à l'ordre 3/2 la différence des actions réduites (voir les détails du calcul en annexe). La densité de courant dans l'approximation du détecteur éloigné est alors :

$$j_{-z_0}(\rho, \varepsilon) = \frac{I}{2\pi \rho_{max}^2 \sqrt{1 - \frac{\rho^2}{\rho_{max}^2}}} \left\{ 1 + \cos \left[\frac{4 \sqrt{2m\varepsilon^3}}{3 \hbar e F} \left(1 - \frac{\rho^2}{\rho_{max}^2} \right)^{\frac{3}{2}} \right] \right\} \quad (3.16).$$

La phase du cosinus est maximum pour $\rho = 0$, le centre de l'image. Elle y est proportionnelle à la puissance 3/2 de l'énergie et inversement proportionnelle au champ électrique. Comme la différence des temps de parcours, cette phase est une fonction croissante de l'énergie et décroissante du champ électrique.

3.4 Description quantique du phénomène

Nous nous sommes basés jusqu'ici sur une description classique du mouvement des électrons qui permet de montrer l'existence du phénomène d'interférence et d'en connaître les caractéristiques générales. Ce point de vue n'est pourtant pas une représentation complète du processus réel qui ne peut être appréhendé que dans le cadre de la mécanique quantique. Les électrons sont émis sous la forme d'une onde sphérique cohérente et isotrope, l'onde s que nous avons introduite au paragraphe 3.1.

L'étude quantique peut être faite en étudiant le mouvement de l'électron dans le référentiel de l'ion (ce mouvement est alors un mouvement libre) puis en réalisant un changement de référentiel accéléré (l'ion est accéléré par le champ électrique) pour connaître ce mouvement dans le référentiel du laboratoire. Cette théorie de la description quantique par changement de référentiel accéléré est développée par S. Reynaud et M.T. Jaekel [JAE99]. Cette

théorie est une théorie relativiste. Pour décrire le mouvement dans une expérience de microscopie de photodétachement, la limite classique de cette théorie suffit et doit être équivalente à la description quantique habituelle du mouvement de l'électron dans le champ électrique que nous présentons ici.

L'équation de Schrödinger indépendante du temps décrivant la fonction d'onde de l'électron éjecté avec l'énergie cinétique ε et soumis au champ électrique $\vec{F} = F\vec{z}$ est :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m}\Delta - \varepsilon + eFz \right) \psi = 0 \quad (3.17)$$

3.4.1 Coordonnées paraboliques

Le problème que nous avons à traiter présente une symétrie de révolution autour de l'axe défini par le champ électrique ; il est ici confondu avec Oz . Les coordonnées cartésiennes (x,y,z) ne sont pas les plus adaptées. Il est préférable d'utiliser le système de coordonnées paraboliques (ξ,η,φ) défini dans le chapitre 2. On peut exprimer les coordonnées cartésiennes comme fonctions des coordonnées paraboliques de la façon suivante :

$$x = \sqrt{\xi\eta} \cos \varphi, \quad y = \sqrt{\xi\eta} \sin \varphi, \quad z = (\xi - \eta)/2 \quad (3.18)$$

Les surfaces de niveau sont des paraboloïdes de révolution d'axe Oz dont le foyer est O (voir figure 2.6).

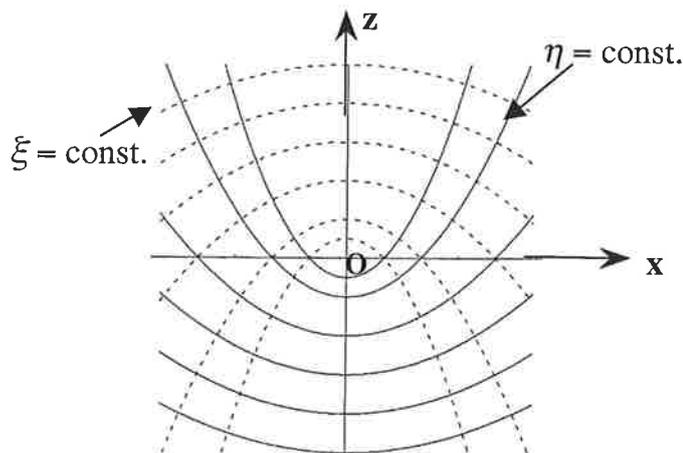


figure 3.4 : surfaces de niveau des coordonnées paraboliques. Les surfaces $\xi = \text{constante}$ sont représentées en tireté, celles pour $\eta = \text{constante}$ sont en trait continu. La concavité des surfaces iso- ξ est tournée vers les $z < 0$ tandis que celle des surfaces iso- η est orientée vers les $z > 0$.

On écrit l'expression du vecteur déplacement $d\vec{l}$, en utilisant l'expression de ce vecteur en coordonnées cartésiennes et en y injectant les expressions des dérivées totales des coordonnées cartésiennes prises comme fonctions des coordonnées paraboliques selon (3.18).

$$d\vec{l} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\xi+\eta}{\xi}} d\xi \vec{u}_\xi + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\xi+\eta}{\eta}} d\eta \vec{u}_\eta + \sqrt{\xi\eta} d\varphi \vec{u}_\varphi$$

De cette relation, on tire l'expression du gradient et du laplacien en coordonnées paraboliques :

$$\begin{cases} \vec{\nabla}(f) = 2\sqrt{\frac{\xi}{\xi+\eta}} \frac{\partial f}{\partial \xi} \vec{u}_\xi + 2\sqrt{\frac{\eta}{\xi+\eta}} \frac{\partial f}{\partial \eta} \vec{u}_\eta + \frac{1}{\sqrt{\xi\eta}} \frac{\partial f}{\partial \varphi} \vec{u}_\varphi \\ \Delta f = \frac{4}{\xi+\eta} \frac{\partial}{\partial \xi} \left(\xi \frac{\partial f}{\partial \xi} \right) + \frac{4}{\xi+\eta} \frac{\partial}{\partial \eta} \left(\eta \frac{\partial f}{\partial \eta} \right) + \frac{1}{\xi\eta} \frac{\partial^2 f}{\partial \varphi^2} \end{cases}$$

$$\vec{u}_\xi = \sqrt{\frac{\eta}{\xi+\eta}} \cos \varphi \vec{u}_x + \sqrt{\frac{\eta}{\xi+\eta}} \sin \varphi \vec{u}_y + \sqrt{\frac{\xi}{\xi+\eta}} \vec{u}_z,$$

avec
$$\vec{u}_\eta = \sqrt{\frac{\xi}{\xi+\eta}} \cos \varphi \vec{u}_x + \sqrt{\frac{\xi}{\xi+\eta}} \sin \varphi \vec{u}_y - \sqrt{\frac{\eta}{\xi+\eta}} \vec{u}_z,$$

$$\vec{u}_\varphi = -\sin \varphi \vec{u}_x + \cos \varphi \vec{u}_y.$$

où \vec{u}_x , \vec{u}_y et \vec{u}_z sont respectivement les vecteurs directeurs des axes \mathbf{Ox} , \mathbf{Oy} et \mathbf{Oz} .

En posant $\lambda_0^3 = \hbar^2(2meF)^{-1}$ où λ_0 représente une longueur d'onde caractéristique du mouvement comme nous le verrons plus loin et $a = \varepsilon/(eF)$, nous écrivons l'équation de Schrödinger comme suit [WAL92]:

$$\frac{4}{\xi+\eta} \left[\frac{\partial}{\partial \xi} \left(\xi \frac{\partial \psi}{\partial \xi} \right) + \frac{\partial}{\partial \eta} \left(\eta \frac{\partial \psi}{\partial \eta} \right) \right] + \frac{1}{\xi\eta} \frac{\partial^2 \psi}{\partial \varphi^2} + \frac{1}{\lambda_0^3} \left(a - \frac{\xi-\eta}{2} \right) \psi = 0 \quad (3.19)$$

3.4.2 Résolution en coordonnées paraboliques

La solution exacte de l'équation de Schrödinger (3.19) a été donnée par Bracher *et al.* [BRA98]. Elle est exprimée au moyen de la forme explicite de la fonction de Green retardée du système. C'est cette solution que nous présentons ici.

L'étude par les fonctions de Green permet de montrer que la fonction d'onde ψ solution de l'équation (3.19) s'écrit sous la forme :

$$\psi = \frac{\mathcal{Q}}{\xi + \eta} \left[\frac{dX}{d\alpha_-}(\alpha_-)Y(\alpha_+) - X(\alpha_-)\frac{dY}{d\alpha_+}(\alpha_+) \right] e^{im\varphi} \quad (3.20)$$

où α_- et α_+ sont définis par rapport aux coordonnées paraboliques comme $\alpha_- = -(2a - \xi)/2\lambda_0$ et $\alpha_+ = -(2a + \eta)/2\lambda_0$, où m correspond au nombre quantique magnétique et \mathcal{Q} est un facteur de normalisation. Comme nous avons fait l'hypothèse d'une source isotrope (ce qui correspond à une onde électronique de type s), m est égal à 0. En reportant l'expression (3.20) dans l'équation (3.19), on montre que les fonctions X et Y doivent vérifier la relation suivante :

$$\left[\frac{d^2 X}{d\alpha_-^2}(\alpha_-) - \alpha_- X(\alpha_-) \right] \left[\frac{\xi}{2\lambda_0} \frac{dY}{d\alpha_+}(\alpha_+) + Y(\alpha_+) \right] = \left[\frac{d^2 Y}{d\alpha_+^2}(\alpha_+) - \alpha_+ Y(\alpha_+) \right] \left[\frac{\eta}{2\lambda_0} \frac{dX}{d\alpha_-}(\alpha_-) + X(\alpha_-) \right]$$

Les fonctions X et Y dépendent respectivement uniquement de ξ et η . Ceci implique qu'elles vérifient finalement les deux équations suivantes :

$$\frac{\partial^2 X}{\partial \alpha_-^2}(\alpha_-) - \alpha_- X(\alpha_-) = 0 \quad \text{et} \quad \frac{\partial^2 Y}{\partial \alpha_+^2}(\alpha_+) - \alpha_+ Y(\alpha_+) = 0.$$

Les deux fonctions sont toutes deux solutions de l'équation définissant la fonction d'Airy, $f'' - xf = 0$. Nous identifions alors $X(\alpha_-)$ à $\text{Ai}(\alpha_-)$, solution régulière stationnaire de cette équation, et $Y(\alpha_+)$ à $\text{Ci}(\alpha_+)$, où $\text{Ci} = \text{Ai} + i \text{Bi}$ avec Bi solution irrégulière de l'équation différentielle ; Ci donne à la fonction d'onde en η les propriétés d'une onde progressive. La fonction d'onde solution du problème est donc :

$$\psi = \frac{\mathcal{Q}}{\xi + \eta} [\text{Ai}'(\alpha_-)\text{Ci}(\alpha_+) - \text{Ai}(\alpha_-)\text{Ci}'(\alpha_+)] \quad (3.21)$$

Un détecteur placé loin de la source d'électron peut être considéré comme un élément de surface $\eta=\text{constante}$. C'est toujours le cas dans les conditions expérimentales usuelles où $z_0=0,51$ m, $\varepsilon=1$ cm⁻¹, $F = 400$ V.m⁻¹ et $a \approx 3.10^{-7}$ m : ρ_{max} est alors de l'ordre de 80 μm et η est ainsi pratiquement égal à $2z_0$. La densité de courant traversant la surface de détection est alors donnée par :

$$j_\eta = -e \sqrt{\frac{\eta}{\xi + \eta}} \operatorname{Re} \left[\psi^* \frac{\hbar}{i m} \frac{\partial \psi}{\partial \eta} \right] \quad (3.22)$$

3.4.3 Expression de la densité de courant

Les fonctions Ai et Bi sont oscillantes uniquement lorsque leur argument est négatif. Au contraire lorsqu'il est positif, Ai décroît rapidement vers 0 tandis que Bi diverge (voir figure 3.5).

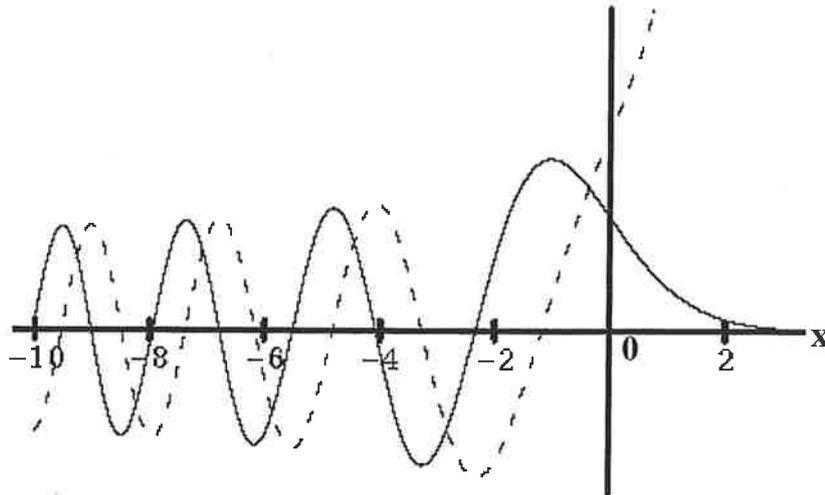


figure 3.5 : Représentation de la fonction d'Airy régulière, $Ai(x)$ en trait plein, et de la fonction irrégulière, $Bi(x)$ en tireté.

Le domaine classiquement accessible correspond à la partie de l'espace qui rend les arguments des fonctions négatifs.

Examinons quel est le domaine de variation des différents paramètres impliqués dans la description quantique pour un champ électrique F variant entre 100 et 400 V.m⁻¹ et une énergie cinétique des électrons couvrant la plage 0,4 – 2 cm⁻¹. Les domaines de variation des paramètres sont récapitulés dans le tableau suivant :

Paramètres	Expression	Domaine de variation
a	ε/eF	0,12 – 2,5 μm
λ_0	$\left(\hbar^2/2meF\right)^{1/3}$	45 – 72 nm
ρ_{max}	$2\sqrt{a(a+z_0)} \approx 2\sqrt{az_0}$	0,5 – 2,2 mm
η	$\sqrt{\rho^2 + z_0^2} + z_0 \approx 2z_0$	1 m
ξ	$\sqrt{\rho^2 + z_0^2} - z_0 \approx \frac{\rho^2}{2z_0}$	0 - 2a
α_+	$-\frac{2a+\eta}{2\lambda_0} \approx \frac{z_0}{\lambda_0}$	$7,1 \cdot 10^6 - 1,1 \cdot 10^7$
α_-	$-\frac{2a-\xi}{2\lambda_0}$	$0 - 10^\ddagger$

Tableau 3.1 : expressions exactes et approchées des différents paramètres décrivant le mouvement quantique dans le cas du détecteur éloigné. Intervalles de variation pour un champ F variant de 100 V.m^{-1} à 400 V.m^{-1} et une énergie cinétique ε couvrant le domaine 0,4-2 cm^{-1} .

L'argument α_+ des fonctions Ci et Ci' est toujours inférieur ou égal à $-\alpha\lambda_0^{-1}$, donc négatif. Dans nos conditions expérimentales, $\lambda_0 \approx 10^{-7} \text{m}$, $a \approx 3 \cdot 10^{-7} \text{m}$ et $\eta \approx 1 \text{m}$, l'argument α_+ est de l'ordre de 10^7 . Le développement asymptotique est alors représentatif du mouvement selon la coordonnée η . Ce développement de Ci' et Ci est, à l'ordre le plus bas :

$$\text{Ci}(\alpha_+) \approx \frac{e^{-i\left[\frac{2}{3}(-\alpha_+)^{3/2} - \frac{\pi}{4}\right]}}{(-\alpha_+)^{1/4} \sqrt{\pi}} \quad \text{Ci}'(\alpha_+) \approx (-\alpha_+)^{1/4} \frac{e^{-i\left[\frac{2}{3}(-\alpha_+)^{3/2} - \frac{\pi}{4}\right]}}{\sqrt{\pi}}.$$

On peut alors écrire la fonction d'onde ψ sous la forme :

[‡] Cet intervalle correspond au domaine que nous avons réellement étudié au cours des différentes expériences compte tenu des limites de résolution du dispositif. Si nous étions capables de voir les anneaux d'une figure correspondant à une énergie cinétique de 2 cm^{-1} pour un champ de 100 V.m^{-1} , α_- atteindrait une valeur maximum de 35.

$$\psi = \frac{\mathcal{Q}}{2z_0\sqrt{\pi}} \left(\frac{\lambda_0}{z_0}\right)^{\frac{1}{4}} e^{-i\left[\frac{2}{3}(-\alpha_+)^{3/2} - \frac{\pi}{4}\right]} \left[\text{Ai}'(\alpha_-) - i\sqrt{\frac{z_0}{\lambda_0}} \text{Ai}(\alpha_-) \right] \quad (3.23).$$

Appliquons la définition de la densité de courant selon η et nous trouvons :

$$j_\eta = -e \frac{\mathcal{Q}^2 \hbar}{m\pi \lambda_0 z_0^2} \left[\text{Ai}'^2(\alpha_-) + \frac{z_0}{\lambda_0} \text{Ai}^2(\alpha_-) \right] \quad (3.24).$$

Dans le domaine de variation de α_- , les fonctions Ai et Ai' ont des valeurs proches l'une de l'autre mais comme $z_0 \gg \lambda_0$, le terme en Ai' dans la densité de courant est prépondérant sur celui en Ai² que nous pouvons alors négliger. La densité de courant, qui dépend de la position et de l'énergie cinétique initiale de l'électron, peut alors s'écrire sous la forme :

$$j_\eta \approx j_{-z_0}(\rho, \varepsilon) \approx j_0 \text{Ai}'^2\left(-\frac{2a - \xi}{2\lambda_0}\right) = j_0 \text{Ai}'^2\left[\frac{1}{\lambda_0} \left(\frac{\rho^2}{4z_0} - a\right)\right] \quad (3.25)$$

où j_0 a la dimension d'une densité de courant.

Ceci établit, qu'en champ proche, la distribution de courant suivant la direction η constitue une image directe du carré du module de la fonction d'onde en ξ . Cette coordonnée mélange, par définition, les composantes radiale et angulaire ; nous visualisons donc une fonction d'onde radiale. Ceci n'a jamais été observé auparavant.

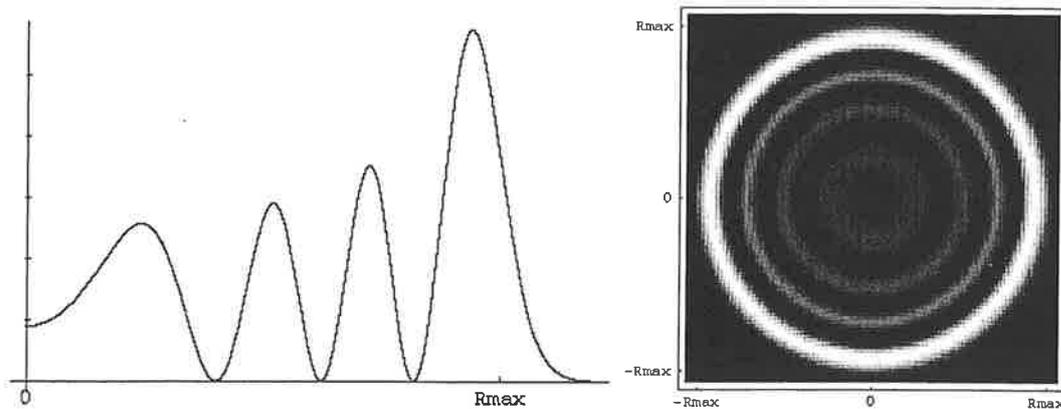


figure 3.6 : représentation de la densité de courant quantique en fonction du rayon (à gauche) et simulation de l' image calculée (à droite).

3.4.4 Relation avec la loi de Wigner

Cette structure oscillante rappelle celle que nous avons trouvée dans l'analyse semi-classique. En général, les développements asymptotiques des expressions quantiques sont équivalentes aux expressions semi-classiques. Même si l'argument de la fonction au centre n'est pas très grand par rapport à 1, nous allons tout de même écrire le développement pour les grands arguments de la fonction d'Airy :

$$\text{Ai}^2[-\alpha_-] \approx \frac{\sin^2 \left[\frac{2}{3} \alpha_-^{3/2} + \frac{\pi}{4} \right]}{\pi \sqrt{-\alpha_-}} \approx \sqrt{\frac{\lambda_0}{a}} \frac{\sin^2 \left[\frac{2}{3} \frac{a}{\lambda_0} \left(1 - \frac{\rho^2}{\rho_{\max}^2} \right) + \frac{\pi}{4} \right]}{\pi \sqrt{1 - \frac{\rho^2}{\rho_{\max}^2}}} \quad (3.28).$$

Ceci permet d'écrire la densité de courant sous la forme :

$$j_{-z_0} \propto \sqrt{\varepsilon} \frac{1 + \cos \left[\frac{4 \sqrt{2m\varepsilon^3}}{3 \hbar eF} \left(1 - \frac{\rho^2}{\rho_{\max}^2} \right)^{\frac{3}{2}} - \frac{\pi}{2} \right]}{2\pi \rho_{\max}^2 \sqrt{1 - \frac{\rho^2}{\rho_{\max}^2}}}.$$

Le terme en cosinus est équivalent à la densité de courant semi-classique (3.16). Le déphasage supplémentaire vient du fait que l'analyse semi-classique a été menée sur la zone classiquement autorisée sans tenir compte de la réflexion de l'onde au point tournant $\xi=2a$. Mais l'analyse quantique introduit un terme $\varepsilon^{1/2}$ en plus par rapport au calcul semi-classique. Ce terme est la signature de la loi de Wigner dans la densité de courant. Ainsi, la fonction d'Airy décrit entièrement la loi de Wigner et contient donc toute la dépendance en énergie. Le terme j_0 de (3.25) est indépendant de l'énergie.

3.4.5 Relation avec la section efficace totale

Comme nous l'avons annoncé au chapitre 2, la structure de la densité de courant suffit à expliquer les variations de la section efficace totale en fonction de l'énergie : c'est ce que nous allons établir ici. L'intégrale sur toute

la surface où est définie la densité de courant est égale au produit de la section efficace totale de photodétachement par l'intensité I de la source ayant produit la densité de courant. Cette intégrale s'exprime comme :

$$\sigma I = \int_S j_{-z_0} dS = j_0 \int_0^\infty \text{Ai}^2 \left[\frac{1}{\lambda_0} \left(\frac{\rho^2}{4z_0} - a \right) \right] 2\pi\rho d\rho$$

En posant $\alpha_- = \frac{1}{\lambda_0} \left(a - \frac{\rho^2}{4z_0} \right)$ et $u = \frac{a}{\lambda_0}$, on réécrit l'équation comme suit :

$$\sigma = \frac{j_0}{I} 4\pi \lambda_0 z_0 \int_{-\infty}^u \text{Ai}^2(-\alpha_-) d\alpha_- \quad (3.26)$$

L'équation est de la forme de la formule (2.2). Dans les deux expressions, le facteur devant l'intégrale est constant par rapport à l'énergie. Les oscillations de la section efficace sont donc liées au phénomène d'interférence qui engendre une modulation spatiale de la densité de courant. Pour mieux le mettre en évidence, calculons la dérivée de la section efficace par rapport à l'énergie :

$$\frac{d\sigma}{d\varepsilon} \propto \text{Ai}^2(u) \quad \text{soit} \quad \frac{d\sigma}{d\varepsilon} \propto j_{-z_0}(0, \varepsilon).$$

Lorsque l'interférence est destructive au centre, la densité de courant passe par un minimum nul (voir figure 2.6 du paragraphe 2.6.2) qui se traduit par une dérivée nulle de la section efficace. Au contraire, une interférence constructive au centre rend maximale la densité de courant et donc la dérivée de la section efficace.

On calcule la constante j_0 de (3.25) en identifiant l'expression (3.26) à celle trouvée par Baruch *et al.* [BAR92] et exprimée dans la formule (2.2) du chapitre précédent. On peut donc finalement écrire la densité de courant sous la forme :

$$j_{-z_0}(\rho, \varepsilon) = \frac{I}{4\pi} \frac{D (2m)^{1/3} E_p (eF)^{2/3}}{\hbar^{2/3} z_0} \text{Ai}^2 \left[\frac{1}{\lambda_0} \left(\frac{\rho^2}{4z_0} - a \right) \right] \quad (3.27)$$

où D est la constante de normalisation de (2.2), E_p est l'énergie du photon d'excitation et I représente l'intensité de la source.

3.4.6 Paramètres caractéristiques des taches d'interférence

Les images de photoélectron vont ainsi montrer une structure oscillante en intensité entre le centre de la figure, $\rho=0$, et le rayon pour lequel l'argument de la fonction d'Airy s'annule, soit $\rho = \rho_{max}$. Au-delà, l'intensité décroît exponentiellement vers zéro ; cette région correspond à la zone classiquement interdite aux électrons. Ainsi, on peut encore utiliser le rayon classique pour définir la taille de l'image d'interférence.

La correspondance entre les approches semi-classique et quantique nous autorise à donner à la fonction de la densité de courant en champ électrique une phase, $\Delta\phi$, qui sera égale à la puissance 3/2 de la valeur absolue de l'argument de la fonction d'Airy multipliée par un facteur 4/3. Cette phase n'est rien d'autre que la différence de phase semi-classique entre les deux ondes interférentes.

Le nombre de franges sombres dans le motif d'interférence est égal à la phase maximum divisée par 2π . L'interfrange moyen entre deux franges sombres est égal au rapport entre le rayon maximum et le nombre d'anneaux ; cet interfrange est inversement proportionnel à la racine carrée du champ électrique. Le tableau ci-après donne l'expression des paramètres les plus importants ainsi que leur ordre de grandeur ($F=400 \text{ V.m}^{-1}$, $\varepsilon=1 \text{ cm}^{-1}$) :

Paramètre	Expression		Ordre de grandeur
Phase maximum $\Delta\phi_{max}$	$\frac{4}{3} \left(\frac{a}{\lambda_0} \right)^{3/2}$	$\frac{4 \sqrt{2m\varepsilon^3}}{3 \hbar eF}$	24 rad
Rayon maximum ρ_{max}	$2\sqrt{a z_0}$	$2\sqrt{\frac{z_0 \varepsilon}{eF}}$	787 μm
Nombre de franges noires N	$\frac{2}{3\pi} \left(\frac{a}{\lambda_0} \right)^{3/2}$	$\frac{2 \sqrt{2m\varepsilon^3}}{3\pi \hbar eF}$	3,8
Interfrange moyen i	$\frac{3\pi \sqrt{z_0} \lambda_0^{3/2}}{a}$	$\frac{3\pi \hbar \sqrt{z_0} eF}{\sqrt{2m} \varepsilon}$	210 μm

Tableau 3.2 : Expression exacte et ordre de grandeur des paramètres caractéristiques des figures d'interférences ($F = 400 \text{ V.m}^{-1}$, $\varepsilon = 1 \text{ cm}^{-1}$). Les expressions sont données d'une part en fonction de a , λ_0 et z_0 et d'autre part en fonction de ε , F et z_0 .

Chapitre 4

Réalisation expérimentale

4.1 Introduction

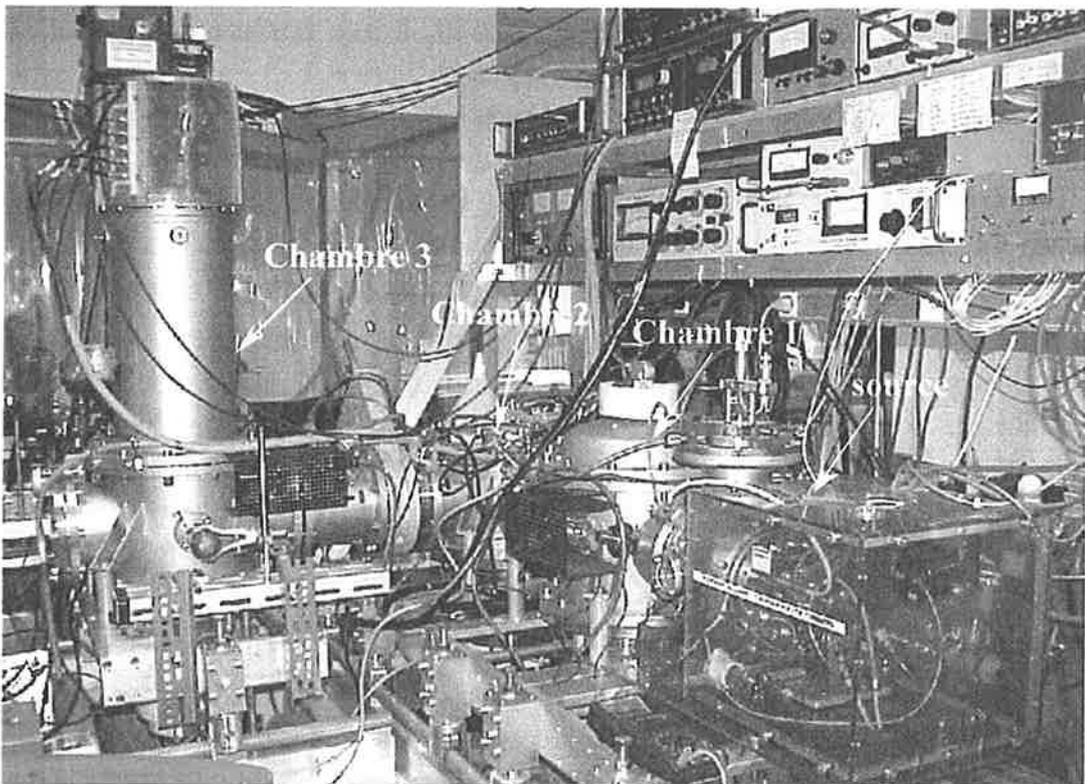


Figure 4.1 : photographie de l'expérience. Au premier plan, la cage en plexiglas contient la source à laquelle est appliquée la haute tension. Les trois chambres sont désignées par trois flèches. Les alimentations sont disposées sur un rack au-dessus de l'expérience.

Les expériences de microscopie de photodétachement ont été réalisées avec le dispositif représenté dans la figure 4.1. Il est décrit dans les trois articles suivants [BLO96, BLO99, VAL99]. Le premier présente les motifs d'interférences obtenus pour la première fois par photodétachement d'ions négatifs de brome tandis que les deux suivants ont pour objet l'analyse quantitative des images obtenues avec des ions négatifs d'oxygène. Le choix de l'oxygène comme test de validation du principe de fonctionnement du microscope sera exposé dans le paragraphe 4.2.

Le microscope de photodétachement se compose de trois enceintes, ou "chambres" successives en acier inoxydable séparées par des vannes manuelles. La première, dite "chambre source" contient le module source qui crée les ions et les premiers éléments électrostatiques servant à créer le jet afin de les amener vers leur zone d'utilisation. Le vide est entretenu par une pompe turbomoléculaire BALZERS TPH 510, à axe horizontal sur roulements à billes et atteint $5 \cdot 10^{-7}$ Torr au repos (1 Torr = 133 Pa). Cette chambre est munie d'un vase à azote contenu dans son chapeau (la flèche nommée chambre 1 dans la figure 4.1 pointe sur ce dernier). Ce vase est rempli pour toute expérience d'azote bouillant à 77 K. L'azote abaisse la température des parois de l'enceinte et évite la désorption des molécules piégées sur elles. La pression, avant fonctionnement de la source, atteint environ 10^{-7} Torr.

La seconde enceinte contient le virage qui permet de diriger le jet vers la troisième chambre. Cette zone de transition sert aussi de tampon entre la pression de la chambre source et celle de la troisième enceinte (bien meilleure comme on le verra par la suite) ; la pression y est donc intermédiaire, $9 \cdot 10^{-8}$ Torr au repos. Une pompe turbomoléculaire BALZERS TMH 520 d'axe vertical maintenu par un palier à roulement et par un palier magnétique assure le maintien de cette pression. Les détails de la préparation du jet seront exposés au paragraphe 4.3.

La troisième zone est l'élément principal du microscope ; c'est la "chambre d'interaction", dans laquelle se situent la colonne de champ uniforme et la zone d'interaction où le jet croise le faisceau laser excitateur. Les paragraphes 4.4 et 4.5 exposeront les caractéristiques du montage laser et de la zone d'interaction. Cette dernière enceinte abrite aussi le détecteur d'électrons sensible en position qui constitue le premier étage de la chaîne automatique d'acquisition décrite dans le paragraphe 4.6. Une pompe BALZERS TPH 520 M entièrement à paliers magnétiques assure le maintien de

la pression à 8.10^{-8} Torr au repos. Cette chambre comporte aussi un vase à azote liquide qui permet de faire descendre la pression à 2.10^{-8} Torr

4.2 L'oxygène et le fluor comme ions sources tests

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 2, les ions négatifs se révèlent être les meilleurs candidats pour observer le phénomène d'interférence prévu par la théorie. L'absence d'interaction de Coulomb entre l'électron éjecté et l'atome restant et leur structure simple permettent d'avoir des valeurs d'interfranges compatibles avec la résolution des détecteurs actuellement disponibles.

4.2.1 L'oxygène

L'oxygène est le premier élément du groupe VI de la classification périodique (les autres éléments étant par ordre croissant de numéro atomique soufre, sélénium, tellure, polonium). L'atome d'oxygène possède 8 électrons dans la configuration de plus basse énergie $(1s)^2(2s)^2(2p)^4$. Son terme fondamental est un triplet $^3P_{2,1,0}$. L'ion négatif O^- possède 9 électrons et son terme fondamental est un doublet $^2P_{3/2,1/2}$ (la structure est représentée en figure 4.2). L'ion et l'atome ont donc une structure fine dans leur niveau fondamental.

Dans le processus de photodétachement, l'électron part d'un état p de l'ion et peut avoir alors un moment cinétique ℓ égal à 0 (onde s) ou à 2 (onde d) dans l'état final. La loi de Wigner nous assure que, près du seuil de détachement, la voie de détachement en onde s sera prépondérante par rapport à la voie de détachement en onde d. L'ion oxygène négatif est donc une source d'électron s, isotrope.

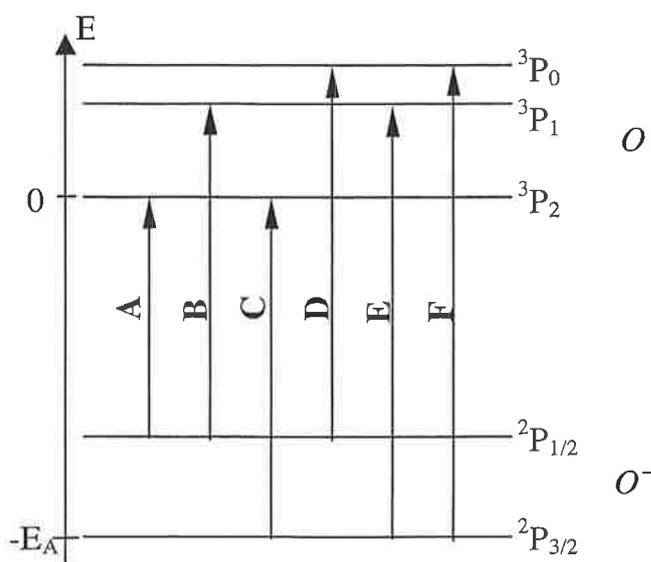


figure 4.2 : Structure des niveaux électroniques de l'ion et de l'atome d'oxygène. Les différents seuils de détachement de l'ion négatif sont représentés et désignés par les lettres de A à F. L'énergie du seuil C constitue l'affinité électronique.

L'intérêt astrophysique de O^- et son utilisation comme étalon de longueur d'onde dans les expériences de spectroscopie de photoélectrons des ions négatifs ont été à l'origine de la détermination précise de l'affinité électronique de cet élément. Elle correspond à la différence des énergies des niveaux fondamentaux de l'ion et de l'atome (seuil C sur la figure 4.2), ${}^3P_{3/2}$ pour l'ion et 2P_2 pour l'atome. La mesure la plus précise a été obtenue en 1985 par Neumark *et al* dans une expérience de photodétachement au seuil de l'isotope le plus abondant ${}^{16}O^-$ [NEU85]. Initialement évaluée à $E_A({}^{16}O) = 11784,645(6) \text{ cm}^{-1}$, elle fut, par la suite, corrigée à $11784,648(6) \text{ cm}^{-1}$ [BLO95]. La différence de structure fine entre les états ${}^2P_{3/2}$ et ${}^2P_{1/2}$ de O^- a, en même temps, été mesurée à $177,08(5) \text{ cm}^{-1}$ [HOT85]. La capacité à reproduire ces résultats par notre dispositif est un bon test de sa fiabilité en tant qu'appareil de mesure. Cette valeur de l'affinité correspond, en outre, à une longueur d'onde ($\lambda_{\text{vide}} = 848561,62 \text{ pm}$) compatible avec celles accessibles par le laser saphir-titane. Il délivre, pour ces longueurs d'onde, une puissance laser continue de l'ordre du watt.

Il existe cinq autres seuils apparents de photodétachement dus à la structure fine. Les écarts de structure fine de l'atome sont connus précisément [DEN93] : $158,26874 \text{ cm}^{-1}$ pour la transition (${}^3P_2 \rightarrow {}^3P_1$) et $68,71649 \text{ cm}^{-1}$ pour la transition (${}^3P_1 \rightarrow {}^3P_0$). Les seuils les plus rapprochés sont B et C et leur séparation est de l'ordre de 19 cm^{-1} , de sorte que les figures d'interférences ne peuvent se mélanger. En effet le diagramme de faisabilité pré-

senté au chapitre 2 (figure 2.7) montre bien que, pour des champs électriques de l'ordre de 500 V.m^{-1} , les figures d'interférences, au-delà de 2 cm^{-1} au-dessus du seuil, se fondent en une distribution classique, à peu près uniforme. Ainsi lors d'un détachement au-dessus du seuil **C**, la figure d'interférence a comme fond la densité de courant classique due au seuil **B** (et celle du seuil **A** situé beaucoup plus loin), qu'on peut considérer comme un fond continu.

Enfin, l'oxygène est présent à l'état naturel sous forme de trois isotopes : ^{16}O , ^{17}O et ^{18}O . Leur abondance naturelle vaut respectivement : 99,757(16), 0,038(1) et 0,205(14)% (source : <http://www.webelements.com/webelements/elements/text/isot/O.html>). Les isotopes pairs 16 et 18 sont intéressants à comparer, car la structure de leurs niveaux d'énergie est identique dans l'ion et l'atome mais les écarts entre niveaux changent par effet de masse du noyau. Le dispositif devrait détecter un écart isotopique entre les affinités des isotopes 16 et 18. L'isotope 17 possède un spin nucléaire 5/2 (nombre de masse impair) et donc une structure hyperfine, trop étroite pour pouvoir être résolue. Mais sa faible abondance nous permettra tout de même de mesurer la sensibilité du dispositif.

4.2.2 Le fluor

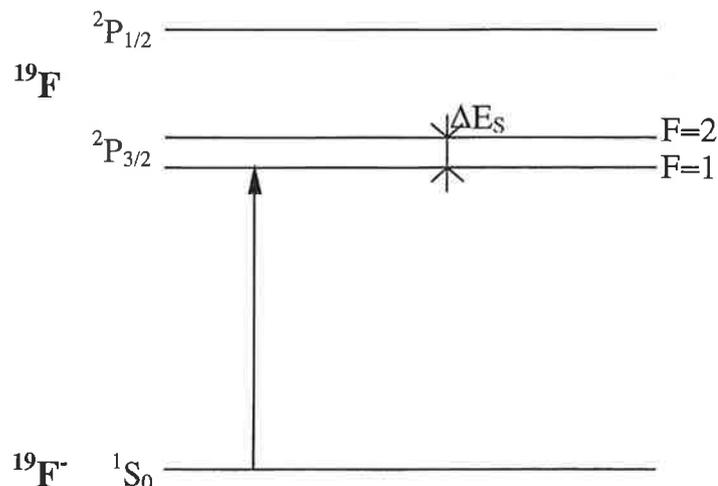


figure 4.3 : structure des niveaux de l'ion et de l'atome pour le fluor. Le fluor négatif ne possède qu'un seul niveau non dégénéré. Le niveau $2P_{3/2}$ de l'atome a une structure hyperfine à deux composantes dont l'écart est de $0,134 \text{ cm}^{-1}$ [FUL76]. La flèche représente le seuil de détachement fondamental de l'ion.

Le fluor est le premier élément de la colonne des halogènes. Avec un nombre de charge égal à 9, il vient juste après l'oxygène dans la classification périodique des éléments. L'atome de fluor possède 9 électrons, comme l'ion négatif de l'oxygène ; la structure électronique de l'état fondamental est donc $(1s)^2(2s)^2(2p)^5 \ ^2P_{3/2,1/2}$. Le seul isotope naturel du fluor a un nombre de masse égal à 19. Le fluor possède donc un spin nucléaire qui est égal à 1/2. Ceci engendre un découplage du niveau $J=3/2$ en deux niveaux hyperfins $F=1$ et $F=2$ (voir figure 4.3). Cet écart hyperfin a été mesuré à 4020,01 MHz, soit $0,134 \text{ cm}^{-1}$ [FUL76] . L'ion négatif F^- possède 6 électrons sur la couche 2p. Sa structure électronique est donc celle un gaz rare soit 1S_0 . Le niveau fondamental de F^- est non dégénéré.

L'affinité électronique de l'élément a été mesurée par Blondel *et al.* [BLO89] par une technique de spectroscopie de photodétachement au seuil à $27432,440(25) \text{ cm}^{-1}$, soit $364531,92(34) \text{ pm}$. Nous pouvons atteindre cette longueur d'onde à partir du laser saphir-titane par doublage de fréquence. La mesure de l'affinité électronique du fluor servira, elle aussi, de test.

4.3 Le jet d'ions

4.3.1 La source

Les ions négatifs des éléments précédents sont produits par une source à décharge à cathode chaude. Dans le plasma, le précurseur de l'ion peut, en se recombinant aux électrons libres, donner l'ion négatif recherché qui est ensuite extrait par un champ électrique. Ce type de source est couramment utilisé pour les ions stables, comme ceux de l'oxygène et du fluor.

Les précurseurs des ions O^- et F^- que nous utilisons sont respectivement le protoxyde d'azote, N_2O [NEU85], et le tétrafluorométhane, CF_4 . Ces deux composés se présentent sous forme gazeuse. Ces gaz ne sont pas injectés directement dans la source, mais mélangés au préalable à de l'argon qui sert de gaz tampon. L'argon initie la décharge et permet de réguler la formation des ions. Le mélange est réalisé grâce au dispositif schématisé en figure 4.4.

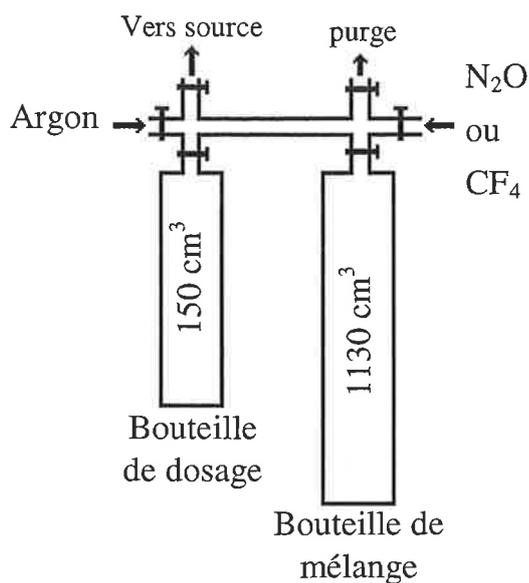


Figure 4.4 : dispositif de préparation des gaz d'alimentation de la source. Suivant l'ion désiré, on injecte un mélange de N_2O -Ar ou CF_4 -Ar.

Pour les expériences avec l'oxygène, nous utilisons un mélange à 1/5 de N_2O . Pour cela, nous remplissons la bouteille de dosage à une pression de 2 bars de protoxyde d'azote puis nous la mettons en communication avec la bouteille de mélange. Nous portons la pression dans cette bouteille à 1,2 bar en rajoutant de l'argon. Cette composition a peu varié au cours des différentes expériences.

Pour le fluor, la procédure est modifiée en ce sens que nous n'utilisons pas la bouteille de dosage mais seulement le volume des tuyaux. Nous les remplissons à 2 bars de CF_4 , puis nous mettons le volume en communication avec la bouteille de mélange. Nous répétons cette étape sept autres fois. Nous complétons la bouteille de mélange à une pression de 2 bars par de l'argon. Nous obtenons finalement un mélange à 1% de tétrafluorométhane.

Le mélange est injecté dans la source. Le contrôle de cette injection est décrit plus loin. La source est représentée schématiquement dans la figure 4.5 ci-dessous.

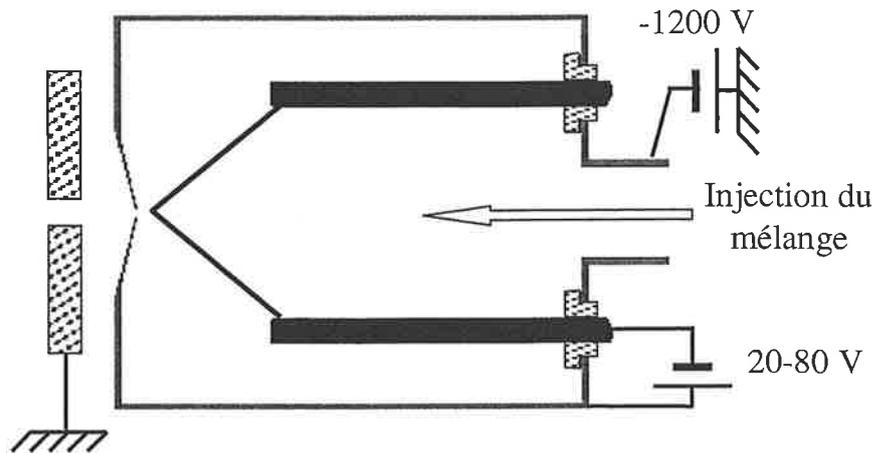


figure 4.5 : Schéma de la source d'ions. Le cylindre en acier inoxydable (en grisé sur la figure) composant le corps de la source fait 4 cm de long et 3 cm de diamètre. Le filament et ses deux supports sont représentés en noir. Les supports sont isolés du corps de la source par des céramiques. L'anode extractrice reliée à la masse est hachurée. Les schémas de polarisation des différents éléments sont également indiqués.

La source est composée d'un corps cylindrique creux (voir figure 4.5) porté à une tension de -1200 V par rapport à la masse ; une des faces est percée d'un trou de $0,5\text{ mm}$ de diamètre. Le cylindre abrite un filament de tungstène de forme triangulaire dont la taille est ajustée pour que la distance entre la pointe du filament et le trou soit de $1\text{ à }2\text{ mm}$. On applique entre le corps et le filament de tungstène, parcouru par un courant d'environ 10 A , une différence de potentiel négative de quelques dizaines de volts. Le filament, chauffé par effet Joule, produit une émission thermoélectrique d'électrons créant une décharge électrique entre la pointe du filament et le trou. Sous l'effet du chauffage et de la décharge, le gaz injecté forme, au niveau du trou, un plasma dans lequel les ions négatifs sont créés par différents processus (excitation, attachement, dissociation, recombinaison).

Une bague, mise à la masse, est placée quelques millimètres après le trou. La différence de potentiel entre le corps de la source et la bague crée un champ électrique. Ce champ pénètre dans le volume de la cellule à décharge par le trou et attire les ions formés dans le plasma qui sont éjectés de la source en un jet.

Caractéristiques de fonctionnement

L'intensité du jet dépend en majeure partie de la pression de gaz dans la cellule à décharge. L'injection de gaz se fait grâce à une vanne piézoélectrique. Le contrôle de son ouverture par un asservissement permet de réguler la pression dans la source. Nous nous basons sur la pression de la chambre 1 pour régler celle de la source car nous ne possédons pas de capteur implantable directement dans la source. La chambre est équipée d'une jauge de type Bayard-Alpert reliée à un coffret de mesure qui fournit la valeur de la pression au module d'asservissement de la vanne. Ce dernier va régler l'ouverture de la vanne de façon à ce que la pression dans la chambre source soit égale à la valeur de consigne que nous avons préalablement fixée. Ces pressions de consigne sont comprises entre 3.10^{-6} et 9.10^{-6} Torr. Les jets les plus intenses sont obtenus avec les pressions les plus fortes. Mais afin d'obtenir un jet bien focalisé dans la zone d'interaction, qui ne crée alors que peu d'électrons parasites, il est préférable de maintenir des pressions basses.

La décharge est aussi un paramètre essentiel du jet. Elle doit être localisée près du trou de sortie afin que le plasma puisse subir l'influence du champ électrique extracteur. Pour cela, le filament a une forme triangulaire et le trou est percé à l'extrémité d'un cône orienté vers l'intérieur de la source (voir figure 4.3) ; ceci permet de garantir que la décharge se fait préférentiellement entre la pointe et les bords du trou à condition de veiller lors du pliage du fil de tungstène à avoir pour la pointe le plus faible rayon de courbure possible et à approcher, le plus possible, la pointe du trou. Les différents remplacements de filament ont montré qu'une distance trou-pointe de 1 à 2 mm donne souvent de bons résultats. Il n'est pas absolument nécessaire que la pointe soit juste au centre du trou ; il semble même qu'un léger décalage donne des jets plus intenses et stables.

On amorce la décharge en fixant d'abord la différence de potentiel corps-filament entre -30V et -50V puis en appliquant un fort courant. Lorsque le filament est neuf, un courant de 12 à 13 A est nécessaire afin que la température à la surface du filament soit suffisante pour amorcer la décharge par émission thermo-électronique. Ceci entraîne la vaporisation dans la source d'une partie du tungstène à la surface du filament et le maigrissement du filament. Cette perte fait que le filament à courant constant s'échauffe de plus en plus, ce qui provoque une augmentation de l'intensité de la décharge et finit par stopper la formation des ions négatifs. Nous devons donc baisser régulièrement l'intensité du courant parcourant le filament pour maintenir une température et donc une décharge convenable. En règle générale, le cou-

rant de décharge convenable est situé entre 20 et 60 mA. L'amaigrissement entraîne finalement la rupture du filament. Cela se produit généralement lorsque l'intensité du courant parcourant le filament est tombée aux environs de 2 A.

Suivant qu'on utilise l'oxygène ou le fluor, le temps mis par un filament neuf pour se rompre diffère. Avec l'oxygène, il faut quelques 16 à 18 heures d'utilisation continue pour détruire un filament. Cela correspond à 2 jours de prise de données. L'utilisation du fluor fait qu'on peut garder un même filament pendant environ 100 heures. Ceci tient au fait que la présence d'halogènes dans le milieu permet une "régénération" du filament et donc une augmentation de la durée de vie de ce dernier. Afin de remédier au problème de destruction rapide du filament dans l'oxygène, nous avons essayé de rajouter dans le gaz Ar-N₂O de l'iode pour reproduire cet effet de régénération. Ceci permet effectivement de rallonger la durée de vie du filament mais entraîne aussi des problèmes de dérive dans la conduite du jet d'ions vers la zone d'interaction. Nous avons abandonné cette solution.

4.3.2 Le traitement du faisceau

A la sortie de la source, le jet est un mélange d'ions divers. Le but va donc être de sélectionner les ions qui nous intéressent et de les amener jusque dans la zone d'interaction pour y former un jet à la fois monocinétique et bien focalisé. Cette fonction est assurée par l'ensemble des éléments électrostatiques contenus dans la chambre source, la chambre 2 et une partie de la chambre d'interaction. Leur agencement est schématisé ci-dessous :

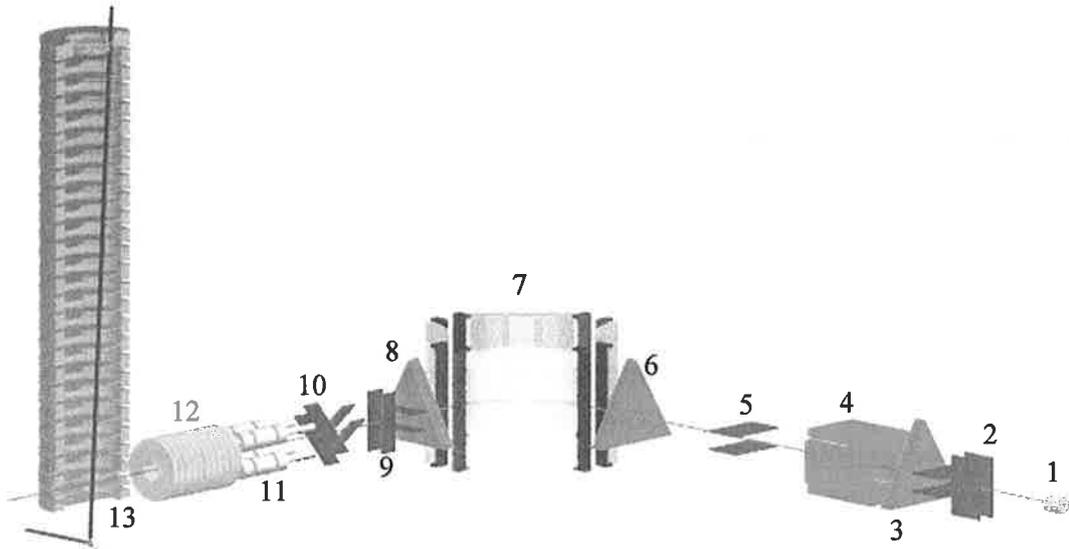


figure 4.6 : ensemble des éléments électrostatiques pour la fabrication du jet. 1 Doublet de lentilles simple ("einzellens") ; 2,5,9,10 Plaques défléctrices ; 3,6,8 : Lentille simple ; 4 Filtre de Wien ; 7 Virage quadrupolaire ; 11 Quadrupôle de focalisation ; 12 Ralentisseur ; 13 zone d'interaction

4.3.2.1 Description

Immédiatement après la sortie de la source, les ions subissent l'influence d'un doublet de lentilles simples ou "einzellens" ; la première électrode de la première lentille sert d'anode extractrice à la source. Le but est de ramener la direction de propagation des ions parallèle à l'axe afin que la plupart des ions formés participe au jet. Le doublet se compose de 5 bagues percées d'un trou, la bague centrale servant de bague de sortie à la première lentille et de bague d'entrée à la seconde ; les deuxième et quatrième bagues sont portées à des potentiels de l'ordre de -400 V. La position du doublet peut être ajustée dans les trois directions de l'espace. Le jet, alors collimaté, est recentré sur l'axe grâce à deux paires de plaques défléctrices qui agissent selon deux axes perpendiculaires. A la sortie des plaques, on focalise le jet grâce à une lentille simple.

Ce pré-traitement autorise la sélection des ions. Nous utilisons un filtre de Wien qui permet une sélection en vitesse par l'effet combiné d'un champ électrique \vec{E} ajustable en intensité et d'un champ magnétique fixé \vec{B} . Les champs sont tels que l'ion subit une force de Coulomb $\vec{F} = -e\vec{E}$ et une force de Lorentz $\vec{L} = -e\vec{v} \wedge \vec{B}$ opposées. Elles sont exactement opposées pour

force de Lorentz $\vec{L} = -e\vec{v} \wedge \vec{B}$ opposées. Elles sont exactement opposées pour une seule classe de vitesse, pour laquelle l'ion n'est pas dévié. Comme tous les ions ont été accélérés sous la même tension, leur vitesse est inversement proportionnelle à la racine carrée de leur masse ; le filtre fonctionne comme un spectromètre de masse. A la sortie, nous avons un jet mono-ionique car le filtre est capable de séparer les isotopes 16, 17, 18 de l'oxygène et de sélectionner l'isotope 19 du fluor.

Des écorceurs, diaphragmes, un iris et une fente réglables ne laissent ensuite passer que la partie centrale du jet dans laquelle les ions ont une trajectoire quasi parallèle à l'axe. Tout au long du parcours, une partie des ions subit des collisions qui neutralisent l'ion négatif.

L'élimination des atomes neutres du faisceau est réalisée en faisant prendre aux ions du jet un virage à 90° grâce à un dispositif appelé "virage quadrupolaire". Il est constitué de quatre électrodes principales qui créent un potentiel électrostatique quadrupolaire. En principe, deux électrodes opposées sont au même potentiel, tandis que deux électrodes voisines ont des potentiels opposés et ajustés de façon à ce que les lignes de champ permettent un virage à 90° des ions négatifs. Les neutres qui ne subissent pas l'influence du champ continuent leur trajet rectilignement. Les effets de bord sont compensés par huit couteaux disposés par paires aux quatre sorties du virage. Les deux membres de chaque paire ont des polarisations opposées.

Une dernière série de lentilles et de plaques défléctrices permet de guider au mieux les ions vers la zone d'interaction. Juste avant cette dernière, une "lentille quadrupolaire" et une série de plaques électrostatiques permettent de focaliser le jet au centre de la zone d'interaction et de ralentir les ions. Le ralentisseur est composé de onze électrodes équidistantes, dont le potentiel décroît exponentiellement de 0 à $-V_r$, potentiel de ralentissement. Ceci permet de décélérer fortement les ions rapides puis, au fur et à mesure que la vitesse décroît, de diminuer la décélération. Cette configuration minimise les effets de divergence dus aux champs électriques transversaux. Nous devons ralentir les ions-sources pour limiter la dérive des électrons éjectés. En effet, les ions sont accélérés sous 1200 eV ce qui correspond à une vitesse d'environ 120 km.s^{-1} . Les électrons éjectés possèdent cette vitesse d'entraînement. Avec un champ de 400 V.m^{-1} , le temps mis pour atteindre le détecteur est de l'ordre de $0,12 \mu\text{s}$; les électrons dérivent alors d'environ 14 mm dans le sens du jet. On limite cette dérive cinématique en décélérant les ions avec, en général, un potentiel d'au moins 700 V ; leur vitesse est alors

d'environ 77 km.s^{-1} dans la zone d'interaction. Le dérive des électrons n'est alors plus que d'environ 9 mm. Cette dérive augmente lorsque le champ électrique diminue.

La mesure de l'intensité du courant d'ions peut être effectuée par deux coupes de Faraday reliées à un picoampèremètre. La première se trouve dans l'axe de la source à l'arrière du virage (coupe 1) et sert au réglage du jet dans la première partie du dispositif, réglage pour lequel le virage est hors fonction. La seconde se situe en fin de course du jet après la colonne de champ électrique (coupe 2).

4.3.2.2 Réglage du jet

Une vingtaine de réglages de tension est nécessaire au bon fonctionnement du jet. Nous avons mis au point le protocole suivant qui permet d'obtenir le plus souvent un jet qui ne produit que peu de bruit de fond sur le détecteur. Ce protocole est appliqué après un changement de filament.

Les tensions appliquées aux déflectrices et aux lentilles sont mises à zéro. On fixe une tension de décélération et la colonne est polarisée convenablement pour fournir le champ électrique voulu. L'iris est ouvert. Les deux premières lentilles sont polarisées avec des tensions d'environ -400V . La tension sur le filtre de Wien est réglée pour laisser passer les ions voulus, soit, avec un courant de 3 A pour créer le champ magnétique, 110 V pour obtenir ^{16}O et 100 V pour ^{19}F . La source est mise en fonctionnement.

Le réglage comporte deux étapes distinctes. On règle d'abord le jet dans l'axe de la source pour s'assurer qu'il pénètre comme il faut dans le virage. Pour cela, le virage est neutralisé. La détection d'un maximum de courant d'ions par la coupe 1 assure que le réglage est bon. Ceci fait, le virage est remis en fonctionnement et on ajuste les tensions des éléments électrostatiques de façon à avoir à la fois un courant d'ions maximal et un bruit minimal sur le détecteur.

Dans les deux phases de réglages, le réglage des tensions est effectué de la même façon. On ajuste les tensions sur le doublet pour avoir sur les coupes le courant d'ions maximum (en tenant compte du bruit sur le détecteur pour le deuxième réglage). Nous ajustons ensuite les potentiels des déflectrices en partant des plus proches de la source et en allant vers la zone

d'interaction. Enfin, nous réglons les lentilles électrostatiques (autres que le doublet) dans le même ordre que les déflexrices.

L'iris est ensuite fermé petit à petit et les différents potentiels sont réajustés, jusqu'à la fermeture maximale de l'iris. Cette étape permet de réaligner convenablement le jet dans l'axe mais sans risque de perdre le jet déjà acquis. La "lentille quadrupolaire" est finalement mise en service et permet de réduire considérablement le bruit de fond sur le détecteur.

Typiquement, les différences de potentiels appliqués sur les déflexrices ne dépassent pas 10 V. Les tensions sur les lentilles sont entre -400 V et -600V.

Les courants de jet couramment utilisés sont de 300 à 400 pA. Il est possible d'avoir plus d'intensité, mais on constate que les images de détachement deviennent moins contrastées, les anneaux d'interférence plus larges et surtout le bruit de fond plus important. Ces détériorations semblent être dues à une plus forte densité d'ions. Nous limitons donc le courant en baissant la pression de gaz et le courant de décharge dans la source.

L'iris, la fente réglable et la "lentille quadrupolaire" ont une très grande influence sur la qualité du jet dans la zone d'interaction. Si nous n'utilisons pas ces dispositifs, l'impact d'une partie du jet sur les électrodes voisines de la zone d'interaction produit des électrons parasites à un taux de 10^5 impacts par seconde. L'iris et la fente, en éliminant les ions hors de l'axe du jet, et la lentille, en focalisant le jet, permettent de réduire très facilement le bruit de fond qui passe de 10^5 à 10^3 impacts par seconde

4.4 Le faisceau laser

4.4.1 Obtention

Le laser que nous avons utilisé au cours des différentes expériences est un laser continu en anneau, Coherent 899-21, dont le milieu amplificateur est un cristal de saphir dopé au titane. Son pompage est assuré par un laser à argon ionisé. En fonctionnement normal, la puissance fournie par ce laser est fixée entre 15 et 17 W.

La sélection d'un mode dans le laser saphir-titane se fait grâce à 3 filtres de largeur spectrale décroissante : un filtre de Lyot, un étalon Fabry-Perot mince et un étalon Fabry-Perot épais. Le "jitter" résiduel est de l'ordre du MHz.

Le faisceau sortant du laser, polarisé rectilignement, est un faisceau gaussien TEM₀₀ dont le waist situé sur le miroir de sortie a pour rayon $w_0 = 0,32$ mm et dont la longueur de Rayleigh est $Z_R = 0,375$ m.

4.4.1.1 Faisceau pour l'oxygène

Le laser saphir-titane est capable de couvrir la plage de longueur d'onde 700-1100 nm grâce à trois jeux de miroirs. L'oxygène a, comme nous l'avons vu au paragraphe 4.2, une longueur d'onde seuil proche de 848,5 nm située au milieu de la plage couverte par le jeu intermédiaire de miroirs. Dans ces conditions, le faisceau laser de sortie a une puissance comprise entre 0,8 et 1,1 W, suivant la qualité des réglages.

4.4.1.2 Faisceau pour le fluor

Les longueurs d'onde utilisées pour le photodétachement du fluor sont de l'ordre de 365 nm. Pour les atteindre, nous devons, à partir du faisceau rouge du saphir-titane, faire du doublage de fréquence. Afin d'avoir la plus grande puissance possible, nous avons utilisé un doubleur extra-cavité L.A.S. Wavetrain qui permet d'obtenir un faisceau de 30 à 50 mW. Contrairement à la situation précédente, la section du faisceau est elliptique avec un grand axe trois fois plus grand que le petit.

4.4.2 Mesure de la longueur d'onde

La longueur d'onde du laser est contrôlée en permanence par un lambdamètre. C'est un interféromètre de Michelson dans lequel la variation de la longueur des bras est assurée par deux coins de cube mobiles (voir figure 4.7). On injecte dans l'interféromètre deux rayonnements : celui de référence dont la longueur d'onde λ_l est précisément connue et celui dont on

veut mesurer la longueur d'onde λ_2 . Chaque faisceau crée à la sortie un système d'anneaux dont le défilement est enregistré par une photodiode. Lors de la translation des coins de cube, le nombre d'anneaux varie de N_1 pour le système créé par la référence et de N_2 pour l'autre. Les différences de marche pour les deux couleurs ayant varié de la même longueur, le rapport des nombres N_1 et N_2 est égal au rapport des longueurs d'onde. Comme nous opérons dans l'air, nous devons tenir compte de son indice pour les deux longueurs d'onde utilisées. Ainsi, la valeur de longueur d'onde dans le vide λ_2 est donnée par :

$$\lambda_2 = \frac{N_1 n_{air}(\lambda_2)}{N_2 n_{air}(\lambda_1)} \lambda_1 \quad (4.1)$$

où $n_{air}(\lambda)$ représente l'indice de l'air pour la longueur d'onde λ pour des conditions normales de température et de pression.

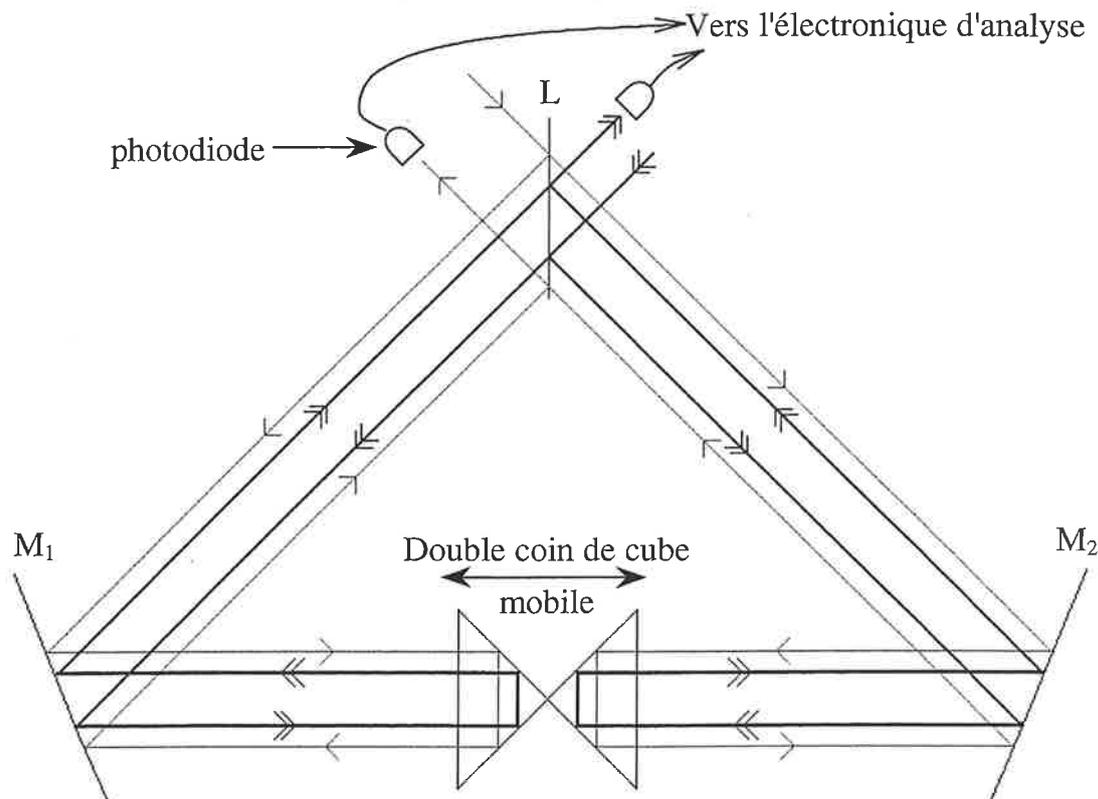


figure 4.7 : Schéma de principe du lambda-mètre (échelles non respectées). Les deux faisceaux (en trait fin gris et trait épais noir) sont séparés en deux par une lame séparatrice L, chaque partie étant envoyée dans un bras de l'interféromètre. Un jeu de miroir M_1 (M_2) et un double coin de cube renvoie chaque faisceau incident parallèlement à lui-même. Les faisceaux des deux bras interfèrent à la sortie en donnant des anneaux d'interférences. Ils sont enregistrés par des photodiodes qui envoient les données recueillies vers l'électronique.

La longueur d'onde de référence est celle d'un laser hélium-néon asservi sur une raie d'absorption saturée de la molécule $^{127}\text{I}_2$. Parmi les quatre raies compatibles avec la courbe de gain du laser, nous utilisons la composante g de la transition R(127) [QUI94] dont la fréquence est bien connue et la longueur d'onde dans le vide égale à 632991,230 pm. La longueur d'onde de référence est fournie à l'électronique du lambdamètre. Or cette dernière ne fait que multiplier la longueur d'onde de référence par le rapport N_1/N_2 . Afin d'obtenir directement la longueur d'onde dans le vide, nous utilisons comme référence la valeur de la longueur d'onde λ_1 multipliée par le rapport $n_{air}(\lambda_2)/n_{air}(\lambda_1)$ des indices de l'air pour les longueurs d'onde λ_1 et λ_2 . Le tableau ci-après répertorie ces valeurs de références pour les longueurs d'onde des 6 seuils de détachement de l'oxygène [DEW69] :

Seuil	Longueur d'onde	Indice de l'air	Référence
A de $^{16}\text{O}^-$	861 273,9 pm	1,00027469	632 990,069 pm
B	849 686,1 pm	1,00027475	632 990,107 pm
C	848 328,4 pm	1,00027476	632 990,116 pm
D	844 752,1 pm	1,00027478	632 990,126 pm
E	837 084,0 pm	1,00027482	632 990,152 pm
F	832 295,0 pm	1,00027484	632 990,164 pm

$n_{air}(He-Ne) : 1,00027652$

La longueur d'onde mesurée est transformée ensuite en nombre d'onde grâce à la relation :

$$\sigma = 10^{10} / \lambda \quad \text{avec } \lambda \text{ en pm et } \sigma \text{ en cm}^{-1}$$

Correction en température et en pression

Les références ci-dessus sont établies pour des conditions normales de pression (1013 hPa ou 760 mmHg) et de température (15°C). Mais les mesures de longueur d'onde sont réalisées avec la pression et la température de la salle d'expérience qui ne sont pas forcément celles des conditions standards.

La variation de $(n_{air}-1)$ en fonction de la pression et de la température est donnée par [DEW69] :

$$(n_{corrigé} - 1) = (n - 1) \frac{p \left[1 + p(1,049 - 0,0157t)10^{-6} \right]}{720,8826(1 + 0,003661t)}$$

où p désigne la pression en mmHg et t la température en °C. Pour des conditions normales de température et de pression, le facteur correctif est égal à 1.

Le laboratoire se trouve à 150 m au-dessus du niveau de la mer et la pression y est 2% inférieure en moyenne par rapport à celle du niveau de la mer, soit 745 mmHg. Si on considère que la température du lambdamètre en fonctionnement est de 25 °C, le facteur correctif est égal à 0,947. Cette diminution de $(n-1)$ de 5 à 6% entraîne que tous les nombres d'onde mesurés doivent être diminués de $1,2 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$.

4.5 La zone d'interaction

La chambre d'interaction est la partie essentielle du dispositif car c'est là qu'est créé le champ électrique uniforme. Nous présenterons d'abord la colonne de champ uniforme puis nous détaillerons l'interaction entre le faisceau laser et le jet.

4.5.1 La colonne

4.5.1.1 Description générale

Comme l'état d'interférence attendu dans l'image photoélectronique dépend de façon sensible de l'amplitude du champ électrique appliqué, l'uniformité de ce champ est un paramètre important de l'expérience. Une variation du champ risque en effet de brouiller l'image que nous cherchons à enregistrer. Nous devons donc veiller à l'uniformité du champ au niveau de la source où se crée principalement le déphasage, mais aussi tout le long de la colonne. Une non-uniformité risquerait de créer un système de lentille électrostatique qui pourrait légèrement changer la taille de la tache ; ceci pertur-

berait, voire fausserait, la détermination de l'énergie des électrons. Ces deux conditions ont mené à la conception suivante de la colonne. La figure 4.6 la montre dans sa totalité et la figure 4.8 ci-dessous en représente deux électrodes.

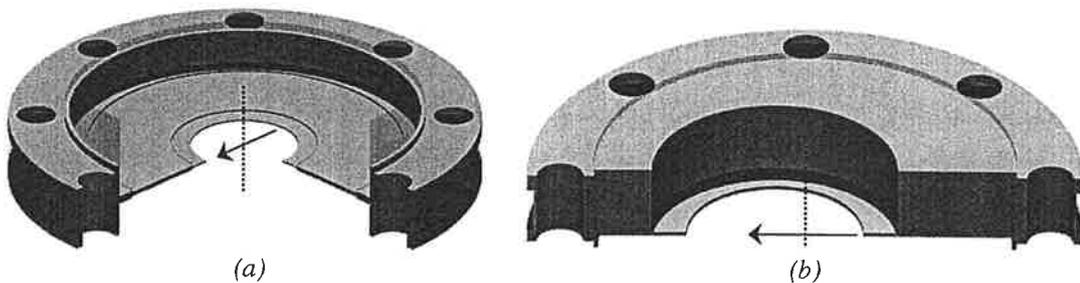


figure 4.8 : deux plaques de la colonne : (a) représente une électrode normale de la colonne, (b) la plaque support du détecteur. Le trait tireté représente l'axe de symétrie de l'électrode; c'est aussi l'axe de la colonne. Le trait fléché représente la direction du jet d'ions.

La colonne de champ uniforme est composée de 28 plaques parallèles en acier inoxydable. Dans l'ensemble, leur géométrie est identique à la représentation donnée par la figure 4.8. Les plaques, d'un diamètre extérieur de 12 cm, possèdent un trou central de 27 mm de diamètre pour laisser passer les photoélectrons. Le centre de l'électrode est d'épaisseur décroissante de l'extérieur vers le bord du trou central. L'électrode atteint alors une épaisseur de 0,5 mm. Ceci assure que les perturbations du champ dans le trou central dues aux effets de bord sont faibles. Les hauts rebords extérieurs évitent la pénétration des champs extérieurs dans la zone de champ uniforme.

Les électrodes sont réparties de la manière suivante :

- au bas de la colonne, les 4 premières électrodes sont espacées de 14 mm. La zone d'interaction proprement dite, volume d'intersection entre le jet et le laser, se trouve à mi-distance des troisième et quatrième électrodes.
- les 23 plaques suivantes sont espacées de 21 mm. C'est la dix-huitième qui est reproduite ci-dessus en 4.8a.
- Les plaques 27 et 28 sont espacées de 14 mm. La dernière sert aussi de support au détecteur décrit dans le paragraphe suivant. Cette électrode, représentée figure 4.8b, évite les fuites de potentiel entre le détecteur et les éléments de la colonne. Dans cette dernière plaque, l'axe du trou est décalé de 9 mm dans le sens de propagation du jet par rapport à celui

de la colonne afin de tenir compte du décalage cinématique des électrons (voir paragraphe 4.3.2.1). Dans cette configuration, le détecteur est capable de recueillir des photoélectrons dont l'énergie cinétique est comprise entre 100 et 500 eV.

La hauteur h de la colonne entre la première et la dernière plaque est de 539 mm. La zone d'interaction est située à $z_0 = 514$ mm du détecteur. L'ensemble de la colonne est protégé des champs magnétiques parasites par une double chemise en μ -métal. Nous y avons effectué des mesures de champ. Sans colonne de champ uniforme, le champ magnétique a une composante verticale de $0,3 \mu\text{T}$ et une composante perpendiculaire de $3 \mu\text{T}$. Avec la colonne, seule une composante verticale du champ de $4 \mu\text{T}$ a pu être mesurée. Ainsi, nous réduisons l'intensité du champ magnétique terrestre d'un facteur 15 à l'intérieur de la chemise. Cette enveloppe protège aussi du champ créé par la pompe turbomoléculaire à paliers magnétiques placée en dessous. Le constructeur a mesuré un champ de $50 \mu\text{T}$ au contact de la pompe, mais la zone d'interaction se trouve à près de 50 cm au-dessus.

Afin de pouvoir faire passer le faisceau laser verticalement (l'axe de propagation du laser fait un angle de trois degrés avec la verticale ; les détails seront donnés au paragraphe 4.5.2), nous avons percé les plaques d'un trou de 10 mm de diamètre ; ce trou est positionné plus ou moins loin du centre suivant sa hauteur dans la colonne. A l'origine les plaques avaient toutes un trou circulaire au centre (comme pour la plaque (a) de la figure 4.8). Mais la vitesse d'entraînement des ions est telle que les électrons détachés passaient trop près du bord de ces ouvertures lorsqu'ils atteignaient le haut de la colonne. Pour certaines images, le bord empêchait même le passage d'une partie des électrons. Une échancrure supplémentaire, de profondeur progressive, a donc été usinée dans les plaques les plus élevées.

4.5.1.2 Polarisation de la colonne

Pour créer le champ électrique, on applique aux électrodes extrêmes des tensions négatives, respectivement nommées V_{bas} et V_{haut} , dont la différence correspond à la tension V_{champ} voulue. Les potentiels des plaques intermédiaires sont fixés par un pont diviseur de tension constitué de résistances de précision (à 0,1%) placées entre les électrodes directement à

l'intérieur de l'enceinte. Pour des plaques distantes de 14 mm, la résistance est de 100 k Ω ; pour 21 mm d'écartement, les résistances font 150 k Ω .

Les chemises de μ -métal sont mises au même potentiel V_r que la dernière électrode du ralentisseur. Pour ne pas perturber le trajet du jet, nous devons nous assurer que la zone d'interaction est à un potentiel identique. C'est en fixant les valeurs de V_{haut} et V_{bas} que nous obtenons le bon potentiel dans la zone d'interaction. La valeur de ces potentiels est obtenue grâce aux relations déterminées à partir des propriétés du pont diviseur de tension :

$$V_{bas} = V_r - \frac{R_1}{R} V_{champ} \quad \text{et} \quad V_{haut} = V_r + \frac{R_2}{R} V_{champ}$$

avec R_1 : la résistance placée entre le bas et le centre de la zone d'interaction,

R_2 : la résistance placée entre le centre de la zone d'interaction et le haut,

$R = R_1 + R_2$: la résistance totale de la colonne.

4.5.2 L'interaction jet-laser

La source d'électron est créée par le croisement du faisceau laser et du jet. Cette intersection définit un volume d'interaction dans lequel le laser détache l'électron de l'ion. Tout point de ce volume est susceptible d'être la source d'une figure d'interférence, ce qui, par accumulation des images, produit un brouillage de la figure d'interférence. Si la dimension de la source est plus grande que l'interfrange de la figure d'interférence, le brouillage sera total et aucun anneau ne sera visible.

Pour que l'interférence soit visible, il faut que la plus grande dimension transverse de la source, c'est-à-dire dans un plan parallèle au plan de détection, soit inférieure à l'interfrange de la figure.

4.5.2.1 Types d'expérience

Simple passage axial

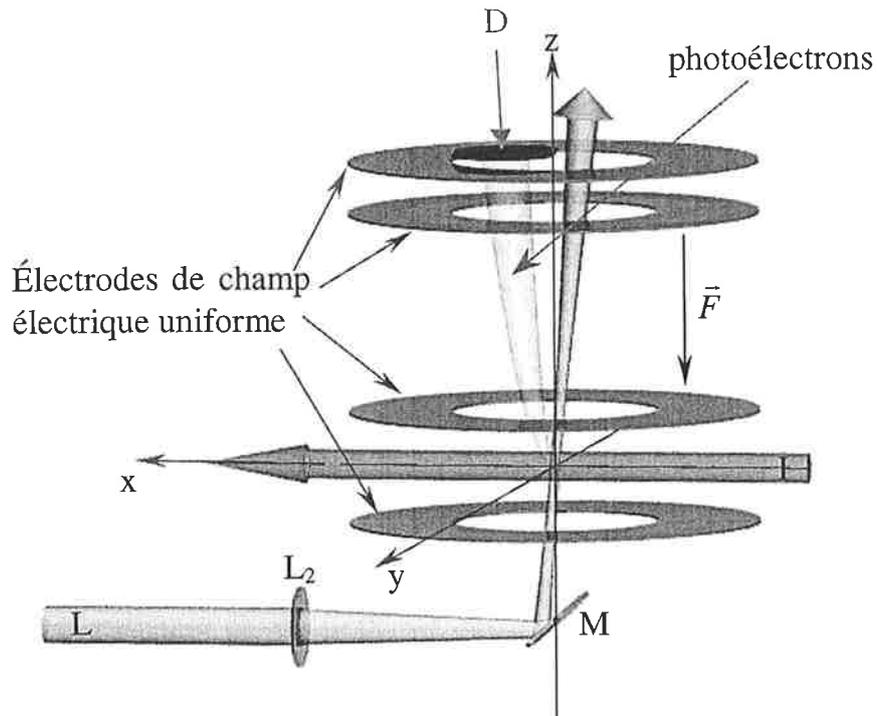


Figure 4.9 :représentation schématique du dispositif de focalisation du laser sur le jet. Les échelles réelles ne sont pas respectées. Le faisceau laser L sortant du laser passe par une première lentille L_1 (non représentée) de façon à focaliser, avec la lentille L_2 , le faisceau sur le jet d'ion I avec un waist de $25 \mu\text{m}$. Un miroir M placé sous la colonne renvoie le faisceau presque verticalement (un angle de 3° par rapport à la verticale est nécessaire pour éviter le détecteur D)

La dénomination "axiale" s'applique aux expériences où la direction de propagation du laser est parallèle à l'axe de symétrie de la colonne ou à peu près. Cette configuration est la plus logique ; la dimension transverse de la source est alors uniquement déterminée par la section du faisceau. Plus nous réduisons cette section, plus nous nous approcherons d'une source ponctuelle. Il suffit de focaliser le laser au milieu du jet d'ion.

Le faisceau doit faire un léger écart avec l'axe vertical pour éviter d'illuminer directement le détecteur d'électrons ce qui pourrait l'endommager. En conséquence, la fréquence laser vue par les ions du jet est décalée par effet Doppler par rapport à la fréquence mesurée dans le référentiel du laboratoire. Pour satisfaire à la première condition tout en minimisant ce décalage, on aligne le faisceau laser suivant un angle de 3° avec la verticale.

Le faisceau sortant du laser est agrandi par une première lentille L_1 de focale $0,2 \text{ m}$ de façon à ce que la seconde lentille L_2 fasse converger le faisceau 30 cm après elle avec un waist de $25 \mu\text{m}$. Ces lentilles se trouvent à l'extérieur de la chambre d'interaction.

Le faisceau émergeant de la seconde lentille entre dans la chambre d'interaction par un hublot et est renvoyé vers le jet grâce à un miroir placé sous la colonne (voir figure 4.9) ; la distance totale L_2 -miroir-jet est d'environ 30 cm. Le réglage expérimental du waist sur le jet est assuré par la lentille L_2 qui est installée sur une platine à trois axes de translation. La translation de la lentille selon la direction transverse x permet le réglage de la position verticale du waist. On en optimise le positionnement dans le jet en réglant la lentille à différentes positions et en acquérant l'image de la figure d'interférence correspondante. La figure la mieux définie correspond à un waist positionné à mi hauteur dans le jet.

Le principal défaut du montage est que nous connaissons mal l'angle entre le laser et la verticale ; il y a une incertitude de plusieurs degrés. Ceci implique que le décalage Doppler, donc l'énergie d'excitation vue par les ions, sont mal connus. Or la détermination de l'affinité repose aussi sur la connaissance de cette dernière. Comme nous le verrons au chapitre 7, ce montage ne permet donc pas une bonne détermination de l'affinité électronique.

Double passage axial

Afin de résoudre le problème, nous nous sommes inspirés du montage de double passage décrit dans la référence [BLO89] : un coin de cube renvoie le faisceau laser parallèlement à lui même. Les décalages Doppler sont alors, au premier ordre en v/c , exactement opposés ; une simple moyenne des seuils de détachement aller et retour donne accès à la mesure précise de l'affinité. L'exacte réplique de cette expérience n'est pas possible ici car le coin de cube ne refocaliserait pas le faisceau laser et l'image photoélectronique produite par ce faisceau retour serait complètement floue.

Une image de retour aussi bien définie que l'image aller peut néanmoins être obtenue au moyen d'un miroir concave dont le rôle est de refocaliser le faisceau laser sur le jet (voir figure 4.10) ; son rayon de courbure R doit être choisi assez grand pour permettre le positionnement du miroir à l'extérieur de l'enceinte à vide. Cependant les deux parties du faisceau n'interceptent pas le jet sous le même angle et les décalages Doppler ne sont donc pas d'égale valeur absolue. On montrera au chapitre 7 qu'il est possible d'exprimer l'affinité électronique en fonction de la fréquence du laser, de

l'écart entre les figures d'interférence et du rayon de courbure, quantités connues précisément.

Nous avons appliqué cette configuration à l'étude de l'oxygène et du fluor.

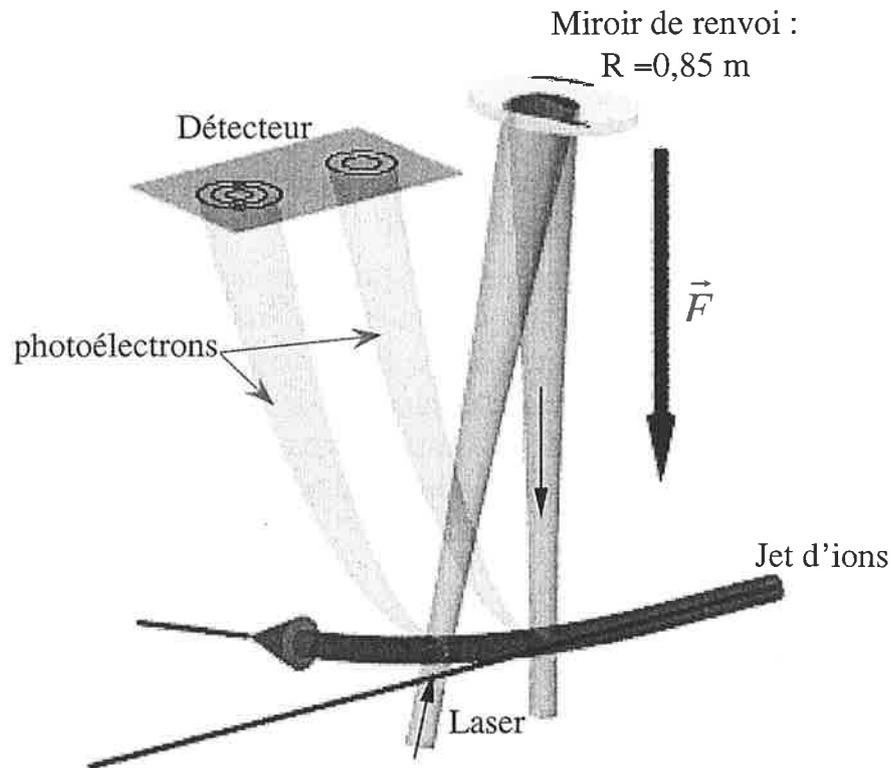


figure 4.10 : représentation de la configuration en double passage axial. L'ensemble des électrodes de champ uniforme a été omis, ainsi que le miroir de renvoi vertical.

Double passage transverse

Dans cette configuration, le faisceau laser et le jet sont dans un plan parallèle au détecteur. Le retour est là encore assuré par un miroir sphérique. Historiquement, nous avons commencé nos expériences de photodétachement en double passage avec ce dispositif ; cela tient au fait que le seul miroir que nous possédions avait un rayon de courbure de 20 cm, donc beaucoup trop court pour des expériences de type axial. Ces expériences constituaient ainsi un test de faisabilité pour la détermination de l'affinité par double passage.

L'inconvénient de cette configuration tient à la dimension de la section transverse du volume source. Selon l'axe de propagation du jet, la dimension de la source correspond au diamètre du faisceau laser ; pour la direction perpendiculaire dans le plan d'interaction, elle correspond à la taille du jet. Le diamètre du jet d'ions est de l'ordre de $600 \mu\text{m}$ et est donc beaucoup plus grand que l'interfrange. Nous nous attendons donc à obtenir non des anneaux d'interférence mais des franges par superposition de toutes les figures annulaires créées par les sources (voir figure 4.11). Le maintien de la visibilité des franges selon l'axe de propagation du jet doit nous permettre de mesurer l'énergie cinétique des électrons.

Nous avons utilisé cette configuration avec l'oxygène.

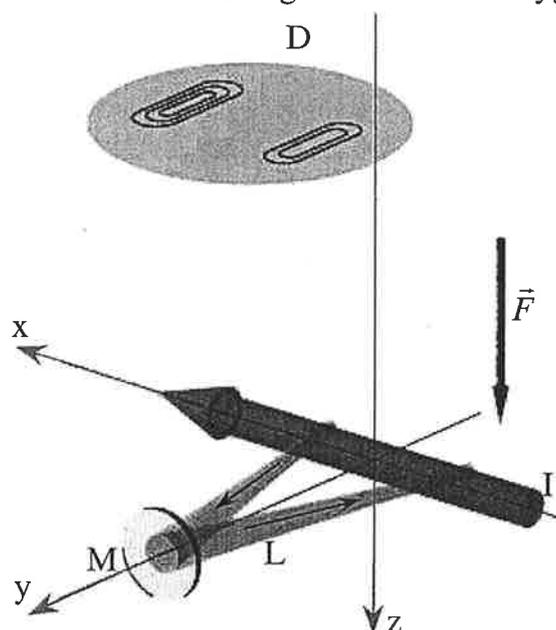


figure 4.11 : représentation de la configuration en double passage transversal. L'ensemble des électrodes de champ uniforme a été omis. Le faisceau laser est focalisé avec le même jeu de lentilles L_1 et L_2 que pour les expériences axiales.

4.6 L'acquisition

La seconde fonction essentielle de l'expérience, après la production du champ uniforme, est la détection des électrons. Il faut détecter la position d'arrivée de l'électron avec une résolution suffisante pour détecter un interfrange de $100 \mu\text{m}$.

Pour assurer cette fonction, nous utilisons un détecteur d'électrons de Quantar Technology [QUA] à galettes de microcanaux couplées à une anode résistive en surface. Le dispositif est équipé de 5 galettes qui amplifient le signal électrique engendré par un électron incident tout en conservant intacte l'information de position de cet électron. Les galettes sont disposées de la façon suivante : un groupe de deux galettes en configuration "V" suivi d'un groupe de trois disposées en "Z". Les dénominations viennent du fait que le dessin formé par les canaux, qui ne sont pas perpendiculaires à la surface mais légèrement obliques, des deux premières galettes est un V, un Z pour les trois suivantes (voir figure 4.12). La différence de potentiel entre la première et la dernière galette de microcanaux est de l'ordre de 3400 V. La répartition de la différence de potentiel sur chaque galette est ajustable et conditionne la qualité de la détection. L'amplification est de l'ordre de $5 \cdot 10^7$. A la sortie de la cinquième galette, nous avons donc un nuage électronique centré sur le point d'impact initial de l'électron incident.

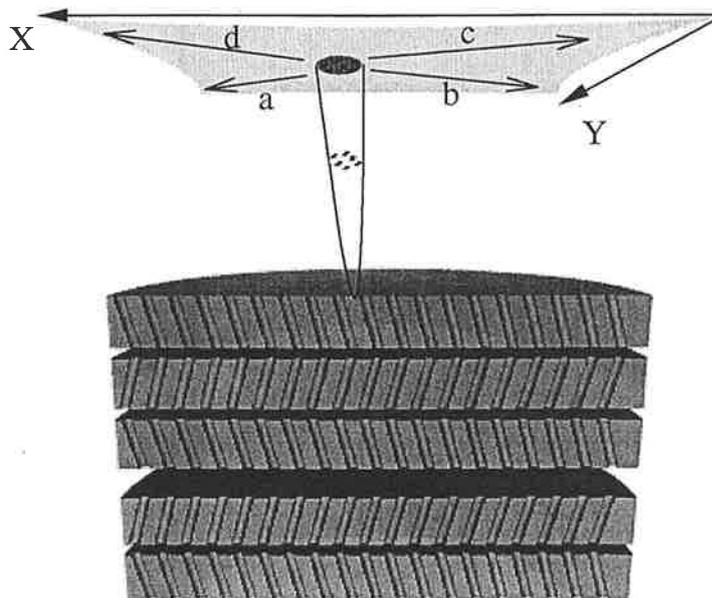


figure 4.12 : le détecteur. Les 5 galettes de microcanaux sont réparties en deux groupes de 2 (V) et 3 galettes (Z). Un électron pénètre dans la première galette et entraîne, à la sortie de la cinquième plaque, la formation d'un paquet de 10^6 électrons (surface en pointillés). Ce paquet produit sur la surface conductrice un courant qui s'échappe aux quatre coins. Cette représentation ne respecte pas les échelles réelles.

L'anode résistive a une surface active de 25 mm de diamètre. Lorsque le nuage rencontre l'anode résistive, il produit à la surface de celle-ci un cou-

rant qui va se répartir vers les quatre bornes de sortie. Cette répartition des charges est proportionnelle à la position du centre de gravité du nuage électronique incident. Les courants recueillis sont amplifiés puis envoyés au module d'analyse qui détermine les coordonnées X_a et Y_a du centre de gravité du nuage. C'est lors de cette numérisation des coordonnées qu'a lieu le découpage en pixels effectifs du détecteur.

L'abscisse et l'ordonnée de la position sont alors envoyées dans la carte d'acquisition du PC qui est lue toutes les secondes par le programme de pilotage de la carte. Ainsi, nous pouvons suivre "en temps réel" la formation d'une figure d'interférence.

Chapitre 5

Images de photodétachement

5.1 Un exemple d'image axiale

La figure 5.1 représente une image obtenue sur le détecteur lors d'une expérience de photodétachement de l'ion négatif d'oxygène. Le jet est dirigé parallèlement à l'axe des abscisses, figuré par une droite orange. Le sens de parcours du jet est de la droite vers la gauche. L'axe des ordonnées correspond à la direction expérimentale transverse, orthogonale à la direction du champ électrique et à l'axe des abscisses. L'image peut être considérée comme une vue de dessus du détecteur. La courbe inférieure représente l'histogramme du nombre de coups sur chaque pixel appartenant à l'axe horizontal. Le champ électrique uniforme appliqué est de 423 V.m^{-1} ; le faisceau laser de détachement a une longueur d'onde dans le vide de $832485,2 \text{ pm}$, soit un nombre d'onde de $12012,226 \text{ cm}^{-1}$. Le jet d'ion a une énergie cinétique de 500 eV ce qui correspond à une vitesse d'environ 77 km.s^{-1} . Le temps nécessaire pour obtenir une telle image est de 10 à 20 mn, suivant la qualité souhaitée.

Comme nous l'avons vu au chapitre 4.2.1 (figure 4.2), il existe six voies de détachement possibles de l'électron. Avec le rayonnement utilisé d'énergie supérieure à celle du seuil F qui est le plus élevé, toutes les voies sont ouvertes avec des énergies d'éjection ε différentes pour chacun des six seuils.

Le détachement au-dessus du seuil **F** donne les électrons les moins énergétiques (énergie cinétique de l'ordre de $0,6 \text{ cm}^{-1}$). La tache d'interférence attendue est visible au centre de l'image. Nous y distinguons bien l'anneau intérieur qui est la signature de la nature quantique du mouvement de l'électron.

Cinq autres anneaux beaucoup plus grands sont également visibles. Ils appartiennent aux taches produites par les électrons détachés dans l'une des cinq autres voies, dont l'énergie cinétique est plus grande. En allant de la tache centrale (seuil **F**) vers le bord du détecteur, le premier anneau rencontré correspond aux électrons détachés selon la voie **E**, le second selon la voie **D** et ainsi de suite jusqu'à l'anneau situé au bord du détecteur et qui correspond au seuil **A**. Aucune de ces taches ne présente d'anneaux intérieurs parce que l'énergie cinétique des électrons est très supérieure à l'énergie limite pour la visibilité, de l'ordre de 2 cm^{-1} pour 423 V.m^{-1} [voir figure 2.7]. Le tableau ci-dessous donne les énergies cinétiques des électrons produisant chaque anneau. Les anneaux **A**, **B**, **C**, **D** et **E** correspondent aux images de la densité de courant classique. Cela est particulièrement visible sur la section de la distribution de courant. Le rayon de chaque anneau est proportionnel à la vitesse d'éjection des ions ; l'échelle en pixel de l'image l'est donc aussi.

Seuils	A	B	C	D	E	F
$\varepsilon \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	0,6	69,3	177,7	227,6	246,4	404,7
$\varepsilon \text{ (meV)}$	0,075	8,6	22	28	30,5	50,5
$v \text{ (km.s}^{-1}\text{)}$	5,1	55	88	100	104	133

Tableau 5.1 : énergie cinétique (en cm^{-1} et meV) des électrons produisant les anneaux visibles sur la figure 5.1. La vitesse d'éjection correspondante est également donnée

La partie sombre de l'image n'apparaît que partiellement dans l'encoche – de 10 mm de large – usinée dans les dernières plaques de façon à laisser venir au détecteur les électrons détachés, même en cas de forte dérive (cf paragraphe 4.3.2.1).

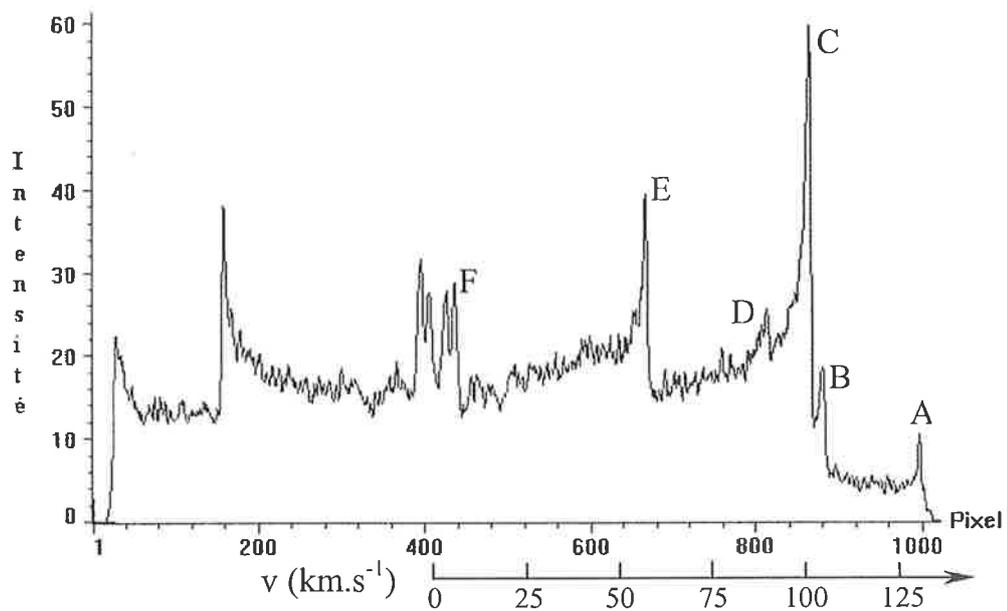
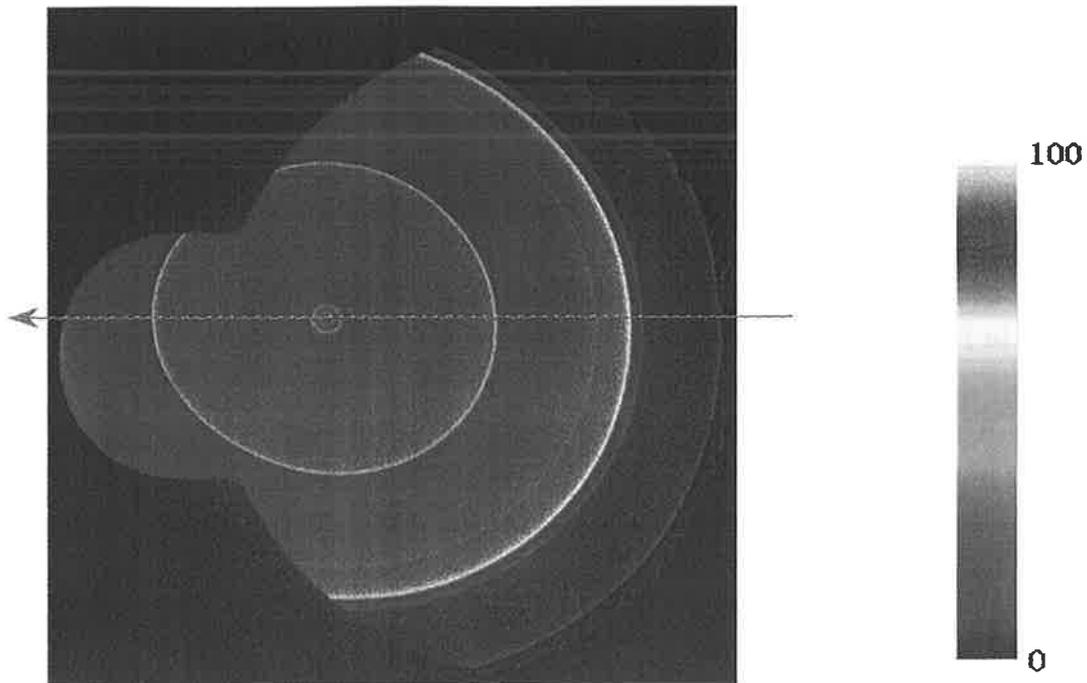


figure 5.1 : L'image du haut correspond au photodétachement d'un électron de $^{16}\text{O}^-$ au-dessus du seuil F. L'échelle de couleur est l'échelle typique utilisée dans toutes les représentations qui suivent. Elle donne le nombre absolu d'électrons reçus par pixel. Le trait orange représente la direction et le sens de propagation des ions. Il définit aussi la zone servant à construire l'histogramme des coups selon l'axe horizontal représenté dessous. Chaque tache est désignée par une lettre selon la voie de détachement qui lui correspond. Le second axe sur l'histogramme des coups correspond à la vitesse d'éjection des électrons. L'axe des abscisses est gradué en unité de pixel ; chaque pixel a une dimension de $26 \mu\text{m}$.

5.2 Variation de l'énergie cinétique

La figure 5.2 représente les différentes taches obtenues lorsque, à champ électrique fixé, l'énergie cinétique des électrons éjectés varie. Cet ensemble constitue une "série d'images à champ fixé". Ces images sont obtenues par découpage du motif central d'interférence des images telles que celles de la figure 5.1. Chaque image est un carré de 111 pixels de côté, soit 2,89 mm.

Le détachement est effectué juste au-dessus du seuil C. Le champ électrique a une intensité de 423 V.m^{-1} . La première image qui correspond à l'énergie cinétique la plus petite a été obtenue pour la longueur d'onde $848566,3 \text{ pm}$. A partir de la troisième image, la longueur d'onde du laser exciteur est diminuée en moyenne de $3,2 \text{ pm}$ à chaque image, soit une énergie augmentant par pas de $0,045 \text{ cm}^{-1}$.

Les lois d'échelle établies au chapitre 3 donnent une variation du diamètre des anneaux en $\varepsilon^{1/2}$, du nombre de ces anneaux en $\varepsilon^{3/2}$ et de l'interfrange en ε^{-1} .

Effectivement quand l'énergie cinétique augmente, le diamètre de la tache croît et sa vitesse de croissance diminue. Le diamètre de la quatrième image est 1,5 fois plus grand que celui de la seconde mais ce diamètre ne fait que doubler entre la quatrième et la vingt-neuvième.

L'augmentation de l'énergie s'accompagne aussi d'une augmentation du nombre d'anneaux dans les taches : la dernière image possède 7 anneaux brillants. Les anneaux supplémentaires alternativement sombres (interférences destructives) et brillants (interférences constructives) s'introduisent successivement par le centre de l'image et plus rapidement à haute qu'à basse énergie. La vitesse d'apparition des anneaux croît donc avec l'énergie.

Ces deux propriétés font que l'interfrange diminue au fur et à mesure que l'énergie cinétique des électrons grandit. Elle semble même proche de l'interfrange limite dans la dernière image car nous commençons à ne plus clairement discerner les anneaux situés au bord de la figure d'interférence.

Toutefois quelques points de divergence avec la théorie apparaissent. Tout d'abord, ces taches sont légèrement ovales. Le grand axe est dirigé selon la direction du jet (représenté en orange sur la première image).

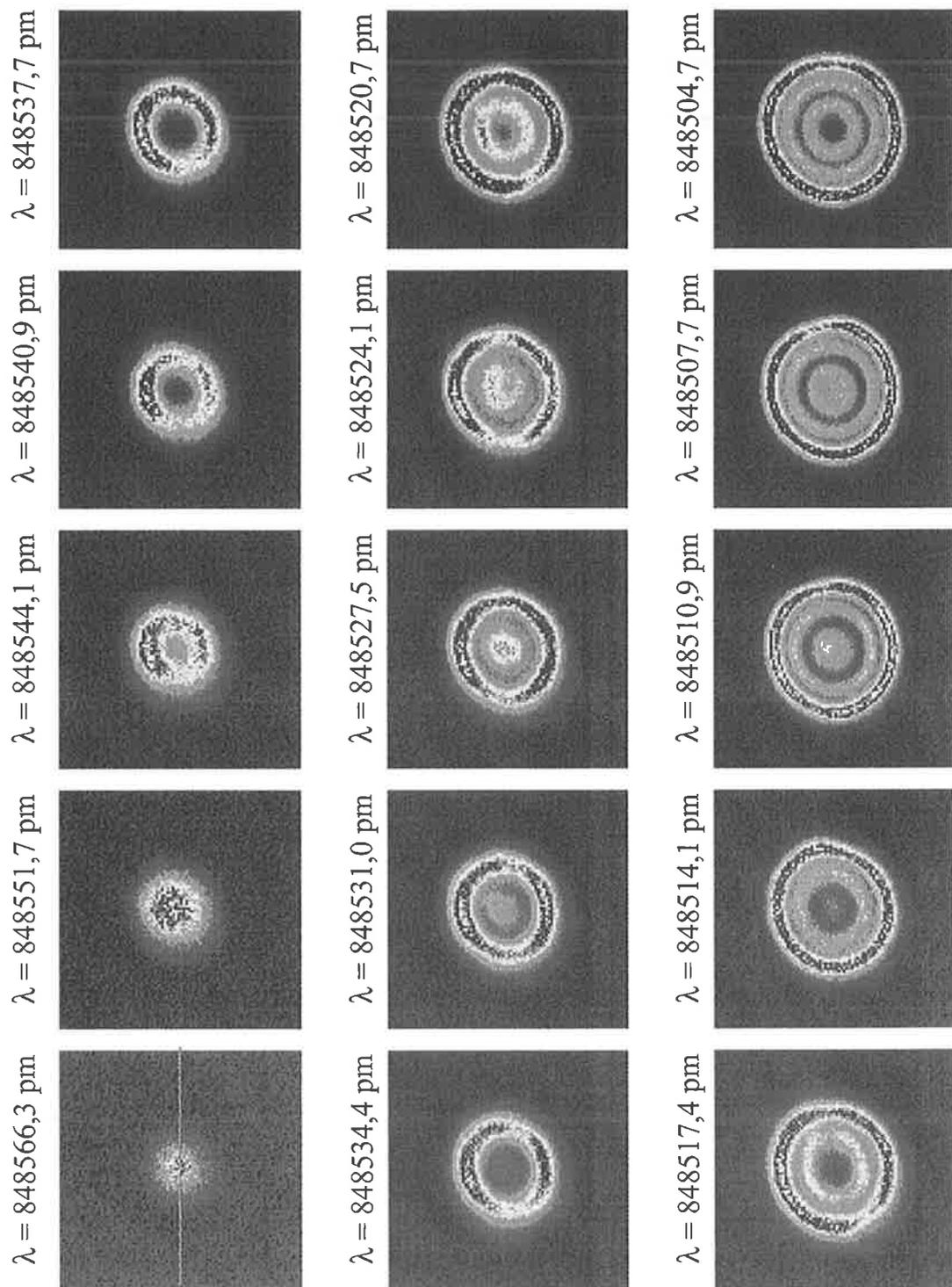
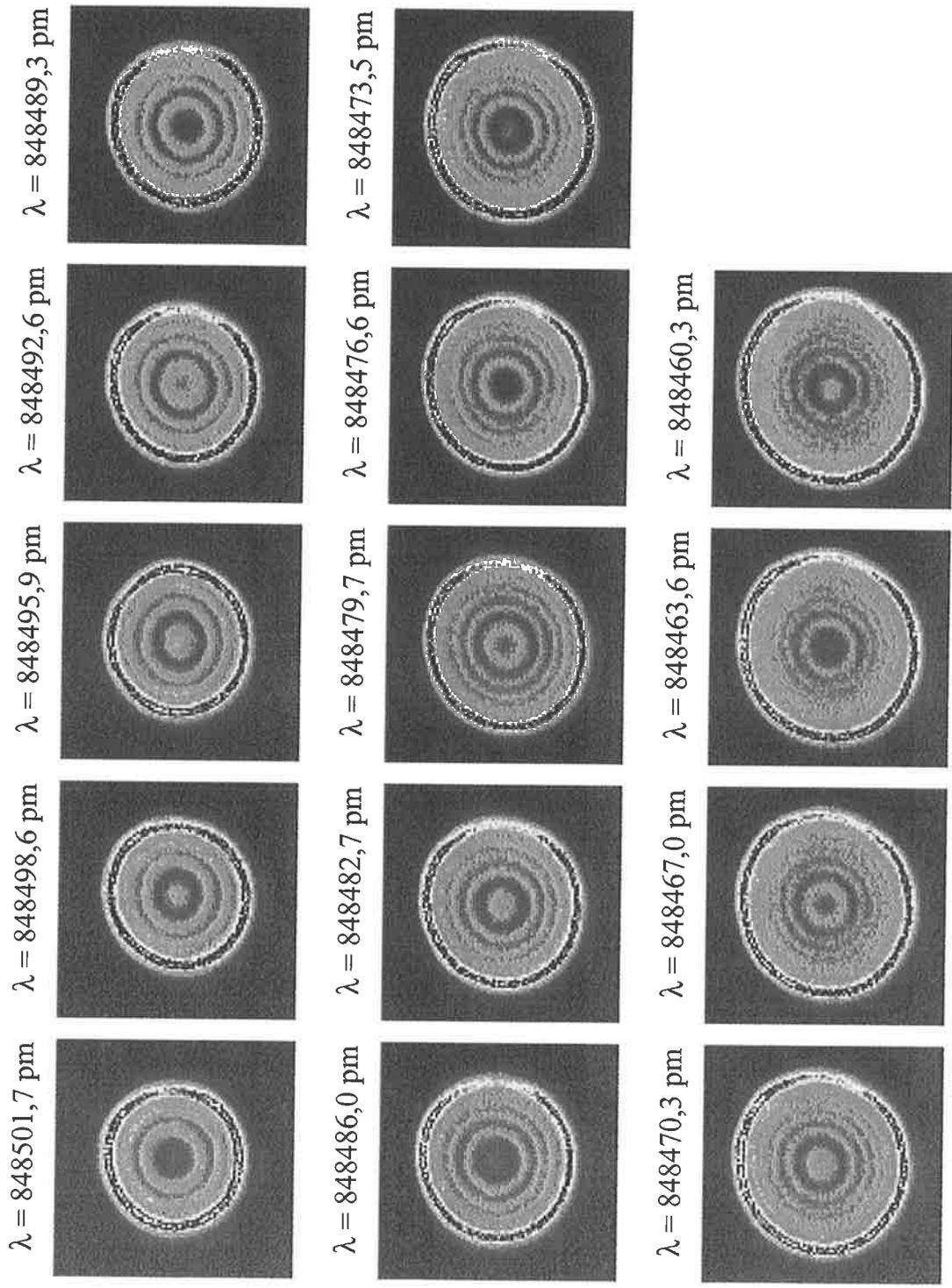


Figure 5.2 (cette page et la suivante) : série d'image de photodétachement par variation de l'énergie cinétique des électrons pour un champ électrique fixé à 423 V.m^{-1} . Le pas entre deux images est en moyenne de $0,045 \text{ cm}^{-1}$.



En outre, la résolution spatiale n'est pas uniforme sur l'ensemble de la tache. Les anneaux sont moins bien définis le long du grand axe de l'ellipse que le long du petit. Ceci se vérifie sur la distribution de l'intensité de l'anneau extérieur : les maxima d'intensité (points blancs sur les images) sont répartis sur le haut et le bas de l'anneau. Une des explications de cette anisotropie peut venir du fait que le laser ne traverse pas perpendiculairement le jet de sorte que les dimensions transverses de la source sont plus grandes le long de l'axe du jet que sur un axe perpendiculaire (figure 5.3).

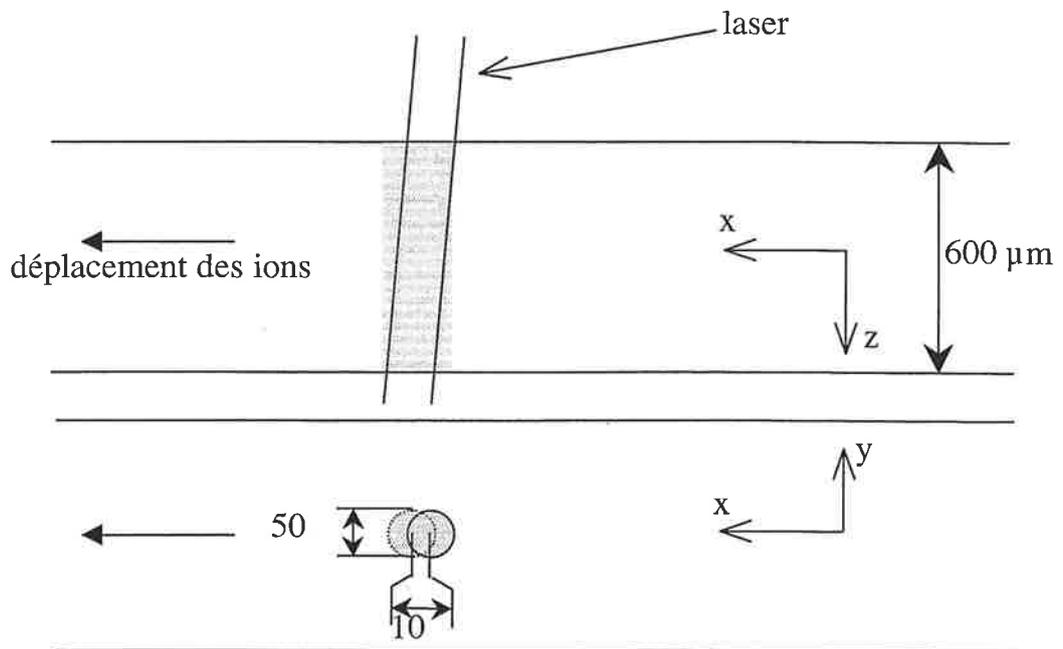


Figure 5.3 : intersection laser- jet d'ions. Le dessin du haut est une vue transverse (dans le plan contenant le champ électrique et l'axe de propagation du jet) ; celui du bas une vue axiale (plan parallèle au détecteur). Toutes les dimensions sont exprimées en μm .

Enfin, ces images présentent des défauts bien localisés (perte d'intensité, "rabetage" de l'anneau extérieur) visibles notamment sur les images correspondant aux longueurs d'onde suivantes : 848537,7 pm, 848514,1 pm. Ceci est dû à une détérioration locale du détecteur sur les zones les plus utilisées pour la détection et qui sont en quelque sorte des "zones de fatigue" des gallettes de microcanaux.

5.3 Modification du champ électrique.

La figure 5.4 représente trois séries d'images enregistrées avec des valeurs de champ électrique différentes. A 325 V.m^{-1} , la série se trouve dans le diagramme de faisabilité (figure 2.7) juste au-delà du point M, la série à 225 V.m^{-1} juste en dessous. Enfin à 121 V.m^{-1} , la série se trouve dans la partie du diagramme où la limite de résolution en énergie est vite atteinte. Nous distinguons à peine trois anneaux intérieurs au maximum dans cette dernière série, alors que nous pouvons discerner 4 et 5 anneaux pour les deux premières séries.

On remarque en premier lieu l'augmentation de l'ellipticité de la tache au fur et à mesure que le champ décroît. Cette déformation est particulièrement visible sur les taches enregistrées à 121 V.m^{-1} . Elle pourrait provenir de la non uniformité du champ ou de l'imperfection du blindage. Des mesures de distance directement sur les images semblent montrer que les images se contractent selon le petit axe de l'ellipse.

Si on considère seulement le grand axe des ellipses, il semble que la variation de sa longueur soit compatible avec la loi de variation du rayon des taches en $F^{-1/2}$ (voir paragraphe 3.5.5 tableau 3.2) : cette longueur augmente bien quand F diminue.

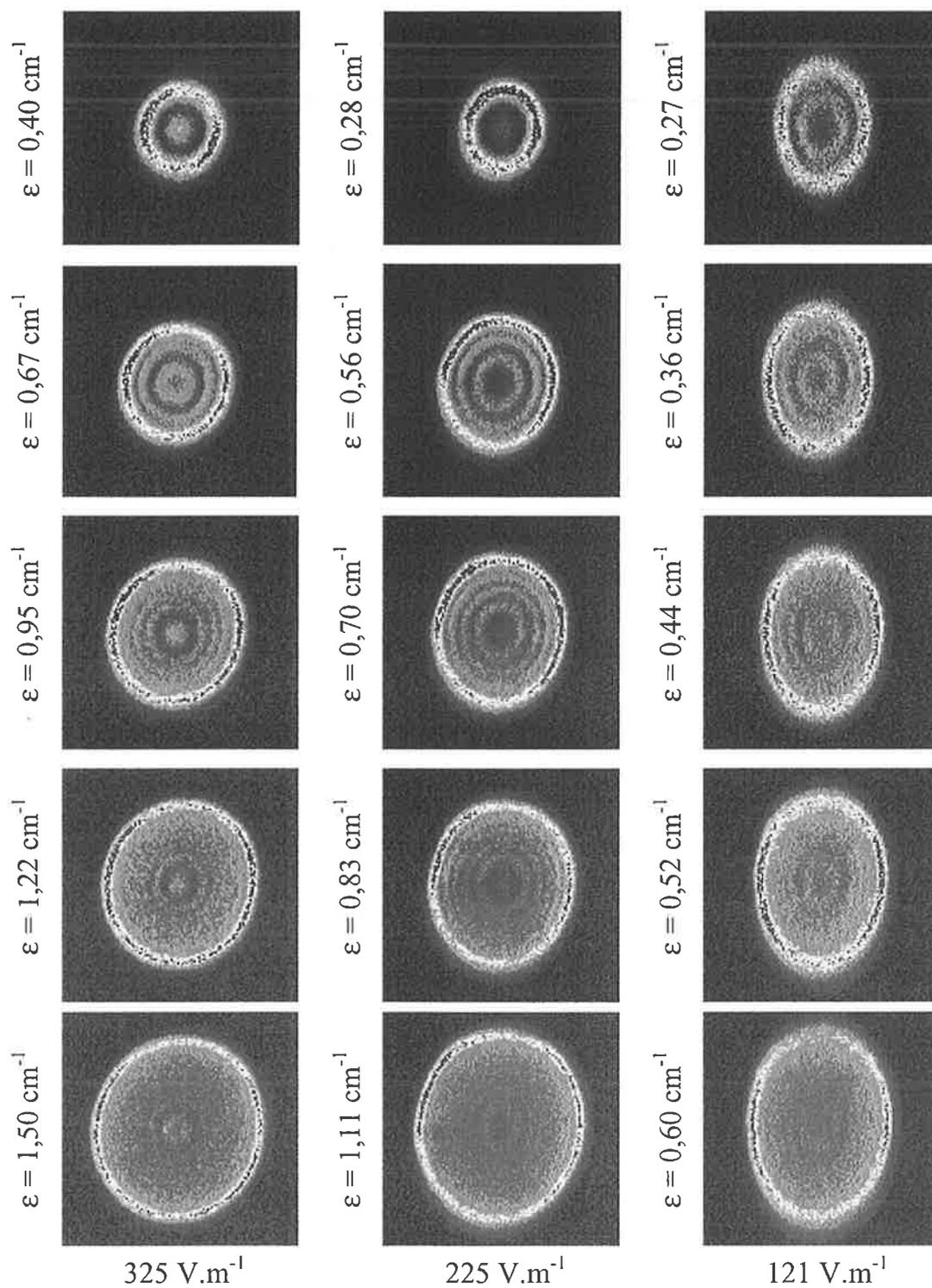


Figure 5.4 : Trois séries à trois valeurs de champ électrique différentes : 325 V.m^{-1} , 225 V.m^{-1} et 121 V.m^{-1} .

5.4 Les expériences en double passage

La figure 5.5 représente deux jeux de taches de photodétachement dans deux expériences en configuration double passage caractérisées par la même valeur du champ électrique. Celle du haut correspond à une configuration transverse tandis que celle du bas est en configuration axiale. Les énergies cinétiques sont pratiquement égales dans les deux expériences. Comme dans les images des paragraphes précédents, le jet est selon l'axe des abscisses et se dirige de la droite vers la gauche.

La dimension du domaine d'interaction apparaît comme un paramètre extrêmement important. Dans l'image du haut, une des dimensions (la dimension perpendiculaire au jet ou dimension transverse) est bien plus grande que l'interfrange ce qui brouille totalement les franges le long de cette direction. Cette image apparaît comme une superposition incohérente de taches identiques à celle du bas. Ces images confirment la nécessité d'une bonne focalisation du faisceau laser.

La granularité de ces images, c'est-à-dire la fluctuation visible du nombre d'électrons reçus d'un pixel au pixel voisin, illustre ce que peut être la construction d'une figure d'interférence par accumulation d'impacts électroniques individuels. L'image obtenue n'est qu'une réalisation statistique de la distribution de densité de probabilité de présence sur le détecteur.

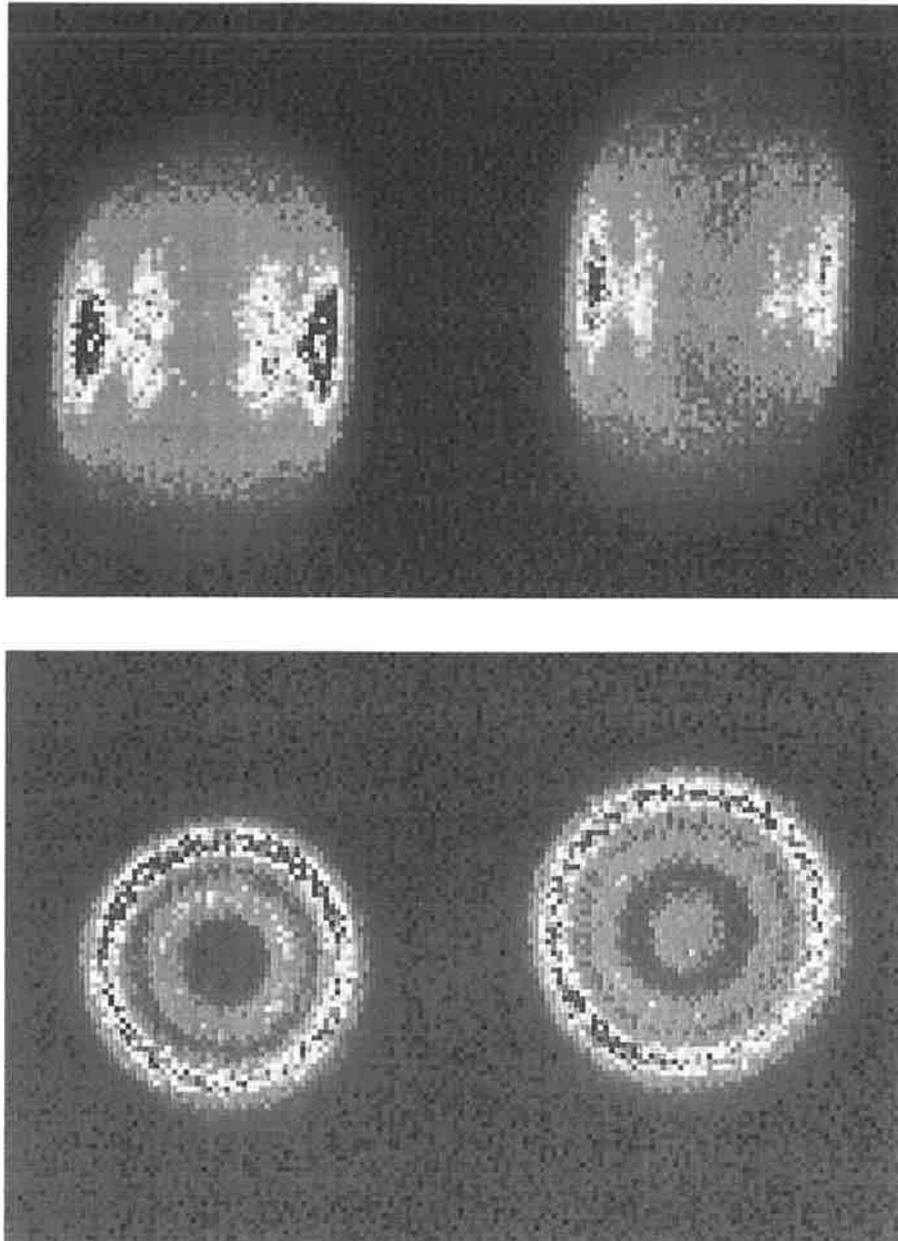


figure 5.5 : images obtenues lors de deux expériences de photodétachement en configuration double passage. En haut, nous sommes en type transverse, en bas en type axial. Les énergies cinétiques sont sensiblement identiques dans les deux cas. L'échelle des deux cadres est de 104x154 pixels, soit 2,7x4,0 mm

5.5 Photodétachement de ^{18}O , ^{17}O et de ^{19}F

L'oxygène 16 n'est pas le seul isotope utilisable. Nous avons enregistré quelques images avec l'oxygène 17 et l'oxygène 18 (représentées dans la figure 5.6). Or le mélange naturel est constitué de 99,757 % d'oxygène 16, de 0,038 % d'oxygène 17 et de 0,205% d'oxygène 18. La possibilité d'enregistrer des images sur des isotopes de très faible abondance naturelle illustre la très grande sensibilité du microscope de photodétachement.

L'oxygène 18 possède la même structure de niveaux que l'oxygène 16, et de fait, nous obtenons des images sensiblement identiques. Les images relatives à ^{17}O sont moins contrastées car cet isotope possède un spin nucléaire non nul $I = 5/2$, donc les niveaux fondamentaux de l'ion et de l'atome possèdent une structure hyperfine. Le brouillage partiel des images résulte d'une superposition incohérente de taches d'énergies légèrement différentes.

La dernière image a été obtenue avec $^{19}\text{F}^-$. Seul le niveau fondamental de l'atome possède une structure hyperfine. L'image est la superposition de deux images d'énergies peu différentes. Les anneaux devraient être plus visibles que dans le cas de ^{17}O . Cependant, les expériences sur le fluor sont réalisées avec un laser UV ne fournissant que 30 mW et les images, de ce fait, pâtissent d'un taux de comptage moins élevé.

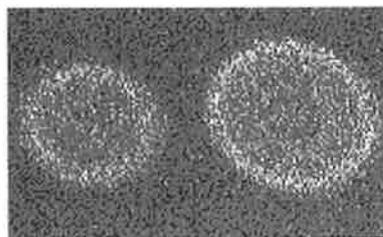
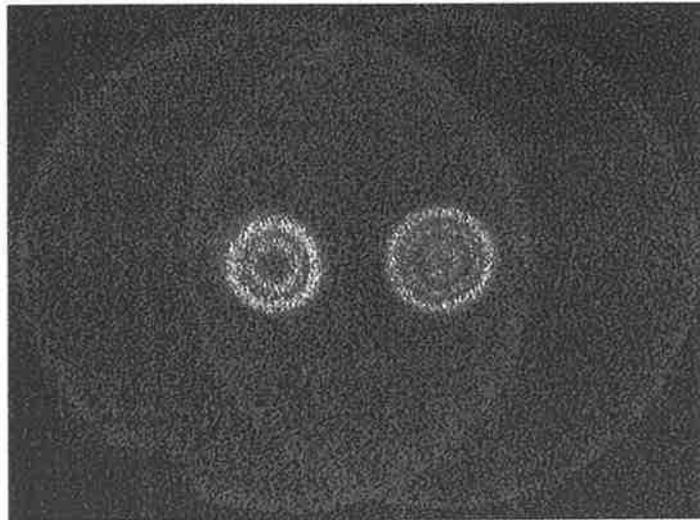
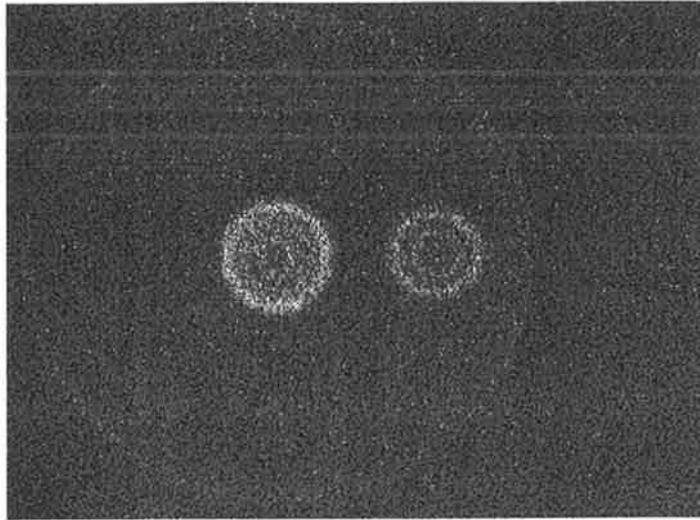


figure 5.6 : en haut : photodétachement de ^{17}O ; au milieu : ^{18}O . L'échelle du cadre est de 9x7 mm dans les deux cas. Comme dans le cas de l'oxygène 16, des anneaux classiques dus aux autres seuils apparaissent. En bas : interférences avec ^{19}F (cadre 2,3x3,7 mm).

5.6 Défauts du dispositif de détection

La figure 5.7, obtenue par bombardement électronique uniforme du détecteur, permet de bien appréhender les problèmes posés par le dispositif de détection. L'utilisation intensive d'une même zone a pour effet d'y diminuer l'amplification des électrons ; cette zone apparaît moins lumineuse qu'une zone non abîmée. La fatigue locale des galettes de microcanaux est visible dans les taches noires près de l'encoche, zones où les motifs d'interférence sont d'habitude détectés. On voit aussi une série de cercles noirs qui constituent la marque des cercles brillants des taches dues aux autres seuils de détection. De plus, le signal de détection moyen diminue au fur et à mesure de la fatigue. Cette diminution entraîne une détérioration progressive de la qualité des images (images floues, d'intensité non homogène).

Pour rétablir une amplification correcte, il faut réajuster la différence de potentiel entre les galettes de microcanaux extrêmes. Cette opération effectuée avant chaque nouvelle acquisition d'image permet de retrouver un signal de détection moyen correct, celui qui donne une résolution maximale au détecteur. Pour rétablir une plus grande uniformité de la réponse du détecteur, on peut réajuster le partage des tensions appliquées sur chaque galette. Nous l'avons fait une fois (cette image date d'avant le réglage) et nous avons alors constaté que le signal de réponse à une illumination uniforme du détecteur redevient uniforme. Une autre solution est de faire pivoter le détecteur de temps à autre pour ne pas exposer toujours le même endroit et donc pour fatiguer uniformément le détecteur. Nous avons également fait une fois cette opération.

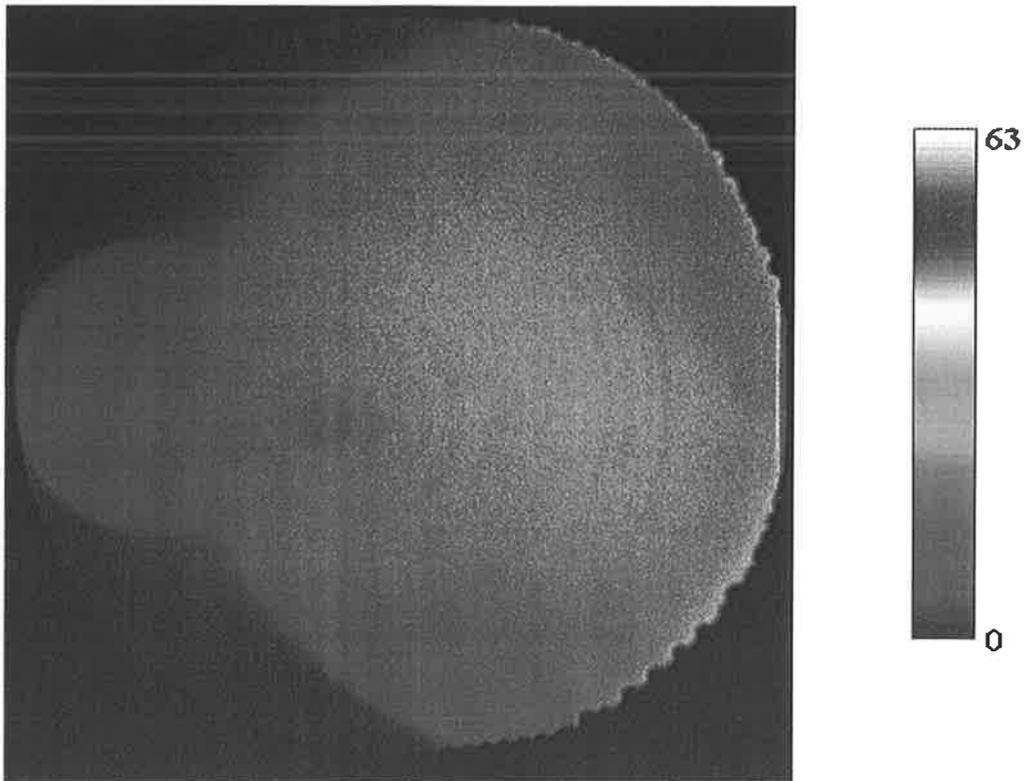


figure 5.7 : problème de fatigue du détecteur. Cette image est obtenue en illuminant de façon uniforme le détecteur. Nous constatons des "trous" de détection à certains endroit du détecteur (zones noires près de l'encoche et cercles concentriques sombres au milieu du détecteur). Ces "zones de fatigue" amplifient moins les impacts électroniques.

Chapitre 6

Analyse des images

6.1 Introduction.

L'expérience, décrite aux chapitres précédents, nous fournit des images expérimentales de taches d'interférences électroniques axiales ou transversales et nous connaissons l'expression analytique théorique de la densité de courant idéale dans ces images. Comme nous l'avons signalé précédemment, une mesure précise de l'énergie cinétique des électrons est obtenue par une mesure de la phase de la figure d'interférence. Il nous suffit donc de reproduire cette figure d'interférence grâce à l'expression théorique pour avoir alors accès à cette énergie cinétique.

Mais cette description théorique repose sur des hypothèses telles que ponctualité de la source, uniformité du champ électrique et résolution infinie du détecteur. Dans la réalité, ces conditions ne sont jamais absolument satisfaites. Pour tenir compte de ces imperfections, il faut introduire dans l'expression théorique un ensemble de paramètres qui, par ajustement, permettent de reproduire plus fidèlement les données expérimentales.

L'ajustement, effectué par une méthode de moindres carrés, est décrit dans ce chapitre. Dans un premier temps, j'exposerai quel mode d'ajustement doit être utilisé selon le type de taches expérimentales. Chaque mode est lié à une fonction particulière que nous déterminons au paragraphe 3. Le paragraphe 4 détaille les particularités de l'algorithme et les solutions numériques retenues pour sa programmation sont décrites au dernier paragraphe.

6.2 Choix de la stratégie d'ajustement.

L'étude du mouvement d'un électron (ou d'une particule chargée) dans un champ électrique s'appuie sur la symétrie de révolution autour de l'axe du champ. La densité de courant, bien que répartie dans un plan, ne dépend que d'une variable : la distance à l'axe.

Les images expérimentales sont définies sur un plan. Nous avons donc le choix entre deux stratégies : soit ajuster directement la densité de courant mesurée dans le plan (ajustement bidimensionnel), soit réduire les données en une représentation ne dépendant plus que d'une variable d'espace qui sera comparée à la densité théorique (ajustement unidimensionnel).

6.2.1 Taches issues d'une configuration axiale

Dans ce schéma expérimental, nous devrions observer des anneaux d'interférence circulaires. *A priori*, nous pourrions facilement réduire cette image à une description unidimensionnelle en calculant l'histogramme du nombre d'impacts d'électrons en fonction de la distance au centre de l'image, qui constitue l'histogramme radial des impacts.

Malheureusement, on a vu au chapitre 5 que les figures d'interférence sont légèrement ovales (figure 5.3 et 5.4). Si, par traitement d'image pur, il est aisé de réduire une tache ronde en un histogramme radial, il est en revanche plus compliqué de déduire un histogramme radial exact d'une image ovale. Il n'existe, en effet, qu'une façon de décrire théoriquement une tache circulaire mais une infinité pour décrire une tache ovale. L'incertitude de la forme fait donc qu'il est facile de créer des erreurs dans la distribution radiale de courant. Pour réduire ce type d'erreur, le seul moyen est de faire un ajustement bidimensionnel de la figure d'interférence qui estime, entre autres, la géométrie la plus conforme aux données initiales. Cette estimation de la forme constitue "l'ajustement géométrique" de la figure d'interférence.

En outre, les images présentent des différences de résolutions spatiales suivant deux axes perpendiculaires. Si nous transformions l'image en un histogramme radial, nous perdriions cette caractéristique et dégraderions par conséquent l'information enregistrée.

Toutes les taches axiales ont donc fait l'objet d'un ajustement bidimensionnel.

6.2.2 Taches transversales

Les anneaux d'interférence se transforment dans cette configuration en franges d'interférences dont l'axe est parallèle à la direction de propagation du laser (voir figure 5.5).

Nous pourrions comme précédemment faire un ajustement bidimensionnel de ces images. Mais l'information cruciale est le motif interférentiel ; rien ne sert de traiter une partie de l'image qui ne le contient plus. On peut donc, sans perte supplémentaire d'information, effectuer une sommation du contenu des pixels suivant l'axe de brouillage. Il en résulte un histogramme selon l'axe perpendiculaire, nommé Ox . L'ajustement effectué est unidimensionnel.

6.3 Obtention des fonctions d'ajustement

Le but de ce paragraphe est de présenter la modélisation du maximum de phénomènes perturbateurs possibles et de donner une expression de la fonction théorique la plus proche de la réalité expérimentale. Nous distinguerons à cette fin les deux types d'expériences qui nécessitent chacun un traitement différent.

6.3.1 Expériences axiales

On rappelle la forme théorique de la densité de courant électronique dans un champ électrique uniforme de module F à travers une surface située à une distance z_0 du point source en fonction de la distance au centre de l'image ρ :

$$j_{-z_0}(\varepsilon, \rho) = j_0 \text{Ai}^2 \left[\frac{1}{\lambda_0} \left(\frac{\rho^2}{4z_0} - \frac{\varepsilon}{eF} \right) \right] = j_0 \text{Ai}^2 \left[\frac{1}{\lambda_0} \left(\frac{\rho^2}{4z_0} - a \right) \right] \quad (6.1)$$

où ε représente l'énergie cinétique de l'électron éjecté, \mathcal{A} est une constante de normalisation (voir formule 3.25) et λ_0 est donné par :

$$\lambda_0 = \left[\frac{\hbar^2}{2m eF} \right]^{\frac{1}{3}} \text{ avec } m \text{ désignant la masse de l'électron.}$$

Les trois systèmes de coordonnées cartésiennes que nous utilisons sont (voir figure 6.1) :

- le repère lié au détecteur (O, x, y)
- le repère des sources (O', x', y', z') est défini comme suit :

O' est au centre de la zone d'interaction définie par l'intersection entre le jet d'ion et le laser

$O'x'$ possède le sens et la direction du jet d'ions

$O'z'$ est parallèle au champ électrique et de direction opposée

$O'y'$ est tel que le trièdre ($O'x', O'y', O'z'$) est direct.

- le repère lié à l'ellipse (O'', x'', y''). L'axe $O''x''$ est parallèle au grand axe de cette ellipse et $O''y''$ au petit axe

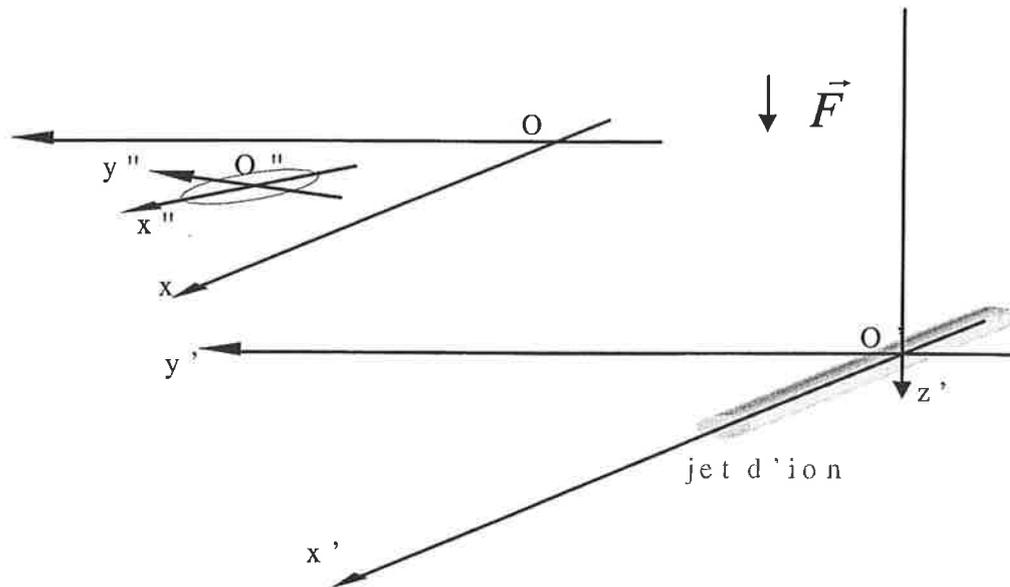


figure 6.1 : les différents repères utilisés pour le calcul de la fonction d'ajustement. Les lettres non primées représentent le repère lié au détecteur. Les lettres primées désignent celui lié au jet. Enfin, les lettres doublement primées appartiennent au repère lié à l'ellipse.

6.3.1.1 Obtention de la géométrie de la figure

Pour tenir compte de l'ellipticité des taches, ellipticité dont les axes principaux sont selon les directions x'' et y'' , on définit un rayon effectif ρ par la relation $\rho^2 = C_1 x''^2 + C_2 y''^2$, avec C_1 et C_2 strictement positifs.

Dans le repère lié au détecteur (O, x, y) , le centre de la tache est défini par les coordonnées (x_c, y_c) (figure 6.2) et x'' et y'' s'écrivent :

$$\begin{aligned} x'' &= (x - x_c) \cos \alpha - (y - y_c) \sin \alpha \\ y'' &= (x - x_c) \sin \alpha + (y - y_c) \cos \alpha \end{aligned}$$

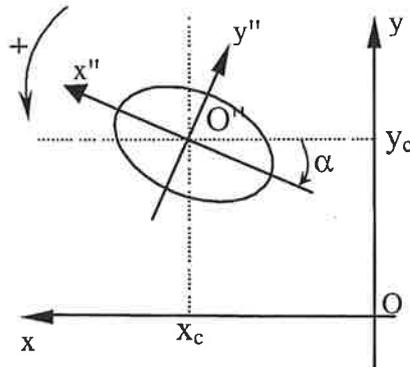


figure 6.2 : Dans le repère (O, x, y) du détecteur, définition des coordonnées (x_c, y_c) du centre de l'ellipse et de l'angle d'inclinaison α du grand axe de l'ellipse par rapport à l'axe Ox du détecteur. Le repère propre de l'ellipse est aussi représenté.

Dans le repère du détecteur, la distance entre un point de l'image et le centre de la figure est une fonction des coordonnées du centre et des coordonnées (x, y) donnée par :

$$\rho^2(x, y, x_c, y_c) = C_1 [(x - x_c) \cos \alpha - (y - y_c) \sin \alpha]^2 + C_2 [(x - x_c) \sin \alpha + (y - y_c) \cos \alpha]^2 \quad (6.2)$$

6.3.1.2 Influence de l'étendue de la source

Nous avons montré au chapitre 4.5.2 que la dimension de la zone d'interaction va induire un brouillage de l'image par superposition incohérente de figures d'interférence issues des divers points sources. La densité de courant totale $J_{-z_0}^a$ sur le détecteur placé en $z=-z_0$ est donc égale à la somme sur le volume d'interaction des densités de courant produites par chaque ion-source pondérée par la distribution de ces ions dans le volume d'interaction, soit :

$$J_{-z_0}^a(\varepsilon, x, y) = \iiint_{\text{volume de croisement}} j_{-z_0+z'}(\varepsilon, x, y, x_{cg} + x', y_{cg} + y') f(x', y', z') dx' dy' dz' \quad (6.3)$$

où f représente la distribution d'ions-sources, (x_{cg}, y_{cg}) correspond aux coordonnées du centre de la figure d'interférence (dans le repère du détecteur) produite par un ion placé en O' et (x', y', z') désigne les coordonnées d'un ion-source dans le repère des sources (voir figure 6.3).

Le détachement laser n'est pas saturé. La distribution des ions-sources est donc proportionnelle au produit de la distribution d'intensité lumineuse \mathcal{S} par la distribution des ions dans le jet D .

Si on fait l'hypothèse que les ions ont une distribution gaussienne de largeur à $1/e$ égale à R_I selon une section droite du jet et que cette distribution ne varie pas le long du jet, cette distribution s'écrit :

$$D(x', y', z') \propto \exp\left(-\frac{y'^2 + z'^2}{R_I^2}\right).$$

Le faisceau laser que nous utilisons pour le détachement, de l'oxygène d'une part et du fluor d'autre part, est gaussien. Il est focalisé sur le jet avec un waist d'environ 25 μm , ce qui correspond à une longueur de Rayleigh d'environ 2,3 mm pour l'oxygène et 5,4 mm pour le fluor. En général, le rayon R_I du jet est de l'ordre de 300 μm . Ainsi entre les cotes z_I (figure 6.3) où le jet et le laser commencent à se croiser et $-z_I$ où ils achèvent ce croisement, la section ne varie que de 8 % pour l'oxygène et de 1,5 % pour le fluor. Nous pouvons alors simplifier la description en supposant, ce qui constitue une très bonne approximation, que la section et par conséquent l'intensité lumineuse ne varient pas pendant la traversée du jet d'ions. En outre, l'angle de 3° que fait le laser avec la verticale est suffisamment faible pour qu'on puisse traiter le faisceau comme s'il était vertical. La distribution d'intensité lumineuse s'écrit alors :

$$\mathcal{G}(x', y', z') \propto \exp\left(-2 \frac{x'^2 + y'^2}{w_0}\right).$$

La distribution d'ions sources f est égale à :

$$f(x', y', z') = N \exp\left[-\left(\frac{2x'^2}{w_0} + \frac{y'^2}{R^2} + \frac{z'^2}{R_l^2}\right)\right] \quad \text{avec} \quad \frac{1}{R^2} = \frac{2}{w_0^2} + \frac{1}{R_l^2}$$

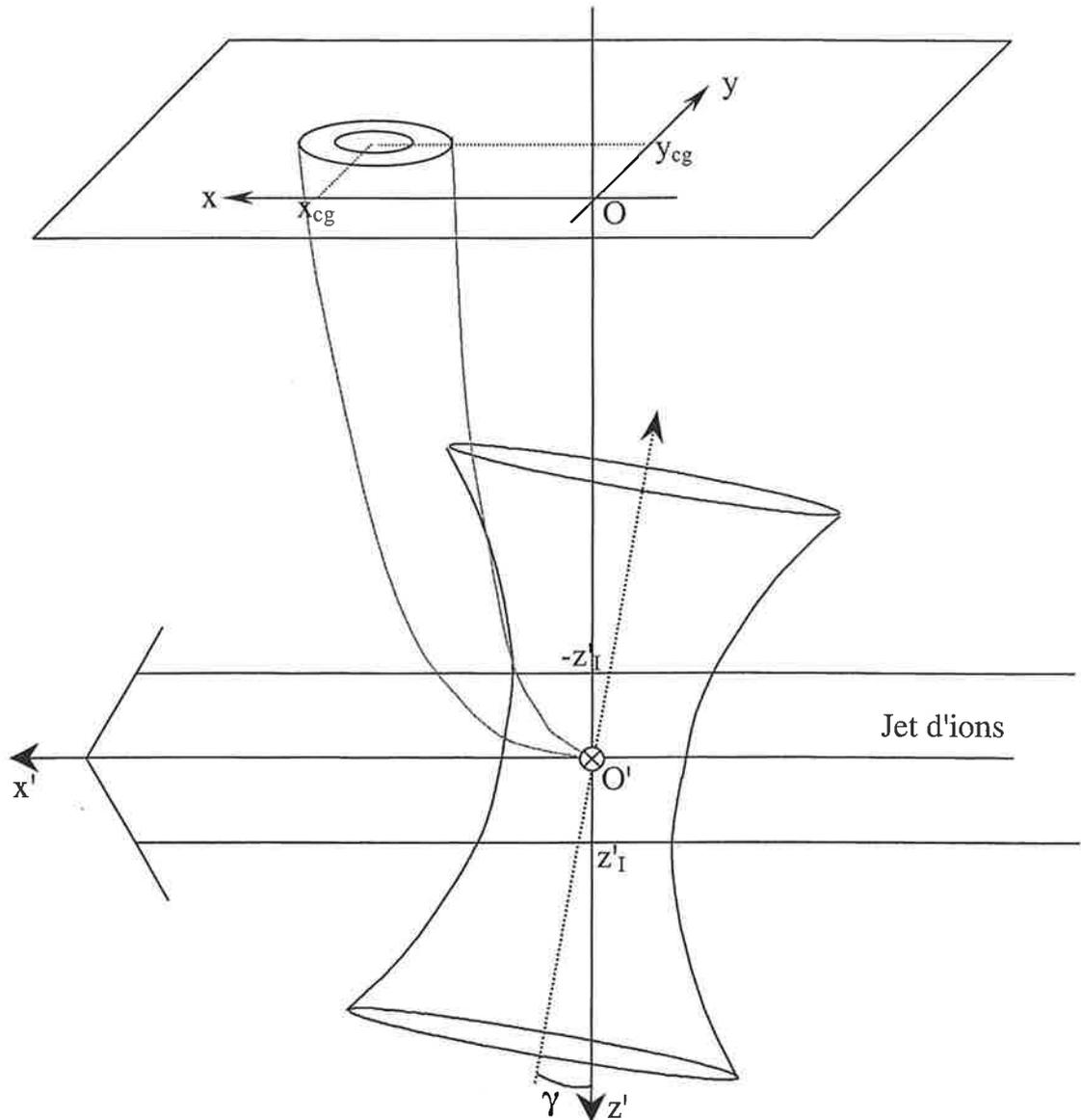


figure 6.3: représentation schématique de l'intersection du laser et du jet d'ions. L'axe de propagation du laser, z'_l , est incliné de 3° par rapport à la verticale ; z'_l et $-z'_l$ sont les cotes respectives de l'intersection du laser et du jet

La relation (6.4) se réécrit :

$$J_{-z_0}^a = N \int_{-x_I}^{x_I} \int_{-y_I}^{y_I} \int_{-z_I}^{z_I} e^{-\left(\frac{2x'^2}{w_0^2} + \frac{y'^2}{R^2} + \frac{z'^2}{R_I^2}\right)} j_{-z_0+z'}(\varepsilon, x, y, x', y') dx' dy' dz' \quad (6.4)$$

Les coordonnées x_I, y_I, z_I correspondent aux limites de la zone d'interaction. Comme $z_I = 300 \mu\text{m} \ll z_0$, nous pouvons négliger la variation de la hauteur de chute dans la densité de courant, $z_0 - z' \approx z_0$. Ainsi, l'intégration selon la coordonnée z' ne donne qu'une constante. Les intégrands étant des gaussiennes, nous pouvons étendre les bornes d'intégration à tout l'espace. Le changement de variable $x^a = x - x'$ et $y^a = y - y'$ permet de simplifier la relation (6.4) :

$$J_{-z_0}^a(\varepsilon, x, y) \propto \iint_{-\infty}^{\infty} e^{-\left[\frac{2(x-x^a)^2}{w_0^2} + \frac{(y-y^a)^2}{R^2}\right]} \text{Ai}^2 \left[\frac{1}{\lambda_0} \left(\frac{\rho^2(x^a, y^a, x_{cg}, y_{cg})}{4z_0} - a \right) \right] dx^a dy^a \quad (6.5)$$

Le brouillage spatial dû à l'étendue de la source prend la forme d'une convolution de la fonction densité de courant par une gaussienne bidimensionnelle.

6.3.1.3 Autres causes de perte de résolution spatiale

La résolution finie du détecteur participe également à la dégradation de la résolution spatiale. En effet, comme nous l'avons vu dans le chapitre 4, la fonction de réponse du détecteur à l'arrivée parfaitement localisée d'un électron est une gaussienne de largeur à mi-hauteur $62,5 \mu\text{m}$.

La colonne de champ électrique uniforme peut aussi être une cause de brouillage du motif interférentiel. Un calcul du champ électrique dans la colonne montre qu'il est uniforme dans une zone proche de l'axe de la colonne, mais qu'il fluctue légèrement hors de cet axe. Suivant la position de l'ion négatif, le champ impliqué dans la création du motif change et joue à la fois sur la taille de la figure et sur le nombre d'anneaux. Pour des raisons de simplicité, nous considérons que cet effet induit un brouillage purement spatial que

nous modélisons par une convolution de la fonction obtenue au paragraphe précédent par une fonction gaussienne spatiale bidimensionnelle.

On modélise l'ensemble des deux effets en convoluant la fonction (6.5) par une gaussienne dont les axes principaux ne sont pas les axes de référence du détecteur. L'axe principal X fait avec l'axe Ox du détecteur un angle ζ ; la largeur à $1/e$ de la gaussienne selon cet axe est notée R_X . Le second axe, Y , est perpendiculaire au premier et la largeur est notée R_Y . La fonction de flou est ainsi égale à :

$$fl(x, y) = \frac{1}{\pi R_X R_Y} \exp - \left[\left(\frac{X}{R_X} \right)^2 + \left(\frac{Y}{R_Y} \right)^2 \right] \text{ avec } \begin{cases} X = x \cos \zeta + y \sin \zeta \\ Y = -x \sin \zeta + y \cos \zeta \end{cases}$$

La densité de courant résultante est déterminée par :

$$\mathcal{J}_{-z_0}^a(\varepsilon, x, y) = \iint_{x^{fl}, y^{fl}} fl(x^{fl} - x, y^{fl} - y) J_{-z_0}^a(\varepsilon, x^{fl}, y^{fl}) dx^{fl} dy^{fl}.$$

En injectant l'expression (6.5), on fait apparaître deux intégrations n'impliquant pas la fonction d'Airy :

$$\iint_{x^{fl}, y^{fl}} e^{- \left[\left(\frac{(x^{fl} - x) \cos \zeta + (y^{fl} - y) \sin \zeta}{R_X} \right)^2 + \left(\frac{-(x^{fl} - x) \sin \zeta + (y^{fl} - y) \cos \zeta}{R_Y} \right)^2 + \frac{2(x^{fl} - x)^2 + (y^{fl} - y)^2}{w_0^2} + \frac{(y^{fl} - y)^2}{R^2} \right]} dx^a dy^a$$

C'est la convolution de deux gaussiennes. On calcule facilement que la fonction résultante est une exponentielle dont l'argument peut se mettre sous la forme :

$$- \left\{ \frac{\left[(x - x^{fl}) \cos \delta + (y - y^{fl}) \sin \delta \right]^2}{R_b^2} + \frac{\left[-(x - x^{fl}) \sin \delta + (y - y^{fl}) \cos \delta \right]^2}{R_d^2} \right\}.$$

Le terme entre crochets est une quadrique représentant une ellipse dont les axes principaux sont susceptibles d'être différents des axes de référence du détecteur ; l'axe principal de l'ellipse fait avec l'axe Ox un angle δ .

La fonction densité de courant s'écrit après un changement de variable approprié :

$$\mathcal{J}(\varepsilon, x, y) = C \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\left(b^2 + d^2\right)} Ai^2 \left[\frac{1}{\lambda_0} \left(\frac{u}{4z_0} - a \right) \right] db dd \quad (6.6)$$

avec $u = \rho^2 (x - bR_b \cos \delta + dR_d \sin \delta, y - bR_b \sin \delta - dR_d \cos \delta, x_{cg}, y_{cg})$

L'ensemble des pertes de résolution spatiale peut donc être modélisé par une convolution spatiale par une gaussienne bidimensionnelle.

6.3.1.4 Résolution en énergie

La dispersion énergétique est une cause supplémentaire de brouillage du motif interférentiel, dont l'effet n'est pas identique au brouillage spatial. Supposons que les électrons émis du point source possèdent toute énergie cinétique ε comprise dans l'intervalle $[\varepsilon_0 - \Delta\varepsilon / 2, \varepsilon_0 + \Delta\varepsilon / 2]$. L'image résultante est la somme d'images obtenues avec tous les rayons et tous les nombres d'anneaux correspondants. Comme le rayon maximum varie en $\varepsilon^{1/2}$ et le nombre d'anneaux en $\varepsilon^{3/2}$, la variation relative du nombre d'anneaux est trois fois plus rapide que celle du rayon maximum et l'effet prépondérant est un brouillage par modification de la phase.

La dispersion d'énergie dans l'expérience est due à l'effet Doppler. Les faisceaux laser et d'ions ne se croisent pas à angle droit. L'énergie du photon vue par l'ion en mouvement est par décalage Doppler égale, au premier ordre en v/c , à :

$$E_L^{Doppler} = E_L \left(1 - \frac{v}{c} \cos \theta \right)$$

où E_L représente l'énergie nominale du laser, θ est l'angle Doppler défini dans la figure 6.4 et v le module du vecteur vitesse des ions. Le faisceau laser est gaussien. Il a donc une ouverture angulaire autour de sa direction de propagation que nous notons $\Delta\theta_k$ (voir figure 6.4 ci-dessous).

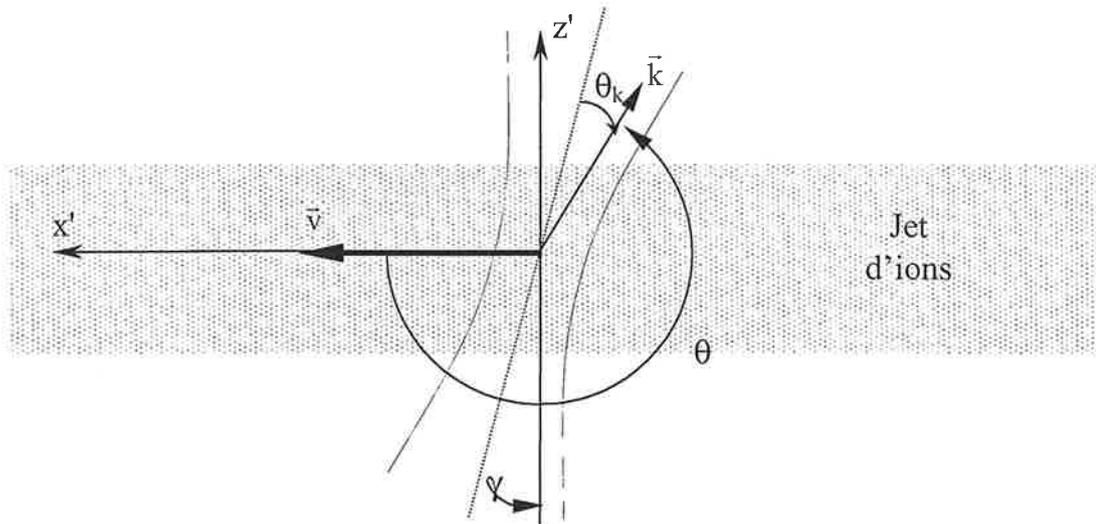


figure 6.4 : définition des angles dans la zone d'interaction (les angles ont été grandement exagérés pour des raisons de clarté) ; θ est l'angle Doppler entre le vecteur vitesse des ions \vec{v} et le vecteur d'onde du faisceau \vec{k} , γ représente l'angle entre la direction de propagation du laser et la verticale et θ_k désigne l'angle entre la direction de propagation du faisceau et le vecteur d'onde \vec{k} .

L'énergie cinétique ε de l'électron détaché est la différence entre l'énergie vue par l'ion en mouvement et l'affinité de l'ion et peut donc s'écrire :

$$\varepsilon = E_L \left(1 - \frac{v}{c} \cos \theta \right) - E_A \quad \text{avec} \quad \theta = \frac{3\pi}{2} - \gamma + \theta_k \quad (6.7).$$

Si θ_k varie de $\Delta\theta_k$, ε varie de $\Delta\varepsilon = |E_L(v/c)\Delta\theta_k|$. Dans le cas de l'oxygène, la longueur d'onde nominale de détachement est d'environ 848,5 nm, l'ouverture est de l'ordre de 1,2° et la vitesse des ions de 77 km.s⁻¹. La dispersion en énergie est alors de 0,064 cm⁻¹.

Pour tenir compte de cette dispersion d'énergie, la fonction (6.6) est convoluée par une gaussienne énergétique de demi-largeur à 1/e égale à $\delta\varepsilon$. La fonction d'ajustement est ainsi après changement de variable d'intégration en énergie :

$$\mathcal{J}^{axial}(\varepsilon, x, y) = C \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\left(b^2 + d^2 + c^2\right)} \text{Ai}^2 \left[\frac{1}{\lambda_0} \left(\rho^2 - \frac{\varepsilon + c\delta\varepsilon}{eF} \right) \right] da db dc \quad (6.8)$$

$$\text{où } \rho^2 = C_1[(x-x_{cg}-bR_b \cos\delta + dR_d \sin\delta)\cos\alpha + (y-y_{cg}-bR_b \sin\delta - dR_d \cos\delta)\sin\alpha]^2 + \\ C_2[-(x-x_{cg}-bR_b \cos\delta + dR_d \sin\delta)\sin\alpha + (y-y_{cg}-bR_b \sin\delta - dR_d \cos\delta)\cos\alpha]^2$$

Pour tenir compte des électrons parasites provenant de collisions entre ions dans la zone d'interaction et des électrons participant à d'autres anneaux (voir figure 5.1), il faut rajouter dans la densité de courant définie par (6.8) un fond continu. Cette densité de courant finale s'écrit :

$$J_{final}(x, y, \varepsilon) = \mathcal{J}_0 + \mathcal{J}^{axial}(x, y, \varepsilon) \quad (6.9)$$

où \mathcal{J}_0 représente la densité de courant continue

6.3.2 Expériences transverses

Les figures d'interférence sont ici des franges et conformément au paragraphe 6.2.2, leur ajustement sera unidimensionnel. Pour établir la fonction correspondante, nous supposons que la figure d'interférence de base est elliptique avec des axes principaux selon les axes de référence du détecteur et donc décrite par la formule suivante, basée sur la formule (6.1) :

$$j_{-z_0}(\varepsilon, x, y) = j_0 \text{Ai}^2 \left\{ \frac{1}{\lambda_0} \left[\frac{C_1(x-x_c)^2 + C_2(y-y_c)^2}{4z_0} - a \right] \right\} \quad (6.10)$$

L'effet de brouillage spatial par la taille de la source, l'inhomogénéité de champ et la résolution finie du détecteur est modélisé de la même façon que pour la formule axiale (6.6), c'est-à-dire par une convolution de la fonction (6.10) par une gaussienne spatiale bidimensionnelle dont l'argument est une quadrique représentant une ellipse d'axes principaux non nécessairement parallèles aux axes du détecteur. Le grand axe de l'ellipse fait avec l'axe Ox du détecteur un angle δ . La densité de courant obtenue s'écrit alors :

$$J_{-z_0}(\varepsilon, x, y) \propto$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\left[\left(\frac{X}{R_x}\right)^2 + \left(\frac{Y}{R_y}\right)^2\right]} \text{Ai}^2 \left\{ \frac{1}{\lambda_0} \left[\frac{C_1(x'-x_{cg})^2 + C_2(y'-y_{cg})^2}{4z_0} - a \right] \right\} dx' dy'$$

avec $X = (x-x') \cos\delta + (y-y') \sin\delta$ et $Y = -(x-x') \sin\delta + (y-y') \cos\delta$

Nous devons maintenant sommer selon Oy . La variable y n'étant présente que dans l'exponentielle, le calcul revient à intégrer une fonction gaussienne en y . La densité de courant devient :

$$\mathcal{J}_{-z_0}(\varepsilon, x) = C \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\left(\frac{x-x'}{R_x}\right)^2} \text{Ai}^2 \left\{ \frac{1}{\lambda_0} \left[\frac{C_1(x'-x_{cg})^2 + C_2(y'-y_{cg})^2}{4z_0} - a \right] \right\} dy' dx'$$

En effectuant les changements de variables suivants :

$$x' = x - nR_x \text{ et } u = \sqrt{\frac{C_2}{4\lambda_0 z_0}} (y' - y_{cg}),$$

nous obtenons :

$$\mathcal{J}^t(\varepsilon, x) = C \int_{-\infty}^{\infty} e^{-n^2} \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} \text{Ai}^2 \left\{ u^2 + \frac{1}{\lambda_0} \left[\frac{C_1(x - x_{cg} - nR_x)^2}{4z_0} - a \right] \right\} du \right\} dn$$

Nous tenons compte du brouillage énergétique par une gaussienne énergétique comme dans la formule (6.8).

La fonction d'ajustement finale dans les expériences de type transversal est, en tenant compte de la densité de courant continue :

$$\boxed{\mathcal{J}_{\text{final}}^t(\varepsilon, x) = \mathcal{J}_0 + C \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-(n^2 + c^2)} \int_{-\infty}^{\infty} \text{Ai}^2 \left\{ u^2 + \frac{1}{\lambda_0} \left[\frac{C_1(x - x_{cg} - nR_x)^2}{4z_0} - \frac{\varepsilon + c\delta\varepsilon}{eF} \right] \right\} du \, dn \, dc \quad (6.11)}$$

On déduit la densité de courant finale en sommant selon l'axe Oy , axe des franges, une figure d'interférence bidimensionnelle et en convoluant ensuite

le résultat par deux gaussiennes, spatiale (selon l'axe perpendiculaire à l'axe des franges) et énergétique.

6.4 La méthode d'ajustement

La forme obtenue pour la fonction d'ajustement permet de reproduire de façon réaliste les données expérimentales. Pour cela, nous avons à notre disposition des paramètres dont nous pouvons à notre guise faire varier la valeur. Ce sont toutes les variables introduites dans les formules (6.8), (6.9) et (6.11) dont la valeur n'est pas précisément connue dans l'expérience. Il en va ainsi de la valeur de ε ; l'énergie apportée par le laser est très précisément connue mais l'angle Doppler est, lui, très mal défini. Les résolutions spatiales globales et la résolution énergétique varient suffisamment d'une image à l'autre pour qu'on ne puisse leur attribuer une valeur fixe. Pour reproduire le plus exactement possible les images, ces paramètres doivent être ajustés.

6.4.1 Critère d'exactitude d'un ajustement [BEV69]

Chaque image obtenue par photodétachement fournit, comme ensemble de points de données, l'intensité \mathcal{I}_i de chaque pixel de l'image repéré par son vecteur de coordonnée $\mathbf{x}_i=(x_i, y_i)$. Chaque image possède N pixels. L'intensité \mathcal{I}_i de chaque pixel correspond au nombre d'électrons que le pixel a reçus. Ce comptage d'électrons en chaque pixel est soumis à une loi de distribution poissonnienne. Si le nombre d'électrons est grand, cette loi est équivalente à une loi gaussienne. Ainsi, la probabilité que l'intensité sur chaque pixel soit \mathcal{I}_i est de la forme :

$$P_i(\mathcal{I}) = \frac{1}{\sigma_i \sqrt{2\pi}} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left[\frac{\mathcal{I}_i - \mathcal{I}}{\sigma_i} \right]^2 \right\} \quad \text{avec} \quad \sigma_i = \sqrt{\mathcal{I}_i}$$

Nous voulons reproduire l'intensité des pixels par une fonction de la forme $\mathcal{I} = f(\mathbf{x}, \mathbf{a})$ où \mathbf{a} représente l'ensemble des paramètres qu'on ajuste pour reproduire l'image. En supposant que la probabilité, pour un vecteur de paramètres \mathbf{a} donné, d'avoir l'intensité \mathcal{I}_i soit une gaussienne de demi largeur à

$1/e^{1/2}$, σ_i , centrée autour de \mathcal{I}_i alors la probabilité de reproduire l'image en entier est :

$$P(\mathbf{a}) = \left(\prod_{i=1}^N \frac{1}{\sigma_i \sqrt{2\pi}} \right) \exp \left[-\frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \left(\frac{\mathcal{I}_i - f(\mathbf{x}_i, \mathbf{a})}{\sigma_i} \right)^2 \right].$$

Le meilleur vecteur de paramètres \mathbf{a} est celui qui donne la probabilité maximum. De façon équivalente, le vecteur de paramètres \mathbf{a} qui permet de décrire le mieux l'image est celui qui rend minimum la quantité

$$\chi^2 = \sum_i \left(\frac{\mathcal{I}_i - f(\mathbf{x}_i, \mathbf{a})}{\sigma_i} \right)^2.$$

Ce type d'ajustement est un ajustement aux moindres carrés.

6.4.2 L'algorithme d'ajustement

Il faut donc trouver le minimum de χ^2 , fonction des paramètres \mathbf{a} . Si $f(\mathbf{x}, \mathbf{a})$ est une fonction affine de \mathbf{a} , on calcule ce minimum en annulant chaque dérivée partielle de χ^2 par rapport à chacun des paramètres, $\partial_{a_j} \chi^2 = 0$. La solution dans ce cas est analytique.

Mais dans notre cas, f est une fonction non linéaire des paramètres \mathbf{a} . L'obtention d'une expression analytique pour le minimum de χ^2 est en général impossible de sorte qu'une méthode numérique de recherche de minima est nécessaire. Il faut en outre garder à l'esprit que χ^2 est une fonction multidimensionnelle des J paramètres a_j et donc qu'elle peut posséder une multitude de minima locaux en plus du minimum global. La méthode doit être itérative et basée sur le schéma suivant : on donne à chaque a_j une valeur qu'on estime peu éloignée de la valeur réelle (le minimum global aura une chance plus grande de se trouver dans le voisinage) ; cela détermine la valeur de départ, $\chi_a^2 = \chi^2(\mathbf{a})$; on calcule un déplacement $\delta \mathbf{a}$ de \mathbf{a} tel que $\chi^2(\mathbf{a} + \delta \mathbf{a}) < \chi^2(\mathbf{a})$; $\mathbf{a} + \delta \mathbf{a}$ définit alors un nouveau jeu de valeur pour les paramètres et on recommence jusqu'à ce que la variation de χ^2 soit petite.

Il existe plusieurs méthodes pour déterminer $\delta \mathbf{a}$.

6.4.2.1 Méthode par développement de Taylor (type I)

[MAR63], [NUM89a], [BEV69]

Pour \mathbf{a} fixé, nous cherchons un $\delta\mathbf{a}$ tel que $\chi^2 = \sum_{i=1}^N \frac{[y_i - f(x_i, \mathbf{a} + \delta\mathbf{a})]^2}{\sigma_i^2}$ soit minimal. Pour cela nous développons f en série de Taylor au second ordre en $\delta\mathbf{a}$:

$$f(x_i, \mathbf{a} + \delta\mathbf{a}) = f(x_i, \mathbf{a}) + \sum_{k=1}^J \left[\frac{\partial f(x_i, \mathbf{a})}{\partial a_k} \right] \delta a_k + \frac{1}{2} \sum_{k=1}^J \sum_{l=1}^J \left[\frac{\partial^2 f(x_i, \mathbf{a})}{\partial a_k \partial a_l} \right] \delta a_k \delta a_l$$

Le déplacement devant nous mener au point où χ^2 est minimal, la dérivée de χ^2 par rapport à chaque δa_j doit s'annuler. En négligeant les termes d'ordre 2 ou supérieur en δa_j et les dérivées secondes de f par rapport aux dérivées premières (quand on se trouve près du minimum), la condition d'annulation des dérivées du χ^2 mène à la relation suivante :

$$\forall j, \beta_j = \sum_{k=1}^J a_{jk} \delta a_k \quad \text{où} \quad \beta_j = \sum_{i=1}^N \frac{y_i - f(x_i, \mathbf{a})}{\sigma_i^2} \frac{\partial f(x_i, \mathbf{a})}{\partial a_j} \quad \text{et} \quad a_{jk} = \sum_{i=1}^N \frac{1}{\sigma_i^2} \frac{\partial f(x_i, \mathbf{a})}{\partial a_k} \frac{\partial f(x_i, \mathbf{a})}{\partial a_j}$$

ou encore en écrivant la relation sous forme matricielle

$$\boldsymbol{\beta} = \mathbf{A} \delta \mathbf{a} \quad \text{avec} \quad (\boldsymbol{\beta})_j = \beta_j \quad \text{et} \quad (\mathbf{A})_{jk} = a_{jk} \quad (6.14)$$

On obtient le déplacement $\delta\mathbf{a}$ en calculant les matrices $\boldsymbol{\beta}$ et \mathbf{A} , en inversant \mathbf{A} et enfin en effectuant le produit $\mathbf{A}^{-1} \boldsymbol{\beta}$.

L'itération de cette méthode converge bien près d'un minimum. Comme nous avons négligé des termes dans le développement de f , il faut bien estimer les valeurs de départ de \mathbf{a} de façon à ce que χ^2 soit, dès le début de l'itération, proche de son minimum. Sinon la méthode diverge.

6.4.2.2 Méthode "de plus grande pente" (type II)

[MAR59], [NUM89a], [BEV69]

Elle consiste à donner à $\delta\mathbf{a}$, vu comme un vecteur dans l'espace des paramètres, la direction et le sens opposé au gradient de χ^2 (le gradient donne en un point donné de l'espace la direction de plus grande pente). Cette méthode converge même si les valeurs initiales des paramètres ne sont pas

proches des valeurs réelles. En revanche, la convergence est très lente au voisinage d'un minimum. Cette méthode est donc utile pour la recherche rapide d'un minimum.

6.4.2.3 Algorithme de "Levenberg-Marquardt"

Parce que les images à ajuster ont un grand nombre de pixels, il nous faut une méthode d'ajustement qui converge vite vers le minimum de χ^2 afin de limiter le temps de calcul. Pour cela, il faut une méthode qui combine les avantages des deux méthodes précédentes : elle doit converger vite à la fois hors du point minimum et près de celui-ci. C'est le principe de la méthode que nous avons adoptée dite de "Levenberg-Marquardt" [MAR63]. Elle est basée sur la démonstration mathématique faite par D.W. Marquardt en 1963 [MAR63], démonstration dont le principe était déjà apparu dans un article de K. Levenberg en 1944.

L'algorithme s'appuie sur une version transformée de l'équation (6.14). Le déplacement $\delta\mathbf{a}$ est défini par l'équation suivante :

$$\boldsymbol{\beta}^* = (\mathbf{A}^* + \lambda \mathbf{I}) \delta\mathbf{a}^* \quad (6.15)$$

$$\text{avec } (\boldsymbol{\beta}^*)_j = \frac{\beta_j}{\sqrt{a_{jj}}}, (\mathbf{A}^*)_{jk} = \frac{a_{jk}}{\sqrt{a_{jj}} \sqrt{a_{kk}}}, (\delta\mathbf{a}^*)_j = \sqrt{a_{jj}} \delta a_j.$$

Les éléments non diagonaux de \mathbf{A}^* sont inférieurs à 1, les éléments diagonaux sont égaux à 1.

Le paramètre λ introduit est le pivot de cette méthode. Si λ est très petit devant 1, on peut le négliger devant les éléments diagonaux de \mathbf{A}^* et l'équation (6.15) est équivalente à (6.14). L'algorithme est équivalent à un algorithme basé sur le développement de Taylor. Si au contraire λ est très grand devant 1, les termes diagonaux deviennent prépondérants et l'équation peut alors se mettre sous la forme $\beta_j = \lambda a_{jj} \delta a_j$ qui correspond à une méthode de type "plus grande pente".

Le principe de l'algorithme est donc de diminuer ou d'augmenter λ suivant que, après une détermination de $\delta\mathbf{a}$, le χ^2 a diminué ou augmenté. Si χ^2 augmente, on s'éloigne du minimum et il faut reprendre une méthode de type "plus grande pente" et donc augmenter λ . Si χ^2 diminue, il faut aller vers une méthode de Taylor et donc diminuer λ . Pour une rapide conver-

gence de l'algorithme, Marquardt préconise le schéma de déroulement suivant :

- 1) On donne des valeurs initiales aux paramètres d'ajustement a_j et on calcule le $\chi^2(\mathbf{a})$ correspondant.
- 2) On initialise le paramètre λ à 10^{-3}
- 3) On calcule $\delta\mathbf{a}$ selon (6.15) et $\chi^2(\mathbf{a}+\delta\mathbf{a})$
- 4) Si $\chi^2(\mathbf{a}+\delta\mathbf{a}) < \chi^2(\mathbf{a})$, on divise λ par 10 puis on reprend au point 1) avec le nouveau jeu de paramètres $\mathbf{a}+\delta\mathbf{a}$.
Si $\chi^2(\mathbf{a}+\delta\mathbf{a}) > \chi^2(\mathbf{a})$, multiplier λ par 10 puis reprendre au 1) en gardant le même jeu de paramètres \mathbf{a} .
- 5) On continue jusqu'à ce que χ^2 soit suffisamment petit.

6.5 Le programme d'ajustement

Les fonctions d'ajustement et la méthode étant fixées, il faut écrire un programme qui mettra en œuvre l'algorithme. Nous ne nous sommes pas orientés vers un programme commercial d'ajustement car, l'expérience servant de test de validation de la théorie, nous voulions pouvoir contrôler toutes les étapes de l'ajustement.

Dans l'implémentation de l'algorithme d'ajustement, le principal problème vient de l'évaluation de la fonction d'ajustement et de sa dérivée qui contiennent des fonctions non standard, du point de vue d'un compilateur classique. Nous exposerons dans un premier temps les choix retenus pour l'évaluation des fonctions. Nous exposerons ensuite le protocole d'ajustement qui découle des différentes contraintes imposées par la méthode d'évaluation.

6.5.1 Evaluation des différentes fonctions

La fonction d'ajustement n'ayant pas d'expression analytique, nous sommes contraints à chaque évaluation de recourir à un algorithme de calcul. Nous devons choisir celui-ci avec soin pour qu'il n'introduise pas de trop

grandes erreurs dans l'évaluation de la fonction (particulièrement les erreurs d'arrondi) et qu'il converge rapidement afin de pas allonger le temps de calcul.

6.5.1.1 Les fonctions $Ai(x)$ et $\int_{-\infty}^{\infty} Ai^2(u^2+x) du$

La fonction d'Airy $Ai(x)$ est la solution de l'équation différentielle du second ordre $y'' - xy=0$. Pour connaître sa valeur en un point x donné, il faut résoudre numériquement l'équation précédente. Cette méthode ne peut être envisagée ici car l'évaluation de cette fonction prend trop de temps. Elle est d'autant moins intéressante que la fonction d'Airy fait partie des fonctions de base de la plupart des programmes de calcul numérique qui la donnent avec une grande précision.

Nous avons donc décidé de tabuler les deux fonctions $Ai(x)$ et $\int_{-\infty}^{\infty} Ai^2(u^2+x) du$ par Mathematica®. L'échantillonnage de l'argument x a été choisi en fonction des valeurs que l'argument $-x$ peut prendre (voir tableau 3.1) et correspond au découpage de l'intervalle $[-20,10]$ par pas de 0,01. La valeur de la fonction pour un argument x_{nt} non tabulé sera déduite par interpolation linéaire (voir figure 6.6).

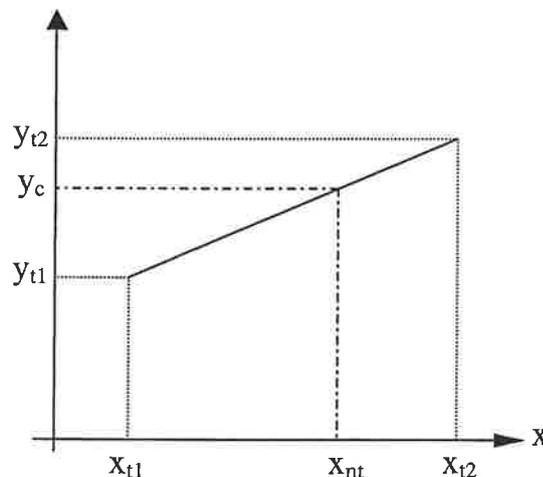


figure 6.6 : Interpolation de la valeur de $y_c=Ai(x_c)$; (x_n, y_n) est un point tabulé.

L'erreur commise dans l'évaluation de la fonction (figure 6.7) a deux caractéristiques principales :

- elle est extrême aux minima et maxima de $Ai^2(x)$
- la fonction oscillant d'autant plus vite que l'argument est négatif, l'erreur aux extrema de Ai^2 croît quand l'argument décroît.

Cette erreur reste très faible : $2,5 \cdot 10^{-5}$ au maximum pour une figure à 7 anneaux.

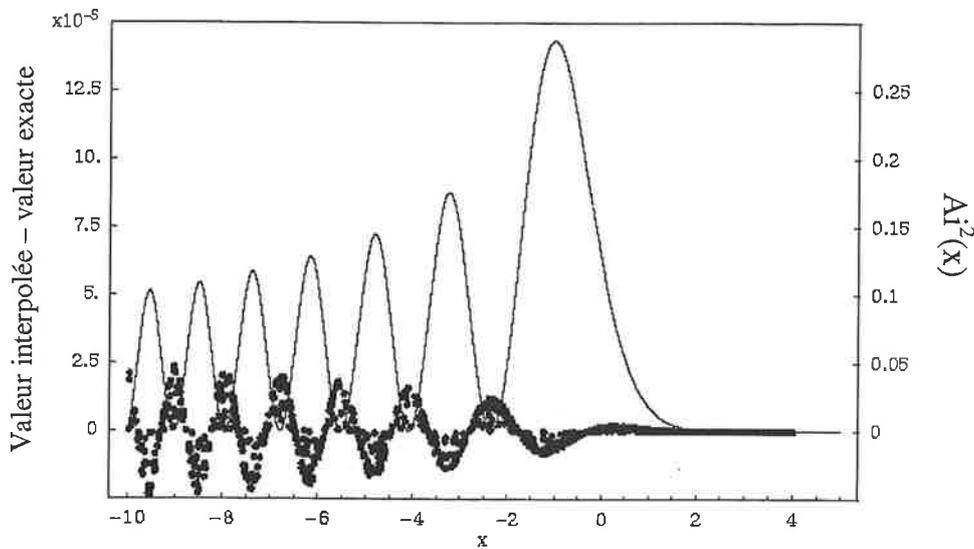


figure 6.7 : le graphe en trait plein représente la fonction $Ai^2(x)$; les points représentent pour x donné la différence entre la valeur interpolée et la valeur réelle (échelle $\times 2000$).

6.5.1.2 Les dérivées

La procédure d'ajustement s'appuie sur le calcul des dérivées de la fonction d'ajustement par rapport aux paramètres. Ces paramètres interviennent dans (6.8), (6.9) et (6.11) principalement dans l'intégrand des convolutions.

Comme ces paramètres ne dépendent pas des variables d'intégration et en supposant qu'il n'y a pas de problème de convergence uniforme, nous considérons que les dérivées des intégrales définies en (6.8), (6.9) et (6.11) par rapport aux paramètres sont égales aux intégrales des dérivées de l'intégrand par rapport à ces paramètres. En reprenant les expressions (6.8) et (6.11), nous pouvons écrire :

$$\frac{\partial \mathcal{J}^{axial}(\varepsilon, x, y)}{\partial a_j} \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\left(b^2+d^2+c^2\right)} \frac{\partial v}{\partial a_j} \text{Ai}[v] \text{Ai}'[v] da db dc \quad (6.16)$$

$$\text{avec } v = \frac{1}{\lambda_0} \left(\rho^2 - \frac{\varepsilon + c\delta\varepsilon}{eF} \right)$$

$$\frac{\partial \mathcal{J}'_{final}}{\partial a_j} \propto \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-(n^2+c^2)} \frac{\partial s}{\partial a_j} \int_{-\infty}^{\infty} \text{Ai}(u^2 + s) \text{Ai}'(u^2 + s) du \quad dn dc \quad (6.17)$$

$$\text{avec } s = \frac{1}{\lambda_0} \left[\frac{C_1(x - x_{cg} - nR_X)^2}{4z_0} - \frac{\varepsilon + c\delta\varepsilon}{eF} \right]$$

Il suffit donc pour calculer les dérivées d'écrire une à une dans le programme les dérivées de v ou s par rapport aux paramètres, de tabuler les deux fonctions $\text{Ai}(x)\text{Ai}'(x)$ et $\int du \text{Ai}(u^2+x)\text{Ai}'(u^2+x)$ pour x variant dans l'intervalle $[-20,10]$ et de calculer les convolutions correspondantes.

6.5.1.3 Les convolutions

La précision de l'évaluation des fonctions d'ajustement dépend encore de la manière dont nous calculons les convolutions. Les convolutions impliquées dans (6.8), (6.11), (6.16) et (6.17) sont toutes de la forme :

$$\int_{-\infty}^{\infty} e^{-c^2} f(x, c, \mathbf{a}) dc \quad (6.18)$$

où x correspond à la coordonnée du point où se fait la convolution et \mathbf{a} représente l'ensemble des paramètres introduits dans la fonction. On utilise pour l'évaluation la méthode de la quadrature gaussienne [NUM89b],.

La méthode utilise des polynômes orthogonaux vis à vis d'un produit scalaire défini par :

$$(h, g) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{-y^2} h(y) g(y) dy$$

Les polynômes orthogonaux associés à ce produit scalaire sont les polynômes d'Hermite $H_n(y)$, où n représente l'ordre du polynôme, définis sur \mathbb{R} . Ces polynômes sont donnés par la relation de récurrence suivante :

$$H_{-1}(y) = 0 ; H_0(y) = 1$$

$$H_{n+1}(y) = 2y H_n(y) - 2n H_{n-1}(y) \text{ pour } n \geq 1.$$

Le polynôme $H_n(y)$ a exactement n racines réelles.

Il est possible de montrer à partir de ces polynômes que, pour toute fonction réelle $f(y)$ $2n$ -fois dérivable sur \mathbb{R} , l'intégrale sur l'ensemble des réels de $e^{-y^2} f(y)$ peut être approchée par une série de n termes donnée par :

$$\int_{-\infty}^{\infty} e^{-y^2} f(y) dy = \sum_{i=1}^n w_i f(y_i) + R_n$$

où les y_i , appelées "abscisses de l'intégration", sont les racines du polynôme d'Hermite d'ordre n , $H_n(y)$, où w_i représentent les "poids" de la série et R_n est le reste correspondant à la série de rang n . Ces deux dernières quantités sont égales à :

$$w_i = \frac{2^{n-1} n! \sqrt{\pi}}{n^2 [H_{n-1}(y_i)]^2} \quad R_n = \frac{n! \sqrt{\pi}}{2^n (2n)!} f^{(2n)}(y_1)$$

La série est exactement égale à l'intégrale pour tout polynôme réel d'ordre au plus égal à $2n-1$.

Nous avons maintenant une procédure pour calculer les intégrales de la forme (6.16). Pour une coordonnée x fixée, un vecteur de paramètres \mathbf{a} donné et une précision m sur le calcul de l'intégrale déterminée, le principe du calcul est le suivant :

1) On approche la valeur de l'intégrale par la série à deux termes,

$$S_2 = \sum_{j=1}^2 w_j f(x, y_j, \mathbf{a})$$

2) Pour $i \geq 3$, on calcule la série à i termes, $S_i = \sum_{j=1}^i w_j f(x, y_j, \mathbf{a})$

3) Si $|S_i - S_{i-1}|$ est supérieur à la précision m recherchée, on recommence à l'étape 2 avec un terme de plus.

Pour l'implémentation de cette procédure, nous avons précalculé les abscisses y_i et les poids w_i pour les séries allant de 2 à 90 termes par une méthode numérique détaillée dans [NUM89c].

6.5.2 Caractéristiques des convolutions

6.5.2.1 Effet sur le contraste des franges

La figure suivante montre l'effet des convolutions spatiales et énergétique par des gaussiennes sur la fonction (6.1) (ici représentée par un trait continu noir). Ces convolutions sont respectivement de la forme :

$$\int_{-\infty}^{\infty} e^{-\left(\frac{c-\rho}{R_c}\right)^2} \text{Ai}^2 \left[\frac{1}{\lambda_0} \left(\frac{c^2}{4z_0} - \frac{\varepsilon}{eF} \right) \right] dc \text{ pour la convolution spatiale}$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} e^{-\left(\frac{s-\varepsilon}{R_s}\right)^2} \text{Ai}^2 \left[\frac{1}{\lambda_0} \left(\frac{\rho^2}{4z_0} - \frac{s}{eF} \right) \right] ds \text{ pour la convolution énergétique}$$

où R_c et R_s sont les largeurs de convolution et correspondent à la demi largeur à 1/e de la gaussienne.

Les convolutions sont calculées pour des largeurs de convolution spatiale et énergétique différentes et pour deux champs électriques différents. Les énergies ε ont été choisies de façon à produire le même nombre d'anneaux pour les deux champs.

L'effet de ces convolutions est dans tous les cas une perte de contraste du motif d'interférence. De plus, nous constatons que, pour la convolution spatiale, la perte de résolution est plus forte sur le bord de la figure qu'en son centre mais qu'elle est d'autant moins importante que le champ est faible. Au contraire, pour les convolutions énergétiques, la perte de résolution se produit préférentiellement au centre de la figure d'autant plus fortement que le champ est faible.

Cette différence d'effet sur la figure d'interférence permet d'affirmer que les deux convolutions ne sont pas équivalentes. Il n'est donc pas possible qu'une convolution puisse remplacer l'autre. Ceci nous conforte dans l'idée

que l'ajustement des largeurs de convolution spatiale et énergétique donnera des valeurs réalistes de ces paramètres.

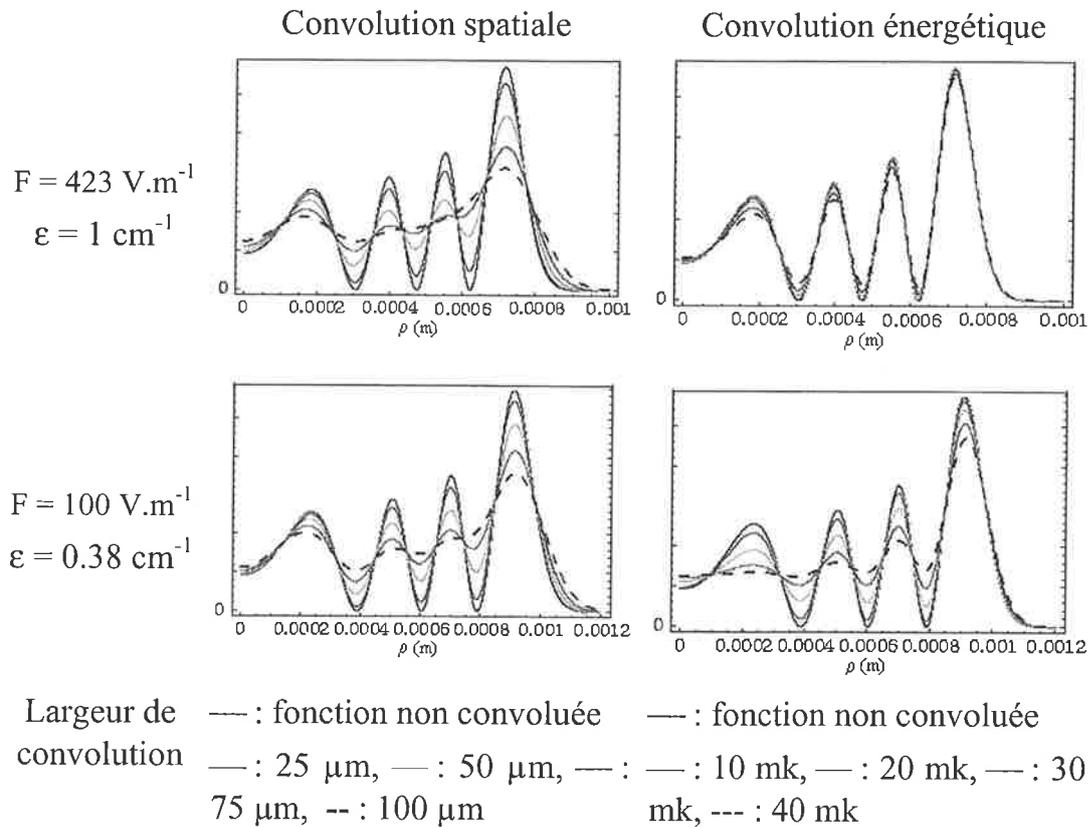


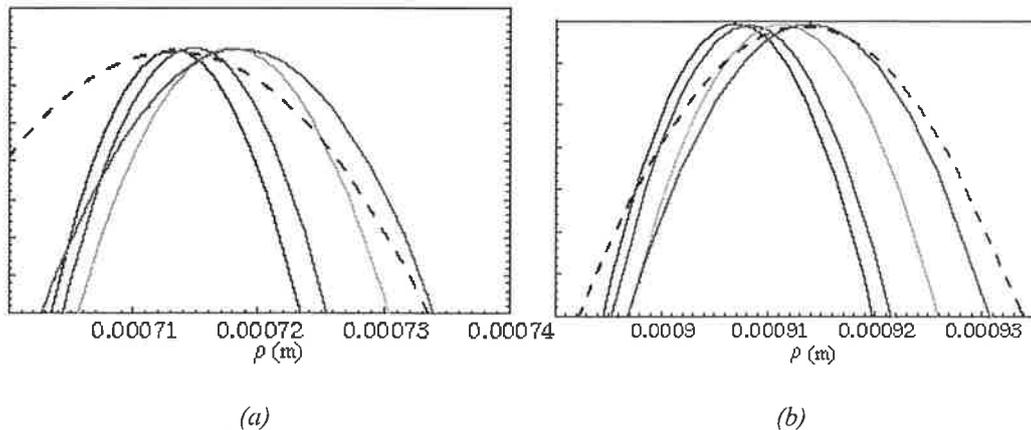
Figure 6.8 : Effet des convolutions spatiale et énergétique sur la figure d'interférence en fonction des largeurs de convolutions

Les figures 5.2 et 5.3 du chapitre 5 montrent que les anneaux sont toujours plus rapidement brouillés sur le bord de la figure d'interférence qu'au milieu. L'effet des convolutions spatiales est ainsi plus important que celui de la convolution énergétique. Les premières seront effectuées avant les secondes.

6.5.2.2 Effet de dilatation des images

Le profil des anneaux n'est pas symétrique, notamment au centre de la figure et sur le bord. La convolution spatiale n'agit alors pas de façon équivalente sur l'ensemble du profil. Ceci fait que, après convolution, les an-

neaux bougent par rapport à leur position initiale. Ainsi, l'image globale se contracte ou se dilate légèrement (voir figure 6.9).



(a) (b)
 figure 6.9 : agrandissement de la zone du maximum extérieur. Le graphe (a) correspond à un champ de 423 V.m^{-1} ; le graphe (b) est donné pour un champ de 100 V.m^{-1} . Le code de couleur des courbes est celui donné dans la figure précédente.

6.5.3 Le protocole d'ajustement

A ce stade, nous avons mis en place tous les éléments constitutifs de l'ajustement : fonctions, méthodes d'ajustement et d'évaluation des différentes fonctions ainsi que leur schéma de programmation. Il ne reste plus qu'à définir les paramètres d'ajustement.

6.5.3.1 L'ajustement bidimensionnel

La fonction d'ajustement bidimensionnel est définie par les formules (6.8) et (6.9). Les paramètres susceptibles d'être ajustés et qui interviennent dans cette formule sont :

Description du paramètre		unité	Variable
Le fond continu	\mathcal{J}_0		A[0]
La constante de normalisation	C		A[1]
L'énergie cinétique initiale	ε	cm ⁻¹	A[2]
Le paramètre d'ellipticité selon le grand axe	C_1	-	A[3]
Le paramètre d'ellipticité selon le petit axe	C_2	-	A[4]
L'abscisse du centre de l'image	x_{cg}	pixel	A[5]
L'ordonnée du centre	y_{cg}	pixel	A[6]
Angle entre le grand axe de l'ellipse et l'axe Ox	α	rad	A[7]
Résolution spatiale	R_b	pixel	A[8]
Résolution spatiale	R_d	pixel	A[9]
Tension appliquée à la colonne	V_{champ}	V	A[10]
Hauteur de la colonne	h	cm	A[11]
Hauteur de vol des électrons	z_0	cm	A[12]
Dimension du pixel	d_{pix}	cm	A[13]
Facteur de dilatation géométrique	f_{dil}	-	A[14]
L'angle de flou	δ	rad	A[15]
Résolution énergétique	$\delta\varepsilon$	cm ⁻¹	A[16]

Ces paramètres sont traités dans le programme d'ajustement comme étant tous potentiellement ajustables. Pour des raisons de vitesse d'exécution du programme, on ne peut les laisser tous s'ajuster en même temps. Pour éviter qu'un paramètre ne soit ajusté, il suffit d'indiquer au programme que ce paramètre est non-ajustable ou fixé en changeant l'état de la variable correspondante. Au contraire, pour permettre l'ajustement d'un paramètre, on le désigne comme ajustable.

Certains de ces paramètres restent toujours fixes. Ce sont ceux qui correspondent à des caractéristiques fixes d'une expérience. Ainsi la tension V_{champ} appliquée à la colonne de champ électrique, paramètre A[10], et la hauteur h de la colonne, A[11], sont, pour une acquisition d'image donnée, des constantes puisque le champ électrique ne varie en principe pas pendant l'acquisition d'une image. De même, la hauteur de chute z_0 des électrons,

A[12] et la dimension d_{pix} d'un pixel de l'image, A[13], sont fixés respectivement aux valeurs 0,51 m et 26 μm .

A l'opposé, trois paramètres sont toujours considérés comme ajustables. Le premier d'entre eux est bien sûr l'énergie cinétique initiale ε de l'électron, A[2]. Le paramètre de fond continu \mathcal{J}_0 , A[0], et la constante C de normalisation, A[1], sont également rendus toujours ajustables.

Les autres paramètres sont à la convenance ajustables ou fixés. Mais ils ne peuvent pas être ajustés tous en même temps. Par exemple, puisque les convolutions spatiales agissent aussi sur la géométrie des taches (voir paragraphe 6.5.2.2), il paraît risqué d'ajuster ensemble les paramètres décrivant la forme de l'ellipse tels que les coefficients C_1 et C_2 et les paramètres de résolution spatiale R_b et R_d .

L'ajustement se déroule donc en deux étapes. On réalise un premier ajustement des images pour déterminer, outre les trois paramètres toujours ajustables décrits précédemment, la forme géométrique (coefficient C_1 , A[3], et C_2 , A[4], angle α , A[7]) et la position de la tache (coordonnées du centre x_{cg} , A[5], et y_{cg} , A[6]). En examinant une image synthétique réalisée grâce à la fonction théorique non convoluée (figure 3.6) et une image réelle (figure 5.2), nous constatons que, hormis le contraste des anneaux, ces images sont semblables. Comme le calcul des convolutions est une procédure longue, l'ajustement géométrique repose sur l'utilisation de la fonction idéale non convoluée (6.1) avec une description du rayon ρ^2 par la formule (6.2). Les paramètres intervenant dans cette étape sont les coefficients de l'ellipse C_1 et C_2 , les coordonnées x_{cg} et y_{cg} du centre de l'image et l'angle α que fait le grand axe de l'ellipse avec l'axe Ox. Le protocole pour l'ajustement de ces paramètres est donné plus loin. A la fin de cet ajustement, ces paramètres géométriques sont déterminés et nous pouvons ajuster maintenant les résolutions spatiales et énergétiques.

Comme nous l'avons vu au paragraphe 6.5.2.2, les convolutions induisent une contraction ou une dilatation globale de la tache mais ne changent pas la géométrie de cette tache ; par exemple, le centre de l'image est identique qu'on utilise la fonction non convoluée ou la fonction convoluée. Nous pouvons donc fixer les paramètres C_1 et C_2 de l'ellipse, les coordonnées du centre et l'angle α aux valeurs trouvées précédemment et procéder à l'ajustement tenant compte seulement des résolutions spatiales et énergétique. Les fonctions utilisées sont (6.8) et (6.9). Les paramètres à déterminer sont les

résolutions spatiales R_b , A[8] et R_d , A[9], l'angle δ , A[15] et la résolution énergétique $\delta\varepsilon$, A[16]. Pour tenir compte de l'effet de dilatation, nous rajoutons un paramètre de dilatation géométrique f_{dil} , A[14], en facteur de la partie spatiale de l'argument de la fonction d'Airy. Il permet, en changeant à la fois C_1 et C_2 , de réadapter la taille de l'image synthétique à la dimension de l'image expérimentale. A la fin de cette étape, l'ajustement d'une image est complet.

Protocole

Ajustement géométrique

Les images à ajuster ont les dimensions de celle de la figure 5.2. Leur largeur en pixel est notée X_{image} et leur hauteur Y_{image} . Le tableau suivant donne les valeurs initiales et l'état initial (fixé [g] ou ajustable [d]) des paramètres intervenant dans l'ajustement géométrique :

Paramètre	Valeur	Etat	Paramètre	Valeur	Etat
\mathcal{J}_0	Indifférent	d	y_{cg}	$Y_{image} / 2$	d
C	Indifférent	d	α	0	g
ε	Suivant N	d	V_{champ}	Suivant expérience	g
C_1	1	d	h	0,539	g
C_2	1	d	z_0	0,514	g
x_{cg}	$X_{image} / 2$	d	d_{pix}	0,0026	g

Pour estimer l'énergie cinétique initiale, nous déterminons le nombre d'anneaux noirs sur la figure d'interférence et nous calculons l'énergie cinétique correspondante grâce à la formule donnée au tableau 3.2. Nous ajustons l'image sans faire varier l'angle α . Lorsque la valeur de χ^2 ne varie plus que de 10%, l'angle est rendu ajustable. L'ajustement est poursuivi jusqu'à ce que la valeur du χ^2 varie de moins de 1%. Cette décomposition en deux étapes permet la convergence rapide de l'ajustement. Les valeurs des coefficients C_1

et C_2 , les coordonnées du centre x_{cg} et y_{cg} et l'angle α sont alors déterminés. Nous avons également une première estimation de \mathcal{J}_0 , C et ε .

Ajustement des résolutions

Les valeurs initiales des différents paramètres sont données dans le tableau suivant. Les valeurs de la tension de la colonne, V_{champ} , de la hauteur de la colonne, h , de la hauteur de chute, z_0 , et de la dimension du pixel, d_{pix} , sont identiques à celles utilisées pour l'ajustement géométrique. Les paramètres géométriques sont fixés à la valeur déterminée précédemment. Aucun de ces paramètres n'est représenté dans le tableau.

Paramètre	Valeur	Etat	Paramètre	Valeur	Etat
\mathcal{J}_0	Celle déterminée	d	R_d	2	d
C	à la fin de l'ajuste-	d	f_{dii}	1	d
ε	-ment précédent	d	δ	0	g
R_b	2	d	$\delta\varepsilon$	0,01	g

Nous commençons par ajuster les résolutions spatiales R_b et R_d et le facteur de dilatation. Quand le χ^2 ne varie plus que de 10%, l'angle δ est rendu lui aussi ajustable. L'ajustement se poursuit jusqu'à ce que χ^2 varie de 5% ; la résolution énergétique $\delta\varepsilon$ est alors désignée comme ajustable. L'ajustement prend fin lorsque χ^2 varie de moins de 1%. Il convient de faire attention à ce dernier paramètre. Nous avons vu au paragraphe 6.3.1.4 que le demi angle d'ouverture induit une dispersion des énergies cinétique de $0,03 \text{ cm}^{-1}$. La valeur finale du paramètre $\delta\varepsilon$ ne peut donc être inférieure à $0,01 \text{ cm}^{-1}$. Des valeurs inférieures doivent être tenues comme irréalistes. Lorsqu'on en obtient, on relance la dernière étape de l'ajustement en prenant une valeur de départ pour $\delta\varepsilon$ égale à $0,04 \text{ cm}^{-1}$. Si $\delta\varepsilon$ ne converge toujours pas vers une valeur réaliste (ce qui arrive dans environ 15% des cas), ce paramètre est fixé à $0,01 \text{ cm}^{-1}$ et l'ajustement est achevé en gardant $\delta\varepsilon$ fixe.

A la fin de l'ajustement, nous avons accès aux valeurs des différents paramètres mais également à la dispersion normale de ces valeurs.

6.5.3.2 l'ajustement unidimensionnel

Cet ajustement est réalisé en utilisant la fonction (6.11) dans laquelle nous choisissons comme paramètres :

Description du paramètre		unité	Variable
Le fond continu	\mathcal{J}_0		A[0]
La constante de normalisation	C		A[1]
L'énergie cinétique initiale	ε	cm ⁻¹	A[2]
L'abscisse du centre de l'image	x_{cg}	pixel	A[3]
Résolution spatiale	R_x	pixel	A[4]
Résolution énergétique	$\delta\varepsilon$	cm ⁻¹	A[5]
Tension appliquée à la colonne	V_{champ}	V	A[6]
Hauteur de la colonne	h	cm	A[7]
Hauteur de vol des électrons	z_0	cm	A[8]
Dimension du pixel	d_{pix}	cm	A[9]
Facteur géométrique	C_1	-	A[10]

Comme dans l'ajustement bidimensionnel tous ces paramètres sont susceptibles d'être ajustables. Comme précédemment, nous considérons que les paramètres caractéristiques du montage expérimental sont connus précisément ; ils sont donc fixés. Les paramètres concernés sont la différence de potentiel appliqué à la colonne V_{champ} , A[6], la hauteur de la colonne h , A[7], la hauteur de vol des électrons z_0 , A[8] et enfin la dimension du pixel d_{pix} , A[9]. Les valeurs affectées à ces paramètres sont identiques à celles préconisées pour l'ajustement bidimensionnel.

Les paramètres de fond continu \mathcal{J}_0 , A[0], de facteur de normalisation C , A[1], et d'énergie cinétique initiale ε , A[2] sont eux toujours ajustables. Leur valeur initiale est déterminée comme pour les ajustements bidimensionnels.

L'ajustement se déroule de façon presque identique à l'ajustement bi-dimensionnel. L'histogramme expérimental des coups que nous ajustons a une largeur X_{histo} . L'initialisation des valeurs se fait comme suit :

Paramètre	Valeur	Etat	Paramètre	Valeur	Etat
\mathcal{J}_0	Indifférent	d	V_{champ}	Suivant expérience	g
C	Indifférent	d	h	0,539	g
ε	Suivant N	d	z_0	0,514	g
x_{cg}	$X_{\text{histo}} / 2$	d	d_{pix}	0,0026	g
R_X	1	g	C_1	1	d
$\delta\varepsilon$	0,01	g			

Nous déterminons d'abord les propriétés géométriques de la figure. Celles-ci se résument à la coordonnée du centre de la figure et au paramètre C_1 . Cette étape s'arrête lorsque le χ^2 ne varie plus que de 1%. Nous fixons la valeur du centre de l'image et nous rendons ajustable la résolution spatiale R_X . Lorsque χ^2 varie de moins de 5%, nous ajustons également la résolution énergétique $\delta\varepsilon$. L'ajustement prend fin lorsque χ^2 varie de moins de 1%.

Chapitre 7

Résultats

7.1 Photodétachement de $^{16}\text{O}^-$ dans une configuration axiale à un passage.

C'est la première configuration utilisée. Elle fournit une situation expérimentale proche des conditions théoriques qui ont permis l'établissement des expressions de la densité de courant (source d'électrons monocinétiques unique de dimensions inférieure à l'interfrange de la figure d'interférence). Par conséquent, elle constitue un bon test pour valider la description théorique. Elle permet en outre de connaître les caractéristiques et les limites du dispositif.

7.1.1 Ajustement d'une figure d'interférence

Pour ces premiers dépouillements de données, le programme d'ajustement utilise les fonctions décrites par les formules (6.8) et (6.9) du paragraphe précédent. Au lieu d'utiliser l'énergie cinétique initiale ε comme paramètre d'ajustement, on peut, suivant la formule d'effet Doppler (6.7) qui donne ε , utiliser l'expression :

$$\varepsilon = E_L \left(1 - \frac{v}{c} \sin \gamma \right) - E_A \quad (7.1)$$

en considérant γ (angle entre la normale au jet et l'axe de propagation du laser ; voir figure 6.3) comme le paramètre ajustable. L'affinité E_A est fixée à la meilleure valeur connue avant nos mesures $11784,648 \text{ cm}^{-1}$.

L'ajustement bidimensionnel de la formule théorique aux images fournit :

- 1 : l'angle γ expérimental, c'est à dire l'énergie cinétique initiale ε des électrons
- 2 : la géométrie de la figure (coefficients C_1 et C_2 de l'ellipse)
- 3 : les résolutions spatiales et énergétique.

Ces valeurs réintroduites dans la fonction d'ajustement permettent d'obtenir une représentation idéale de la densité de courant, une image synthétique. C'est sous cette forme que la figure 7.1 donne le résultat d'un ajustement d'une figure d'interférence.

La forme des taches semble bien elliptique. L'anisotropie de l'image synthétique correspond à celle de l'image expérimentale. Ainsi, les maxima d'intensité sont localisés dans les images (a) et (b) sur le petit axe de l'ellipse. Les anneaux sont également plus flous, le contraste est moindre le long du grand axe que suivant le petit axe.

En connaissant la forme géométrique de la tache, nous pouvons calculer l'histogramme des coups en fonction de la distance d'un point au centre de l'image. On voit que la position des pics est très bien reproduite ; l'ajustement semble donner la bonne énergie cinétique. Le pic extérieur est correctement estimé à la fois en position et en intensité par contre il n'en est pas de même pour les maxima et les minima locaux. Leur intensité est sous estimée par l'ajustement. Ceci est aussi visible dans l'image (c) qui représente, pixel par pixel, la différence entre l'image expérimentale et synthétique. Il apparaît des anneaux concentriques de couleur identique alors qu'un ajustement décrivant bien les intensités devrait montrer une distribution aléatoire de points rouges et bleus. Cette mauvaise estimation de l'intensité peut venir, en partie, des défauts du détecteur qui ne sont pas modélisables.

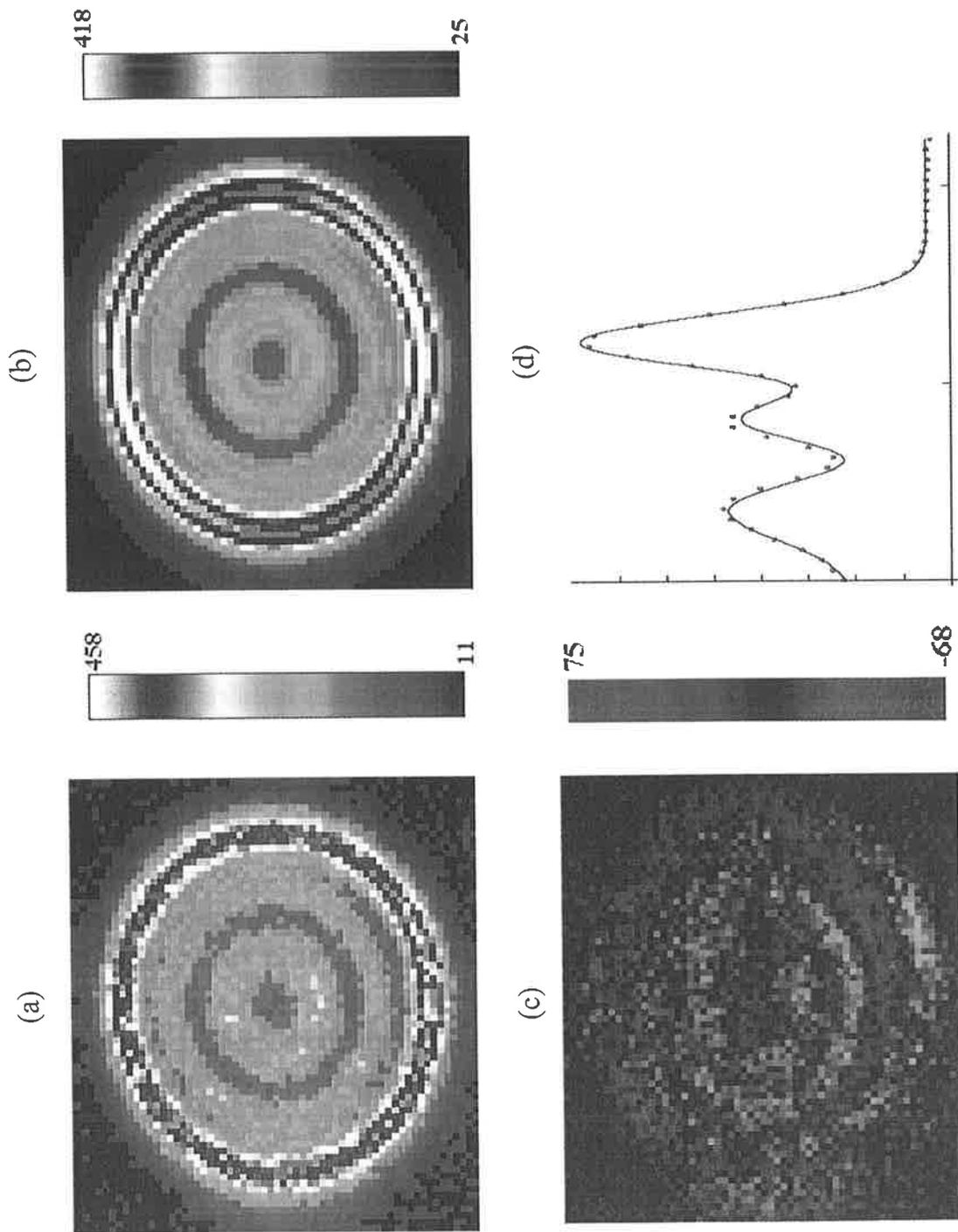


Figure 7.1 : résultat d'un ajustement d'une figure d'interférence. La longueur d'onde utilisée est égale à $848503,36 \text{ nm}$, soit une énergie de détachement de $11785,457 \text{ cm}^{-1}$. L'ajustement donne une valeur de l'énergie cinétique initiale ϵ de $0,865 \text{ cm}^{-1}$. L'image expérimentale (a) peut être directement comparée à l'image synthétique (b). La différence entre les deux images (image (c)) et l'histogramme radial des coups (d) permettent de juger des qualités et des défauts de l'ajustement.

7.1.2 Validité du modèle théorique

Nous avons vu précédemment que la position des pics était bien estimée et nous avons conclu que l'énergie cinétique semblait correcte. Ceci suppose que nous faisons confiance à l'expression théorique de la phase du motif d'interférence. Mais comment vérifier pratiquement que cette description théorique est valable?

Si la modélisation de la densité de courant par une fonction d'Airy est correcte, l'énergie cinétique ε doit se conformer à la formule (7.1). Pour un champ électrique fixé, l'énergie cinétique ε est une fonction affine de l'énergie du laser E_L . La pente P de cette droite est égale au facteur Doppler $(1+\beta \sin\gamma)$ et son ordonnée à l'origine donne la valeur de l'affinité E_A . Comme le montre la figure 7.2 sur deux séries de taches à champ électrique fixé, l'ensemble des énergies cinétiques d'une série s'aligne bien sur une droite.

L'ajustement de chaque tache fournit l'angle γ et la dispersion normale σ_γ sur ce paramètre. Nous déterminons, grâce à la formule (7.1), l'énergie cinétique et sa dispersion normale σ_ε . Une régression linéaire permet de déterminer l'équation de la droite représentant ε en fonction de l'énergie du laser E_L . Cette régression est faite en affectant aux énergies cinétiques ε des poids statistiques égaux à σ_γ . Elle donne accès à la pente P de la droite ainsi qu'à la dispersion normale de sa valeur σ_P , à l'ordonnée à l'origine E_A et à σ_{E_A} . Le rapport de l'ordonnée à l'origine et de la pente donne la valeur de l'énergie E_L , vue dans le référentiel de l'ion, qui donne un électron d'énergie cinétique nulle, c'est à dire le seuil apparent E_A^{app} , et la dispersion normale correspondante.

Le tableau (7.1) donne les paramètres et les dispersions normales correspondantes de la droite de régression linéaire pour cinq séries à champs électriques différents :

	423 V.m ⁻¹	325 V.m ⁻¹	225 V.m ⁻¹	150 V.m ⁻¹	121 V.m ⁻¹
P	0,994	0,988	0,985	0,987	0,959
σ_P	0,006	0,005	0,007	0,009	0,024
E_A (cm ⁻¹)	11715	11641	11608	11634	11305
σ_{E_A} (cm ⁻¹)	67	60	83	105	282
E_A^{app} (cm ⁻¹)	11784,638	11784,590	11784,565	11784,541	11784,522
$\sigma_{E^{app}}$ (cm ⁻¹)	0,006	0,006	0,006	0,005	0,011
χ^2	3,36	1,60	0,344	1,43	0,65
$\bar{\gamma} / \sigma_\gamma$ (°)	0,08 / 0,12	0,84 / 0,11	1,37 / 0,09	1,90 / 0,05	2,02 / 0,11
Données	10	10	7	6	5

Tableau 7.1 : Paramètres des droites de régression ajustées sur des couples (E_L, ϵ) pour différents champs. Chaque valeur est donnée avec la dispersion normale correspondante calculée à partir de la régression. Figurent aussi : le χ^2 de la régression, l'angle moyen pour chaque série et le nombre de points de données impliqués dans la régression.

Le tableau montre que la pente P est bien proche de 1 mais aucune ne correspond à un facteur Doppler $(1+\beta \sin\gamma)$ réel. De plus cette régression ne permet pas d'avoir une précision suffisante sur la valeur de l'ordonnée à l'origine. Seule l'énergie de seuil apparente peut être estimée précisément. De plus, cette énergie croît bien avec le champ électrique. Plus le champ est important, plus le jet est dévié et plus l'angle γ diminue et donc également le facteur Doppler. L'énergie de seuil, rapport entre l'ordonnée à l'origine et le facteur Doppler augmente.

Toutefois l'ordre de grandeur des paramètres est correct : la pente des droites est très proche de la valeur 1 et le seuil apparent est réaliste à 1 cm⁻¹ près. Nous pouvons considérer que la formule théorique décrit assez bien le photodétachement d'ions négatifs en champ électrique mais les mesures précises des affinités ne peuvent se faire dans la configuration axiale à un seul passage.

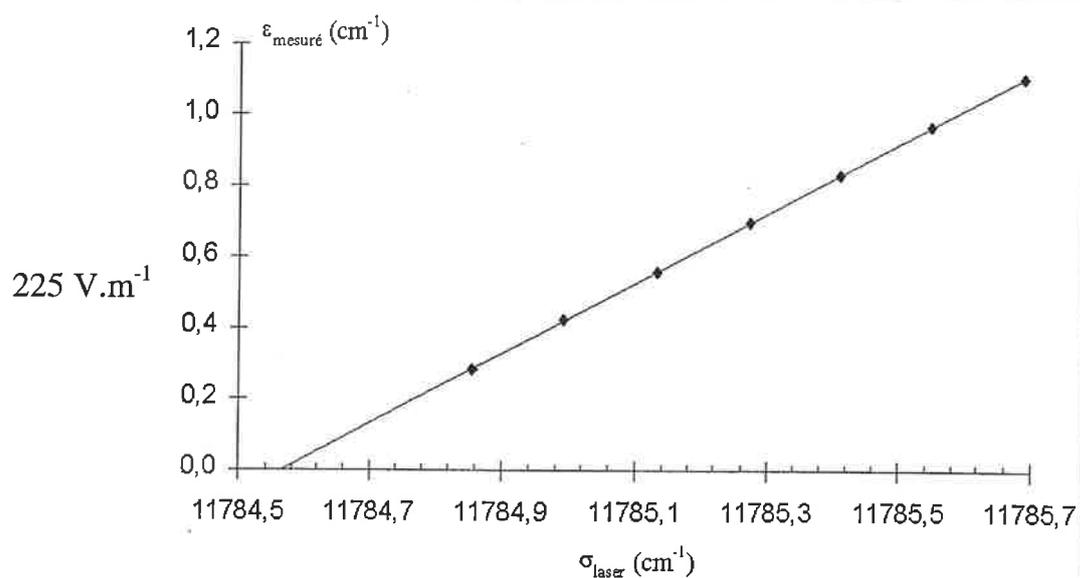
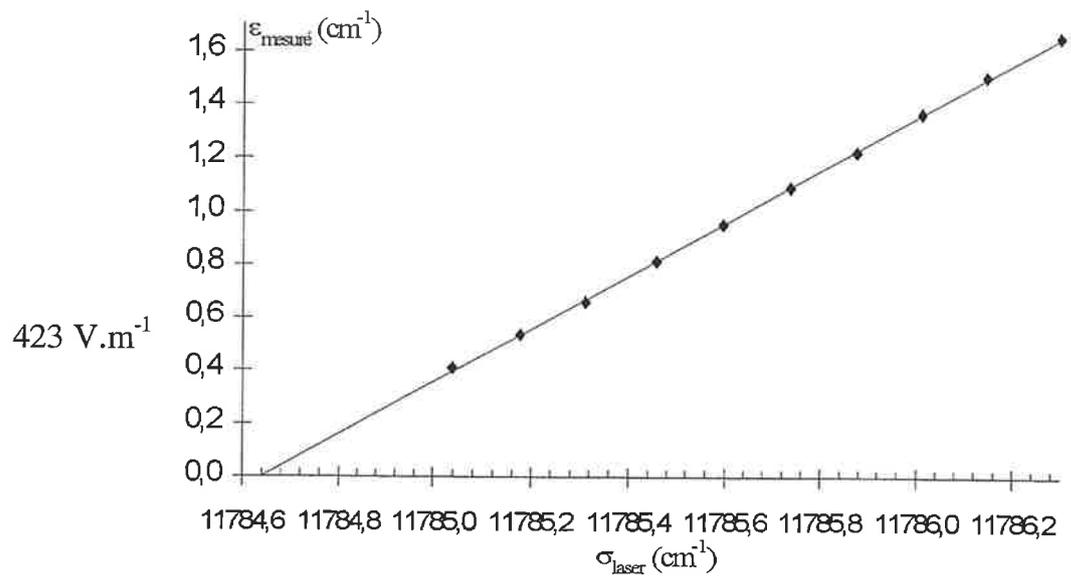


Figure 7.2 : variation linéaire de l'énergie cinétique déterminée par ajustement en fonction de l'énergie du laser. Chaque graphe correspond à l'ajustement d'une série à champ électrique fixé. Les points de données s'alignent bien sur une droite. Une régression linéaire sur ces points de données montre que la pente de la droite, bien que proche de 1, ne correspond pas au facteur Doppler $(1 + \beta \sin \gamma)$. L'ordonnée à l'origine de cette droite, l'opposé de l'affinité électronique, ne peut être calculée avec précision. L'énergie du laser nécessaire pour avoir un électron avec une énergie cinétique nulle vue dans le référentiel de l'ion s'appelle l'énergie de seuil apparent. Cette énergie correspond à l'intersection entre la droite et l'axe des abscisses. Cette énergie est croissante avec le champ électrique, comme prévu.

7.1.3 Un champ parasite?

Nous avons modélisé la forme ovale des taches par une ellipse dont le grand axe fait un angle α avec l'axe des abscisses (voir le paragraphe 6.3.1.1). Le programme d'ajustement nous donne accès aux coefficients C_1 et C_2 ainsi qu'à l'angle α . Il faut pouvoir s'assurer que ces paramètres sont correctement estimés.

Pour chaque tache d'interférence, la forme géométrique elliptique est donnée par $C_1 x''^2 + C_2 y''^2 = \rho_{max}^2$. Pour une série à champ électrique fixé, seule l'énergie cinétique des taches varie. L'ellipse décrivant la forme de la tache voit son rayon augmenter lorsque ε augmente mais les paramètres C_1 et C_2 doivent être identiques pour une même série. La surface couverte par l'ellipse est égale à $\pi(C_1 C_2)^{-1/2} \rho_{max}^2$. Pour les taches d'une même série à champ électrique fixé, le facteur $(C_1 C_2)^{-1/2}$ doit être constant. Si la tache est circulaire, ce paramètre vaut 1.

La figure (7.4) représente les coefficients C_1 , C_2 et $(C_1 C_2)^{-1/2}$ en fonction de l'énergie cinétique mesurée dans une série à 225 V.m^{-1} . Le tableau ci-dessous donne pour tous les champs étudiés la valeur moyenne et la dispersion normale des mesures pour chacun des paramètres.

	C_1		C_2		$(C_1 C_2)^{-1/2}$	
	moyenne	écart-type	moyenne	écart-type	moyenne	écart-type
423 V.m^{-1}	0,865	0,024	1,124	0,030	1,014	0,025
325 V.m^{-1}	0,910	0,009	1,099	0,012	1,000	0,007
225 V.m^{-1}	0,873	0,010	1,215	0,006	0,971	0,005
150 V.m^{-1}	0,825	0,025	1,394	0,013	0,933	0,012
121 V.m^{-1}	0,857	0,004	1,708	0,014	0,827	0,004

Dans une même série à champ électrique constant, les paramètres ne varient pas beaucoup. Les fluctuations autour de la moyenne sont faibles. Le facteur $(C_1 C_2)^{-1/2}$ est également stable. Le programme d'ajustement semble donc correctement estimer la forme de la tache.

La figure (7.5) montre la variation des paramètres C_1 et C_2 en fonction du champ électrique. Tandis que le paramètre C_1 ne varie pratiquement pas,

le paramètre C_2 lui croît fortement lorsque le champ électrique diminue d'intensité. Autrement dit, plus le champ décroît, plus la figure d'interférence s'aplatit le long du petit axe de l'ellipse. Ce comportement semble mettre en évidence la présence d'un champ électrique parasite non uniforme dans la colonne de champ uniforme.

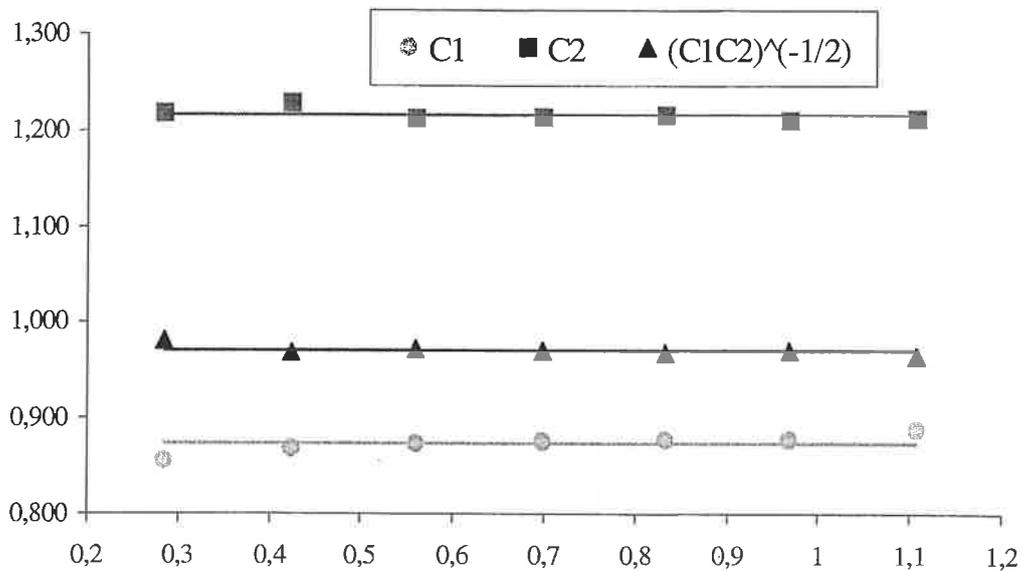


figure 7.4 : paramètres C_1 , C_2 et $(C_1 C_2)^{-1/2}$ en fonction de l'énergie cinétique pour une expérience à 225 V.m^{-1} . Les droites en trait plein représentent la valeur moyenne des paramètres. Ce graphe est représentatif du comportement de C_1 et C_2 à d'autres valeurs du champ électrique.

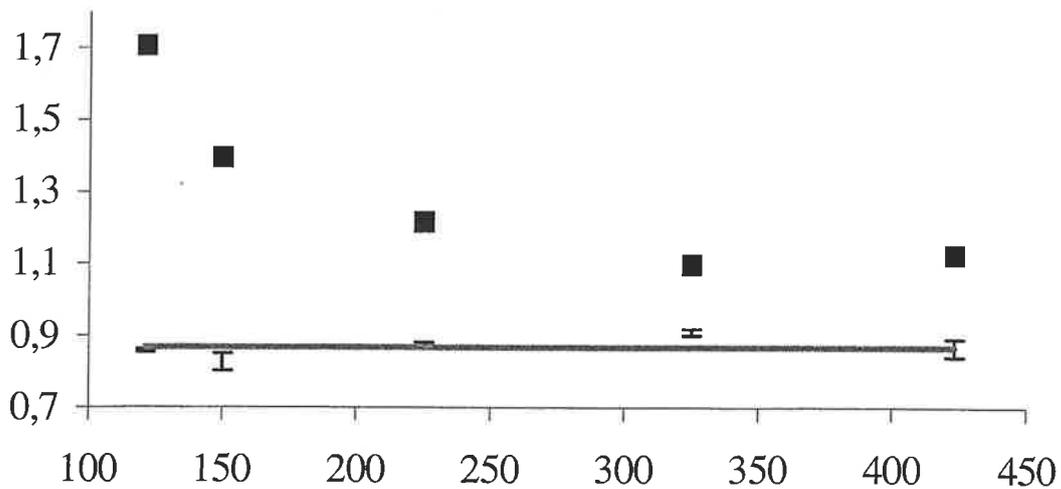


Figure 7.5 : paramètres C_1 (barres d'erreur nues) et C_2 (carrés noirs) en fonction du champ électrique. Chaque point correspond à la valeur moyenne des mesures faites sur chaque paramètre à champ donné.

7.2 Détermination des affinités électroniques.

L'utilisation d'une configuration à un passage ne permet pas de faire une mesure précise de l'affinité électronique à cause d'une mauvaise connaissance de l'angle d'intersection entre le laser et le jet. Pour nous affranchir de cette limite, nous avons fait des expériences dans des configurations en double passage transverse ou axial.

7.2.1 Expression des énergies de seuil

7.2.1.1 Configuration transversale

Le laser se propage ici dans un plan parallèle au détecteur. Le miroir de renvoi est un miroir sphérique de rayon de courbure R égal à 20 cm. La figure 7.6 schématise cette configuration. Le faisceau incident détache les électrons avec une énergie cinétique ε_i ; le faisceau réfléchi crée des électrons avec une énergie cinétique ε_r . On note D la distance entre les centres des images d'interférences créées qu'on suppose être aussi la distance de séparation des centres des volumes d'interaction. Dans la figure (7.6), le faisceau incident (i) passe en aval du faisceau réfléchi (r) par rapport au sens de propagation des ions ; on nommera cet agencement des faisceaux lasers "aval-amont". C'est pour cette configuration que les expressions suivantes seront données.

L'ajustement des deux figures donne les énergies cinétiques initiales ε_i et ε_r , dans le référentiel des ions. L'énergie de recul de l'ion due à l'impulsion du photon absorbé est de l'ordre de 10^{-6} cm⁻¹ ; elle est donc négligeable par rapport à la précision que nous avons sur la mesure de l'affinité (voir plus loin). De même, l'énergie de recul de l'atome lors de l'éjection de l'électron, dans le référentiel du centre de masse, peut aussi être négligée car elle représente moins de $4 \cdot 10^{-5}$ fois l'énergie cinétique de l'électron. L'énergie cinétique initiale de l'électron correspond donc à l'excès d'énergie $h\nu - E_s$, où $h\nu$ désigne l'énergie du photon exciteur et E_s l'énergie du seuil étudié.

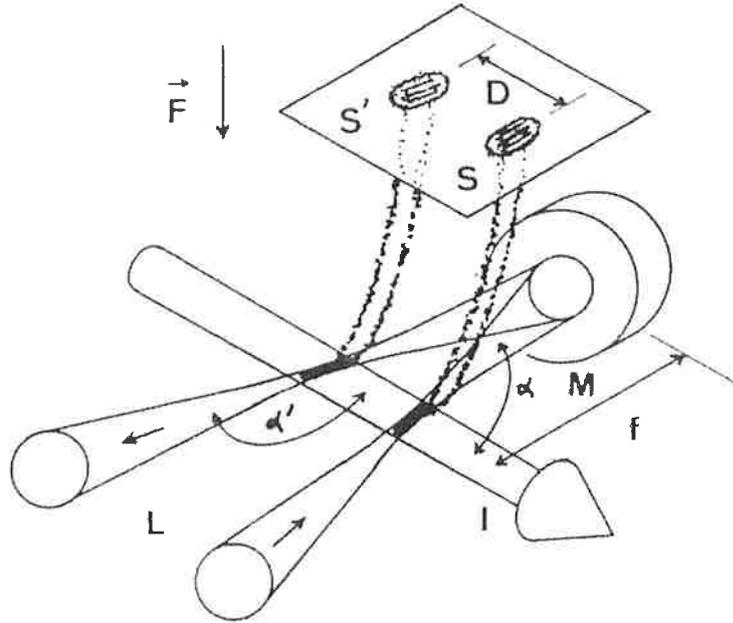


Figure 7.6 : représentation d'une configuration transverse en double passage. Le faisceau laser I traverse une première fois (faisceau incident i) le jet I en faisant avec lui un angle α puis est refocalisé (faisceau réfléchi r) par le miroir sphérique M sur le jet ; l'angle entre le laser et le jet est alors α' . La distance entre le centre du jet et le miroir est égal au rayon de courbure R du miroir. La distance D entre les centres des deux figures d'interférence est supposée celle séparant les centres des zones d'interaction laser-jet.

Les énergies cinétiques ε_i et ε_r s'expriment en fonction de la fréquence ν du laser, mesurée dans le référentiel du laboratoire, et des paramètres $\beta = v/c$ et $\gamma = (1 - \beta^2)^{-1/2}$ par les expressions de décalage Doppler suivantes :

$$\varepsilon_i = \gamma h\nu (1 - \beta \cos \alpha) - E_S \quad \varepsilon_r = \gamma h\nu (1 - \beta \cos \alpha') - E_S \quad (7.2).$$

La moyenne des deux expressions de (7.2) permet d'écrire :

$$E_S = \gamma h\nu \left(1 - \beta \cos \frac{\alpha + \alpha'}{2} \cos \frac{\alpha - \alpha'}{2} \right) - \frac{\varepsilon_i + \varepsilon_r}{2} \quad (7.3).$$

En faisant l'approximation que la distance R est grande par rapport à la distance entre les zones d'interaction (R est égale à 200 mm tandis que la distance D est de l'ordre du millimètre), on montre que les angles α et α' sont tous les deux pratiquement égaux à $(\pi + D/R)/2$. La formule (7.3) peut alors se simplifier en :

$$E_S = \gamma h\nu \left(1 + \beta \frac{D}{2R} \right) - \frac{\varepsilon_i + \varepsilon_r}{2} \quad (7.4).$$

Le décalage Doppler moyen est ici positif.

Pour un agencement "amont-aval", le décalage Doppler moyen est négatif et l'énergie du seuil vaut :

$$E_s = \gamma h\nu \left(1 - \beta \frac{D}{2R} \right) - \frac{\varepsilon_i + \varepsilon_r}{2} \quad (7.5).$$

Par les formules (7.4) et (7.5), il est possible de calculer E_s sans avoir de mesure précise des angles d'intersection du jet et du laser.

7.2.1.2 Configuration axiale

Dans la configuration axiale, la direction de propagation du laser est selon l'axe de la colonne de champ électrique. Le miroir de rayon de courbure égal à 0,85 m est placé en haut de la colonne de champ électrique. Le montage expérimental est schématisé figure 7.7. Comme pour les expériences transversales, la distance D entre les centres des images d'interférence est aussi celle séparant les deux sources. L'angle δ entre les deux faisceaux laser est petit par rapport à 1. L'agencement représenté est de type "aval-amont"

L'expression (7.3) qui donne l'énergie du seuil étudié est aussi applicable dans ce cas ci. Dans le cas axial, les angles α et α' , leur somme et leur différence sont données par :

$$\left. \begin{array}{l} \alpha = \frac{\pi}{2} + \frac{\delta}{2} + \theta \\ \alpha' = \frac{\pi}{2} + \frac{\delta}{2} - \theta \end{array} \right\} \Rightarrow \begin{cases} \alpha + \alpha' = \pi + \delta \\ \alpha - \alpha' = 2\theta \end{cases}$$

La formule (7.3) s'écrit alors :

$$E_s = \gamma h\nu \left(1 + \beta \sin \frac{\delta}{2} \cos \theta \right) - \frac{\varepsilon_i + \varepsilon_r}{2}.$$

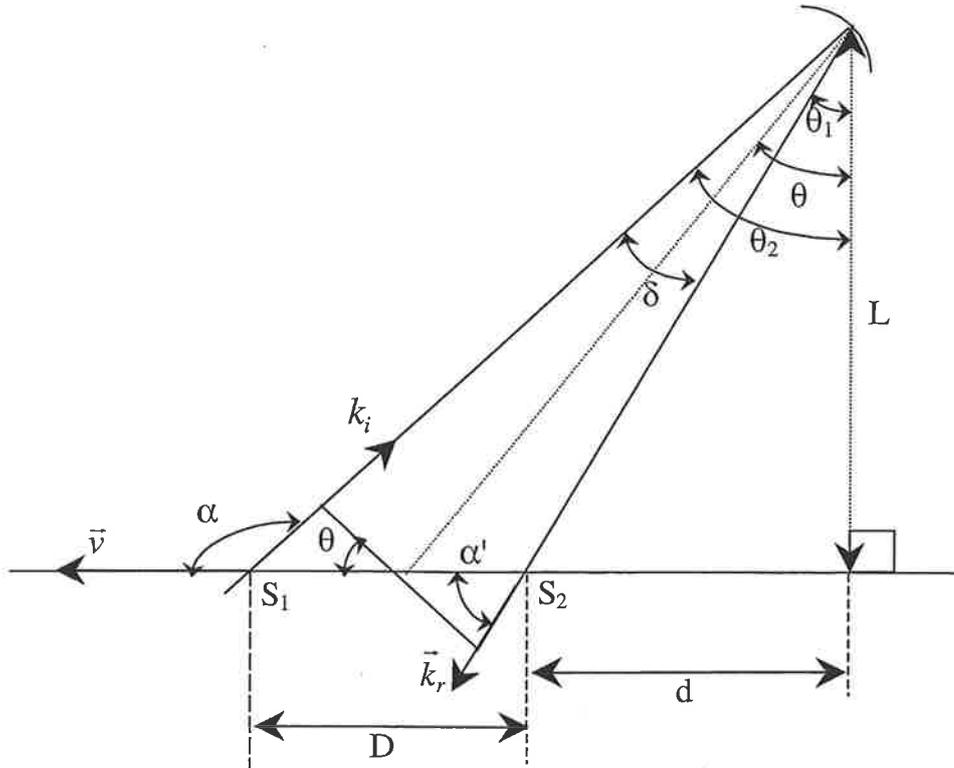


figure 7.7 : Représentation schématisée de la configuration en double passage axial. L'agencement représenté est de type aval-amont. La hauteur L entre le miroir et le jet est, dans cette configuration, beaucoup plus grande que la distance d . Les distances entre le miroir et les deux zones d'intersection S_1 et S_2 ainsi que la hauteur L peuvent alors être pris égaux au rayon de courbure R du miroir. Comme pour la configuration transverse, le vecteur d'onde incident (retour) fait un angle α (α') avec le vecteur vitesse du jet d'ion. L'écart angulaire entre les deux faisceaux est noté δ . L'angle θ est l'angle entre la verticale et la droite joignant le milieu de S_1S_2 . Les faisceaux incident et réfléchi font respectivement un angle θ_2 et θ_1 avec la verticale.

δ étant petit par rapport à 1, on peut poser :

$$\sin \frac{\delta}{2} \approx \frac{\delta}{2} \text{ et } \frac{\delta}{2} \approx \frac{D \cos \theta}{2L}$$

La relation donnant E_S est, pour les deux types d'agencement :

Agencement aval-amont	Agencement amont-aval
$E_S = \gamma h\nu \left(1 + \beta \frac{D}{2L} \cos^2 \theta \right) - \frac{\varepsilon_i + \varepsilon_r}{2}$	$E_S = \gamma h\nu \left(1 - \beta \frac{D}{2L} \cos^2 \theta \right) - \frac{\varepsilon_i + \varepsilon_r}{2}$

Prise en compte de la déflexion du jet

La formule précédente est établie en considérant que la trajectoire du jet d'ions est rectiligne. En fait, le champ électrique uniforme courbe le jet. On suppose que la configuration du jet dans la zone d'interaction est celle que décrit la figure (7.8) où ne figurent, par rapport à la figure (7.7) que les changements de définition des angles au niveau du jet.

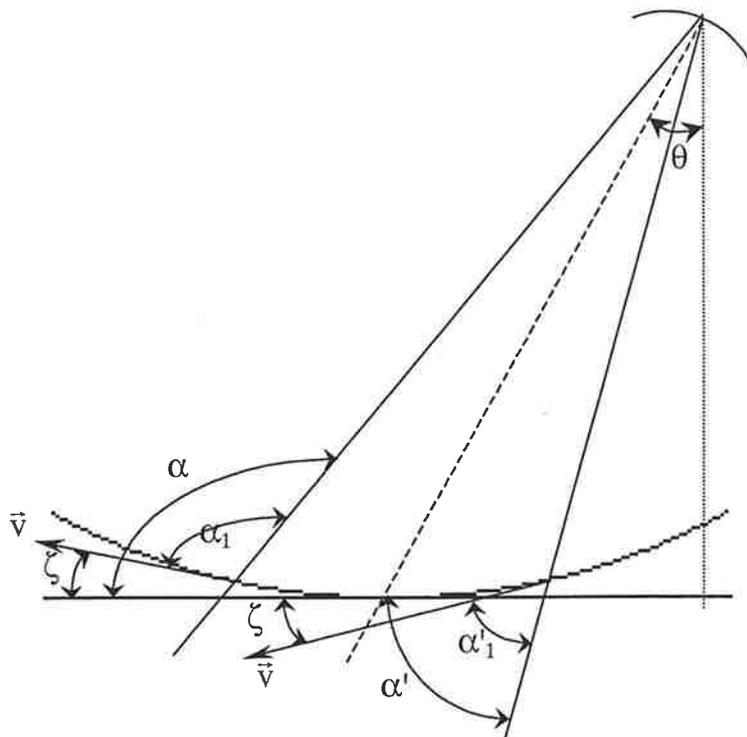


Figure 7.8 : Définition des nouveaux angles au niveau du jet dans le cas où ce dernier a une trajectoire courbe due à la déflexion des ions par le champ de la colonne. La direction moyenne du jet est prise comme référence pour la définition de l'angle θ . Le vecteur vitesse des ions fait un angle ζ avec cette direction de référence.

La déflexion des ions, accélérés sous une tension U , est telle que, aux intersections jet-laser le vecteur vitesse fait un angle ζ avec la direction moyenne du jet ; cet angle est égal à $DF/(4U)$. Les angles intervenant dans l'expression (7.3) sont α_1 et α'_1 ; ils sont respectivement égaux à $\alpha - \zeta$ et $\alpha' - \zeta$. Les calculs étant menés comme précédemment, l'énergie de seuil dans un agencement "aval-amont" des faisceaux lasers est donnée par :

$$E_s = \gamma h\nu \left[1 + \beta \frac{D}{2} \left(\frac{\cos\theta}{L} - \frac{F}{2U} \right) \cos\theta \right] - \frac{\varepsilon_i + \varepsilon_r}{2}$$

Pour $D=2$ mm, $L=0,85$ m, $\nu/c = 12000$ cm⁻¹, $F=400$ V.m⁻¹, $U=500$ V, $\theta=3^\circ$ et $\beta=2.10^{-4}$, on montre en développant $\cos\theta$ à l'ordre 2 en θ que les corrections apportées par les différents termes sont :

- correction d'effet Doppler du 1^{er} ordre : $\beta h \frac{\nu}{c} \frac{D}{2L} \approx 3.10^{-3}$ cm⁻¹
- correction de la déviation : $\beta h \frac{\nu}{c} \frac{DF}{4U} \approx 10^{-3}$ cm⁻¹
- correction d'effet Doppler du deuxième ordre : $(\gamma-1)h \frac{\nu}{c} \approx 2.10^{-4}$ cm⁻¹
- correction à l'ordre 2 en θ : $\beta h\nu \frac{D}{2} \left(\frac{1}{L} - \frac{F}{4U} \right) \theta^2 \approx 6.10^{-6}$ cm⁻¹.

L'erreur prise en faisant $\cos\theta=1$ est négligeable. Nous garderons en revanche la correction d'effet Doppler du second ordre. Ceci est aussi valable pour les formules sans correction de déviation.

Influence de la déflexion sur les mesures

La figure 7.9 montre l'effet qu'entraîne la prise en compte de la courbure du jet sur la mesure d'une énergie de seuil de l'oxygène. Le choix d'une configuration "aval-amont" ou "amont-aval" ne doit en principe pas avoir d'influence sur la mesure. Si on ne tient pas compte de la courbure, les deux types de mesures sont décalés systématiquement. Ce décalage disparaît quand on rajoute la description de la déviation du jet par le champ électrique uniforme.

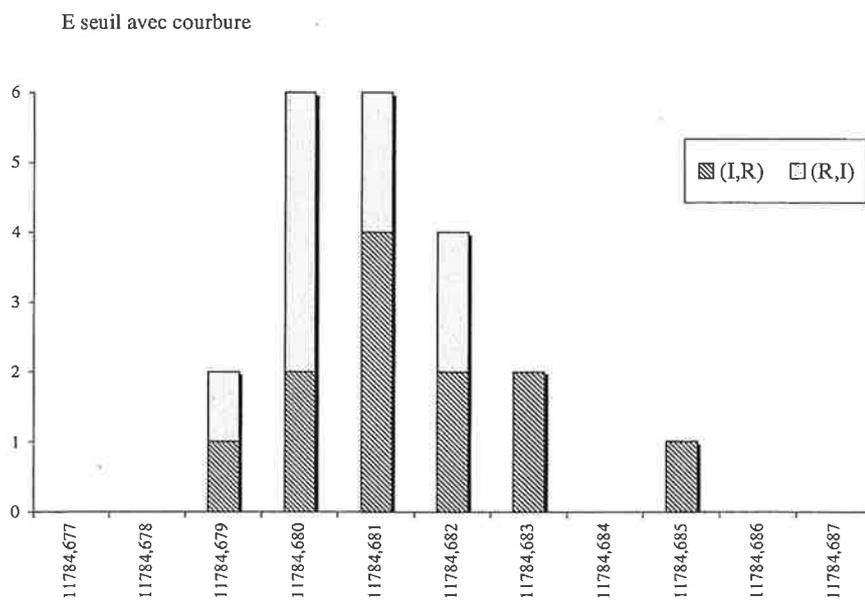
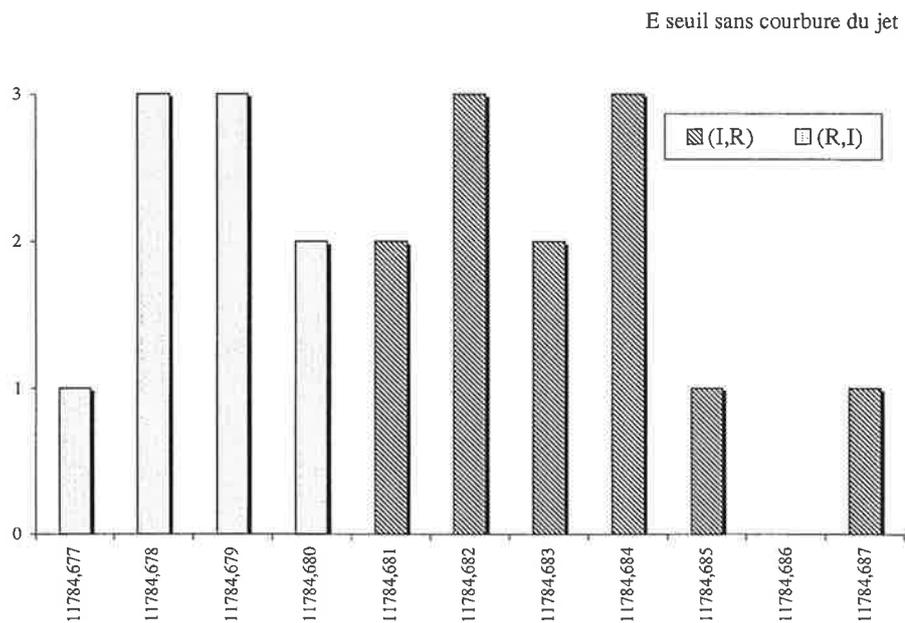


figure 7.9 : histogrammes des mesures d'énergie de seuil effectuées sans tenir compte de la courbure du jet (en haut) et en tenant compte de cette courbure (en bas). Les dénominations (I,R) et (R,I) correspondent respectivement aux agencements "aval-amont" et "amont-aval".

7.2.2 Expression de l'énergie de seuil

Le tableau suivant répertorie les différentes formules qui définissent l'énergie de seuil E_s . Lorsque l'agencement des faisceaux est de type "aval-amont", $\eta = 1$ et dans le type "amont-aval", $\eta = -1$:

Configuration	Expression de l'énergie de seuil
Transversal	$E_s = \gamma h\nu \left(1 + \eta\beta \frac{D}{2R} \right) - \frac{\varepsilon_i + \varepsilon_r}{2}$
Axial	Sans déviation $E_s = \gamma h\nu \left(1 + \eta\beta \frac{D}{2R} \right) - \frac{\varepsilon_i + \varepsilon_r}{2}$
	Avec déviation $E_s = \gamma h\nu \left[1 + \eta\beta \frac{D}{2} \left(\frac{1}{R} - \frac{F}{2U} \right) \right] - \frac{\varepsilon_i + \varepsilon_r}{2}$

Tableau 7.4 : formules pour la détermination des énergies de seuil données pour les deux types de configurations en double passage, transverse et axiale en fonction des énergies cinétiques ε_i et ε_r mesurées. Le champ électrique est noté F , le rayon de courbure du miroir est R et les sources sont séparées d'une distance D . Le facteur η est égal à 1 pour l'agencement "aval-amont" et égal à -1 pour l'agencement "amont-aval". Pour la configuration axiale, les formules sont données sans tenir de la déflexion du jet et en tenant compte de cette déviation.

La confusion entre une tache "aval-amont" et une tache "amont-aval" entraîne une erreur de $0,03 \text{ cm}^{-1}$ sur la valeur de l'énergie de seuil pour une configuration transverse mais seulement de $0,008 \text{ cm}^{-1}$ pour une configuration axiale. L'erreur ne peut donc passer inaperçue dans la première configuration mais il faut veiller à ne pas confondre les taches pour la seconde.

7.2.3 Estimation des incertitudes

7.2.3.1 Incertitude sur la longueur d'onde

La valeur de la longueur d'onde du laser pour chaque expérience résulte d'une moyenne de l'ensemble des mesures effectuées par le lambdamètre au cours de l'expérience. La dispersion normale des mesures autour de cette moyenne est de l'ordre de 0,1 pm, soit en unité de nombre d'onde $1,4 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$. Comme nous ne pouvons exclure la possibilité d'avoir, certains jours, des décalages systématiques des moyennes et qu'ils peuvent être de l'ordre de grandeur de la dispersion des mesures, l'incertitude finale commise sur la longueur d'onde peut être estimée de façon prudente à $\pm 2 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$.

7.2.3.2 Le champ électrique

La microscopie de photodétachement mesure la phase maximum correspondant à chaque image. Suivant la formule donnée au paragraphe 3.5.5, cette méthode mesure essentiellement le rapport $\varepsilon^{3/2}/F$. Ainsi une incertitude sur le champ électrique induit une erreur sur la mesure de l'énergie cinétique. La colonne a été conçue de telle sorte que l'écartement entre deux plaques ne varie pas de plus de 0,6% de part et d'autre de sa valeur moyenne. Le constructeur du générateur de tension alimentant cette colonne assure que l'incertitude sur la tension délivrée est de $\pm 0,2 \%$. Enfin, chaque résistance du pont diviseur de tension est déterminée à 0,1% près.

L'incertitude sur le champ est donc de $\pm 0,9 \%$, soit une incertitude de 0,6% sur l'énergie cinétique. Les images de photodétachement utilisées pour la mesure des affinités correspondent à des énergies cinétiques initiales comprises entre 0,6 et 0,8 cm^{-1} , ce qui correspond à une incertitude sur la valeur de l'énergie de $\pm 5 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$.

7.2.3.3 La valeur du pixel

Quoique la détermination de l'énergie cinétique n'exige pas une mesure de longueur, le calcul de l'affinité repose sur l'évaluation de la distance entre les sources dans les expériences en double passages. Cette distance est supposée être celle mesurée entre les centres des taches de photodétachement. Or cette mesure est faite sur les taches en unité de pixel et la conversion en véritable mesure de longueur repose sur la dimension estimée de ce

pixel. Cette valeur est estimée à 26 μm avec une incertitude de $\pm 2\%$ ce qui entraîne une erreur supplémentaire de $\pm 4 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ sur l'affinité électronique.

7.2.3.4 La vitesse du jet d'ions

La vitesse du jet d'ions participe également au calcul de l'affinité électronique. On estime la vitesse des ions à 1 % près, soit une incertitude de $\pm 0,5\%$ sur la correction d'effet Doppler au premier ordre. L'incertitude sur l'énergie est alors de $\pm 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$.

L'incertitude totale, hors dispersion des mesures, est de $\pm 0,008 \text{ cm}^{-1}$.

7.2.3 Résultats

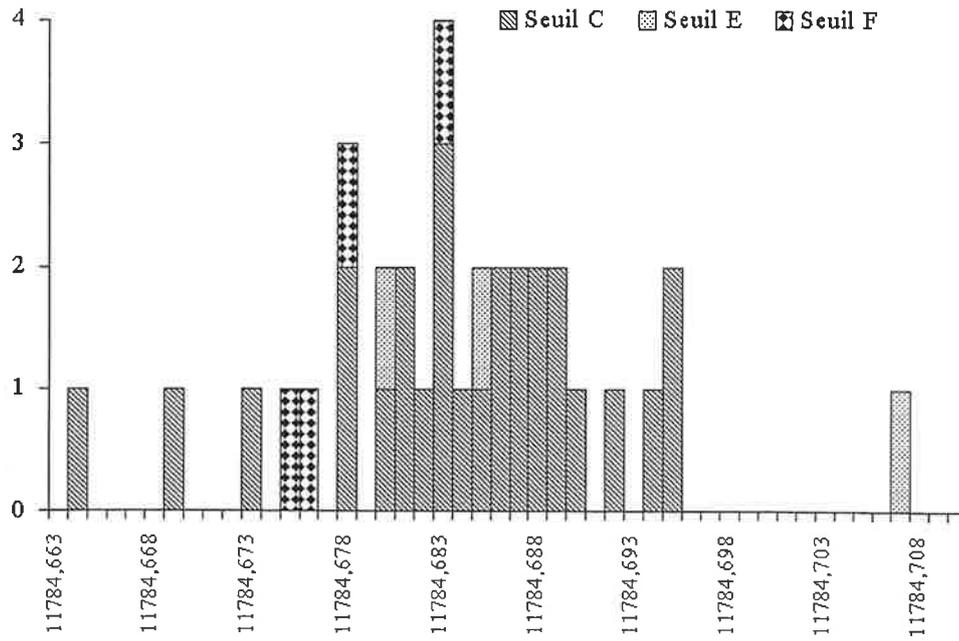
7.2.3.1 Affinités électroniques

Oxygène ^{16}O

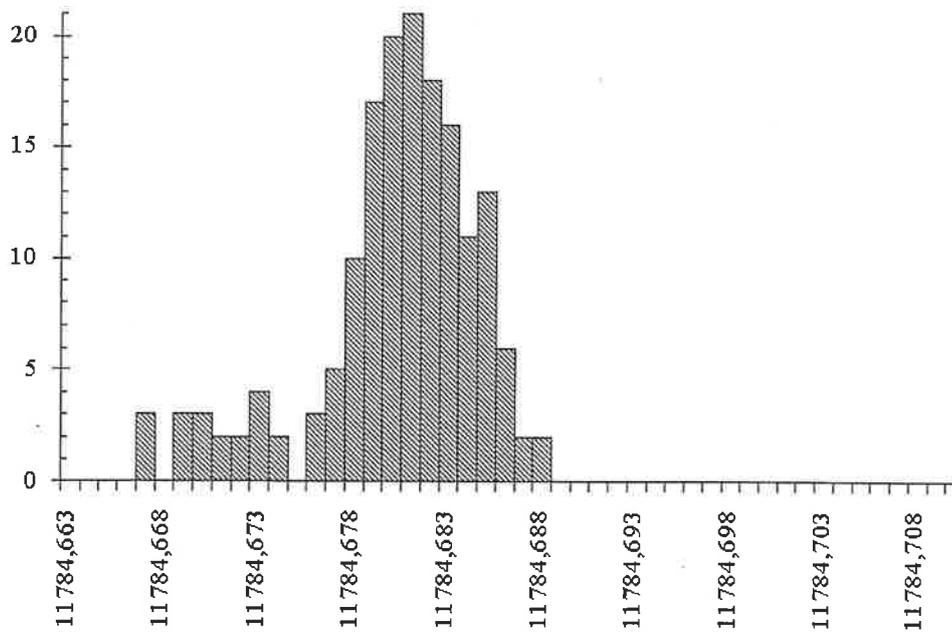
Des expériences de photodétachement juste au-dessus du seuil C de l'oxygène, dont l'énergie de seuil correspond à l'affinité électronique notée $E_A(^{16}\text{O})$, ont été réalisées aussi bien en configuration transverse qu'axiale. Les histogrammes des mesures correspondant à chaque configuration sont donnés en figure (7.10).

Pour ces deux ensembles de mesures, nous calculons la valeur de l'affinité en faisant la moyenne des mesures. La moyenne et la dispersion normale σ_{moy} des données autour de la moyenne sont respectivement pour les configurations transverse et axiale :

$$\begin{aligned} E_A^t(^{16}\text{O}) &= 11784,682 \text{ cm}^{-1} \text{ avec } \sigma_{\text{moy}}^t = 0,008 \text{ cm}^{-1} \\ E_A^a(^{16}\text{O}) &= 11784,680 \text{ cm}^{-1} \text{ avec } \sigma_{\text{moy}}^a = 0,005 \text{ cm}^{-1} \end{aligned} \quad (7.6)$$



(a)



(b)

figure 7.10 : histogramme du nombre de mesures ayant fourni une valeur donnée de l'affinité électronique Pour les mesures faites en configuration transverse (a), on utilise les mesures des énergies des seuils E et F comme une mesure du seuil C puisque l'écart entre ces seuils correspond aux écarts entre les niveaux de structure fine de ^{16}O (voir paragraphe 4.2.1). Pour les mesures faites en configuration axiale (b), l'historgramme comprend des mesures réalisées avec des vitesses de jet différentes.

où la notation t et a distingue les résultats transversaux des résultats axiaux. Ces valeurs tiennent compte de la correction de $-1,2 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ due à l'estimation de la pression atmosphérique à laquelle se pratique l'expérience. L'accord entre les deux méthodes est excellent.

Mais la comparaison entre la dispersion des mesures dans les deux histogrammes montre bien que les expériences axiales donnent de meilleures mesures que les transverses. Les taches d'expériences axiales fournissent au programme d'ajustement beaucoup plus de points de données que les taches réduites d'expériences transverses. L'estimation de l'énergie cinétique est donc plus fiable dans le second cas.

La valeur de l'affinité est calculée en faisant la moyenne des affinités électroniques données en (7.6) pondérées par le carré de la dispersion σ des mesures correspondant à chaque affinité. Cette moyenne et sa dispersion σ sont égales à :

$$E_A(^{16}\text{O}) = 11784,680 \text{ cm}^{-1} \quad \sigma = 0,004 \text{ cm}^{-1}$$

L'incertitude sur la mesure est la somme de l'incertitude sur l'énergie, obtenue au paragraphe 7.2.3, due aux mesures des paramètres de l'expérience et de l'incertitude due à la dispersion de la mesure qui est prise comme étant égale à 2 fois σ . La mesure de l'affinité électronique de l'oxygène est :

$$\boxed{E_A(^{16}\text{O}) = 11784,680(16) \text{ cm}^{-1}} \quad (7.7)$$

Cette valeur de l'affinité diffère notablement de la valeur jusque là officiellement admise de $11784,648(6) \text{ cm}^{-1}$. Même si on surestime, dans des proportions raisonnables, les incertitudes sur tous les paramètres, les barres d'erreur des deux valeurs ne se recouvrent pas. Une cause possible pour cette différence pourrait être la présence d'un champ magnétique dans la colonne due à un problème de blindage. Mais les mesures de champ magnétique par sonde à effet Hall au niveau de la zone d'interaction en présence du blindage sans pompe en fonctionnement montrent que le champ n'est que de $3 \mu\text{T}$, valeur qui correspond à une énergie cyclotron de $3 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^{-1}$. Un accroissement d'énergie de détachement dû à une structure de Landau dans le conti-

num de détachement est de 4 ordres de grandeur trop faible pour expliquer la différence. A ce jour, nous n'avons pas d'explication en termes de décalage systématique pour interpréter la différence entre les deux valeurs.

Oxygène ^{18}O

Les mesures à partir d'images de photodétachement réalisées au-dessus du seuil C de l'isotope 18 de l'oxygène donnent pour des expériences transverses et axiales les affinités électroniques suivantes :

$$E_A^t(^{18}\text{O}) = 11784,612 \text{ cm}^{-1} \text{ avec } \sigma^t = 0,010 \text{ cm}^{-1}$$

$$E_A^a(^{18}\text{O}) = 11784,605 \text{ cm}^{-1} \text{ avec } \sigma^a = 0,004 \text{ cm}^{-1}$$

Là encore l'accord entre les deux est excellent. L'affinité électronique de l'isotope 18 et l'incertitude sur sa valeur sont calculées à partir des deux mesures précédentes de la même façon que pour $E_A(^{16}\text{O})$ comme étant la mesure axiale et vaut :

$$\boxed{E_A(^{18}\text{O}) = 11784,606 (20) \text{ cm}^{-1}} \quad (7.8).$$

Fluor ^{19}F

L'étude du ^{19}F a été effectuée uniquement en configuration axiale. Cette dernière diffère de celle de l'oxygène par le miroir de renvoi dont le rayon de courbure est égal à 1 m. L'affinité est mesurée à :

$$\boxed{E_A(^{19}\text{F}) = 27432,451 (20) \text{ cm}^{-1}} \quad (7.9)$$

Cette valeur est à comparer avec celle mesurée en 1989 par Blondel *et al.* [BLO89] :

$$E_A(^{19}\text{F}) = 27432,440 (25) \text{ cm}^{-1}.$$

Les deux valeurs sont en bon accord et autorisent à penser que notre méthode de mesure est valide.

7.2.3.2 Ecart de structure fine dans l'oxygène

L'analyse du photodétachement au-dessus des seuils A, B et D de ^{16}O permet de donner une valeur à l'énergie du seuil A de la même façon que les énergies de seuils C, E et F fournissent une valeur de l'affinité électronique. A la différence de la mesure de l'affinité, la présente mesure a été effectuée avec un petit nombre de mesures individuelles ; les incertitudes sur les valeurs sont donc plus importantes que dans le cas de la mesure de l'affinité électronique. L'étude a été réalisée dans les deux types de configuration. La valeur de l'énergie de ce seuil est :

$$E^A(^{16}\text{O}) = 11607,596(18) \text{ cm}^{-1} \quad (7.10)$$

La différence entre l'affinité électronique et l'énergie du seuil A permet de mesurer l'écart de structure fine de $^{16}\text{O}^-$, c'est à dire l'écart entre les niveaux $^2\text{P}_{1/2}$ et $^2\text{P}_{3/2}$. Cet écart vaut :

$$\Delta E(^2\text{P}_{1/2} - ^2\text{P}_{3/2}) = 177,084(13) \text{ cm}^{-1}. \quad (7.11)$$

La valeur référencée jusqu'alors [HOT85] est $177,08(5) \text{ cm}^{-1}$ et provient de l'expérience de Neumark *et al.* [NEU85] ayant permis l'obtention de l'affinité de l'oxygène. L'accord est excellent et notre mesure permet de réduire les barres d'erreur.

7.2.3.3 Déplacement isotopique

La différence entre les affinités électroniques de ^{16}O et de ^{18}O permet de déterminer la valeur du décalage isotopique d'affinité électronique qu'entraîne la variation de masse du noyau. Le décalage isotopique, de l'affinité électronique de ^{18}O par rapport à ^{16}O vaut :

$$E_A(^{18}\text{O}) - E_A(^{16}\text{O}) = -0,075(13) \text{ cm}^{-1} \quad (7.12)$$

La valeur négative de ce déplacement isotopique n'est pas expliquée par un effet normal de masse. Pour déterminer ce dernier, il faut écrire le hamiltonien du mouvement dans le référentiel du centre de masse :

$$H = \sum_i \frac{\vec{p}_i^2}{2m} + \frac{1}{2M} \left(- \sum_i \vec{p}_i \right)^2 + V$$

où \vec{p}_i et $-\sum \vec{p}_i$ représentent respectivement les impulsions d'un électron et du noyau par effet de recul par rapport au centre de masse, V désigne le potentiel global, m et M sont les masses d'un électron et du noyau. On peut ré-écrire cet hamiltonien comme :

$$H = \sum_i \frac{\vec{p}_i^2}{2} \left(\frac{1}{m} + \frac{1}{M} \right) + V + \frac{1}{M} \left(\sum_{i>j} \vec{p}_i \cdot \vec{p}_j \right)^2 \quad (7.13)$$

En l'absence de corrélation, le calcul des niveaux d'énergies du système permet de montrer que la valeur moyenne de la somme des produits croisés des impulsions est nulle et que les niveaux d'énergies sont proportionnels à $mM/(m+M)$. Ainsi, l'affinité, qui est la différence entre l'énergie du niveau de détachement ($E = 0$) et celle du niveau fondamental de l'ion, dépend de la masse du noyau comme :

$$E_A(M) \propto \frac{mM}{m+M}.$$

Pour deux masses différentes M_1 et M_2 avec $M_2 > M_1$, la différence des affinités rapportée à la valeur de celle d'un des deux atomes est :

$$\frac{E_A(M_2) - E_A(M_1)}{E_A(M_1)} = \frac{M_2 - M_1}{M_1(M_2 + m)} m \approx \left(\frac{1}{M_1} - \frac{1}{M_2} \right) m.$$

Dans cette approximation, l'affinité du noyau le plus lourd est toujours plus grande que celle du noyau léger. Pour l'oxygène, le déplacement par effet normal de masse est de $0,045 \text{ cm}^{-1}$.

La comparaison avec (7.11) montre que les effets de corrélation entre électrons ne sont pas négligeables et donc que la valeur moyenne de la somme des produits croisés des impulsions dans (7.12) n'est pas nulle. Cette seconde contribution est appelée effet spécifique de masse.

Afin de vérifier ce résultat, M. R. Godefroid et C. F. Fischer ont évalué par des calculs *ab initio* l'affinité électronique de ^{16}O et de ^{18}O [GOD99]. Les niveaux d'énergies fondamentaux de l'atome et de l'ion sont

calculés par une méthode de Hartree-Fock multiconfigurationnelle. Ces calculs montrent que le déplacement isotopique par effet par effet spécifique de masse est $-0,1023 \text{ cm}^{-1}$. Le déplacement isotopique par effet normal et effet spécifique de masse est égal à $-0,0573 \text{ cm}^{-1}$. L'accord entre les calculs théoriques et l'expérience est remarquable.

7.4 Robustesse des affinités électroniques mesurées vis-à-vis des variations de vitesse des ions et de champ.

L'histogramme (b) de la figure 7.10 est composé de mesures faites pour des vitesses de jet et des champs différents. Il faut rappeler que la théorie suppose une source immobile. Nous avons donc pratiqué différentes expériences à vitesses différentes pour voir si elles jouent un rôle dans l'aspect du motif interférentiel. La figure (7.11) représente chaque mesure d'affinité en fonction de la vitesse du jet. Chaque valeur du champ est représentée par un dessin de point et une couleur différente. Les deux droites représentent la moyenne des données calculées par deux jeux de données différents (voir légende figure).

Quels que soient le champ et la vitesse du jet, les mesures de l'affinité sont toutes dans le même intervalle de valeur, entre $11784,675$ et $11784,686 \text{ cm}^{-1}$. Seules 12 mesures tombent hors de cet intervalle : 7 proviennent de mesures faites avec un champ de 425 V.m^{-1} et une vitesse de 500 eV , et 5 d'expériences à 101 V.m^{-1} et 100 eV .

Les premières font partie d'une série de 23 mesures qui tombent, hormis ces 7 mesures là, dans l'intervalle défini plus haut. Rien n'explique le décalage qui existe entre ces deux groupes. L'ajustement a été pratiqué de la même façon et aucune erreur de mesure de la longueur d'onde ne semble avoir été faite. Il faut aussi écarter la possible confusion entre une configuration aval-amont et amont-aval. De ce fait, la position des mesures du second groupe n'est peut-être que le fait du hasard.

Cette étude semble montrer que les mesures de l'affinité ne dépendent ni de la vitesse du jet, ni du champ électrique. D'autres études aux faibles vitesses sont toutefois nécessaires pour confirmer cette indépendance.

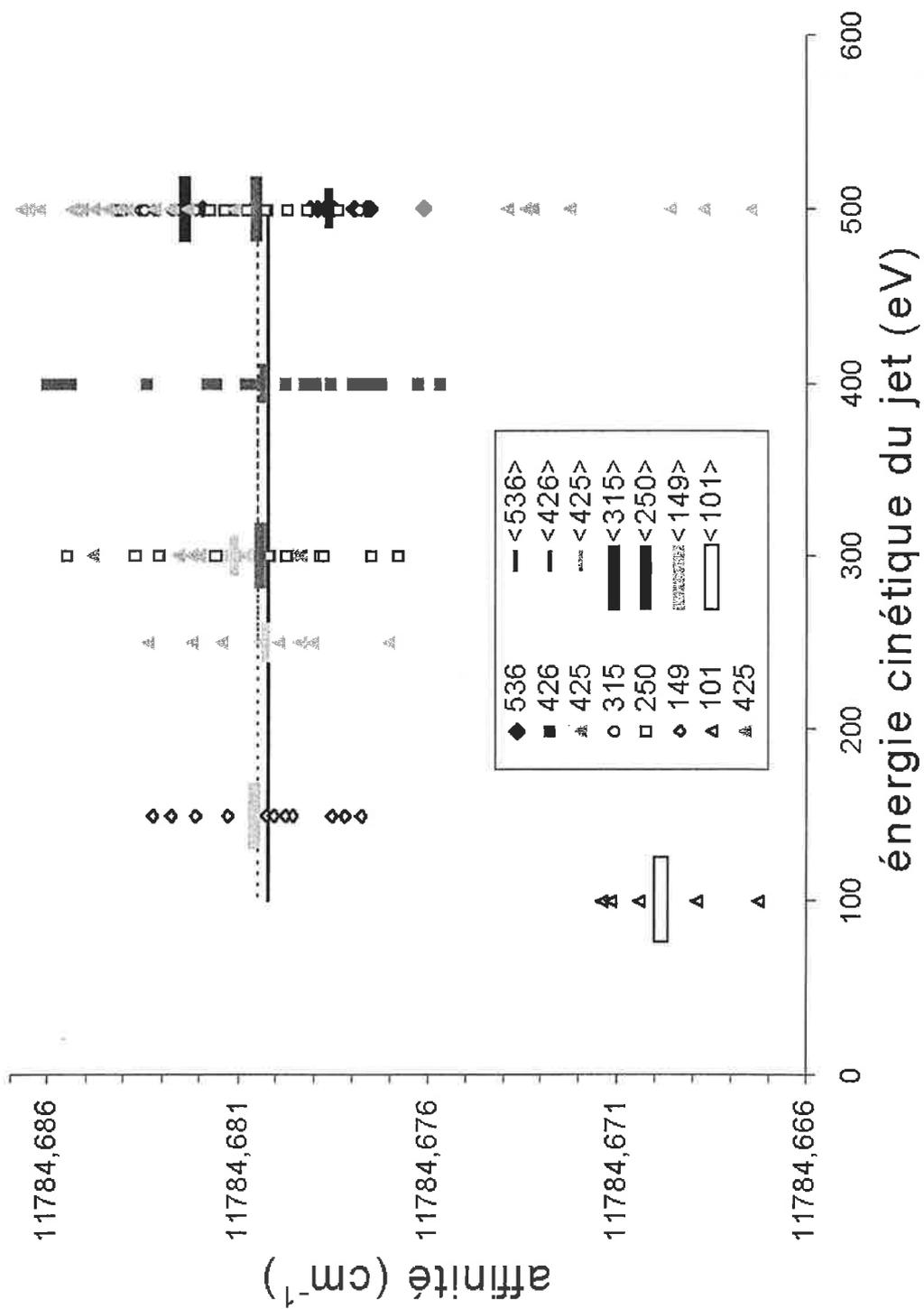


figure 7.11 : mesures de l'affinité électronique en fonction du champ et de la vitesse du jet d'ion. La droite en trait plein représente la moyenne de toutes les données; La droite en trait pointillé correspond à la moyenne des données exceptées la série à 101 V.m⁻¹. C'est la valeur représentée par la droite en trait plein qui est utilisée comme valeur de l'affinité électronique.

7.5 Vérification de la taille du pixel grâce aux affinités

Le calcul de l'affinité dépend des dimensions du pixel à travers le paramètre D . Comme le montrent les formules du tableau 7.4, E_S est une fonction linéaire croissante de la taille du pixel pour les expériences de type aval-amont et décroissante pour les expériences amont-aval. Les deux fonctions de pente opposées ne sont égales que pour une valeur de la taille du pixel. Ces fonctions sont représentées en figure (7.12). Ceci fournit une mesure de la dimension réelle du pixel qui paraît effectivement comprise entre 25,5 et 26,5 μm (soit dans l'incertitude de 2% sur la taille du pixel admise au paragraphe 7.2.3.3).

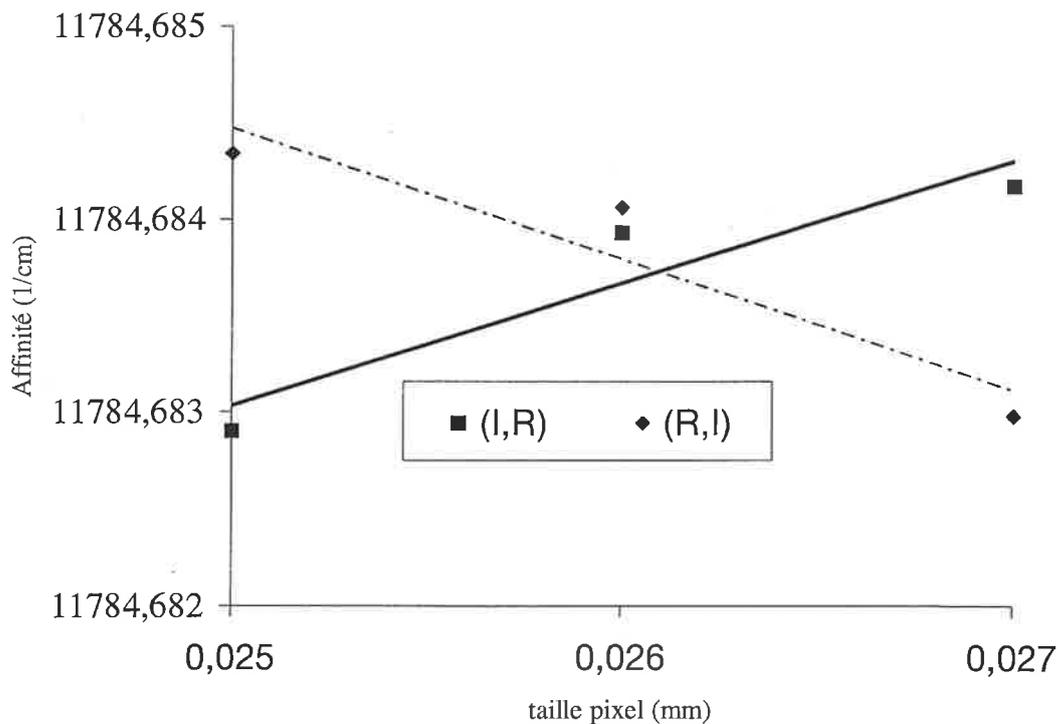


figure 7.12 : affinité électronique en fonction de la taille du pixel. Les données représentées par un carré correspondent à des mesures en aval-amont, celles marquées par un losange viennent de mesures amont-aval. Les droites en trait plein et pointillés sont les droites de régression linéaire correspondantes.

Chapitre 8

Conclusion

L'étude du mouvement d'un point matériel soumis à un potentiel linéaire dans l'une des coordonnées d'espace constitue, en mécanique, le second problème, par ordre de difficulté croissante, après l'étude du mouvement de la particule libre. Le traitement quantique du problème a toutefois réservé, encore dans un passé récent, quelques surprises. En témoigne l'étrange comportement des sections efficaces de photodétachement atomiques en l'absence ou présence d'un champ électrique. Sans champ électrique, ces sections efficaces sont des fonctions monotones et croissantes de l'énergie. En champ électrique, elles deviennent oscillantes.

En 1980, I. I. Fabrikant [FAB80] proposait pour la première fois une interprétation de cette oscillation en termes d'interférences. Il prévoyait alors que les sections efficaces partielles, spatiales et angulaires, devaient aussi subir ces interférences ; les sections partielles étant liées aux densités locales de courant, les interférences se manifestent en chaque point de l'espace, formant une figure d'interférence qui correspond au carré du module des fonctions d'onde des électrons émis. En 1981, Demkov, Kondratovich et Ostrovski [DEM81] montrèrent théoriquement que ces figures ont un interfrange suffisant pour être observées. En 1996, Blondel *et al.* [BLO96] démontrèrent la réalité expérimentale des figures d'interférences sur les ions négatifs grâce au dispositif nouveau du "microscope de photodétachement".

Cette thèse représente la première analyse expérimentale quantitative de ces interférogrammes obtenus avec deux ions particuliers, O^- et F^- .

La description théorique du mouvement de l'électron photodétaché, dans le cas des ions négatifs, permet de lier la phase de l'oscillation de la figure d'interférence à l'énergie cinétique initiale d'éjection. Les figures obtenues par photodétachement en présence de champ électrique uniforme permettent de pratiquer une mesure interférométrique de l'énergie. Le but de cette thèse était de montrer que cette méthode de mesure est au moins aussi précise que les méthodes classiques de spectrométrie d'électrons.

Les mesures d'affinité électronique de l'oxygène ^{16}O et du fluor ^{19}F ont prouvé la validité de cette approche. Le dispositif se révèle suffisamment sensible pour faire, en outre, l'imagerie de fonction d'onde d'un électron émis à partir d'un ion négatif $^{18}O^-$, voire $^{17}O^-$. Cela nous a permis de donner la première estimation du déplacement isotopique de l'affinité électronique de l'oxygène. Il a été confirmé par les calculs théoriques de M. R. Godefroid et C. F. Fischer qui ont utilisé des méthodes Hartree-Fock multiconfigurationnelles sur l'oxygène. De plus, nous confirmons la valeur de l'écart de structure fine des niveaux $^2P_{1/2}$ et $^2P_{3/2}$ de $^{16}O^-$ déjà mesurée indépendamment [NEU85].

Quelques problèmes ont vu le jour. Les figures d'interférences ne sont pas circulaires comme la théorie le prévoit, mais légèrement ovales. Cette forme est d'autant plus prononcée que le champ électrique uniforme appliqué est faible. Ceci laisse soupçonner la présence d'un champ parasite. De plus, l'utilisation intensive d'une même zone du détecteur détériore ce dernier ce qui influe sur la définition des images. Enfin, l'étude de l'affinité électronique en fonction de la vitesse du jet semble mettre en évidence un comportement original pour les basses vitesses de jet et les faibles intensités de champ électrique.

L'étude systématique de l'influence de champs électrique et magnétique transverses permettrait de cerner plus précisément les défauts possibles de la colonne de champ uniforme et leur influence sur le motif interférentiel. Un meilleur contrôle du jet aux basses vitesses permettrait également de faire une étude plus précise de l'influence de la vitesse.

La description du phénomène dans l'approximation de l'électron libre semble être suffisante pour rendre compte des images expérimentales. Mais tant le fluor que l'oxygène sont des atomes légers. Leur influence sur l'élec-

tron sortant peut ne pas être assez importante pour induire des phases différentes de ce qu'elles sont dans l'approximation de l'électron libre. L'étude du photodétachement sur des ions plus massifs et plus gros pourrait révéler des déviations par rapport à la description idéale.

Enfin, nous pouvons envisager d'utiliser des champs électriques non uniformes pour créer des lentilles électrostatiques qui permettent d'agrandir les images. D'une part, cela diminuerait, dans les expériences de photodétachement, le nombre d'électrons par unité de surface sur le détecteur et donc ralentirait sa détérioration. D'autre part, cela rendrait possible la visualisation du motif d'interférence issu de la photoionisation d'atomes neutres. Des essais préliminaires ont déjà eu lieu. Ils ont montré qu'une configuration de champ électrique délibérément inhomogène ne faisait pas disparaître la figure d'interférence. Par contre, la mise en place d'une configuration qui ait véritablement les vertus d'un télescope électronique (agrandissement des images sans modification de la phase) oblige à modifier plus profondément le dispositif, ce qui nécessite au préalable des études théoriques sur le photodétachement en champ inhomogène et des simulations de configurations de champ.

Annexe

Expressions exactes des densités de courant

Nous avons donné au chapitre 3 les expressions des densités de courant dans l'approximation du détecteur éloigné. Nous regroupons ici les expressions exactes de ces densités de courant. Ces expressions sont celles qui ont été établies par I.I. Fabrikant en 1980 [FAB80]. Le premier paragraphe s'attache à établir la formule donnant la densité de courant classique sans utiliser le modèle de la sphère projetée. Nous y montrerons aussi que, en tenant compte de l'éloignement du détecteur, l'expression exacte peut se simplifier pour donner la formule obtenue avec la projection de la sphère. Dans le second paragraphe, nous détaillerons le calcul conduisant à la forme de la densité de courant semi-classique.

1 Densité de courant classique.

La relation permettant d'exprimer la densité de courant classique sur le détecteur placé à l'altitude $z = -z_0$ en fonction du rayon ρ est donnée par la formule (3.9) :

$$j_z^{clas.} = \frac{I}{4\pi} \left(\frac{\sin \alpha_1}{\rho} \left| \frac{d\alpha_1}{d\rho} \right| + \frac{\sin \alpha_2}{\rho} \left| \frac{d\alpha_2}{d\rho} \right| \right) \quad (a).$$

Il suffit maintenant d'exprimer la dérivée de l'angle d'éjection α_k de l'électron en fonction du rayon ρ . Pour cela, nous utilisons l'expression (3.7) donnant la cotangente de l'angle en fonction de ce rayon :

$$\left\{ \begin{array}{l} \cotg \alpha_k = \frac{2a}{\rho} [1 + (-1)^k u(\rho)] \\ \sin \alpha_k = \frac{\rho}{2\sqrt{2}a} \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{z_0}{2a} + (-1)^k u(\rho)}} \end{array} \right. \quad \text{où } u(\rho) = \sqrt{1 + \frac{z_0}{a} - \left(\frac{\rho}{2a}\right)^2} \quad (b)$$

En dérivant les deux membres de l'égalité (b) par rapport à ρ , on montre que la dérivée de α_k par rapport à ρ est égale à :

$$\frac{d\alpha_k}{d\rho} = \frac{(-1)^k}{4a u(\rho)} \frac{1 + \frac{z_0}{a} + (-1)^k u(\rho)}{1 + \frac{z_0}{2a} + (-1)^k u(\rho)}$$

La densité de courant classique est égale à :

$$j_z^{clas.} = \frac{I}{32\sqrt{2}\pi a^2 u(\rho)} \sum_{k=0}^1 \frac{1 + \frac{z_0}{a} + (-1)^k u(\rho)}{\left[1 + \frac{z_0}{2a} + (-1)^k u(\rho)\right]^{\frac{3}{2}}} \quad (d)$$

Expression dans l'approximation du détecteur éloigné

La distance entre la source et le détecteur, z_0 , est beaucoup plus grande que la distance a . Nous devons donc, à partir de (d), retrouver l'expression (3.11). A l'ordre le plus bas en $(a/z_0)^{1/2}$, on a :

$$\frac{1 + \frac{z_0}{a} + (-1)^k u(\rho)}{\left(1 + \frac{z_0}{2a} + (-1)^k u(\rho)\right)^{\frac{3}{2}}} \sim 2\sqrt{2} \sqrt{\frac{z_0}{a}}$$

$$u(\rho) = \sqrt{1 + \frac{z_0}{a} - \left(\frac{\rho}{2a}\right)^2} \approx \sqrt{\frac{z_0}{a}} \sqrt{1 - \left(\frac{\rho}{2\sqrt{a z_0}}\right)^2}$$

La densité de courant est équivalente à :

$$j_z^{clas.} \sim \frac{I}{2\pi \rho_{max}^2 \sqrt{1 - \left(\frac{\rho}{\rho_{max}}\right)^2}} \quad \text{où on pose } \rho_{max} = 2 \sqrt{a z_0}$$

C'est bien la relation trouvée au paragraphe 3.2.2

2 Densité de courant semi-classique

Nous avons établi au paragraphe 3.3.2 que l'expression semi-classique de la densité de courant s'obtient grâce à :

$$j_{-z_0} = \frac{-e}{m} \left(\varphi_0^2 \frac{dA_0}{dz} + \varphi_1^2 \frac{dA_1}{dz} + \varphi_0 \varphi_1 \frac{d(A_0 + A_1)}{dz} \cos\left(\frac{A_0 - A_1}{\hbar}\right) \right)_{-z_0} \quad (e)$$

où A_k correspond à l'action réduite calculée le long de la trajectoire k . Cette expression a été obtenue avec l'hypothèse que la dérivée de φ_k par rapport à z est négligeable devant $\frac{\varphi_k}{\hbar} \frac{dA_k}{dz}$. Nous établissons d'abord l'expression exacte

de la différence d'action réduite entre les deux trajectoires que nous utilisons ensuite pour établir l'expression de la densité de courant semi-classique. Enfin, nous détaillerons la démarche qui mène à l'expression simplifiée de cette densité de courant dans l'approximation du détecteur éloigné.

2.1 Expression de l'action réduite

Au paragraphe 3.3.2, nous avons établi que l'action réduite A_k est donnée par :

$$A_k = \int_0^{t_k} \mathcal{L}(t) dt + \varepsilon t_k$$

où t_k est le temps nécessaire pour parcourir la trajectoire k et où le lagrangien du système s'exprime par :

$$\mathcal{L}(t) = \frac{1}{2} m v_0^2 - 2 eF z(t) = \varepsilon - 2 eF z(t).$$

En utilisant l'expression de $z(t)$ donnée par (3.1), nous trouvons que l'action réduite s'écrit en fonction du temps de parcours t_k comme :

$$A_k = 2 a eF t_k \left(1 + \frac{1}{3} \frac{eF}{2 m a} t_k^2 - \sqrt{\frac{eF}{2 m a}} t_k \cos \alpha_k \right).$$

En exprimant t_k en fonction de $\sin \alpha_k$ grâce à la relation (3.1), on met l'action réduite sous la forme :

$$A_k = \frac{\sqrt{2 a m eF} \rho}{\sin \alpha_k} \left(1 + \frac{1}{3} \frac{\rho^2}{(2 a)^2 \sin^2 \alpha_k} - \frac{\rho}{2 a} \cotg \alpha_k \right).$$

En utilisant l'expression de $\cotg \alpha_k$ donnée en (3.7), on montre que l'action réduite se met sous la forme :

$$A_k = \frac{4 \sqrt{m eF} a^{3/2}}{3} \sqrt{1 + \frac{z_0}{2 a} + (-1)^k u(\rho)} \left[2 + \frac{z_0}{a} - (-1)^k u(\rho) \right] \quad (f).$$

2.2 Densité de courant

En injectant la formule (f) dans l'expression (e), on montre que la densité de courant s'écrit sous la forme :

$$j_{-z_0} = e \sqrt{\frac{eF}{m}} \sqrt{a} \sum_{k=0}^1 \varphi_k^2 \frac{1 + \frac{z_0}{a} + (-1)^k u(\rho)}{\left[1 + \frac{z_0}{2a} + (-1)^k u(\rho)\right]^{\frac{1}{2}}} +$$

$$e \sqrt{\frac{eF}{m}} \sqrt{a} \varphi_0 \varphi_1 \left\{ \sum_{k=0}^1 \frac{1 + \frac{z_0}{a} + (-1)^k u(\rho)}{\left[1 + \frac{z_0}{2a} + (-1)^k u(\rho)\right]^{\frac{1}{2}}} \right\} \cos\left(\frac{A_1 - A_2}{\hbar}\right)$$

La partie non-oscillante de cette expression s'identifie à la densité de courant classique. Les fonctions φ_k s'expriment alors par :

$$\varphi_k = \frac{1}{8\pi} \left(\frac{2m}{eF}\right)^{\frac{1}{4}} \sqrt{\frac{I}{e}} \frac{1}{a^{5/4} \sqrt{u(\rho)} \sqrt{1 + \frac{z_0}{2a} + (-1)^k u(\rho)}}$$

La densité de courant s'exprime alors de la façon suivante :

$$j_{-z_0} = j_{-z_0}^{clas.} + I \frac{\sum_{k=0}^1 \left(1 + \frac{z_0}{a} + (-1)^k u(\rho)\right) \left(1 + \frac{z_0}{2a} - (-1)^k u(\rho)\right)^{\frac{1}{2}}}{8\sqrt{2}\pi (z_0^2 + \rho^2) u(\rho)} \cos\left(\frac{A_1 - A_2}{\hbar}\right) \quad (g)$$

2.3 Approximation du détecteur éloigné

Phase de l'interférence

La phase du terme d'interférence de l'expression (g) est exprimée comme la différence des actions réduites. On peut écrire cette différence comme :

$$\Delta A = A_0 - A_1 = \frac{4\sqrt{meF}a^{3/2}}{3} \sum_{k=0}^1 (-1)^k B_k C_k$$

$$\text{avec } B_k = \sqrt{1 + \frac{z_0}{2a} + (-1)^k u(\rho)}, \quad C_k = 2 + \frac{z_0}{a} - (-1)^k u(\rho).$$

On pose également :

$$P = (2a/z_0)^{1/2} \ll 1 \quad \text{et} \quad Q = (1 - \rho^2/\rho_{\max}^2)^{1/2} \leq 1.$$

P étant petit devant 1, on peut faire un développement en $(a/z_0)^{1/2}$ de la différence d'action. Pour ne pas obtenir une différence nulle, il faut développer chacune des actions réduites, et donc le produit $B_k C_k$, jusqu'à l'ordre 3 :

$$B_k \approx \frac{1}{P} \left(1 + \frac{(-1)^k}{\sqrt{2}} P Q - \frac{P^2 Q^2}{4} + \frac{(-1)^k}{4\sqrt{2}} P^3 Q^3 \right) \quad C_k \approx \frac{2}{P^2} \left(1 - \frac{(-1)^k}{\sqrt{2}} P Q \right)$$

$$B_k C_k \approx \frac{2}{P^3} \left(1 - \frac{3}{4} P^2 Q^2 + \frac{(-1)^k}{2\sqrt{2}} P^3 Q^3 \right)$$

La différence d'action réduite s'écrit :

$$\Delta A \approx \frac{4\sqrt{2meF}a^{3/2}}{3} Q^3 \approx \frac{4}{3} \hbar \left(\frac{a}{\lambda_0} \right)^{3/2} \left(1 - \left(\frac{\rho}{\rho_{\max}} \right)^2 \right)^{3/2}$$

Densité de courant

En développant le terme en facteur du cosinus dans (g) au même ordre que le développement de la densité de courant classique, on obtient l'expression approchée de la densité de courant semi-classique :

$$j_{-z_0}(\rho, \varepsilon) = \frac{I}{2\pi \rho_{\max}^2 \sqrt{1 - \frac{\rho^2}{\rho_{\max}^2}}} \left\{ 1 + \cos \left[\frac{4\sqrt{2m\varepsilon^3}}{3\hbar eF} \left(1 - \frac{\rho^2}{\rho_{\max}^2} \right)^{3/2} \right] \right\}$$

Bibliographie

- [BAR92] M.C. Baruch, W.G. Sturuss, N.D. Gibson and D.J. Larson, *Electric-field effects in photodetachment from Cl and S ions in a microwave field*, Physical Review A **45**, 2825 (1992)
- [BER95] U. Berzinsh, M. Gustafsson, D. Hanstorp, A. Klinkmüller, U. Ljungblad and A.-M. Mårtensson-Pebndrill, *Isotope shift in the electron affinity of chlorine*, Physical Review A **51**, 231 (1995)
- [BEV69] P.R. Bevington, *Data Reduction and error analysis for the physical sciences*, McGraw-Hill (1969)
- [BLO85] C. Blondel, R-J. Champeau and C. Delsart, *Photoionisation laser spectroscopy of Ytterbium atoms in the presence of a DC electric field*, Journal of Physics B **18**, 2403 (1985)
- [BLO89] C. Blondel, P. Cacciani, C. Delsart and R. Trainham, *High-resolution determination of the electron affinity of fluorine and bromine using crossed ion and laser beams*, Physical Review A **40**, 3698 (1989)
- [BLO95] C. Blondel, *Recent experimental achievements with negative ions*, Physica Scripta **T58**, 31 (1995)
- [BLO96] C. Blondel, C. Delsart and F. Dulieu, *The photodetachment microscope*, Physical Review Letters **77**, 3755 (1996)
- [BLO99] C. Blondel, C. Delsart and C. Valli, *Photodetachment microscopy of O⁻*, The European Physical Journal D **5**, 207 (1999)
- [BOR98] C. Bordas, *Classical motion of a photoelectron interacting with its ionic core : Slow photoelectron imaging*, Physical Review A **58**, 400 (1998)

- [BRA98] C. Bracher, W. Becker, S.A. Gurvitz, M. Kleber and M.S. Marinov, *Three-dimensional tunneling in quantum ballistic motion*, American Journal of Physics **66**, 38 (1998)
- [BRY87] H.C. Bryant, A. Mohagheghi, J.E. Stewart, J.B. Donahue, C.R. Quick, R.A. Reeder, V. Yuan, C.R. Hummer, W.W. Smith, S. Cohen, W.P. Reinhardt and L. Overman, *Observation of motional-field-induced ripples in the photodetachment cross section of H*, Physical Review Letters **58**, 2412 (1987)
- [CAL96] D. Calabrese, A.M. Covington and J.S. Thompson, *Near-Threshold infrared photodetachment of Al : a determination of the electron affinity of aluminium and the range of validity of the Wigner law*, Physical Review A **54**, 2797 (1996)
- [DEM81] Yu D. Demkov, V.D. Kondratovich and V.N. Ostrovskii, *Interference of electrons resulting from the photoionization of an atom in an electric field*, JETP Letter **34**, 403 (1981)
- [DEN93] P. De Natale, M. Bellini, W. Goetz, M. Prevedelli and M. Inguscio, *Hyperfine structure and isotope shift in far-infrared ground states transitions of atomic oxygen*, Physical Review A **48**, 3757 (1993)
- [DEW69] C. DeWitt Coleman, W.R. Bozman and W.F. Meggers, *Table of wavenumbers*, National Bureau of Standards (U.S.) **Monograph 3** Vol I et II (U.S. GPO, Washington D.C., 1969)
- [FAB80] I.I. Fabrikant, *Interference effects in photodetachment and photoionisation of atoms in a homogeneous electric field*, Soviet Physics **52**, 1045 (1980)
- [FEY65] R.P. Feynman and A.R. Hibbs, *Quantum mechanics and Path integrals*, McGraw-Hill (1965)
- [FRB78] P. Frey, F. Breyer and H. Hotop, *High resolution photodetachment from the rubidium negative ion around the Rb($5p_{1/2}$) threshold*, Journal of Physics B **11**, L589 (1978)
- [FRE78] R.R. Freeman, N.P. Economou, G.C. Bjorklund and K.T. Lu, *Observation of Electric-Field-Induced Resonances above the Ionization Limit in a One-Electron Atom*, Physical Review Letters **41**, 1463 (1978)

- [FUL76] G.H. Fuller, *Nuclear spins and moments*, Journal of Physical and Chemical Reference Data **5**, 835 (1976)
- [GIB93] (a) N.D. Gibson, B.J. Davies and D.J. Larson, *s-wave photodetachment in a static electric field*, Physical Review A **47**, 1946 (1993);
 (b) N.D. Gibson, B.J. Davies and D.J. Larson, *p-wave photodetachment in a static electric field*, Physical Review A **48**, 310 (1993)
- [GLA85] W.L. Glab and M.H. Nayfeh, *Stark-induced resonances in the photoionization of hydrogen*, Physical review A **31**, 530 (1985)
- [GOD99] M.R. Godefroid and C. Froese-Fisher, *Isotope shifts in the oxygen electron affinity*, Physical Review A **60**, R2637 (1999)
- [GRE88] C.H. Greene and N. Rouze, *Interpretation of oscillatory structures in Rb⁻ photodetachment*, Zeitschrift für Physics D **9**, 219 (1988)
- [HAR81] D.A. Harmin, *Theory of the Stark effect*, Physical Review A **24**, 2491 (1981)
- [HOT85] H. Hotop and W.C. Lineberger, *Binding energies in atomic negative ions : II*, Journal of Physical Chemistry Reference Data **14**, 731 (1985)
- [JAE99] M.-T. Jaekel and S. Reynaud, *Quantum localization observables and accelerated frames*, The European Physical Journal D **5**, 9 (1999)
- [KON84] V.D. Kondratovich and V.N. Ostrovsky, *Resonance and Interference phenomena in the photoionisation of a hydrogen atom in a uniform electric field : II. Overlapping resonances and interference*, Journal of Physics B **17**, 2011 (1984)
- [LAN75] L. Landau and E. Lifschitz, *Physique théorique 3 : Mécanique Quantique*, Editions de Moscou (1975)
- [LOS13] A. LoSurdo, *Sul fenomeno analogo a quello di Zeeman nel campo elettrico*, Atti della Reale Accademia dei Lincei, Rendicoti, **22**, 664 (1913)

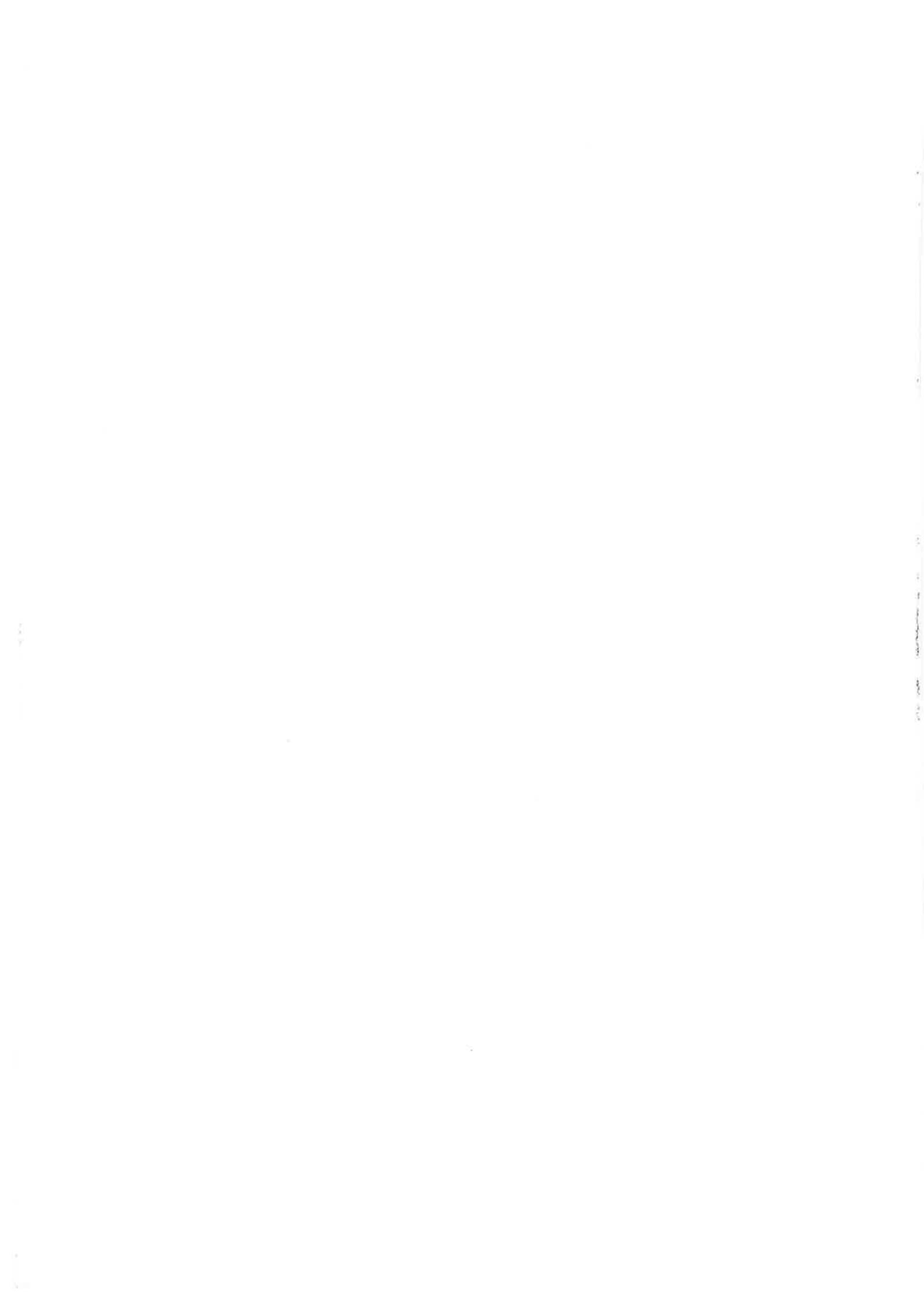
- [LUC79] E. Luc-Koenig and A. Bachelier, *Interpretation of Electric-Field-Induced oscillations in the cross section of a one-electron atom above the ionization limit*, Physical Review Letters **43**, 921 (1979)
- [LUC80] (a) E. Luc-Koenig and A. Bachelier, *Systematic theoretical study of the Stark spectrum of atomic hydrogen I : density of continuum states*, Journal of Physics B **13**, 1743 (1980)
- (b) *Systematic theoretical study of the Stark spectrum of atomic hydrogen II : density of oscillator strengths. Comparison with experimental absorption spectra in solid-state and atomic physics*, Journal of Physics B **13**, 1769 (1980)
- [LUK81] T.S. Luk, L. DiMauro, T. Bergeman and H. Metcalf, *Continuum Stark Spectroscopy*, Physical Review Letters **47**, 83 (1981)
- [MAR59] D.W. Marquardt, *Solution of Nonlinear chemical engineering models*, Chemical Engineering Progress **55**, 65 (1959)
- [MAR63] D.W. Marquardt, *An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters*, Journal of the Society for Industrial and Applied Mathematics **11**, 431 (1963)
- [NEU85] D.M. Neumark, K.R. Lykke, T. Andersen and W.C. Lineberger, *Laser photodetachment measurement of the electron affinity of atomic oxygen*, Physical Review A **32**, 1890 (1985)
- [NUM89] (a) *Numerical Recipes for Fortran*, Cambridge University Press, p.509 (1989)
- (b) *Numerical Recipes for Fortran*, Cambridge University Press, p.121 (1989)
- [QUA] Modèle 3391 de Quantar Technology Inc., 200, Washington Street, Santa Cruz, CA 95060.
- [QUI94] T.J. Quinn, *Metrologia* **30**, 523 (1994)
- [SCR27] E. Schrödinger, *Abhandlungen zur wellenmechanik*, Johan Ambrosius Barth (1927)
- [SIL90] H.S. Silverstone, *Atoms in Strong Field*, C.A. Nicolaides, C.W. Clark, M.H. Nayfeh, NATO ASI Series **B 212**, pp. 295-307 (1990)

- [STA13] J. Stark, *Observation of the separation of spectral lines by an electric field*, Nature **92**, 401 (1913); Sitz. Berichte der Berliner Akademie Der Wissenschaften **47**, 932 (1913)
- [VAL99] C. Valli, C. Blondel and C. Delsart, *Measuring electron affinities with the photodetachment microscope*, Physical Review A **59**, 3809 (1999)
- [WAL92] H. Wallis, J. Dalibard and C. Cohen-Tannoudji, *Trapping atoms in a gravitational cavity*, Applied Physics B **54**, 407 (1992)
- [WIG48] E.P. Wigner, *On the behavior of cross sections near threshold*, Physical Review **73**, 1002 (1948)

Liste des figures

1.1	Principe d'interférence	10
2.1	Section Efficace de photoïonisation du rubidium en champ électrique	14
2.2	Sections efficaces de photodétachement du chlore et de l'or en champ électrique.....	15
2.3	Potentiels effectifs pour la photoïonisation en champ électrique.....	18
2.4	Section efficace de photodétachement de O^- en champ électrique	22
2.5	Modèle de puits de potentiel unidimensionnel d'un ion négatifs	23
2.6	Section efficace de photodétachement en onde s	24
2.7	Diagramme de faisabilité	27
3.1	Système de coordonnées pour l'étude du mouvement d'un électron en champ électrique uniforme.....	30
3.2	Définition des surfaces pour le calcul des densités de courant	35
3.3	Représentation synthétique de la densité de courant classique.....	36
3.4	Surfaces de niveaux pour les coordonnées paraboliques.....	41
3.5	Fonctions d'Airy régulière et irrégulière.....	44
3.6	Représentation synthétique de la densité de courant quantique.....	46
4.1	Photographie de l'expérience.....	51
4.2	Niveaux d'énergie de l'ion négatif et de l'atome d'oxygène	54
4.3	Niveaux d'énergie de l'ion négatif et de l'atome d'oxygène	55
4.4	Dispositif de mélange des gaz d'alimentation	57
4.5	Schéma de la source d'ions.....	58
4.6	Vue d'ensemble des éléments électrostatiques de l'expérience	61
4.7	Schéma de principe du lambdamètre.....	66

4.8	Deux électrodes de la colonne de champ uniforme.....	69
4.9	Schéma d'une expérience en simple passage	72
4.10	Schéma d'une expérience en double passage axial.....	74
4.11	Schéma d'une expérience en double passage transversal	75
4.12	Le détecteur en position d'électrons	76
5.1	Image type obtenus dans une expérience de type axial.....	81
5.2	Série d'images à champ électrique fixé à 423 V.m^{-1}	83
5.3	Intersection jet-laser	85
5.4	Trois série à champ électrique différent	87
5.5	Taches d'interférences type obtenues dans les expériences en double passage.....	89
5.6	Images obtenues avec $^{17}\text{O}^-$, $^{18}\text{O}^-$ et $^{19}\text{F}^-$	91
5.7	Problèmes de fatigue	93
6.1	Repère utilisé pour le calcul des fonctions d'ajustement	98
6.3	Zone d'intersection laser-jet. Définition des paramètres	101
6.4	Définition des angles Doppler.....	105
6.6	Interpolation de la fonction d'Airy	113
6.7	Erreur faite en interpolant la fonction d'Airy	114
6.8	Influence de la convolution.....	118
6.9	Effet de dilation par convolution spatiale.....	119
7.1	Résultat d'un ajustement d'une figure d'interférence.....	129
7.2	Energie cinétique mesurée en fonction de l'énergie du laser.....	132
7.4	paramètres C_1 , C_2 et $(C_1C_2)^{-1/2}$	134
7.5	C_1 et C_2 en fonction du champ électrique.....	134
7.6	Définition des distances et des angles intervenant dans la mesure des affinités en double passage transversal.....	136
7.7	Définition des distances et des angles intervenant dans la mesure des affinités en double passage axial.....	138
7.8	Prise en compte de la courbure du jet.....	139
7.9	Influence de la courbure du jet sur les mesures d'affinités	141
7.10	Histogramme des mesures dans les deux types d'expérience	145
7.11	mesures de l'affinité électronique en fonction du champ et de la vitesse du jet d'ion.....	151
7.12	affinité électronique en fonction de la taille du pixel.....	152



Nom : VALLI

Prénom : Christophe

Titre : MICROSCOPIE DE PHOTODÉTACHEMENT DE O⁻ ET F⁻ : MESURE DES AFFINITÉS ÉLECTRONIQUES ET DES DÉPHASAGES PAR IMAGERIE DE FONCTION D'ONDE.

Résumé : Ce travail constitue l'étude quantitative des figures d'interférence produites par l'électron issu du photodétachement d'un ion négatif en champ électrique uniforme.

L'électron détaché peut emprunter deux chemins différents pour atteindre un point donné de l'espace. Ceci entraîne l'existence d'une figure d'interférence dans un plan perpendiculaire au champ électrique. Une étude quantique plus précise permet de montrer que cette figure d'interférence est la représentation du carré du module de la fonction d'onde radiale de l'électron éjecté. L'expérience correspondante est dite de "microscopie de photodétachement". La phase maximale atteinte dans l'interférogramme est liée à l'énergie cinétique initiale de l'électron. Une mesure de cette phase nous permet donc d'avoir une mesure précise de cette énergie cinétique.

Pour créer ces figures d'interférence, nous faisons se croiser un jet monocinétique d'ions négatifs et un faisceau laser au sein d'un champ électrique uniforme. Nous utilisons les ions O⁻ et F⁻ car leur affinité électronique est bien connue et la mesurer constitue ainsi un bon test de validité de la méthode. Pour déterminer l'énergie cinétique initiale, nous ajustons les images électroniques obtenues avec la formule théorique quantique en tenant compte des imperfections expérimentales.

Cette technique permet effectivement de mesurer les affinités électroniques de l'oxygène et du fluor avec une précision équivalente à celle obtenues selon d'autres méthodes. De plus, la microscopie de photodétachement est suffisamment sensible pour permettre la mesure de l'affinité électronique de l'isotope 18 de l'oxygène à partir d'un échantillon naturel. Ceci a permis la première mesure expérimentale du déplacement isotopique de l'affinité électronique entre l'oxygène 16 et 18.

Mots-Clés :

Photodétachement

Microscopie électronique

Interférences électroniques

Ondes de matière

Laser

Affinités électroniques

Ions négatifs

Oxygène

