

Table des Matières

Chapitre 1 : Préambule	1-3
Chapitre 2 : Caractéristiques du montage expérimental.....	2-7
2.1 Introduction à l'expérience.....	2-7
2.2 Production du rayonnement synchrotron	2-10
2.3 Production des ions	2-20
2.4 Zone d'interaction	2-34
2.5 Analyseur de charge	2-35
2.6 Détection des photoions	2-37
2.7 Conclusions sur le montage expérimental	2-38
Chapitre 3 : Méthode expérimentale	3-39
3.1 Introduction aux mesures de section efficace.....	3-39
3.2 Expression de la section efficace expérimentale	3-39
3.3 Mesures de la section efficace relative de photoionisation dans l' He^+	3-43
3.4 Normalisation des spectres et incertitudes de mesure.	3-51
3.5 Résultats finaux sur l'hélium	3-59
3.6 Bilan sur la mesure absolue de sections efficaces	3-61
Chapitre 4 : Photoionisation des ions oxygène	4-63
4.1 Introduction	4-63
4.2 Résultats sur l'ion O^{2+}	4-64
4.3 Résultats sur l'ion O^{3+}	4-100
4.4 Résultats sur l'ion O^{4+}	4-122
4.5 Conclusions sur les ions oxygène.....	4-135
Chapitre 5 : Etude de la série isonucléaire du samarium.....	5-137
5.1 Présentation des résultats expérimentaux pour l'ion Sm^{2+}	5-138
5.2 Interprétation des spectres expérimentaux pour l'ion Sm^{2+}	5-139
5.3 Etude de la série isonucléaire du Samarium de Sm^{2+} à Sm^{4+}	5-154
5.4 Analyse basée sur une approche U.T.A	5-163
5.5 Conclusions sur le Samarium.....	5-172

Chapitre 6 : Conclusions et perspectives.....6-175

Chapitre 7 : Annexes.....7-179

Annexe A1 : Comparatif des niveaux dans O^{2+} 7-181

Annexe A2 : Sections efficaces MCDF de photoexcitation dans O^{2+} 7-183

Annexe A3 : Comparatif des trente premiers niveaux dans O^{3+} 7-189

Annexe A4 : Sections efficaces MCDF de photoexcitation dans O^{3+} 7-191

Annexe A5 : Principales publications 7-197

Bibliographie7-199

Chapitre 1 : Préambule

Bien qu'une grande partie de la matière dans l'Univers se présente sous forme d'espèces atomiques ou moléculaires ionisées, peu de choses sont connues expérimentalement sur l'interaction du rayonnement avec les ions chargés positivement en comparaison de l'abondance des données concernant la matière neutre. Cet apparent désintérêt ne s'explique pourtant pas par un manque de candidats potentiels. En effet, on ne dénombre pas moins de 4186 ions positifs correspondant à tous les états de charge de tous les numéros atomiques compris entre 2 et 92. La raison principale de ce déficit d'études est d'ordre expérimental. Elle est liée à la difficulté de confiner des ions de charge bien définie à des densités suffisamment élevées, pendant des temps assez longs et dans un volume restreint. Dans ces conditions, la majorité des paramètres caractérisant les mécanismes d'interaction photon-ion ne sont connus, surtout en ce qui concerne la photoabsorption en couche interne, qu'à travers des calculs théoriques plus ou moins sophistiqués ne prenant en compte que très partiellement les effets de corrélation électronique. On comprend alors mieux tout l'intérêt que revêt l'étude expérimentale de ces processus pour tester la validité des différents modèles développés.

Compte tenu des limitations expérimentales mentionnées ci-dessus, la plupart des méthodes développées à ce jour font appel à des lasers de puissance pulsés mais différent par la manière dont les espèces ioniques sont produites. Avec la technique connue sous le sigle RLDI (Resonant Laser Driven Ionization), la matière ionisée est créée par l'interaction d'un faisceau laser avec une colonne de vapeur métallique contenue dans un four. Le milieu est alors essentiellement composé d'espèces monochargées [1.1]. Des ions doublement chargés ont été également produits grâce à l'utilisation d'un deuxième laser pulsé décalé temporellement par rapport au premier [1.2]. Malheureusement, cette méthode ne permet pas d'atteindre des états de charges très élevés. De plus, le fait que le matériau soit initialement présent sous forme de vapeur limite le nombre d'éléments qui peuvent être étudiés. Aujourd'hui cette technique n'est quasiment plus utilisée; elle est remplacée par celle connue sous le sigle LPP (Laser Produced Plasma).

Avec la technique LPP, la matière ionisée est créée par la focalisation, sous vide, d'un faisceau laser sur une cible solide. Depuis le début des années 1970, les progrès constants dans le domaine des lasers ont engendré de nombreuses applications en physique, chimie, science des matériaux, Ainsi, pour les faibles flux ($\phi < 10^{10}$ W/cm²), on peut utiliser les LPP pour la fabrication de couches minces supraconductrices [1.3]. Pour les flux plus élevés ($10^{10} < \phi$ (W/cm²) $< 10^{15}$), les milieux créés sont chauds et denses. Leurs propriétés radiatives appartiennent au domaine des rayons XUV et X (typiquement entre quelques 10 eV et 10 keV). Cette large bande spectrale présente de nombreux recouvrements avec celles intéressant des domaines de recherche aussi variés que l'astrophysique [1.4], la fusion par confinement

inertiel (en particulier le schéma de chauffage indirect) [1.5] ou la définition des schémas de laser X [1.6].

La spectroscopie de photoabsorption dans le domaine des rayons XUV et X est connue pour être un outil particulièrement adapté pour sonder la structure atomique et la dynamique des processus de photoionisation des atomes et des ions. Lorsqu'elle est utilisée pour analyser les plasmas denses et chauds, elle nécessite l'utilisation d'une source sonde intense présentant un spectre continu sur l'intervalle de longueurs d'onde considéré. A notre connaissance, le seul rayonnement répondant aujourd'hui à ces contraintes provient de l'émission d'un plasma créé par laser. Malheureusement, le rayonnement, émis dans presque tout l'espace, n'est pas cohérent. D'une très grande brillance, il est difficilement accordable et sa durée d'émission, typiquement de quelques centaines de picosecondes, est directement liée à celle de l'impulsion laser qui l'a créé. Par ailleurs, les variations d'intensité émise entre deux tirs, supposés identiques, peuvent être très importantes. Enfin, le continuum d'émission d'un plasma-laser en-dessous de 500 eV est généralement "pollué" par la présence de raies spectrales fines et extrêmement intenses. Dans ces conditions, il est particulièrement délicat de réaliser des mesures absolues.

Il convient de préciser que ces mesures ne permettent d'accéder qu'à l'absorption globale du plasma. L'interprétation fine des spectres obtenus est souvent rendue délicate par le fait que les milieux ainsi créés sont composés d'un mélange d'ions de plusieurs états de charge pouvant occuper un grand nombre d'états excités. L'obtention de données précises sur des espèces ioniques bien définies faciliterait grandement les interprétations. Cette dernière remarque constitue l'une des motivations de cette thèse.

Une façon de produire une espèce ionique "propre" consiste à utiliser le faisceau d'ions extraits d'une source, sélectionnés en charge et en masse à l'aide d'un séparateur. Le faisceau ainsi produit peut alors être focalisé en un point pour interagir avec un faisceau de photons. Ces techniques faisceau-faisceau sont bien adaptées pour des études de photoionisation qui apportent des données complémentaires à celles obtenues en photoabsorption. Quelques expériences, mélangeant un faisceau d'ions et un faisceau de rayonnement synchrotron, ont déjà été menées en Angleterre [1.7] et, plus récemment, au Japon [1.8], aux Etats-Unis [1.9], au Danemark [1.10] et en France [1.11]. Toutes utilisent la spectrométrie ionique qui autorise la détermination des sections efficaces de photoionisation en valeur absolue.

Cependant, seule la spectrométrie électronique, utilisée éventuellement en coïncidence avec d'autres spectroscopies, permet une détermination précise des paramètres de la photoionisation. En effet, elle autorise l'étude de toutes les voies d'ionisation, simples ou accompagnées d'excitations, accessibles par photoionisation directe ou résonnante (désexcitation par autoionisation d'états excités) car à chacune d'entre elles correspond une énergie d'électron bien définie. Dans ces conditions, la mesure précise des sections efficaces de photoionisation en couche interne, en particulier dans le domaine d'énergies où les voies directes et résonnantes interfèrent, impose une grande résolution spectrale pour des énergies

de photons comprises entre quelques dizaines et quelques centaines d'eV. Cependant, à cause de la faible efficacité de détection d'un spectromètre à électrons, comparée à celle d'un spectromètre ionique, elle nécessite des flux de photons très élevés qui ne peuvent être délivrés que par un onduleur. Ce type d'analyse est particulièrement adapté à l'étude des atomes peu ionisés. Pour aborder le domaine des fortes ionisations, la spectrométrie ionique est toutefois la plus adaptée.

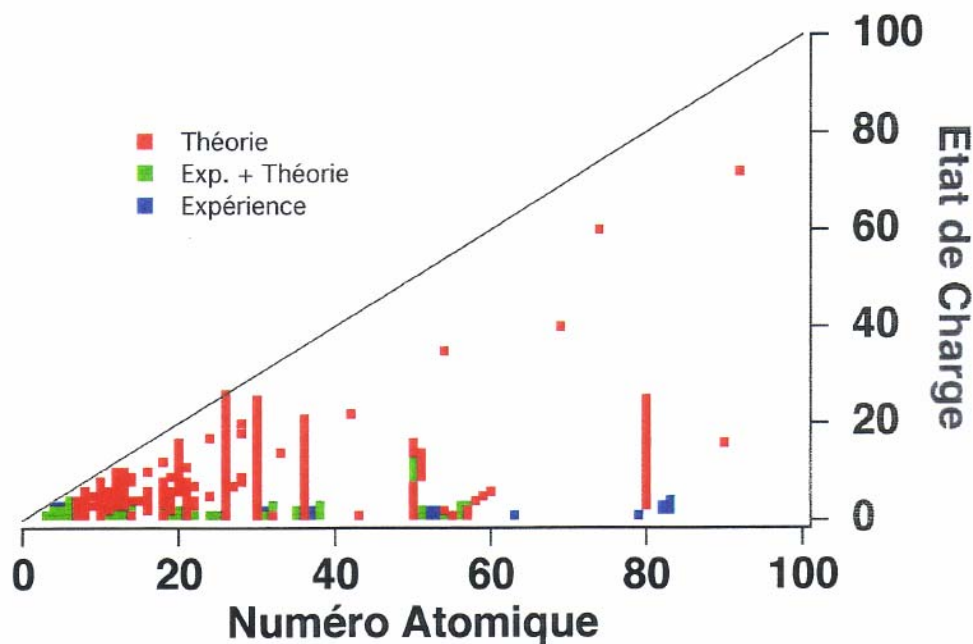


Figure 1-1 « Etat actuel des connaissances sur les processus de photoionisation dans les ions multichargés. »

La Figure 1-1 donne une idée schématique de l'état actuel de nos connaissances sur les processus de photoionisation dans les ions. Chaque carré représente la publication d'un travail expérimental et/ou théorique, portant, la plupart du temps, sur un domaine d'énergie de photons très restreint. Même si tous les travaux relatifs à ce sujet n'y sont sans doute pas reportés (une revue plus complète a été donnée par J. West [1.12]), cette figure a le mérite de mettre en lumière les points suivants :

- 1) - Il existe peu de travaux pour les ions de numéro atomique supérieur à 50; ces études ont en effet été réalisées principalement pour les besoins des astrophysiciens.
- 2) - Parmi ces travaux, ne figure qu'un nombre très restreint d'études expérimentales basées essentiellement sur la technique "double plasmas" et sur des ions de une à deux fois chargés.

On comprend ainsi l'ampleur du travail qui reste à accomplir, du point de vue expérimental, sur l'étude des processus de photoionisation dans les ions multichargés, et en particulier les ions lourds où tout (ou presque) reste à faire.

Les ions qui ont été étudiés au cours de cette thèse sont les ions des séries isonucléaires de l'oxygène (O^{2+} à O^{4+}) et du samarium (Sm^{2+} à Sm^{4+}). Les ions oxygène sont très abondants dans la nature, l'oxygène étant parmi les premiers éléments produits par nucléosynthèse stellaire. L'oxygène atomique est un élément léger. Sa structure électronique « relativement » simple fait de cet atome, et a fortiori de ses ions, de bons candidats pour l'étude des processus de photoionisation. Ainsi, outre son intérêt pour l'Astrophysique, l'étude des processus de photoionisation de la série isonucléaire de l'oxygène nous donne la possibilité de tester les modèles théoriques de structure atomique détaillée, et en particulier de déterminer l'importance du poids des effets de corrélations électroniques à prendre en compte.

L'étude des processus de photoionisation des ions de la série isonucléaire du samarium est motivée par plusieurs raisons. Tout d'abord, il s'agit d'un ion lourd possédant une structure électronique plus complexe que l'oxygène. Les processus de photoionisation, dans cet ion ne peuvent être traités de façon satisfaisante par un code de structure atomique détaillée. L'étude du samarium permet de tester les méthodes statistiques développées pour interpréter les propriétés spectrales des plasmas chauds de laboratoire, tels que les plasmas produits pour la fusion par confinement.

Sur le plan expérimental, l'étude des processus de photoionisation dans les ions multichargés, et en particulier la mesure de sections efficaces absolues de photoionisation, constitue un véritable challenge technologique, tant pour la production des ions multichargés, où l'emploi de sources à Résonance Cyclotronique Electronique (RCE) est nécessaire, que pour le transport et la détection de ces ions. De même la production du rayonnement électromagnétique sonde nécessite l'utilisation du rayonnement synchrotron produit par les onduleurs des anneaux de stockage. L'utilisation de ce type de source de rayonnement est indispensable afin de garantir un haut flux de photons et des domaines spectraux étendus.

Dans ce mémoire de thèse, les caractéristiques du montage expérimental utilisé seront détaillées dans une première partie. Une fois décrites les techniques de production des ions et des photons ainsi que les caractéristiques des divers éléments constitutifs du dispositif expérimental, nous détaillerons la méthode expérimentale utilisée pour la mesure de sections efficaces absolues de photoionisation, en prenant pour exemple l'ion He^+ . Une fois notre procédure validée sur He^+ , les résultats de cette étude sur les ions de la série isonucléaire de l'oxygène et du samarium seront présentés.

Chapitre 2 : Caractéristiques du montage expérimental

2.1 Introduction à l'expérience

L'étude des processus de photoionisation des ions impose différentes contraintes quant au choix des techniques expérimentales à employer. Plusieurs voies d'étude complémentaires sont ouvertes : elles utilisent pour l'essentiel les quatre sources principales d'informations mesurables pour ce type d'interaction ; celles-ci sont présentées Figure 2-1.

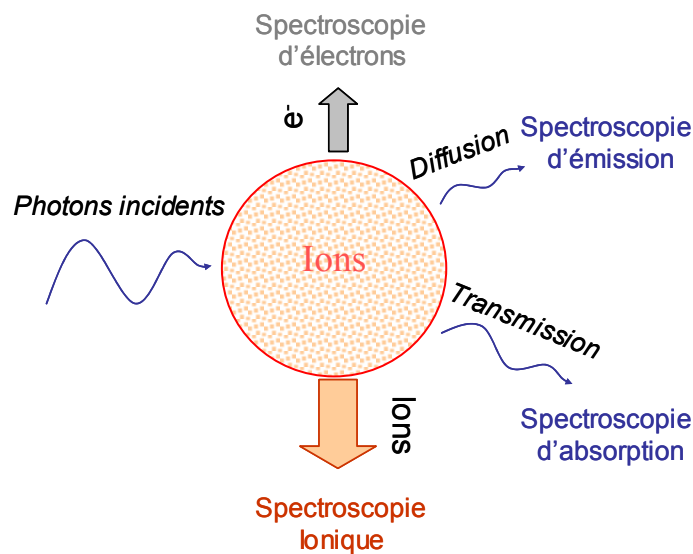


Figure 2-1 « Représentation des principales techniques utilisées pour étudier l'interaction entre un rayonnement X-UV et des ions »

La spectrométrie d'absorption analyse le rayonnement transmis par les atomes ou ions cibles, en fonction de l'énergie du rayonnement incident. Elle permet de mesurer des sections efficaces de photoabsorption.

La spectrométrie ionique consiste à détecter les ions ayant changé de charge, c'est-à-dire ceux ayant perdu au moins un électron pendant l'interaction avec le rayonnement incident. Cette technique spectroscopique permet de mesurer des sections efficaces totales de photoionisation simple et multiple.

La spectrométrie d'électron permet de détecter le nombre, l'énergie et la distribution angulaire des photo-électrons qui sont émis lors des processus de photoionisation. Elle donne donc accès aux mesures de sections efficaces partielles de photoionisation, ainsi qu'aux paramètres d'asymétrie angulaire.

Enfin, la spectroscopie de fluorescence consiste à étudier les propriétés spectrales du rayonnement émis par les ions cibles après leur interaction avec le rayonnement incident. Cette technique permet d'obtenir des informations sur les voies de désexcitation radiative.

Pour l'étude des processus de photoionisation dans des espèces ioniques, ce sont les spectroscopies d'absorption, électronique et ionique qui ont été utilisées :

Dans le cas de la spectroscopie d'absorption, les ions cibles et la source de rayonnement incident peuvent être produits par décharge [2.1] ou par laser [2.2 – 2.4]. Ces techniques sont limitées à la mesure globale de sections efficaces de photoabsorption de milieux (plasmas) où coexistent de nombreux états de charge pouvant occuper un grand nombre d'états d'énergie, suivant les conditions thermodynamiques du milieu considéré. Dans ces conditions, la mesure de données atomiques détaillées s'avère très délicat et ne peut être réalisée précisément que dans le cas de plasmas d'ions légers peu ionisés [2.5].

La spectroscopie d'électron a été très peu utilisée pour l'étude des processus de photoionisation dans les ions. Ce sont des expériences faisceau/faisceau où les ions sont produits dans des sources à décharge et où les photons proviennent du rayonnement synchrotron [2.6 – 2.9]. Cette technique d'analyse est limitée à ce jour à l'étude des ions monochargés, du fait de la faible transmission des analyseurs (spectromètres, analyseur à miroir cylindrique CMA) qui sont utilisés.

En définitive, c'est la spectrométrie ionique que nous avons retenue pour cette étude des processus de photoionisation dans les ions multichargés de samarium et d'oxygène. Elle offre une grande sensibilité de détection, et permet de mesurer des sections efficaces absolues de photoionisation. Comme pour la spectroscopie d'électron, il s'agit d'expériences où un faisceau d'ions et un faisceau de photons interagissent. Les premières expériences de ce type ont été réalisées par Lyon et al. [2.10]. La source d'ions utilisée était une source à décharge où à ionisation de surface, et la source de photons provenait du rayonnement synchrotron émis par un aimant de courbure du centre de rayonnement synchrotron de Daresbury. Cette expérience a fourni des sections efficaces de photoionisation dans les ions monochargés [2.11]. Des expériences similaires ont par la suite vu le jour parallèlement au développement des onduleurs. Citons par exemple l'expérience menée sur l'onduleur de l'anneau de stockage de la « Photon Factory » [2.12], l'expérience menée à ASTRID de l'Université d'Aarhus au Danemark [2.13] ou encore celle menée aux Etats Unis à l'Advanced Light Source du Lawrence Berkley National Laboratory [2.14].

Notre expérience, qui a démarré en 1998 au Laboratoire des Interactions X Avec la Matière de l'Université d'Orsay en collaboration avec le Commissariat à l'Energie Atomique (de Bruyères-le-châtel et de Grenoble) et le Laboratoire pour l'Utilisation du Rayonnement Electromagnétique, a été la première à fournir des sections efficaces absolues de photoionisation dans les ions multichargés. Ceci a été rendu possible grâce au couplage d'une source à Résonance Electronique Cyclotronique RCE avec le rayonnement synchrotron provenant de l'onduleur SU6 de Super-ACO [2.15].

Ce second chapitre consistera en un descriptif détaillé des différents éléments de notre dispositif expérimental présenté sur la Figure 2-2.

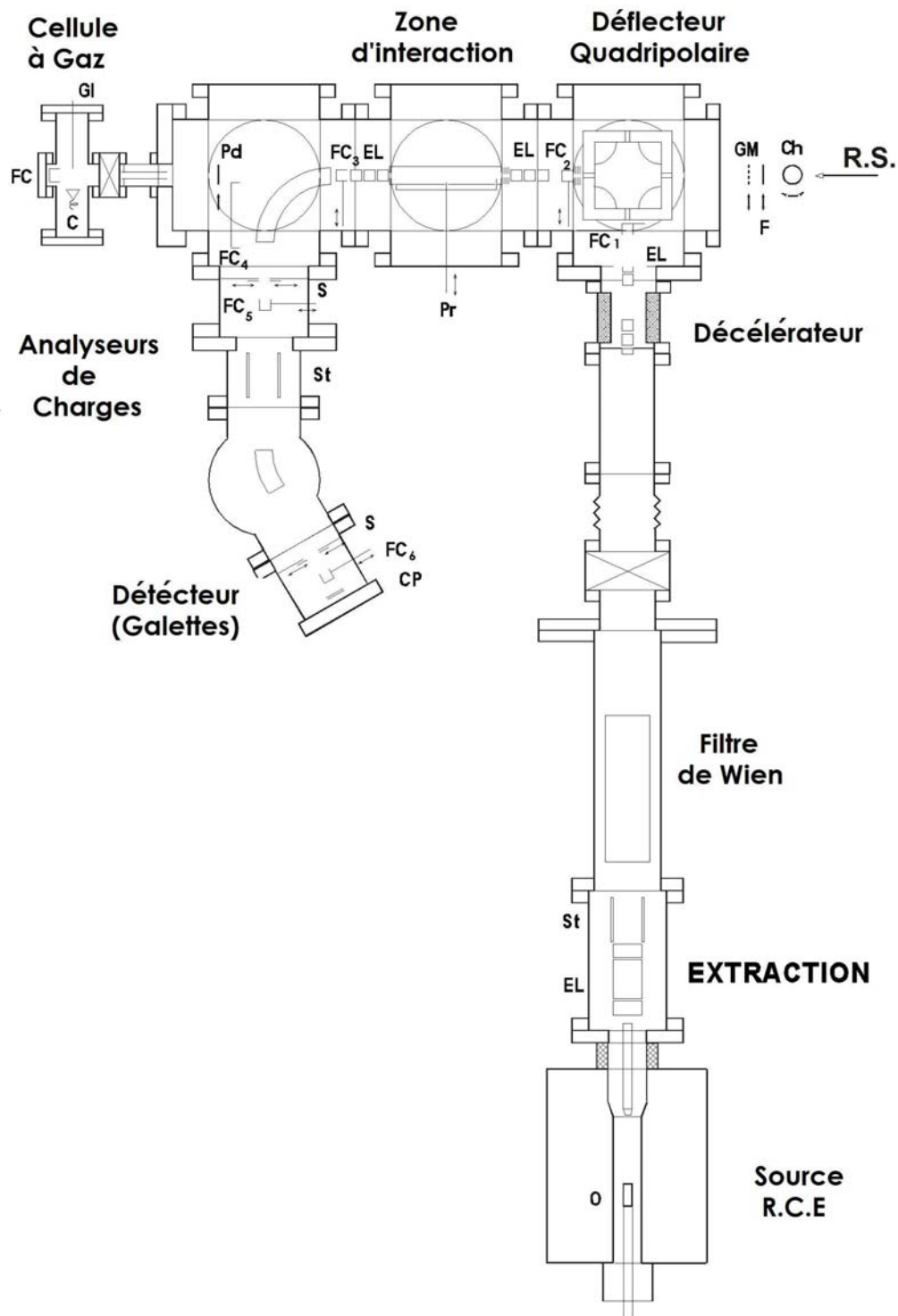


Figure 2-2 « Schéma du dispositif expérimental »

Nous décrirons et justifierons quels ont été nos choix techniques et quelles solutions ont été adoptées face aux problèmes posés par l'étude des processus de photoionisation, par spectrométrie ionique, dans les ions multichargés. Dans un premier temps, seront décrites les

caractéristiques du rayonnement utilisé, sa production et sa mise en forme jusqu'à son transport dans la zone d'interaction avec les ions. Puis nous nous pencherons sur les techniques de production, de sélection, et de transport des ions. Par la suite, pour compléter cette description, nous présenterons de la région où se produit l'interaction entre les ions et les photons (zone d'interaction). Enfin, sera décrite la partie analyse et détection du montage expérimental présenté Figure 2-2.

2.2 Production du rayonnement synchrotron

Nous avons déjà souligné que l'utilisation du rayonnement synchrotron pour l'étude des processus de photoionisation s'impose pour plusieurs raisons. Tout d'abord, il offre un grand domaine spectral indispensable pour accéder aux différentes sous-couches des ions considérés. Dans notre cas, le domaine spectral utilisé pour l'étude des ions oxygène et samarium s'étend de 40 eV à 160 eV. Un autre atout du rayonnement synchrotron réside dans la stabilité et la forte intensité du flux de photons délivré.

2.2.1 Principe du rayonnement synchrotron

Le principe du rayonnement synchrotron est relativement simple : lorsqu'une particule chargée subit une accélération, elle émet un rayonnement électromagnétique tangentiellement à sa trajectoire. Une façon de produire du rayonnement synchrotron consiste donc à utiliser des anneaux de stockage. Dans ces anneaux, les particules chargées relativistes (des électrons ou des positrons) soumises à une accélération centripète, vont rayonner. Les caractéristiques du rayonnement dépendent des paramètres physiques associés à l'anneau de stockage employé; notamment son rayon de courbure et l'énergie des particules (540 MeV pour Super A.C.O.).

Pour nos études nous avons utilisé le rayonnement synchrotron produit par l'anneau de stockage Super A.C.O. (Anneau de Collisions d'Orsay) de l'Université d'Orsay. Les modes opératoires de SuperACO sont de 2 et 24 paquets de positrons. La durée de vie du faisceau caractérise le temps maximum utilisable au cours d'une même prise de données. De manière générale, nous utilisons les modes à 2 paquets, où le flux de photons est moindre, pour effectuer nos étalonnages. Dans ce mode, le courant de positrons dans l'anneau est de 150 mA et la durée de vie est de l'ordre de 6 heures. Le mode 24 paquets (où le flux de photons est le plus élevé) est utilisé pour l'enregistrement des spectres de section efficace. Dans ce mode, nous disposons à l'injection d'un courant de 400 mA pour une durée de vie d'environ 10 heures. Le rayonnement synchrotron est produit dans deux types de structures : les aimants de courbure et les sections droites munies d'éléments dits d'insertion, que sont les onduleurs et les wigglers. Notons que pour notre expérience, il s'agit d'un onduleur.

2.2.2 Emission dans les éléments d'insertion : onduleur et wiggler

L'idée consiste à accroître le flux de rayonnement en obligeant les particules à subir des variations rapides de leur trajectoire (ondulations) le long des sections droites de l'anneau. L'oscillation des particules est obtenue grâce à l'alternance périodique de champs magnétiques opposés. La brillance du rayonnement émis est alors fonction du nombre de périodes magnétiques élémentaires N . La Figure 2-3 présente le schéma de principe des onduleurs et wigglers :

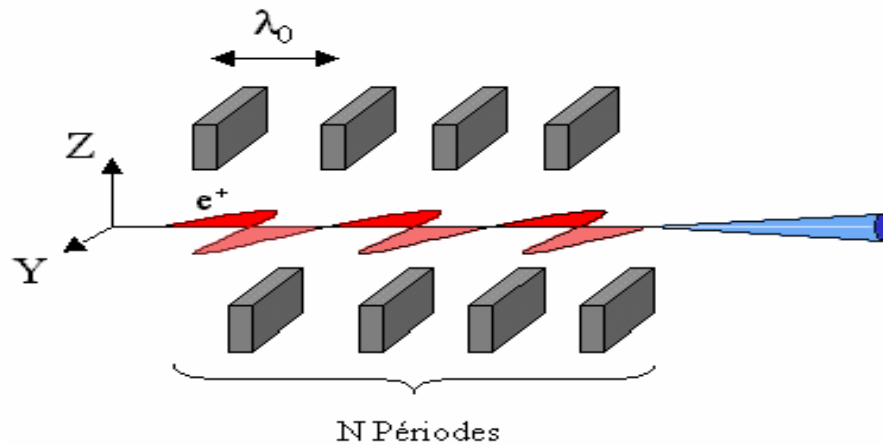


Figure 2-3 « Schéma de principe décrivant le fonctionnement d'un onduleur/wiggler »

Un élément d'insertion est caractérisé par son nombre de périodes magnétiques (N), la longueur des structures magnétiques élémentaires (λ_0) et le champ magnétique maximum (B_0) sur l'axe. Cette valeur du champ B_0 est fonction de l'ouverture (g) de l'entrefer de l'onduleur. L'ensemble de ces paramètres sont regroupés pour former le paramètre K qui définit complètement les propriétés optiques de l'élément d'insertion [2-18].

$$K = \frac{eB_0(g)\lambda_0}{2\pi mc} = 0.934 \times B_0^g(T) \times \lambda_0(cm) \quad \text{éq. 2-1}$$

où e est la charge de l'électron, c est la vitesse de la lumière et m la masse des particules émettrices (Positrons). Selon la valeur du paramètre K , l'élément d'insertion fonctionnera en mode wiggler ou en onduleur :

Lorsque $K \gg 1$, c'est-à-dire dans le cas où les oscillations transverses (dans le plan de l'orbite) des électrons sont plus grandes que l'ouverture angulaire χ du rayonnement, nous sommes en mode Wiggler. Le rayonnement émis dans chaque section magnétique de l'élément d'insertion n'interfère pas avec celui émis dans les autres sections élémentaires. La distribution spectrale

du rayonnement total est, comme dans un aimant de courbure, pratiquement continue. La brillance des photons est accrue d'un facteur $2N$ par rapport à celle émise dans les aimants de courbure.

Lorsque $K \sim 1$, l'élément d'insertion est appelé onduleur. Ici l'ouverture angulaire est de l'ordre de grandeur des oscillations transverses. Contrairement au Wiggler, le rayonnement émis par les sections magnétiques va interférer (rayonnement cohérent). Ces interférences donneront naissance à une distribution spectrale présentant une série de n harmoniques centrées sur les longueurs d'ondes λ_n définie par :

$$\lambda_n = \frac{\lambda_0}{(4n + 2)\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2} + \gamma^2 \times \sigma^2 \right) \quad \text{éq. 2-2}$$

où γ est l'énergie des positrons et σ l'angle d'observation par rapport à l'axe de l'onduleur.

Pour cette étude, nous avons utilisé l'onduleur SU6 de l'anneau de stockage SuperACO. Ses caractéristiques sont résumées dans le Tableau 2-1 ci-dessous :

Tableau 2-1 « Récapitulatif des caractéristiques de l'onduleur SU6 »

Type	Valeurs
Domaine Spectral	30-180 eV
Longueur Totale (m)	1.252 m
Période Magnétique λ_0 (mm)	77.8 mm
Nombre de Périodes	16
Champ Maximum B_0 (T)	0.25 T
Entrefer Minimum g (mm)	39
Largueur de pôle (mm)	100
K_{max}	1.7
Type d'aimants permanents	Samarium-Cobalt
Dimensions des aimants permanents (mm)	50x19x19
Champ rémanent (T)	0.85 T

Pour illustrer l'influence du paramètre K sur la position des harmoniques, la Figure 2-4 présente la mesure expérimentale de la variation de la position du maximum de la première harmonique ($n=1$) en fonction de l'ouverture de l'entrefer (g) de l'onduleur SU6 de SuperACO. Nous observons que la variation de position de la première harmonique est

quasiment linéaire avec l'ouverture g . Elle se décale vers les hautes énergies avec l'augmentation du paramètre K conformément à l'équation [2-2].

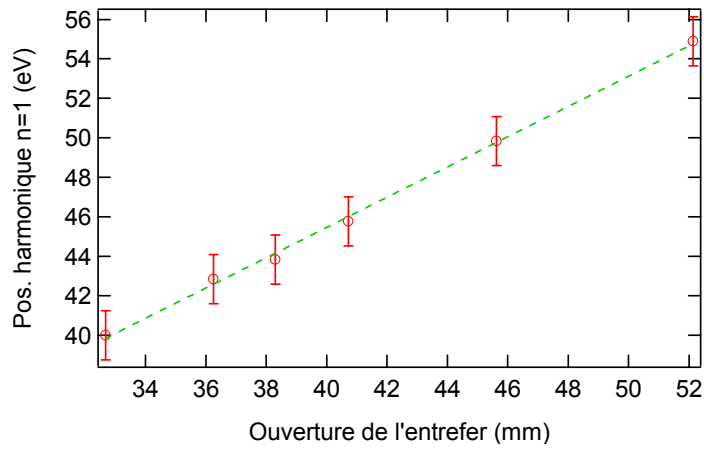


Figure 2-4 « Variation de la position en énergie de la première harmonique en fonction de l'ouverture de l'entrefer sur SU6 »

La brillance de l'onduleur SU6 à l'énergie de la 1^{er} harmonique est environ 100 fois supérieure à celle d'un aimant de courbure comme l'indiquent les calculs de brillance de la Figure 2-5 :

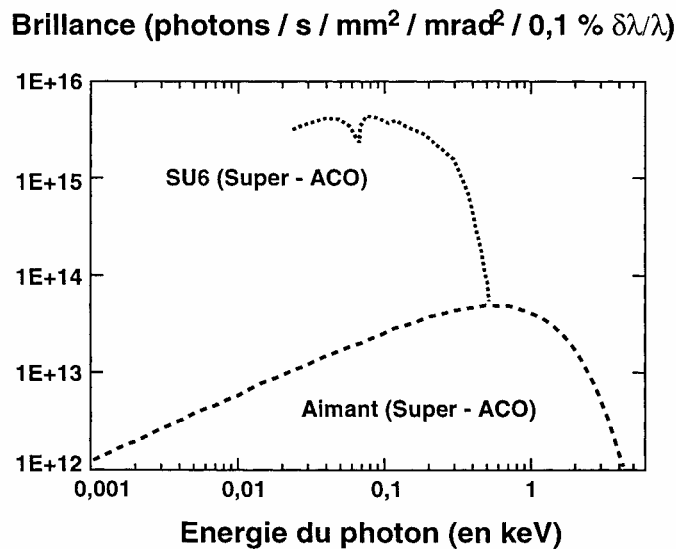


Figure 2-5 « Brillance comparée entre un aimant et l'onduleur SU6 de Super-Aco »

Cette Figure indique que la brillance est de l'ordre de $5 \cdot 10^{13}$ à 0.1 keV pour les aimants contre près de $5 \cdot 10^{15}$ pour l'onduleur SU6 à la même énergie de photon.

La largeur spectrale de chaque harmonique $\Delta\lambda/\lambda$ est inversement proportionnelle au nombre de périodes N de l'onduleur. Pour un onduleur parfait, avec un grand nombre de périodes, la distribution spectrale présenterait sur l'axe une succession d'harmoniques impaires très étroites.

En pratique, il peut exister des harmoniques paires et impaires. Leurs largeurs spectrales ne sont pas suffisamment fines pour parler de rayonnement monochromatique. Outre l'élargissement naturel en $1/N$, s'ajoutent des sources d'élargissement inhomogène liées, par exemple, à la taille et à la forme du paquet de positrons, ou encore aux non-uniformités des champs dans les structures magnétiques de l'onduleur. Ainsi, l'emploi d'un monochromateur sera nécessaire pour obtenir un faisceau monochromatique.

2.2.3 La ligne de lumière SU6

Comme il a été précisé dans le paragraphe précédent, le rayonnement synchrotron délivré par l'onduleur SU6 n'est pas directement utilisable pour nos mesures. Outre le fait qu'il faille collecter et focaliser le rayonnement dans un certain volume, il nous faut aussi le rendre monochromatique. La mise en forme du faisceau de photons, tant sur le plan de l'énergie que sur le plan géométrique, est assurée par les divers éléments qui constituent la ligne de lumière SU6. Ils sont présentés Figure 2-6.

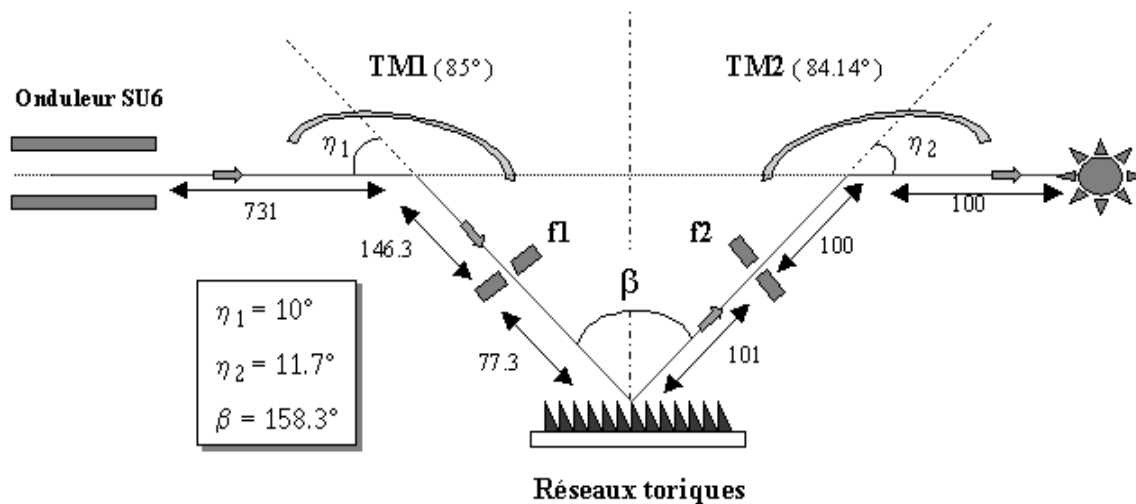


Figure 2-6 « Schéma de principe de la ligne de lumière SU6 »

Le miroir torique TM1 d'entrée du monochromateur focalise les photons sur la fente d'entrée du monochromateur F1. Son acceptante est de $15.4 \times 6.1 \text{ mrad}^2$ pour une dimension « utile » du faisceau de photons d'environ $4 \times 1.6 \text{ mrad}^2$.

Le monochromateur de SU6 dispose de trois réseaux toriques interchangeables de 1200, 1800 et 2400 traits par mm. Ces réseaux fonctionnent en incidence rasante et nous permettent de couvrir une gamme d'énergie de photons qui s'étend de 30 à 180 eV. A ces longueurs d'onde, il est nécessaire de travailler sous vide afin de réduire au maximum l'absorption et la diffusion des photons. Par ailleurs, il n'y a pas de fenêtre optique pour séparer l'enceinte de l'anneau et la ligne ; ceci impose que la pression dans la ligne de lumière SU6 soit maintenue aux alentours de 10^{-10} Torr.

Le principe de fonctionnement du monochromateur est schématisé dans la Figure 2-7 :

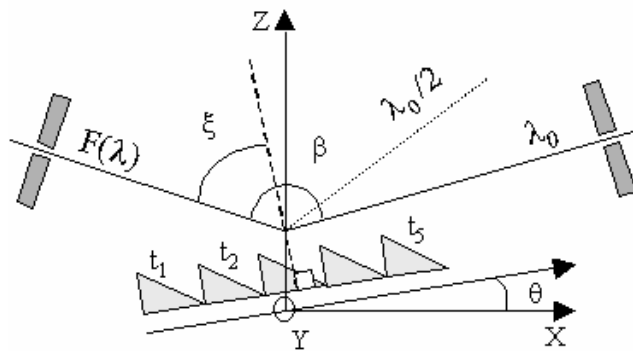


Figure 2-7 « Schéma de principe du monochromateur à réseau torique »

La sélection de la longueur d'onde est obtenue par rotation du réseau autour de l'axe Y perpendiculaire à l'axe de propagation des photons. Cette rotation engendre une variation relative de l'angle d'incidence et donc une variation de l'énergie des photons diffractés, pour un axe d'observation déterminé par la fente de sortie F2 (Figure 2-6), dont la position est fixée. La longueur d'onde diffractée par un réseau est donnée par :

$$\frac{n\lambda}{2} = \frac{1}{t_{tot}} \cos\left(\frac{\beta}{2}\right) \sin(\theta) \quad \text{éq. 2-3}$$

Où t_{tot} correspond au nombre de traits par mm du réseau considéré, n est l'ordre diffracté par le réseau, β est l'angle de déviation du faisceau, et θ est l'angle de rotation autour de l'axe Y.

Le miroir torique TM2 (identique à TM1) sert à focaliser les photons dans la zone d'interaction.

2.2.4 Caractéristiques des photons en sortie de monochromateur

Maintenant que les différents éléments qui constituent la ligne de lumière SU6 ont été définis, il nous faut à présent détailler les caractéristiques effectives du faisceau de photons que nous allons utiliser pour notre étude des processus de photoionisation des ions oxygène et samarium.

La fonction de distribution caractérisant les photons initialement produits dans l'onduleur va être modifiée par la traversée des différents éléments de la ligne de lumière. Chaque élément (miroir, réseau, fente) possède une certaine fonction T_i de transmission.

Les facteurs d'élargissement inhomogène sont aussi à considérer pour définir les propriétés des photons effectivement utilisés. En pratique, les différentes fonctions de transmission sont difficiles à estimer, et seules les caractéristiques finales du faisceau de photons peuvent être facilement mesurées, en particulier sa distribution spatiale et angulaire au niveau de la zone d'interaction (Chapitre 3, Figure 3-12) ainsi que sa distribution d'intensité en fonction de l'énergie.

2.2.4.1 Distribution d'intensité des photons

L'utilisation d'un monochromateur modifie considérablement la distribution intrinsèque d'intensité produite dans l'onduleur. Afin de caractériser au mieux le flux de photons après le monochromateur, nous avons mesuré, à l'aide d'une photodiode calibrée, le flux de photons effectivement récolté au niveau de la zone d'interaction en fonction de l'énergie des photons sélectionnée par le monochromateur, pour une gamme d'énergie allant de 30 à 120 eV. Cette distribution correspond à la courbe continue présentée Figure 2-8. Elle est obtenue en gardant l'entrefer de l'onduleur à une valeur constante égale à 39 mm.

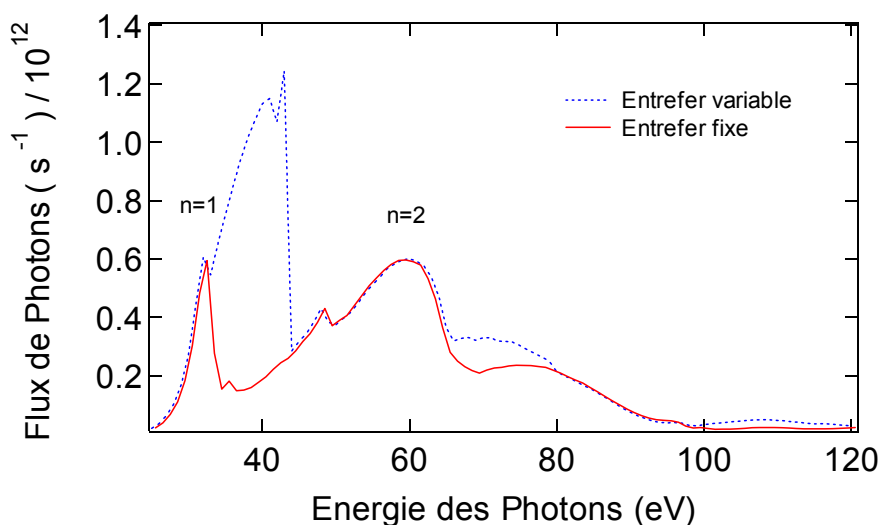


Figure 2-8 « Distribution du flux de photons mesurée en sortie de monochromateur en fonction de l'énergie des photons pour un entrefer fixe et variable. »

Cette mesure a été obtenue pour une ouverture de fente de $300\mu\text{m}$ pour F1 et F2 et le réseau de 1200 traits par mm.

Du fait de la structure en harmoniques du flux de photons produit par l'onduleur SU6, la distribution de flux mesurée n'est pas constante sur toute la gamme d'énergie. Elle présente des maxima qui correspondent aux harmoniques successives issues de l'onduleur pour une ouverture de l'entrefer SU6 fixée. Notons l'existence d'une harmonique paire provenant de l'émission hors axe. Elle est observée du fait de la grande ouverture angulaire du faisceau de photons.

Pour nos études, il est essentiel d'avoir le maximum de flux sur toute la gamme d'énergie accessible. Il est possible d'accroître le flux de photons en faisant varier, en parallèle avec l'angle du réseau, la position du maximum des harmoniques de l'onduleur. Ainsi, en agissant sur le paramètre K [éq. 2-1], c'est-à-dire en modifiant la valeur du champ B_0^g de chaque dipôle magnétique en ajustant la hauteur de l'entrefer, nous pouvons modifier dynamiquement la position des maxima des harmoniques [éq. 2-2]. En ajustant l'entrefer, nous obtenons la courbe pointillée (entrefer variable) présentée Figure 2-8. Le gain net sur le flux de photons est important entre 35 et 45 eV. Il est multiplié par un facteur 6 à 40 eV. Par ailleurs, un accroissement notable du flux entre 65 et 80eV et de 100 à 120eV est également observé.

Pour Super-Aco, la variation de l'entrefer n'est autorisée que sur une certaine plage d'ouverture autour de la valeur utilisée au démarrage de la machine (Super-Aco). Ceci explique la diminution brutale du flux à 50 eV d'énergie de photons. Cette limitation provient du fait qu'une action sur l'ouverture de l'entrefer de SU6 peut perturber l'orbite des paquets de positrons dans l'anneau SuperACO.

Dans toutes les mesures qui seront présentées dans cette thèse, l'ajustement de l'entrefer a été utilisé pour obtenir un maximum de flux de photons.

2.2.4.2 Résolution spectrale

Outre le choix du réseau, la gestion de l'ouverture des fentes est importante car non seulement elle modifie considérablement le flux de photons réfléchi par le monochromateur, mais aussi elle fixe la résolution en énergie des photons. Ainsi, en pratique, il est nécessaire de faire un juste compromis entre résolution et flux de photons.

Les courbes 2.9 et 2.10 présentent, pour les réseaux de 1200 et 2400 traits/mm, la variation de la résolution du monochromateur en fonction de l'énergie des photons incidents pour différentes ouvertures de fentes (en microns) :

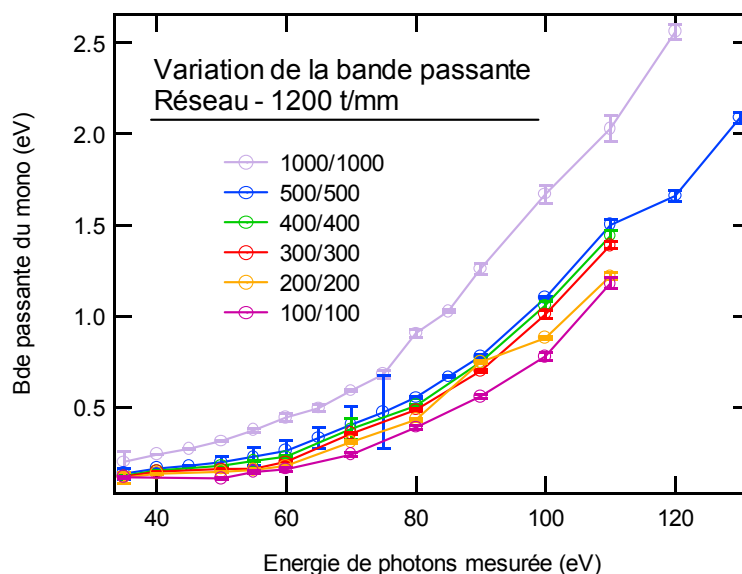


Figure 2-9 « Variation de la bande passante du réseau à 1200 t/mm en fonction l'énergie de photons pour différentes ouvertures de fentes F1/F2 »

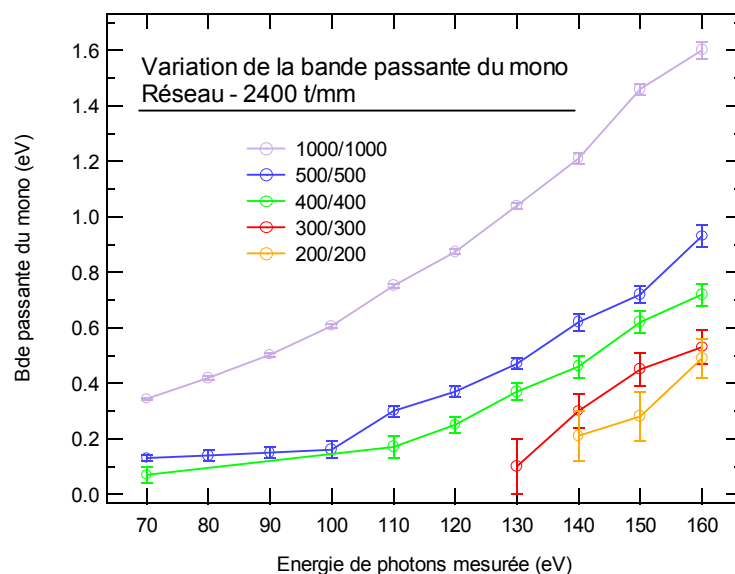


Figure 2-10 « Variation de la bande passante du réseau à 2400 t/mm en fonction l'énergie de photons pour différentes ouvertures de fentes F1/F2 »

Ces courbes ont été obtenues par spectrométrie d'électron sur des gaz rares. Le principe est de mesurer la largeur de pics de photo-électrons en utilisant un analyseur miroir cylindrique (CMA). Connaissant la largeur instrumental du CMA et en négligeant la largeur naturelle, il est possible de déterminer la bande passante du monochromateur [2.19].

2.2.4.3 Ordres supérieurs diffractés par les réseaux

Le monochromateur, pour un angle de réseau donné, va diffracter une longueur d'onde principale ($n=1$). D'après l'équation 2-3, il va également diffracter des ordres supérieurs de cette longueur d'onde, c'est-à-dire des multiples de cette longueur d'onde. Sur la ligne SU6, les ordres supérieurs diffractés deviennent négligeables au-dessus de 70 eV d'énergie. Pour éliminer la contribution des ordres supérieurs pour des énergies de photons inférieures à 70 eV, nous disposons après le monochromateur d'un filtre en aluminium de 1000 Å d'épaisseur. Sa transmission moyenne entre 35 et 70 eV est de 80%. Elle est nulle au-dessus de 70 eV.

2.3 Production des ions

2.3.1 La source d'ions à Résonance Cyclotronique Electronique (RCE)

Le développement des sources RCE a débuté à la fin des années soixante avec le développement des technologies associées aux études sur la fusion par confinement magnétique. Elles n'ont pas cessé d'être améliorées depuis et permettent aujourd'hui de produire de forts courants d'ions ayant des états de charge très élevés. Toutes sont basées sur le même principe de confinement magnétique et d'ionisation par collision. [2.20 , 2.21].

2.3.1.1 Principe de Fonctionnement

Géométrie du confinement magnétique :

Les ions multichargés sont produits grâce à l'utilisation d'un plasma confiné dans un champ magnétique. Un exemple de champ magnétique axial de source RCE est donné Figure 2.11.

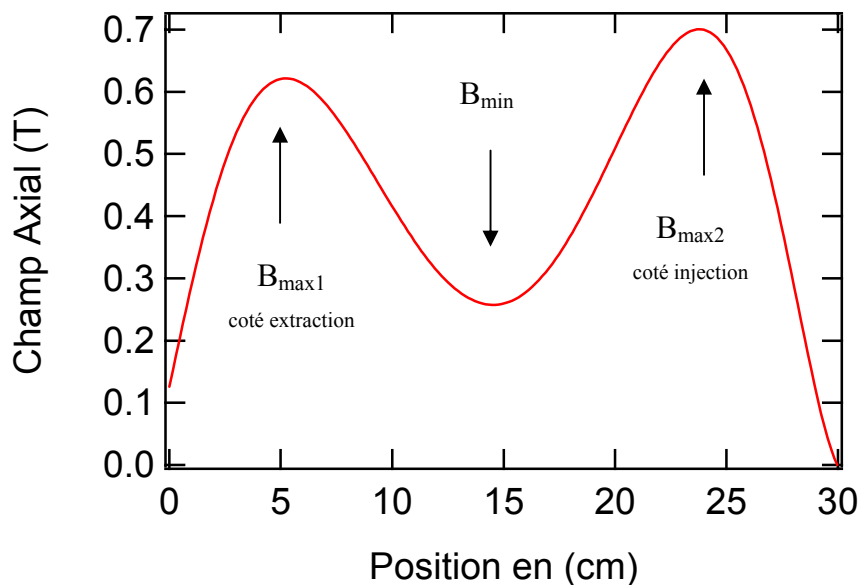


Figure 2-11 « Champ magnétique axial B_z de notre source RCE »

Le champ B_z sur l'axe z de révolution de la source RCE présente deux maxima et un minimum. Pour qu'une particule soit piégée dans cette configuration de champ, il faut qu'elle soit réfléchié avant ou au niveau des zones de champ maximum. Cette condition peut être décrite simplement par la relation [éq. 2-4]:

$$\sin(\theta_c) = \sqrt{\frac{B_{\min}}{B_{\max}}} \quad \text{éq. 2-4}$$

Où l'angle θ_c correspond à la valeur critique de l'angle entre le vecteur vitesse de la particule considérée et les lignes de champ magnétique pour lesquelles la particule est réfléchi (ou non). Le rapport B_{\min}/B_{\max} est appelé rapport miroir. Pour les sources RCE modernes, ce rapport se situe aux alentours de 2. Les particules du plasma dont le vecteur vitesse fait un angle initial θ_0 avec les lignes de champ magnétique plus grand que θ_c seront confinées dans la structure magnétique au centre de la source. Dans le cas contraire, elles pourront s'échapper suivant un cône d'ouverture θ_c appelé cône de perte. En général le champ magnétique $B_{\max1}$ est inférieur au champ $B_{\max2}$ afin de favoriser l'émission des ions suivant une direction privilégiée (coté extraction). Notons que l'extraction des ions se fait à l'aide d'un potentiel accélérateur appliqué sur la partie extraction de la source.

En plus d'un confinement axial, il faut aussi confiner le plasma radialement. Pour cela, un champ magnétique multipolaire (hexapolaire pour notre source RCE) est appliqué. Les surfaces iso-magnétiques qui résultent de la superposition des champs magnétiques axial et radial forment des ellipsoïdes de révolution.

Temps de confinement :

Les caractéristiques du confinement magnétique définissent le temps de confinement des ions dans la source. Plus l'état de charge d'un ion est élevé, plus il aura du mal à sortir du puits de potentiel associé à la configuration de champs magnétiques. Ainsi, le temps de confinement peut s'écrire :

$$\tau_i \propto \left(\frac{B_{\min}}{B_{\max}}\right)^{1/2} L \times \text{Exp}\left(\frac{Q_i \Delta \phi}{k T_i}\right) \quad \text{éq. 2-5}$$

Où Q_i est la charge de l'ion, T_i la température ionique du plasma de la source, $\Delta \phi$ la profondeur du puit de potentiel associé à la configuration magnétique, B_{\min}/B_{\max} le rapport miroir, k la constante de Boltzmann et L la longueur du plasma.

Ainsi, plus le temps de confinement est élevé, c'est-à-dire plus le confinement magnétique est efficace, plus il sera possible d'atteindre des états de charges élevés dans la source, mais avec un courant d'ions moindre. A l'inverse, un confinement moins efficace se traduira par un courant d'ions élevé au détriment de l'état de charge.

Chauffage des électrons :

L'« épiluchage » des ions du plasma se fait par collisions entre des électrons libres et les ions du plasma. L'énergie des électrons doit être supérieure au potentiel d'ionisation de l'état de charge ionique dont on veut optimiser la production. Afin de donner de l'énergie aux électrons du plasma, une onde Hyper Fréquence (HF) de fréquence f_{HF} (10GHz pour notre source) est utilisée. Cette onde HF est en règle générale produite par un générateur de type Tube à Onde Progressive (TOP) ou, dans notre cas, par un Klystron.

Le couplage de l'onde HF avec les électrons libres est optimum dans les zones où la fréquence cyclotronique électronique est un multiple de la fréquence HF, c'est-à-dire, dans la région du volume source (Ellipsoïde de révolution) où le champ magnétique B_e (pour notre source de 0.352 T) est tel que :

$$\frac{Q_e}{m_e} B_e = 2n\pi \times f_{HF} \quad \text{éq. 2-6}$$

Dans l'équation 2-6, Q_e et m_e représentent respectivement la charge et masse de l'électron, et n désigne un entier.

L'onde HF ne peut pénétrer le plasma et « chauffer les électrons » que si f_{HF} est inférieure à la fréquence plasma f_p (Oscillation de Langmuir) qui est définie par :

$$f_p = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{e^2 n_e}{\epsilon_0 m_e} \right)^{1/2} \quad \text{éq. 2-7}$$

Où n_e est la densité électronique du plasma, m_e la masse de l'électron, e la charge de l'électron et ϵ_0 la constante diélectrique.

Si $f_{HF} > f_p$, l'onde HF est réfléchiée et les électrons ne sont pas accélérés. f_{HF} étant fixée, la fréquence de coupure est directement liée à la densité électronique du plasma et donc à la pression de gaz injecté dans la source RCE.

L'efficacité d'ionisation des sources RCE dépend des processus qui sont en compétition au cours des ionisations successives (Processus de recombinaison radiative, d'ionisation collisionnelle et d'échange de charge). L'efficacité relative de ces processus dépend de l'espèce ionique considérée et, en particulier, de ses différents potentiels d'ionisation.

Expérimentalement, pour une configuration de source RCE donnée, l'efficacité du chauffage par les électrons dépend des paramètres couplés pression et puissance HF injectée dans la source.

2.3.1.2 Caractéristiques de la source RCE utilisée

La Source RCE, baptisée « Notre Dame », que nous avons utilisée dans le cadre de cette thèse a été développée au Département de Recherche Fondamentale sur la Matière Condensée du CEA de Grenoble. C'est une source RCE de type hexapolaire à aimants permanents, schématisée Figure 2.12.

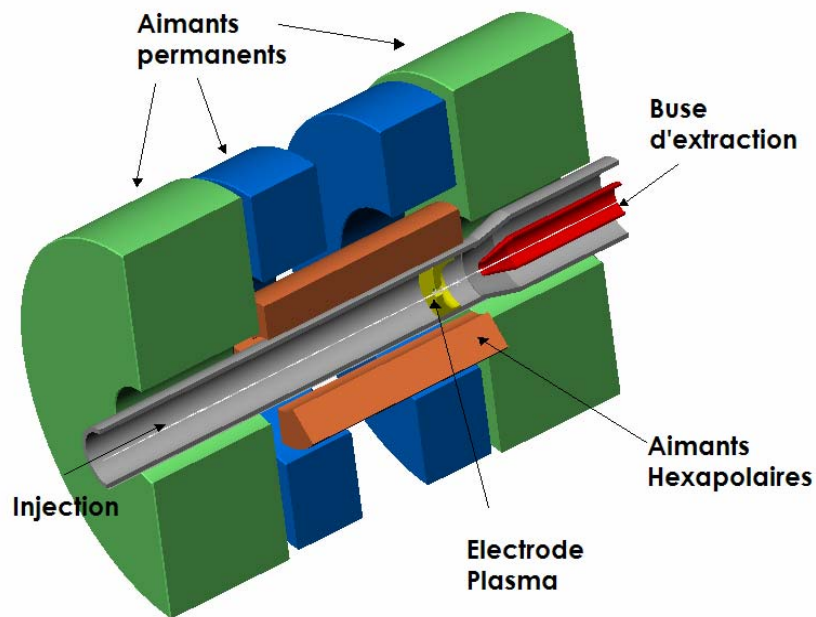


Figure 2-12 « Schéma de la source d'ions RCE utilisée »

C'est une source compacte. Elle mesure 26 cm de diamètre externe pour une longueur de 33 cm et un poids de 80Kg. La chambre où se trouve confiné le plasma est un cylindre de 30 mm de diamètre. Les champs magnétiques axiaux et radiaux sont créés grâce à des aimants permanents en Samarium-Cobalt.

L'une des extrémités reçoit le système permettant l'injection des éléments neutres qui vont alimenter le plasma, ainsi que la puissance HF. L'onde HF de 10 Ghz est délivrée par un Klystron. La puissance maximale injectée est de 300 Watts. Un piston d'accord situé à l'entrée de la zone d'injection de l'onde HF permet de modifier l'impédance de la source et ainsi d'ajuster l'efficacité du chauffage électronique.

Les caractéristiques de notre source RCE sont regroupées dans le Tableau 2-2 :

Tableau 2-2 « Récapitulatif des caractéristiques de la source RCE utilisée »

Type	Valeurs
Champ Magnétique de résonance	0.36 T
Champ rémanent	1.27 T
Champ à l'injection	0.7 T
Champ à l'extraction	0.6 T
Champ central et hexapolaire	0.25 et 0.27 T
Longueur	33 cm
Poids	80 Kg
Diamètre de la chambre	3 cm
Diamètre Externe	26 cm
Fréquence HF/Puissance Max	10 Ghz / 300 W

Pour cette thèse, deux modes d'injection ont été utilisés : Dans le cas des ions oxygène, de l' O_2 a été directement injecté dans la source alors que pour le samarium, l'emploi d'un four a été nécessaire pour produire les vapeurs métalliques.

2.3.2 Production des ions oxygène

L'injection de O_2 et de l'onde HF dans la source se fait à l'aide d'un tube en Tungstène qui conduit le gaz jusqu'au cœur de la source. Ce tube peut être polarisé négativement afin d'accroître le courant d'ions extrait. Pour certains états de charge, nous avons obtenu jusqu'à 30% de gain sur le courant comme l'indique la Figure 2.13 montrant le courant extrait d'ions O^{2+} en fonction du voltage appliqué sur le tube.

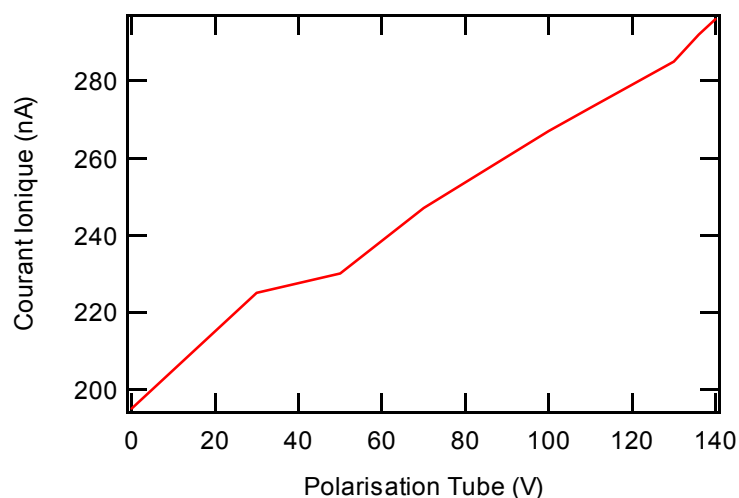


Figure 2-13 « Effet de la polarisation du tube d'injection en Tungstène sur le courant d'ions extrait »

Une vanne microfuite nous permet de contrôler avec précision le débit de gaz entrant dans la source RCE. Les paramètres pression et puissance HF sont ajustés afin d'obtenir des conditions optimales pour la production de l'état de charge souhaité.

2.3.3 Production des ions Samarium

La production d'ions multichargés de samarium est plus délicate à mettre en œuvre puisqu'il s'agit de produire un plasma d'ions à partir du samarium à l'état solide. La courbe de tension de vapeur de cet élément [2.22] en fonction de la température est présentée sur la Figure 2-14 (la courbe pleine en rouge est une interpolation des points expérimentaux) :

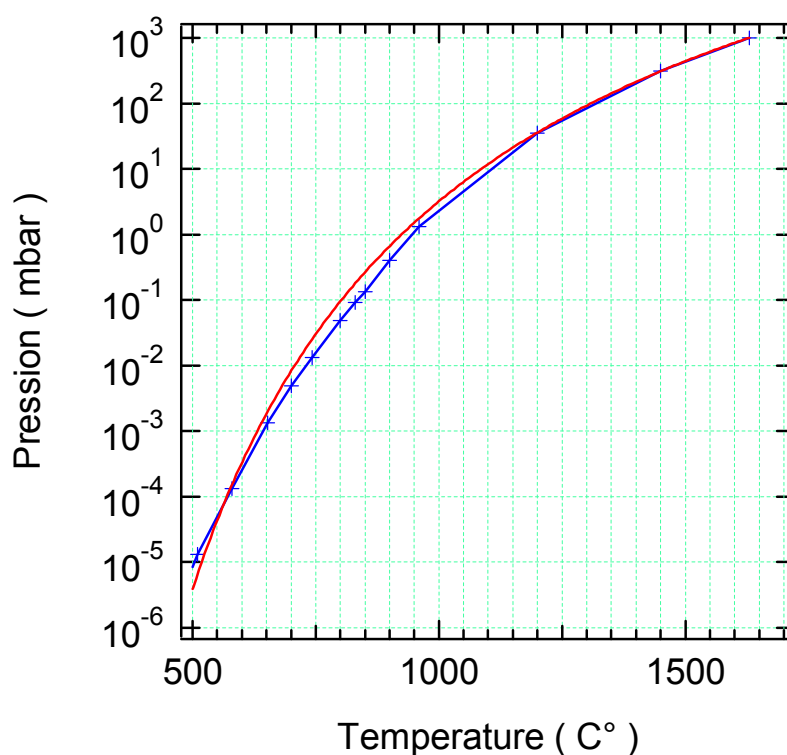


Figure 2-14 « Courbe de tension de vapeur du samarium »

Il est nécessaire de chauffer le samarium solide à une température proche de 900 °C pour produire la vapeur métallique nécessaire à l'alimentation du plasma de la source RCE. Pour cela, nous utilisons un four ohmique dont le schéma de principe est présenté sur la Figure 2-15 :

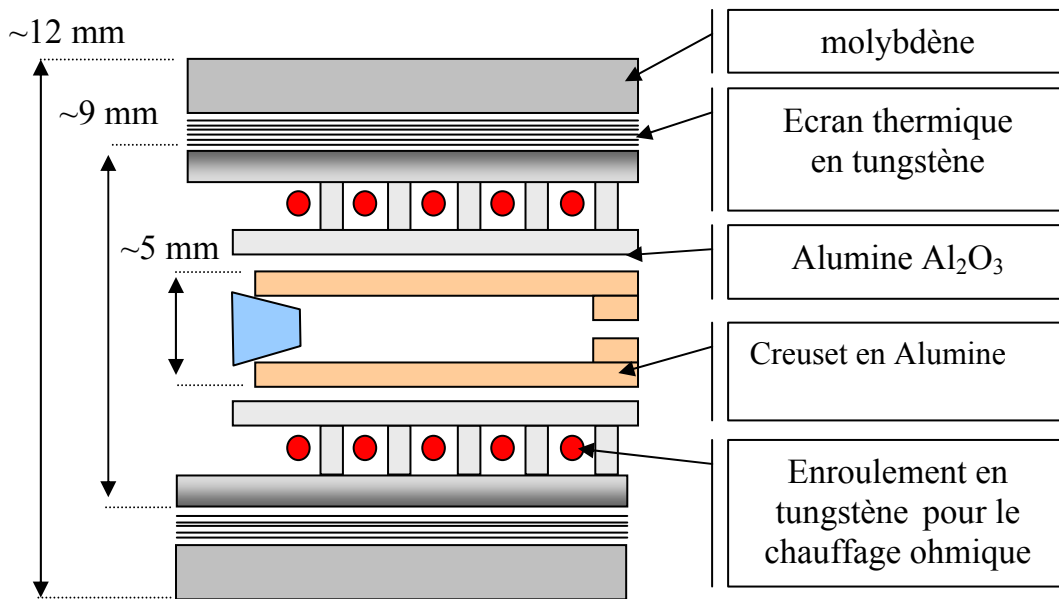


Figure 2-15 « Schéma de principe du four ohmique utilisé pour la production de vapeurs métalliques »

Le samarium est placé dans un creuset en alumine. Celui-ci comporte un orifice de 1,5 mm de diamètre par lequel les vapeurs vont pouvoir s'échapper et alimenter le plasma de la source RCE. Le creuset est chauffé grâce à l'emploi d'un enroulement de tungstène dans lequel va circuler un courant de quelques Ampères. Le creuset et l'enroulement de tungstène sont entourés d'un écran thermique, constitué d'un enroulement successif de feuilles de tungstène. L'ensemble est placé dans une enceinte de molybdène. Le four est introduit dans la source au bout d'une tige mobile qui permet d'optimiser sa position par rapport au plasma de la source RCE. En modifiant cette distance, il est possible d'accroître la température du four en le chauffant grâce au plasma de la source RCE.

Comme dans le cas de l'oxygène, il y a un fort couplage entre la pression de la vapeur métallique dans la source et la puissance HF injectée. Le contrôle de la pression dans la source est délicat car celle-ci se fait par l'intermédiaire de la puissance de chauffage ohmique appliquée au four. L'optimisation du courant d'ions extrait pour un état de charge donné est donc réalisée essentiellement en variant la puissance HF délivrée par le klystron. La puissance de chauffage ohmique est gardée la plus constante possible. Nous utilisons également un gaz support, (de l'hélium) afin d'entretenir le plasma pendant la période de chauffage (allumage du plasma de la source) et favoriser la migration des vapeurs métalliques de samarium vers le plasma de la source RCE et.

La figure 2-16 présente la variation du taux d'évaporation, en atomes par seconde, en fonction de la température du four en °C. La variation de pression de samarium dans le four en fonction de sa température y est également reproduite :

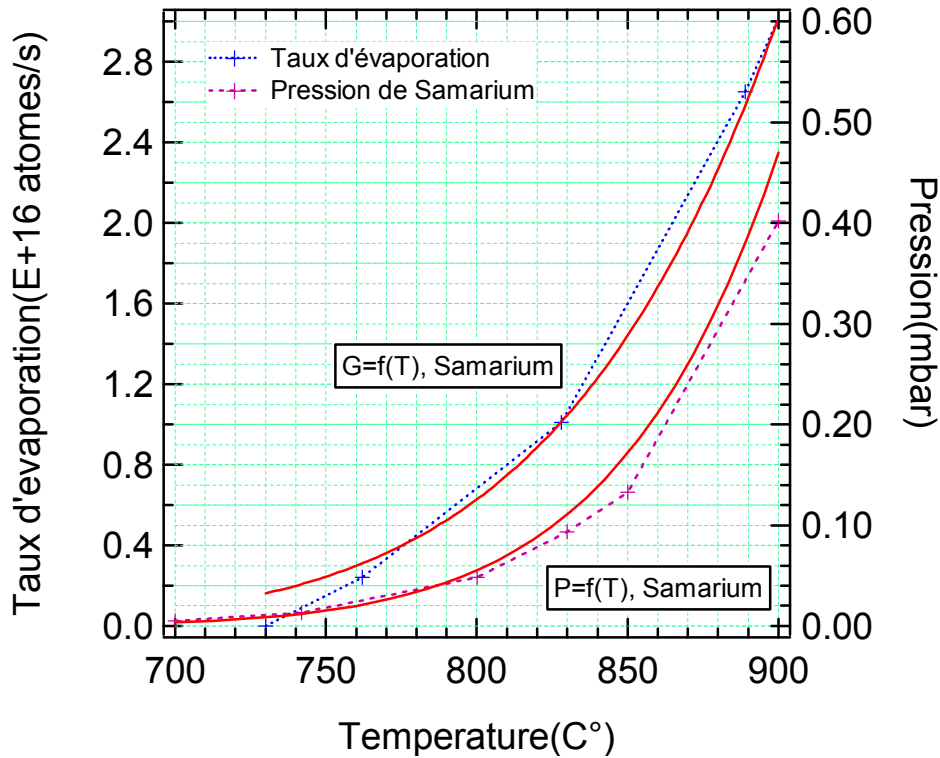


Figure 2-16 « Taux d'évaporation en fonction de la température pour notre four $G=f(t)$ et courbe de tension de vapeur du samarium $P=f(T)$ »

Le taux d'évaporation est obtenu en mesurant en sortie de four la quantité de samarium déposé sur un cristal piézoélectrique (balance à quartz). Ce taux d'évaporation dans la gamme de température où l'on travaille est d'environ 3.10^{16} atomes par secondes. La quantité limitée de samarium introduite dans le four (quelques grammes) implique de recharger le four régulièrement et de rompre le vide maintenu dans la source. Cette opération est à renouveler environ toutes les 48 heures. Notons qu'environ 12 heures sont nécessaires pour rétablir des pressions de fonctionnement de l'ordre de 10^{-8} torr dans la source RCE.

2.3.4 Extraction des ions de la source RCE et focalisation

Les ions produits dans la source RCE sont extraits du plasma à l'aide d'un potentiel accélérateur de 7kV. Ce potentiel est appliqué entre l'électrode plasma et la buse d'extraction (figure 2-12).

Les ions extraits sont ensuite focalisés à l'aide d'une lentille de einzel à trois éléments cylindriques (notée EL Figure 2-2). La distance focale est une fonction du rapport entre les potentiels des électrodes interne et externe et de la géométrie de la lentille [2.22]. Dans notre expérience, l'électrode centrale est portée à un potentiel V_{int} compris entre 3 et 4 kV, et les électrodes externes sont mises à la masse de sorte que le point de focalisation se situe au niveau du trou, placé à l'entrée du ralentisseur, qui fait office d'impédance de pompage .

2.3.5 Sélection des ions : Filtre de Wien

A ce stade, le faisceau d'ions produit par la source n'est pas uniformément chargé et regroupe une certaine distribution d'espèces ioniques. Pour un potentiel accélérateur d'extraction U donné, chaque ion du faisceau possède une vitesse \mathbf{v} suivant l'axe de propagation z différente selon sa charge q et sa masse M :

$$\vec{v} = \sqrt{\frac{2qU}{M}} \vec{u}_z \quad \text{éq. 2-8}$$

Afin de choisir l'ion (charge/masse) dont on veut étudier la photoionisation, nous utilisons un filtre de vitesse de type filtre de Wien. Son principe de fonctionnement est relativement simple : sur l'axe du filtre sont créés un champ électrique \mathbf{E} et magnétique \mathbf{B} croisés. Les ions du faisceau sont alors soumis à la force de Laplace \mathbf{F} telle que :

$$\vec{F} = q(\vec{E} + \vec{v} \otimes \vec{B}) \quad \text{éq. 2-9}$$

Cette force est nulle pour les ions dont le rapport charge/masse est tel que (x = axe des bobines et y axe vertical) :

$$\frac{E_y}{B_x} = \sqrt{\left(\frac{2QU}{M}\right)} \quad \text{éq. 2-10}$$

Ainsi pour certaines valeurs fixées de E_x et B_z , seuls les ions dont le rapport Charge (Q)/Masse (M) est adapté, ne sont pas déviés dans le filtre. En pratique, le champ électrique

est fixé de façon à obtenir la résolution souhaitée. C'est par balayage des valeurs du champ magnétique B_x qu'un spectre des ions issus de la source est effectué. Le champ B_x est ensuite ajusté pour sélectionner l'espèce ionique choisie.

L'utilisation d'un filtre de Wien par rapport à celle d'un séparateur dipolaire à aimant a été choisie essentiellement pour son encombrement réduit. Notre montage expérimental n'est pas permanent sur la ligne SU6 et il nécessite d'être souvent déplacé. Ce choix nous limite cependant quant aux ions qu'il est possible d'étudier car la résolution d'un filtre de Wien est moindre comparée à celle d'un séparateur magnétique.

2.3.6 Caractéristiques des ions produits

2.3.6.1 Ions oxygène

La Figure 2-17 présente un exemple de distribution de courant d'ions oxygène, produit par notre source RCE. Elle est obtenue en mesurant le courant ionique en sortie du filtre de Wien dans une cage de Faraday en fonction l'intensité I du courant appliqué aux bobines du filtre.

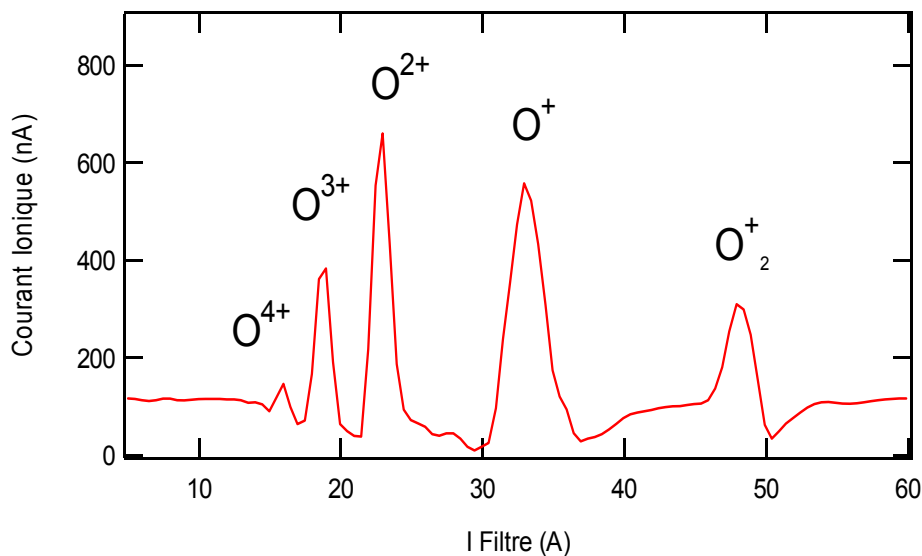


Figure 2-17 « Exemple de distribution du courant d'ions oxygène en fonction de l'état de charge en sortie de source RCE »

Les pressions partielles d' O_2 injectées sont de l'ordre de $5 \cdot 10^{-8}$ Torr, mesurées au niveau du caisson d'extraction. Dans cet exemple, les paramètres libres de la source sont ajustés pour favoriser la production d'ion O^{2+} . Le courant obtenu est supérieur à 600 mA pour O^{2+} en sortie du filtre de Wien. Cet exemple montre également que des ions d'état de charge 4+ sont facilement produits dans notre source RCE. Notons que les éléments de même rapport charge sur masse ne sont pas séparés (ce qui n'est pas le cas ici).

2.3.6.2 Ions samarium

Expérimentalement, les conditions de four optimales semblent être obtenues pour une puissance moyenne appliquée au four de 27 Watt, ce qui correspond à une température de chauffage de 900°C. Pour ces conditions de chauffage, la source RCE délivre un courant d'ions samarium relativement stable.

La Figure 2-18 présente un exemple de distribution du courant d'ions samarium mesurée grâce au filtre de Wien en sortie de source RCE, pour une puissance appliquée au four de 27 W et une puissance HF d'environ 150 W. Remarquons la présence d'ions He^+ introduits dans la source comme gaz porteur.

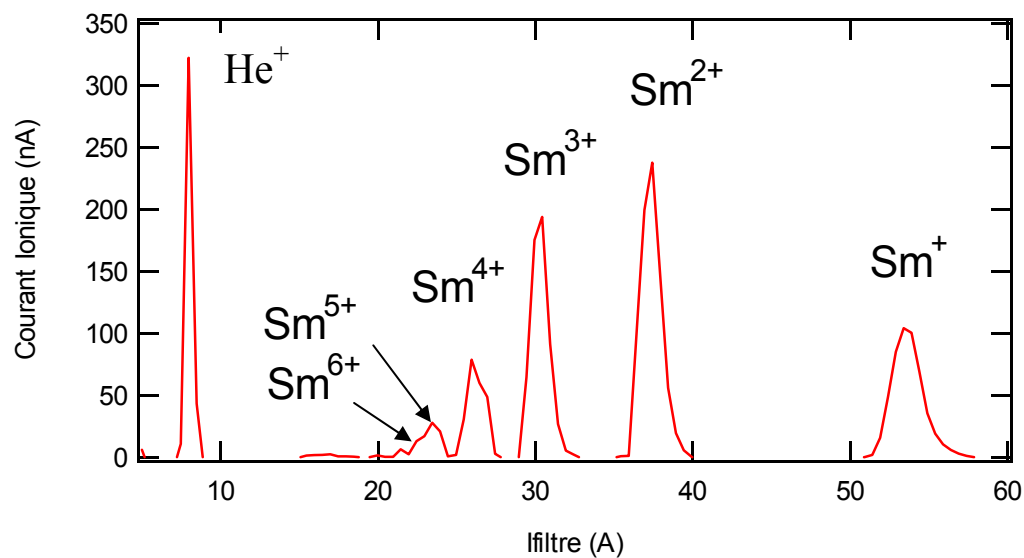


Figure 2-18 « Distribution d'ions samarium produits par la source RCE »

Ainsi, grâce à notre four, nous obtenons des ions samarium jusqu'à six fois chargés, et des courants ioniques de 10 nA pour Sm^{6+} à plus de 250 nA pour Sm^{2+} .

2.3.6.3 Mesures d'émittance du faisceau d'ions produit par la source RCE

Dans le but de déterminer les propriétés géométriques du faisceau d'ions extrait de notre source RCE, nous avons effectué, au cours de cette thèse, une campagne de mesure d'émittance. Pour cela, nous avons utilisé un émittancemètre (appareil commercial acheté à la société Pantechnik) dont le schéma de principe est présenté sur la Figure 2-19 ci-dessous :

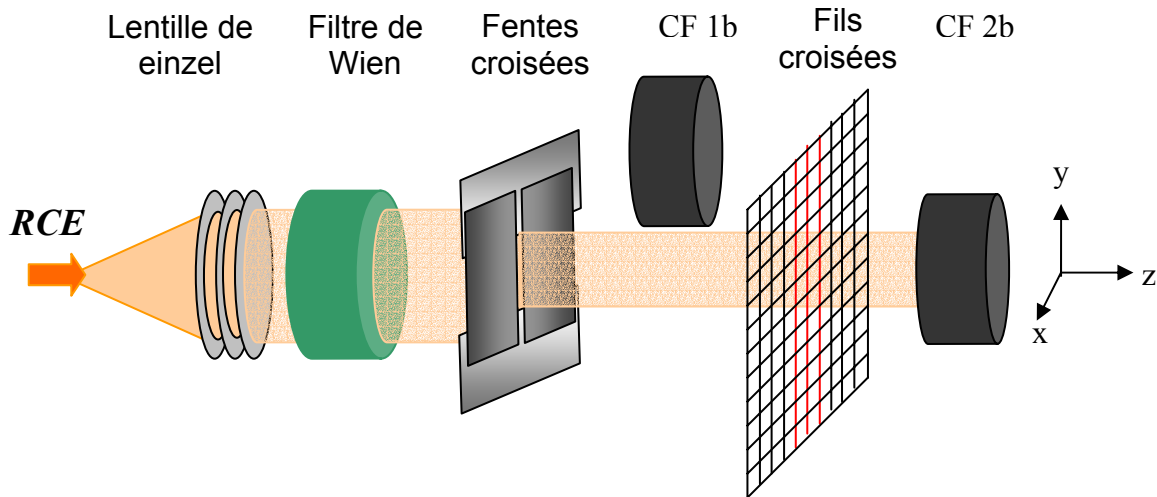


Figure 2-19 « Schéma du système source RCE, lentille de Einzel, filtre de Wien et émittancemètre »

Dans ce montage, l'émittancemètre est situé après le filtre de Wien et la première lentille de einzel. Pour reproduire les conditions expérimentales, la tension appliquée à la lentille de einzel est ajustée de manière à optimiser le courant d'ions lu dans la cage de Faraday CF2b, placée à la même distance que l'entrée du déflecteur quadripolaire de notre montage (Figure 2-2).

La mesure d'émittance est réalisée dans les deux plans. Pour mesurer l'émittance horizontale du faisceau (suivant x), les fentes verticales d'ouverture X_0 vont balayer le faisceau d'ions verticalement, suivant y, par pas de δx_0 . Les autres fentes restent grandes ouvertes. Le courant ionique est mesuré sur les fils du profileur pour chaque position des fentes. Nous en déduisons alors la dimension X du faisceau recueilli sur les fils (la distance entre chaque fil étant connue) et la position δx . Ainsi, connaissant la distance L entre le système de fentes et les fils croisés du profileur, il est possible de mesurer l'émittance de l'élément de faisceau :

$$\varepsilon_x(\text{mm.mrad}) \approx \left(\frac{X - X_0}{L} \right) \left(\frac{\delta x - \delta x_0}{L} \right) \quad \text{éq. 2-11}$$

L'émittance horizontale totale est alors égale à la somme des émittances élémentaires :

$$\Sigma_{tot}(mm.mrad) \approx \sum_i \left(\frac{(X_i - X_{i0})(\delta x - \delta x_{i0})}{L^2} \right) \quad \text{éq. 2-12}$$

Des mesures systématiques d'émission ont été réalisées pour différents ions, conditions de sources, focalisations et résolutions du filtre de Wien. Les émissions caractéristiques qui ont été obtenues dans le cas des ions oxygène pour une tension d'extraction de 7 kVolts et des courants ioniques optimisés dans CF2b (par ajustement du filtre, de la lentille et de la puissance HF injectée dans la source RCE), sont reportées dans le tableau 2-3.

Tableau 2-3 « Emission typique mesurée pour les ions oxygène »

Charges ioniques	I(μA)	Emissiones (mm.mrad)
1+	26	150
2+	20	120
3+	12	125

Notons que l'émission diminue avec l'augmentation de la charge. Cette diminution est probablement la conséquence de l'augmentation de la vitesse des ions et de la diminution de l'intensité des courants d'ions extraits.

2.3.6.4 Bilan pour la production d'ions

Afin de clore ce paragraphe sur la production des ions, le tableau 2-4 regroupe quelques courants typiques d'ions oxygène et de samarium produits par notre source RCE. Les courants indiqués dans ce tableau sont optimisés et mesurés après le filtre de Wien dans une cage de Faraday.

Tableau 2-4 « Courant d'ions disponible en sortie de source »

Charge ionique	Oxygène I(μA)	Samarium I(nA)
1+	1	<200
2+	1 à 15	500 à 800
3+	0.5 à 1.2	400 à 600
4+	0.4 à 0.6	150 à 200
5+	<0.1	50 à 100
6+	-	<20

Notons que la différence de courant qui existe entre les Tableaux 2-3 et 2-4 provient de la taille du trou de 5 mm de la cage de Faraday utilisée pour les mesures de sections efficaces comparativement au 60 mm du trou de celle utilisée pour les mesures d'émission.

2.3.7 Transport des ions jusqu'à la zone d'interaction

Après sélection dans le filtre, les ions sont ralentis par un potentiel de décélération de 3 kV. Le but est d'accroître la densité d'ions et de réduire l'importance des processus d'ionisation par collision. L'énergie des ions passe alors à 4 keV par charge.

Des cages de Faraday polarisées sont placées respectivement après le filtre de Wien et à l'entrée du déflecteur quadripolaire. Elles nous permettent de contrôler l'intensité des courants d'ions. Ces cages de Faraday sont polarisées dans le but de repousser les électrons produits lorsque les ions sont collectés sur l'âme de la cage, minimisant ainsi le courant électronique, qui s'ajoute au courant ionique et fausse la mesure. Quelques dizaines de volts suffisent pour réduire de 90% le courant électronique.

Un déflecteur latéral électrostatique St entre la lentille de Einzel El et le filtre de Wien permet d'optimiser la position latérale du faisceau d'ions sur le trou d'impédance placé avant le ralentisseur. Ce trou permet d'adapter les pressions qui passent de 10^{-7} torr en sortie de source RCE à quelques 10^{-9} à 10^{-10} dans la ligne SU6 et la zone d'interaction. D'une manière générale, les expériences sur la photoionisation doivent être réalisées dans un environnement ultravide car les processus collisionnels entre les ions et le gaz résiduel peuvent générer un bruit de fond important. Pour maintenir le vide aux alentours de 10^{-10} T sur le trajet des ions, diverses techniques de pompage sont utilisées (pompe turbo, ionique, sublimation) et le dispositif est régulièrement étuvé.

Afin de rendre le faisceau d'ions colinéaire avec le rayonnement synchrotron avec lequel il va interagir, un déflecteur quadripolaire à 90° est utilisé. L'efficacité de transmission de l'ensemble quadripôle et ralentisseur dépend de l'espèce ionique. Des transmissions de 60% ont été mesurées dans l'oxygène, contre seulement 20 à 30% pour le samarium. Les courants effectivement disponibles dans la zone d'interaction sont donc réduits par rapport aux valeurs présentées dans le Tableau 2-4. Notons qu'une seconde lentille de Einzel El (Figure 2-2) est placée après le quadripôle et permet de rendre le faisceau d'ions parallèle dans la zone d'interaction.

2.4 Zone d'interaction

La Figure 2-20 présente le détail de la zone d'interaction (ZI) entre les ions et les photons.

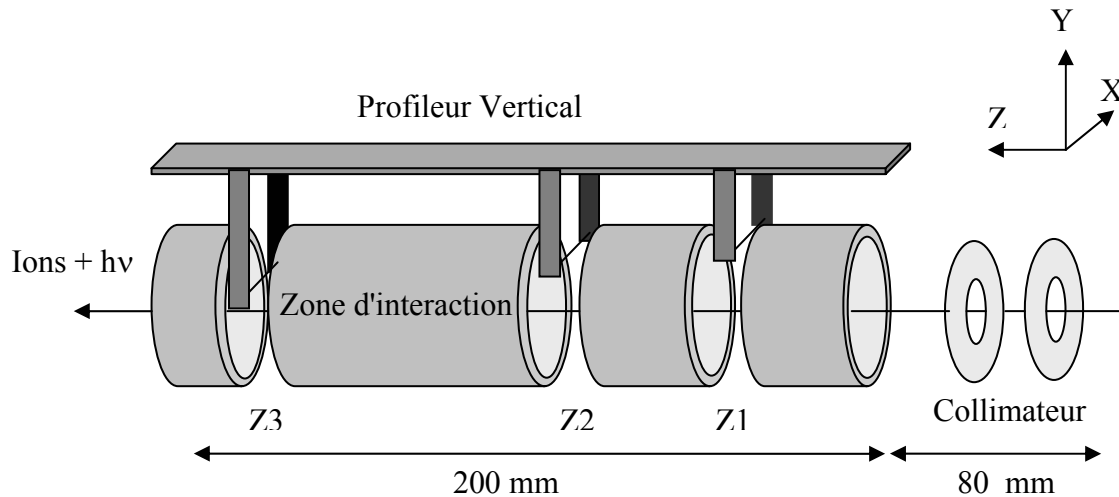


Figure 2-20 « Schéma de principe de la zone d'interaction »

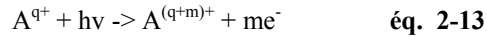
Un collimateur constitué de 2 trous de 2 mm de diamètre est situé en amont de la zone d'interaction. Il définit l'axe principal du montage expérimental sur lequel sont alignés les faisceaux de photons et d'ions.

Le centre de la zone d'interaction est situé au point focal du miroir de sortie de la ligne SU6. La longueur de la zone d'interaction est de 200 mm.

Afin de déterminer au mieux le volume de recouvrement entre les faisceaux d'ions et de photons dans cette région, la zone d'interaction est munie de profileurs horizontaux et verticaux. Chaque profileur, couplé à un système de translation, est formé de trois fils de 0.2 mm de diamètre qui coupent le faisceau pour trois positions z_1 , z_2 , z_3 , le long de la zone d'interaction. Ils permettent de caractériser la distribution spatiale d'intensité des faisceaux d'ions et de photons dans le plan XY (orthogonal au faisceau). Comme nous le détaillerons plus tard, cette caractérisation précise du recouvrement des deux faisceaux dans le volume d'interaction est primordiale pour l'obtention de sections efficaces absolues de photoionisation.

Une cage de Faraday FC3 (Figure 2-2) amovible est placée derrière la zone d'interaction et permet de mesurer le courant d'ions. Une photodiode calibrée PD (Figure 2-2) permet de mesurer le courant associé au flux de photons délivré par le monochromateur.

Dans le volume où les faisceaux d'ions et de photons se recouvrent, les ions incidents vont pouvoir interagir avec le rayonnement et être ionisés. Initialement de charge $q+$, ils vont perdre lors de l'interaction une ou plusieurs charges selon le schéma suivant.



Les photo-ions $A^{(q+m)+}$, sont séparés des ions incidents A^{q+} à l'aide d'un analyseur de charge à 90° .

Notons pour finir que la zone d'interaction (ZI) est électriquement isolée et peut être polarisée ce qui permettra de discerner les ions ayant perdu une ou des charge à l'intérieur du volume de la zone d'interaction (nous reviendrons sur ce point dans le paragraphe suivant).

2.5 Analyseur de charge

Un schéma de l'analyseur que j'ai développé et utilisé pour ces mesures est présenté Figure 2-21 :

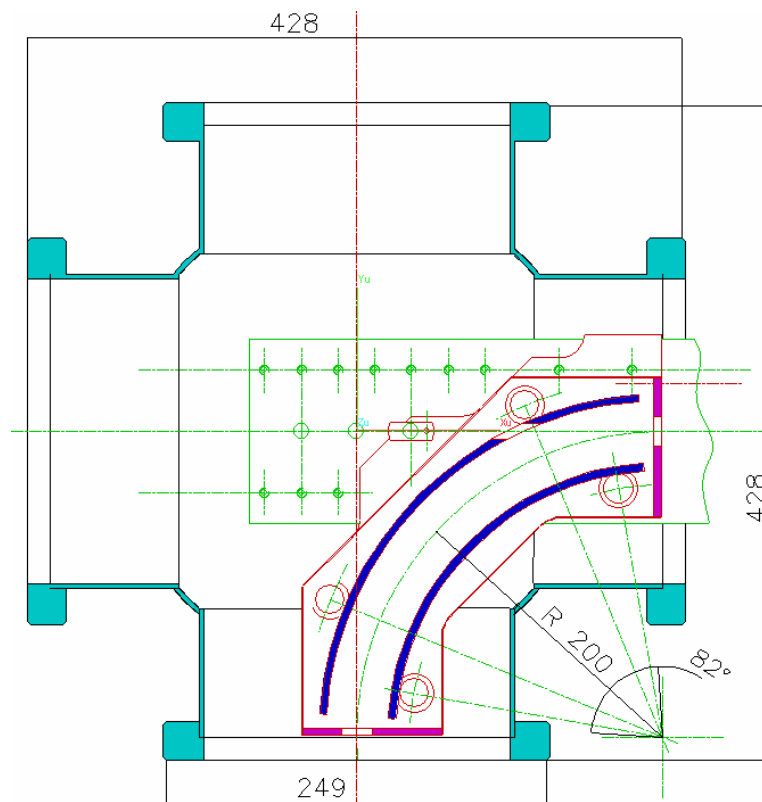


Figure 2-21 « schéma de l'analyseur à 90° »

Il s'agit d'un analyseur électrostatique. Il est constitué de deux plaques concentriques formant un secteur dont l'angle est de 90° . Les électrodes de cet analyseur ont des rayons de courbure de respectivement 180 et 220 mm pour un rayon moyen de 200mm. Chaque plaque est portée à un potentiel, de valeur identique mais de signe opposé, ajusté de façon à transmettre une charge d'ions donnée.

Ce dispositif est comparable à un aimant secteur possédant les mêmes caractéristiques géométriques (angle et rayon moyen). Il est possible de définir une rigidité électrostatique [2.22], qui s'écrit dans le cas non relativiste:

$$M \frac{dV}{dt} = \frac{Mv^2}{\rho} = QE \quad \text{éq. 2-14}$$

$$\frac{2Ec}{Q} = E\rho \quad \text{éq. 2-15}$$

où M est la masse de la particule, v sa vitesse, ρ le rayon de courbure de sa trajectoire, Q sa charge, E la valeur du module du champ électrique entre les électrodes et E_c l'énergie cinétique des particules. Il est donc possible d'utiliser un tel dispositif pour la spectrométrie puisque, pour un champ électrique E donné, les rayons de courbure ρ des trajectoires des particules au cours de la traversée de l'analyseur seront différents pour des ions de charge différente. Il en sera de même pour des ions de même charge mais d'énergie cinétique différente.

Les électrodes externe et interne de l'analyseur sont ouvertes en leur centre et sur toute leur longueur afin de réduire le bruit causé par l'impact des ions contre ces dernières et pour laisser passer le faisceau de photons et d'ions incidents. Des cages de Faraday FC3 et FC5 (Figure 2-2) permettent de contrôler le courant d'ions, respectivement, avant et après l'analyseur.

Des fentes réglables sont placées derrière cet analyseur à 90° afin de réduire le bruit et de stopper les éventuels ions non désirés qui auraient une énergie proche de celle des photoions. Derrière ces fentes est placée une cage de faraday FC5. Elle sert à contrôler le courant d'ions transmis par l'analyseur à 90° .

Les ions sélectionnés par l'analyseur de charge à 90° sont ensuite dirigés vers un second analyseur électrostatique à 30° . Ce second analyseur présente plusieurs intérêts. Tout d'abord il permet une meilleure sélection des ions puisque, à nouveau, seuls les ions ayant la bonne énergie arriveront sur le détecteur. D'autre part, il « éloigne » le détecteur du bruit généré dans le premier analyseur à 90° , ce qui accroît considérablement notre rapport signal sur bruit. Enfin, ce second analyseur torique focalise le faisceau suivant les axes X et Y, contrairement à l'analyseur cylindrique à 90° qui ne focalise les ions que suivant l'axe horizontal X.

2.6 Détection des photoions

La détection des photoions se fait en utilisant des galettes de microcanaux. Il s'agit d'un détecteur proportionnel à amplification basé sur le principe d'émissions secondaires.

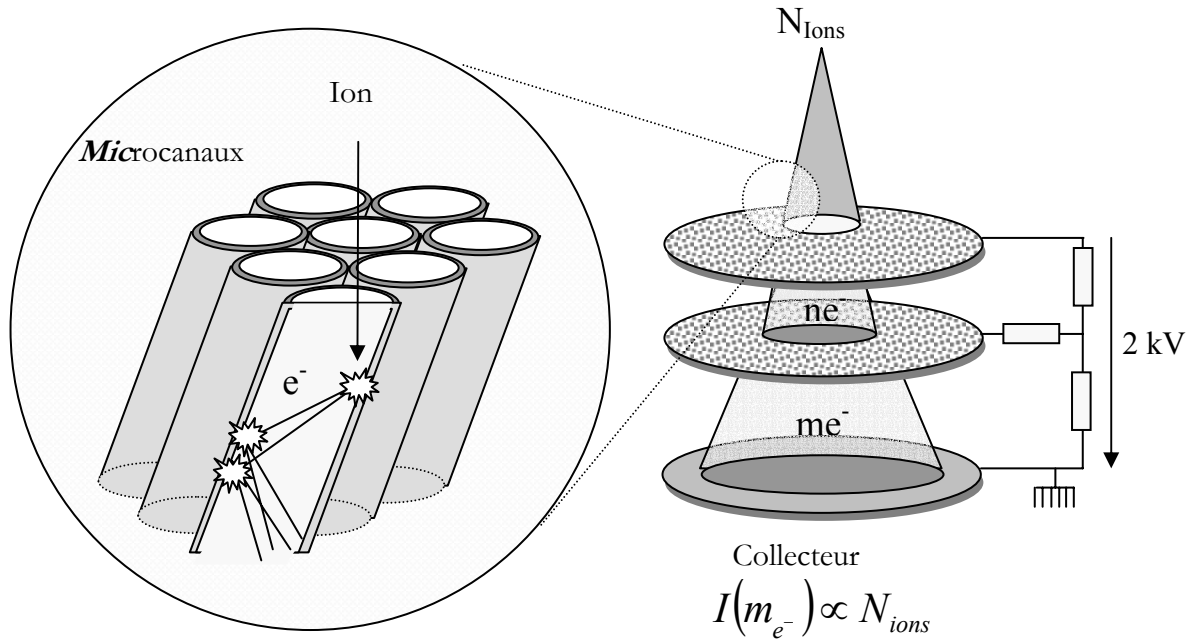


Figure 2-22 «Schéma et principe de fonctionnement des galettes de microcanaux »

Ce type de détecteur est en général composé de deux à trois galettes superposées. Chaque galette regroupe un grand nombre de multiplicateurs tubulaires. Chacun de ces microcanaux mesure quelques μm de diamètre (typiquement entre 12 et 30 μm). L'axe des microcanaux est incliné de 5° à 15° selon les galettes par rapport à la perpendiculaire de la face d'entrée de la galette afin d'augmenter l'efficacité des collisions entre les ions et les parois internes des tubes (zoom sur la Figure 2-23).

Lorsqu'un ion entre en contact avec la paroi interne d'un micro-canal, il va produire des électrons. Ces électrons primaires vont être accélérés par le potentiel auquel est porté le détecteur et à leur tour vont entrer en collision avec les parois du micro-canal. A chaque choc, plusieurs électrons secondaires seront à nouveau émis et accélérés. Par collisions successives, le courant d'électrons secondaires va donc être amplifié pour être collecté à la sortie de la galette.

Dans notre expérience, ce détecteur est utilisé en mode comptage. Chaque pulse de courant associé à un impact ionique est amplifié. Un discriminateur fixe le seuil de détection des pulses (élimination du bruit). Ils sont ensuite comptabilisés sur une échelle de comptage.

2.7 Conclusions sur le montage expérimental

Dans ce chapitre, l'ensemble des éléments constituant le montage expérimental ont été détaillés, de la production des faisceaux d'ions et de photons à la détection des photoions.

Grâce à ce montage, il est possible de déterminer des sections efficaces absolues de photoionisation. Les procédures expérimentales associées à cette détermination, calibration, traitement des informations etc. sont détaillées dans le chapitre suivant, en prenant comme exemple la détermination de la section efficace absolue de photoionisation des ions He^+ .

Chapitre 3 : Méthode expérimentale

3.1 Introduction aux mesures de section efficace

Dans le chapitre précédent, les divers éléments du dispositif expérimental que nous avons utilisé pour cette étude des processus de photoionisation dans les ions samarium et oxygène ont été décrits. Dans ce chapitre, nous allons décrire comment notre dispositif expérimental a été utilisé pour mesurer les sections efficaces absolues de ces processus.

Pour ce faire, nous prendrons l'exemple de l'ion Hélium monochargé. L'étude de l'ion He^+ est motivée par un souci de validation de notre procédure expérimentale. En effet, l'ion He^+ est un ion hydrogénoïde facile à produire. La variation de sa section efficace de photoionisation est calculable de façon analytique avec une très bonne précision ce qui, par comparaison avec nos mesures, nous permet de vérifier leurs pertinences. Nous verrons comment, en pratique, nous avons déterminé les sections efficaces absolues de photoionisation dans les ions multichargés et en particulier quelles ont été les procédures de calibration des divers détecteurs utilisés (photodiode, galettes de microcanaux, grille d'or ...).

3.2 Expression de la section efficace expérimentale

La section efficace est une grandeur de dimension homogène à une surface. L'unité couramment utilisée en Physique atomique est le barn. 1 barn équivaut à 10^{-24} cm^2 .

Pour notre expérience, un faisceau d'ions (cibles) et un faisceau de photons (projectiles) sont superposés. Le nombre de cibles et le nombre de photons sont grands. Afin de pouvoir donner une expression de la section efficace expérimentale de photoionisation correspondant à nos conditions expérimentales, il est nécessaire de considérer le cas suivant, schématisé sur la Figure 3-1 :

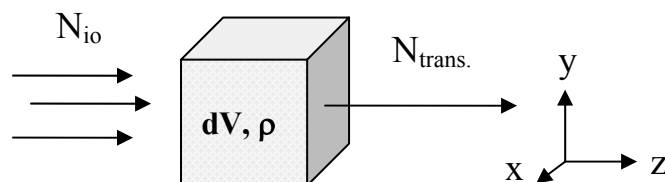


Figure 3-1 « Transmission des photons à travers un volume constitué d'ions »

Soit un volume cible dV possédant une certaine densité uniforme ρ d'ions sur lequel est envoyé N_{io} photons incidents. Un certain nombre d'ions va interagir en absorbant un photon et un nombre N_{trans} de photons sera transmis. La probabilité qu'aura un photon de traverser le volume dV sans être absorbé s'écrit alors comme le rapport entre le nombre total de photons transmis et le nombre de photons incidents :

$$P_t = \frac{N_{trans}}{N_{io}} \quad \text{éq. 3-1}$$

A la traversée de chaque tranche d'épaisseur dz du volume dV , le nombre de photons incidents N_i diminue de la quantité dN_i à cause de l'interaction avec les ions. Cette diminution est proportionnelle à la densité d'ions cibles contenus dans la tranche dz par unité de surface (i.e ρdz) de sorte que l'on peut écrire :

$$dN_i = -N_i \rho dz \times \sigma \quad \text{éq. 3-2}$$

La constante de proportionnalité σ , homogène à une surface, est définie comme la section efficace du processus. Par intégration sur z de l'équation 3-2, nous obtenons l'expression du nombre de photons transmis à travers la cible sur une longueur z :

$$N_{trans} = N_{io} \times e^{(-\rho z \sigma)} \quad \text{éq. 3-3}$$

Compte tenu des équations 3-1 et 3-3, il est alors possible d'écrire la probabilité qu'a un photon d'interagir avec les ions au cours de sa traversée du volume, $P_{int} = 1 - P_t$ soit :

$$P_{int} = 1 - e^{-\rho z \sigma} \quad \text{éq. 3-4}$$

Ainsi, pour un flux de photons I_{ph} incidents (nombre de photons par seconde) donné, le nombre S d'ions photoionisés (photoions) par seconde sera égal à $S = P_{int} I_{ph}$:

$$S = I_{ph} \times (1 - e^{-\rho z \sigma}) \quad \text{éq. 3-5}$$

Dans notre cas, il est possible de simplifier l'expression 3-5. La surface caractéristique en physique atomique est πa_0^2 (où a_0 est égale à $0.529 \cdot 10^{-8}$ cm) soit 0.9 Mbarn. D'autre part, la densité ionique ρ à l'intérieur du faisceau d'ions est relativement faible ; pour un faisceau

d'ions O^{2+} de $0.4 \mu A$ ayant une vitesse de 3.10^5 m.s^{-1} , la densité d'ions correspondante est de l'ordre de 10^6 ions par cm^3 . Ainsi, compte tenu du fait que la longueur de la zone d'interaction est de 20 cm, le produit $\rho\sigma z$ est petit devant 1 (10^{-5}) et l'exponentielle peut être remplacée par son développement limité au premier ordre :

$$S = I_{ph} \times \rho \times z \times \sigma \quad \text{éq. 3-6}$$

A ce stade, il est nécessaire de réécrire l'expression 3-6 de manière à faire apparaître les grandeurs expérimentales qui sont effectivement mesurées. Ces grandeurs sont : le taux de comptage des photoions S, les courants d'ions I et de photons J, ainsi que le recouvrement des faisceaux de photons et d'ions dans le volume de la zone d'interaction.

Pour cela, considérons un petit élément de volume $\delta V = \delta x \delta y \delta z$ dans lequel la densité ionique est supposée constante.

La densité ionique ρ dans δV est alors fonction de l'intensité élémentaire j du faisceau d'ions. A l'intérieur du faisceau, les ions, de charge qe , possèdent une vitesse moyenne $\langle v \rangle$ de sorte que la densité peut s'écrire :

$$j = \rho \langle v \rangle qe \times \delta x \delta y$$

$$\rho = \left(\frac{j}{qe \langle v \rangle \delta x \delta y} \right) \quad \text{éq. 3-7}$$

De la même façon, le flux de photons incidents dans cet élément de volume peut être rapporté au courant de photons i mesuré sur une photodiode de rendement η . Ainsi, compte tenu des éq. 3-6 et 3-7, le taux de comptage δS (associé au volume δV) mesuré sur les galettes de microcanaux de rendement Ω devient alors :

$$\frac{\delta S_{x,y,z}}{\Omega} = \left(\frac{j(x,y)}{qe \langle v \rangle \delta x \delta y} \right) \times \left(\frac{i(x,y)}{e\eta} \right) \times \sigma \times \delta z \quad \text{éq. 3-8}$$

Par intégration des courants sur x et y dans l'équation 3-8 nous obtenons l'expression 3-9 :

$$\iint \frac{\delta S_{x,y,z}}{\Omega} dx dy = \left(\frac{\sigma \delta z}{qe^2 \langle v \rangle \eta} \right) \times \iint \frac{i(x,y)j(x,y)}{\delta x \delta y} dx dy \quad \text{éq. 3-9}$$

Il est alors possible d'introduire le facteur de forme $F(z)$ défini par l'expression :

$$F(z) = \frac{\iint idxdy \iint jxdy}{\iint ijxdy} \quad \text{éq. 3-10}$$

En substituant l'éq. 3-10 dans 3-9, et en posant $I = \iint idxdy$ et $J = \iint jxdy$, nous obtenons alors le « taux de comptage » S_z pour chaque tranche d'épaisseur δz :

$$\frac{S_z}{\Omega} = \left(\frac{\sigma \delta z}{qe^2 \langle v \rangle \eta} \right) \times \frac{IJ}{F(z)} \quad \text{éq. 3-11}$$

Puis par intégration de S_z le long de la zone d'interaction de longueur L nous obtenons une expression de la section efficace de photoionisation directement liée aux grandeurs physiques mesurées expérimentalement :

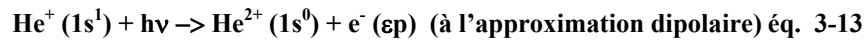
$$\sigma = \left(\frac{Sqe^2 \langle v \rangle \eta \delta x \delta y}{IJ\Omega} \right) \times \left(\int_0^L \frac{dz}{F(z)} \right)^{-1} \quad \text{éq. 3-12}$$

avec : S le taux de comptage des ions photoionisés, I et J les courants d'ions et de photons incidents, qe la charge de l'ion, $\langle v \rangle$ sa vitesse moyenne, η le rendement de la photodiode qui mesure J , Ω l'efficacité du détecteur de photoions (galettes de microcanaux), δx et δy le pas des mesures des courants élémentaires $i(x,y)$ et $j(x,y)$, et $F(z)$ le facteur de forme.

3.3 Mesures de la section efficace relative de photoionisation dans l'He⁺

3.3.1 Enregistrement du spectre brut et correction du bruit de fond

Les ions He⁺ sont initialement produits dans la source RCE. Ils sont extraits avec un potentiel accélérateur de 7 kV puis sélectionnés par le filtre de Wien. Après sélection, ils sont ralentis de 3 kV avant d'être déviés par le quadripôle. Ils possèdent alors une énergie cinétique de 4 keV. Dès leur déflexion à 90° par le quadripôle, les ions He⁺ sont plongés dans le faisceau de photons issu du monochromateur. Ils vont donc pouvoir interagir avec le rayonnement et gagner une charge par photoionisation :



Les voltages des deux analyseurs de charge électrostatiques à 90° et 30° sont ajustés afin de transmettre les photoions He²⁺ produits. La Figure 3-2 présente un exemple de spectres obtenus avec l'analyseur à 30° :

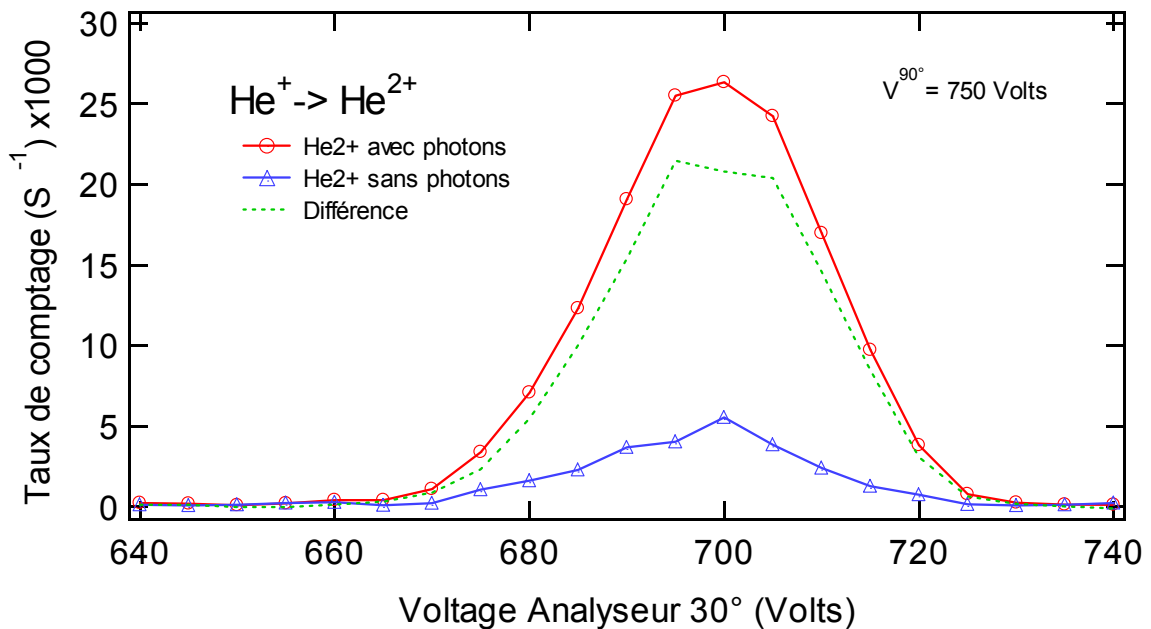


Figure 3-2 « Exemples de spectre obtenus avec l'analyseur à 30° »

Le spectre (cercle) présenté figure 3-2 est réalisé en mesurant, sur les galettes de microcanaux, le taux de comptage d'ions He²⁺ (photoions) produits par ionisation des ions He⁺ incidents, à

l'ordre zéro du monochromateur, pour différentes valeurs du voltage appliqué à l'analyseur torique à 30°. Le voltage de l'analyseur à 90° est optimisé pour ne laisser passer que les ions He^{2+} .

Grâce à un obturateur qui va arrêter le faisceau de photons (Figure 2-2), ces mesures des taux de comptage sont réalisées avec et sans la présence de photons, ceci dans le but de pouvoir soustraire le bruit de fond. Ce signal de bruit de fond (triangle) provient de processus autres que les processus de photoionisation comme, par exemple, des processus d'ionisation par collision avec le gaz résiduel dans l'enceinte de l'expérience pourtant maintenue en ultravide (10^{-10} Torr au niveau de la zone d'interaction). La différence de signal avec et sans photons (courbe en pointillé) nous donne donc uniquement le courant d'ions He^{2+} produit par photoionisation.

Une fois les valeurs des voltages des deux analyseurs fixées grâce à la valeur correspondante au maxima des pics du spectre de la Figure 3-2, les spectres de section efficace relative de photoionisation sont alors obtenus en enregistrant la variation du taux de comptage associé au nombre d'ions photoionisés en fonction de l'énergie des photons délivrés par le monochromateur. Nous obtenons alors dans le cas de l'hélium les spectres bruts suivants pour une énergie de photons comprise entre 50 et 70 eV (Figure 3-3) :

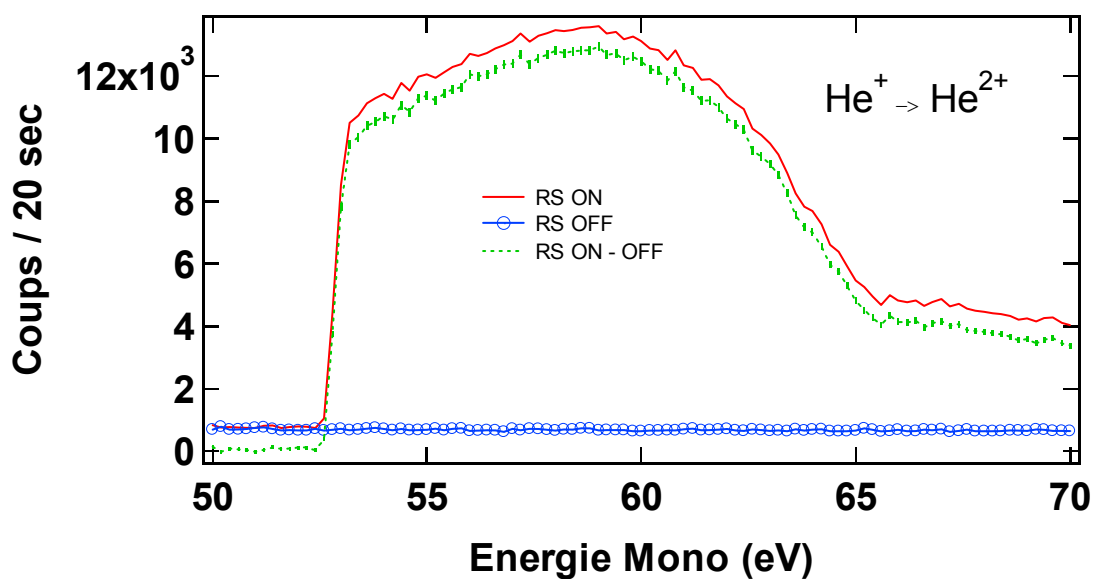


Figure 3-3 « Mesure de la variation du taux de comptage des ions He^{2+} en fonction de l'énergie des photons indiquée par la position du monochromateur »

Dans cette Figure, le bruit de fond, mesuré sans photon (RS OFF), est constant aux alentours de 50 coups par seconde. Il correspond à la courbe (bleu, rond). Le signal total associé à la superposition du signal de photoions He^{2+} et du bruit de fond (RS ON) est représenté par la courbe pleine. Enfin le signal de photoions, obtenu par soustraction du bruit de fond au signal total, est représenté par la courbe en pointillés. Le rapport signal sur bruit est bon, de l'ordre de 160/1 au maximum du signal.

3.3.2 Calibration de l'énergie des photons

L'échelle en énergie du spectre présenté Figure 3-4 est calculée à partir de la position angulaire du réseau du monochromateur. L'angle initial (zéro du codeur) est déterminé expérimentalement par la recherche de l'ordre zéro du monochromateur, en utilisant une grille d'or située avant le défecteur quadripolaire et en fermant les fentes du monochromateur afin d'accroître la précision.

Les énergies "Mono" (calculées à partir de l'angle relatif du réseau du monochromateur) et les énergies réelles des photons peuvent différer de quelques dixièmes d'électronvolts à plus d'un électronvolt selon les régions d'énergie. Il est donc nécessaire de calibrer de façon plus précise l'énergie des photons. Cette calibration se fait à l'aide d'une chambre à ionisation (Cellule à gaz) située derrière l'analyseur à 90° dans le prolongement du faisceau de photons [Figure 2-2]. La chambre à ionisation est constituée d'une entrée de gaz et d'un détecteur de type « channeltron » qui sert à compter les photoions. Un gaz rare, dont les énergies d'ionisation sont connues, est injecté dans la cellule. En balayant l'énergie des photons autour des valeurs connues d'énergies de résonances autoionisantes du gaz rare, nous produisons des spectres de photoionisation grâce auxquels l'énergie du monochromateur peut être normalisée à l'énergie réelle des photons. La Figure 3-4 présente un exemple de spectre obtenu avec le channeltron pour le xénon:

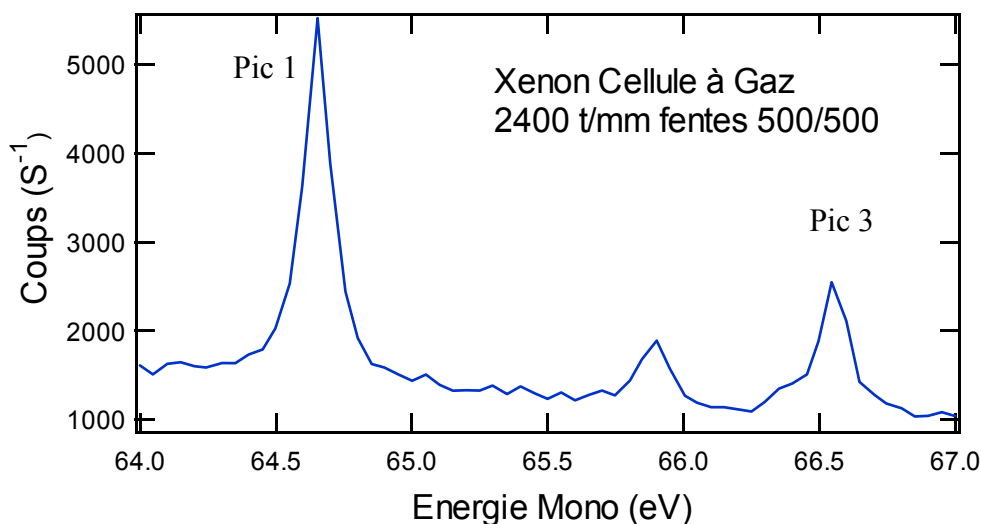
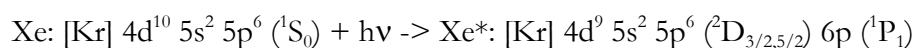
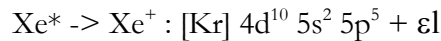


Figure 3-4 « Calibration des énergies de photons sur le Xenon »

Le Xe a pour configuration électronique fondamentale : $[\text{Kr}] 4d^{10} 5s^2 5p^6 (^1S_0)$. Les pics 1 et 3 observés sur la Figure 3-4 correspondent aux composantes 3/2 et 5/2 du doublet 2D associées aux transitions autoionisantes [3.1]:





Les positions expérimentales précises du maximum des pics de la Figure 3.8 sont obtenues par ajustement Gaussien. Elles sont présentées dans le Tableau 3-1:

Tableau 3-1 «Positions expérimentales des pics 1 et 3 du xénon»

Type	Energie de référence (eV) [3-1]	Energie Mesurée (eV)	Ecart (eV)
Pic 1	65.11 ± 0.05	64.65 ± 0.01	0.460 ± 0.06
Pic 3	67.05 ± 0.02	66.58 ± 0.01	0.468 ± 0.03

La correction à apporter aux énergies indiquées par le monochromateur dans le cadre de cette exemple est donc de $\Delta E = 0.464 \pm 0.045$ eV. Notons que l'énergie est également corrigé de l'effet Doppler associé à la vitesse des ions cibles se propageant colinéairement aux photons.

3.3.3 Prise en compte des variations du flux de photons

Le taux de comptage enregistré figure 3-4 dépend du flux de photons [éq. 3-12]. Il est donc nécessaire de corriger le spectre de photoions brut RS(ON-OFF) de la variation du flux de photons au cours de l'enregistrement. Les causes de variation du flux sont diverses :

- Tout d'abord, comme nous l'avons précisé dans le chapitre 2, paragraphe 2.3.4.1, le flux de photons varie en fonction de l'énergie. Il possède une distribution propre qui est liée aux harmoniques de l'onduleur. Cette distribution est modifiée par la réponse des différentes optiques (miroirs, réseau) qui constituent le monochromateur.
- le flux de photons varie de façon proportionnelle à la diminution, au cours du temps, du courant de positrons dans l'anneau (Chapitre 2, paragraphe 2.3.1).
- Enfin, le flux de photons peut également varier dans le temps à cause des différentes optiques de la ligne de lumière, qui, sous l'action du rayonnement, peuvent chauffer et se déformer.

3.3.3.1 Mesure de la variation du flux de photons

Pour mesurer le flux de photons pendant l'acquisition, la grille d'or notée GM (Figure 2-2) est placée devant l'entrée du quadripôle électrostatique côté monochromateur. La variation du

courant de photons incidents mesuré sur cette grille (effet photoélectrique) en fonction de l'énergie des photons incidents est directement reliée à la variation du flux de photons. Cette variation est présentée Figure 3-5.

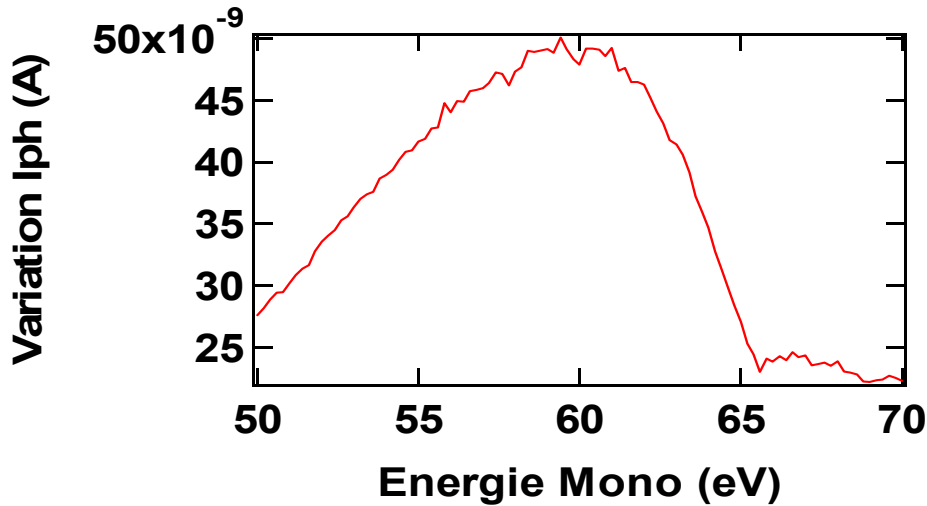


Figure 3-5 « Variation du courant de photons mesuré sur la grille d'or en fonction de l'énergie indiquée par le monochromateur »

3.3.3.2 Détermination du rendement de la grille d'or

Avant de pouvoir corriger le spectre de la Figure 3-3 de la variation du flux de photons (figure 3-5), il est nécessaire de connaître le rendement photoélectrique de la grille d'or. Celui-ci est fonction de l'énergie des photons. Pour le mesurer, nous disposons d'une photodiode calibrée dont le rendement est connu sur la gamme d'énergie considérée. La calibration de la photodiode a été réalisée au PTB de Berlin et son rendement (Ampère par Watt) est présenté Figure 3-6 :

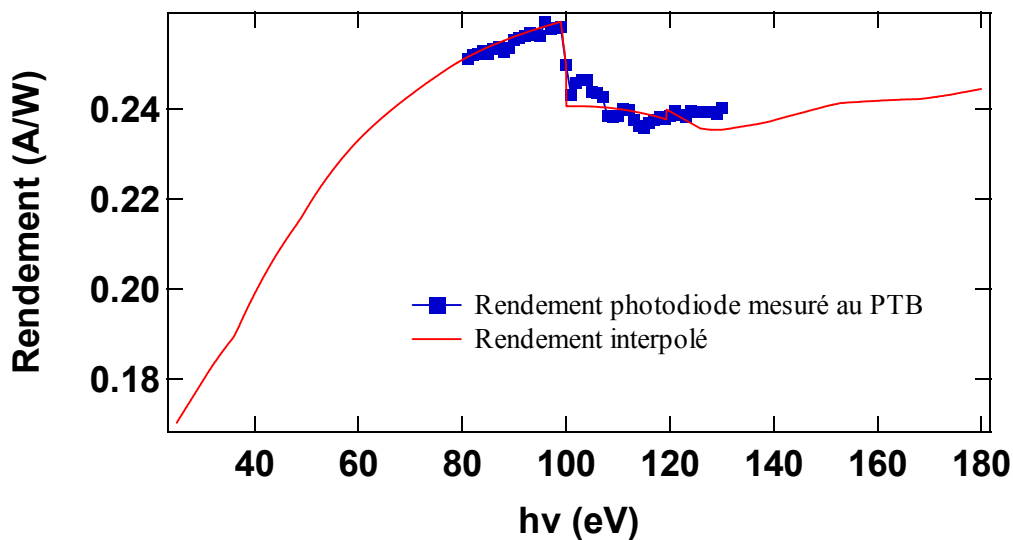


Figure 3-6 « Rendement de la photodiode en fonction de l'énergie des photons de 35 à 180 eV »

Ainsi, connaissant le rendement la photodiode Rd_{pd} , il est possible d'en déduire le rendement de la grille d'or Rd_{gf} . Pour cela, nous enregistrons simultanément la variation, avec l'énergie des photons, des courants lus sur la photodiode I_{pd} et sur la grille d'or I_{gf} . Un exemple d'enregistrement est présenté dans la Figure 3-7 :

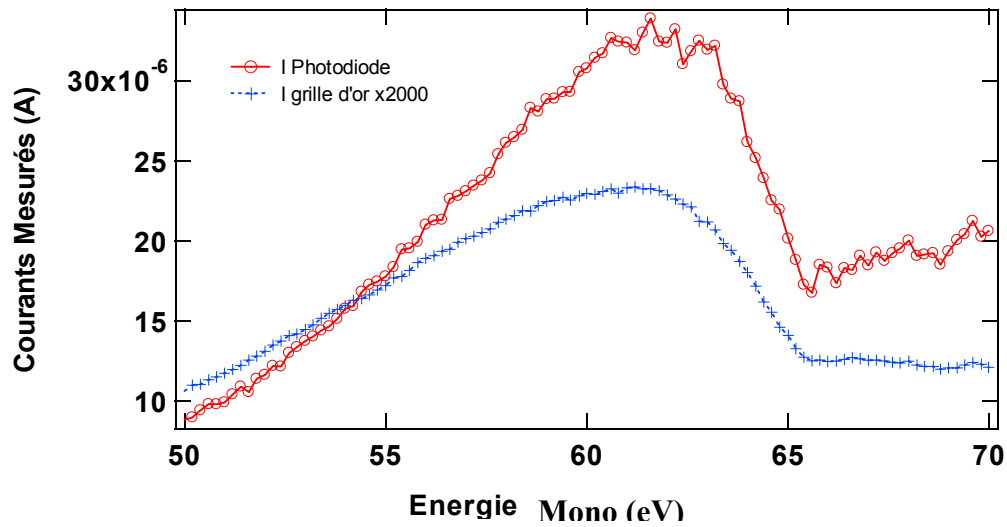


Figure 3-7 « Courants mesurés sur la photodiode et la grille d'or entre 50 et 70 eV »

Nous en déduisons alors le rendement de la grille d'or en A/W :

$$Rd_{gf} = \frac{I_{gf} Rd_{pd}}{I_{pd}} \quad \text{éq. 3-14}$$

Les rendements de la photodiode et de la grille d'or doivent être ensuite convertis en électron par photon pour avoir les mêmes dimensions que le rendement de la photodiode $\eta = Rd_{pd} \times h\nu$ indiqué dans l'équation 3-12.

3.3.4 Mesure des variations du flux d'ions

Au cours de l'acquisition, le flux d'ions peut varier. Cette variation est causée par différents facteurs dont l'existence d'instabilités de la source RCE. Elles proviennent principalement de variations de pression dans la source, surtout lorsque nous travaillons avec des vapeurs métalliques (l'émission de ces vapeurs est parfois mal contrôlée et peut se faire par « bouffées »). Ainsi le taux de comptage présenté Figure 3-3 doit être corrigé des variations du flux d'ions incident. Pour cela, le courant d'ions incident I est mesuré, en parallèle au taux de comptage S , dans la cage de faraday polarisée FC4 (Figure 2-2), placée derrière l'analyseur à 90° . La mesure du flux d'ions est réalisée avec l'obturateur fermé pour se soustraire d'un éventuel courant produit par les photons. La variation de courant d'ions mesurée pendant l'acquisition de signal de photoions He^{2+} (Figure 3-3) est présentée dans la Figure 3-8 :

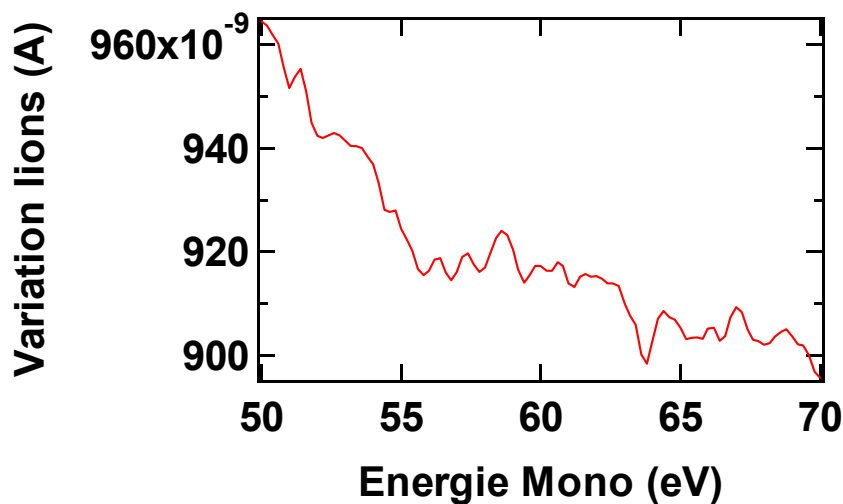


Figure 3-8 « Variation du flux d'ions incidents en fonction de l'énergie des photons »

3.3.5 Récapitulatif des corrections du spectre d'He⁺

Pour qu'une acquisition soit exploitable, il est souhaitable d'avoir la meilleure stabilité de courants d'ions et de photons possible pendant la prise de données. Leurs variations sont enregistrées au cours des acquisitions, simultanément au signal de photoions. En règle générale, plusieurs spectres semblables à ceux qui sont présentés Figure 3-3 sont enregistrés. Chaque spectre est alors traité suivant la procédure décrite dans ce paragraphe. Les spectres sont recalés sur l'énergie réelle des photons calibrée (paragraphe 3.3.2). Ils sont ensuite corrigés des variations des flux de photons et d'ions au cours de l'enregistrement (paragraphe 3.3.3).

En définitive, nous obtenons alors la Figure 3-9 qui représente la variation de section efficace relative de photoionisation de l'ion He⁺ entre 50 et 75 eV d'énergie des photons. Notons que les incertitudes présentées sur ce spectre correspondent uniquement aux incertitudes statistiques sur le taux de comptage :

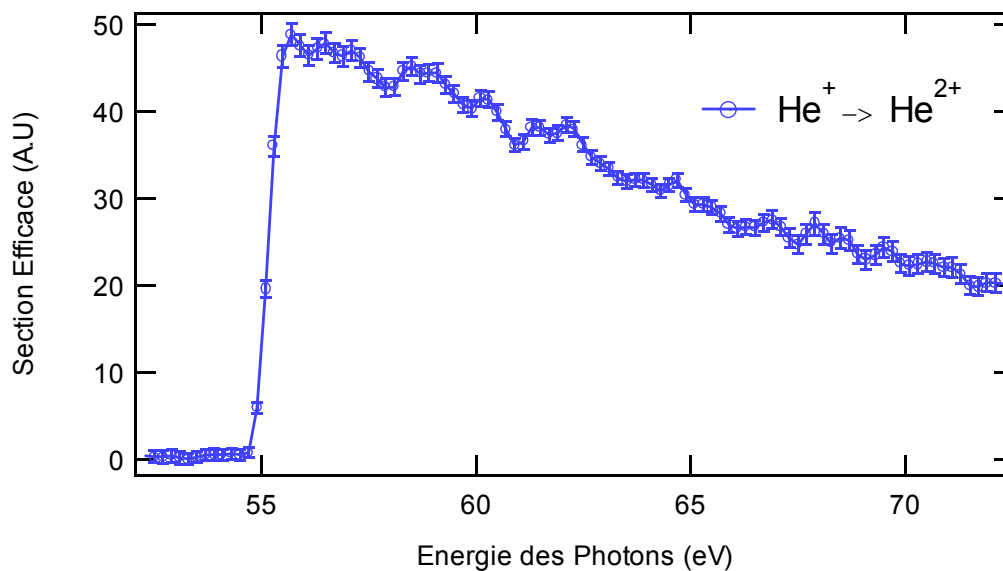


Figure 3-9 « Spectre de section efficace relative de photoionisation de l'ion He⁺ »

3.4 Normalisation des spectres et incertitudes de mesure.

Dans le paragraphe précédent, nous avons détaillé la procédure d'enregistrement et de traitement des spectres expérimentaux bruts sur l'exemple de l'ion He^+ . Le spectre final correspond à la variation de section efficace de photoionisation pour un ion incident donné. Bien que ce type de spectre apporte déjà des informations sur les processus de photoionisation, il ne permet pas de tester l'intensité absolue des processus prédits par les modèles théoriques. Nous allons voir, dans ce paragraphe, comment notre montage expérimental permet de mesurer des sections efficaces absolues de photoionisation et quelle précision nous pouvons atteindre.

3.4.1 Généralités sur les mesures de sections efficaces absolues

Tableau 3-2 «Section efficace absolue de photoionisation mesurée expérimentalement »

Ions	Réf.	Publications
C^+	[3.3]	Kjeldsen et al (1999)
N^+	[3.4]	Kjeldsen et al (2001)
$\text{N}^{2+}, \text{N}^{3+}$	-	En cours de publication (2003-2004)
O^+	[3.5]	Kjeldsen et al. (2000)
$\text{O}^{2+}, \text{O}^{3+}$	[3.6]	Champeaux et al. (2003)
$\text{F}^{3+,4+}$	-	Bizau en cours de publication (2003-2004)
Ne^{5+}	-	Bizau en cours de publication (2003-2004)
Mg^+	[3.5]	Kjeldsen et al. (2000)
$\text{Al}^{+,2+}$	[3.7]	West et al. (2001)
K^+	[3.8, 3.9]	Lyon et al. (1987), Kjeldsen et al. (1999)
Ca^+	[3.8]	Lyon et al. (1987)
Ca^{2+}	-	ASTRID en cours de publication
S^+	-	ASTRID en cours de publication
Fe^+	-	ASTRID en cours de publication
Zn^+	[3.10]	Peart et al (1987)
Ga^+	[3.10]	Peart et al (1987)
Sr^+	[3.9]	Lyon et al. (1987)
$\text{I}^{+,2+}$	[3.4]	Kjeldsen et al. (2000)
$\text{Xe}^{+,2+}$	[3.11]	Andersen et al. (2001)
Cs^+	-	ASTRID en cours de publication
$\text{Ba}^{+,2+}$	-	ASTRID en cours de publication
$\text{Sm}^{2+}, \dots, \text{Sm}^{5+}$	-	Cette thèse – non publié
$\text{Ba}^{3+}, \dots, \text{Ba}^{5+}$	[3.12]	Bizau et al. (2001)

Les premières mesures de sections efficaces de photoionisation dans des espèces ioniques ont été obtenues à la fin des années 70 sur l'ion Li^+ par Carroll and Kennedy (1977) [3.2]. Ce n'est que plus récemment que des mesures absolues ont pu être réalisées. Le Tableau 3-2 regroupe la liste des ions positifs pour lesquels des sections efficaces absolues de photoionisation expérimentales ont été mesurées.

A l'heure actuelle, seuls cinq montages expérimentaux, dont le nôtre, sont susceptibles de fournir des sections efficaces absolues de photoionisation dans les ions multichargés. Le montage d'ASTRID au Danemark, celui du Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL) à L'A.L.S (USA), celui implanté sur la machine Spring 8 au Japon ainsi que le montage implanté à la Photon Factory.

3.4.2 Paramètres associés à la mesure de σ

Afin de pouvoir normaliser nos spectres de section efficace relative en valeur absolue, il est nécessaire de mesurer, avec la meilleure précision possible et pour une énergie de photon fixée, l'ensemble des grandeurs physiques apparaissant dans l'expression 3-12 de la section efficace expérimentale. On rappelle qu'elle peut s'exprimer sous la forme :

$$\sigma = \frac{Sqe^2v\eta}{IJ\Omega} \times \Gamma^{-1} \quad \text{éq. 3-15}$$

Pour une énergie de photons donnée, il faut donc mesurer avec précision:

Le taux de comptage des photoions S en s^{-1} ;

L'efficacité des galettes de microcanaux Ω ;

La vitesse des ions incidents v ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) ;

Le flux d'ions incidents $I/(e\cdot q)$ (s^{-1}) ;

Le flux de photons incidents $J/\eta e$ (s^{-1}) ;

Le facteur Γ associé au facteur de forme $F_{xy}(z)$ (m^{-1}) ;

3.4.3 Mesure et calibration du taux de comptage des photoions

3.4.3.1 Mesure du taux de comptage des photoions S

Le taux de comptage des photoions He^{2+} est obtenu par différence des taux de comptage avec et sans photons mesurés à partir du signal des galettes de microcanaux, pour une énergie de photons fixée et sur un intervalle de temps de l'ordre de la vingtaine de secondes. L'opération est renouvelée plusieurs fois (typiquement 15 fois) et le taux de comptage moyen de photoions S est calculé en tenant compte des variations éventuelles des courants d'ions et de flux de photons. L'incertitude sur le taux de comptage moyen des photoions correspond à la somme des incertitudes statistiques (en $n^{1/2}$) sur les taux de comptage moyens avec et sans photons. Elle est en général de l'ordre de 2 à 3%.

3.4.3.2 Mesure du rendement des galettes de microcanaux Ω

Le taux de comptage moyen de photoions S doit être corrigé du rendement Ω des galettes de microcanaux. Celui-ci est calculé en mesurant le rapport entre le nombre d'ions par seconde déduit du courant lu dans la cage de Faraday polarisée FC6 (Figure 2-2) et celui mesuré par les galettes de microcanaux.

Pour faire cette mesure, il faut que le courant des photoions soit suffisamment intense pour être mesurable dans la cage FC6, et suffisamment faible pour ne pas saturer les galettes de microcanaux. Pour cela nous utilisons le faisceau incident d'ions que nous atténuons. L'ouverture des fentes à la sortie de l'analyseur à 90° est réduite et le faisceau d'ions incidents est légèrement défocalisé afin de ne pas dépasser un taux de comptage maximum de 50 000 coups par secondes sur les galettes. Ce taux de comptage correspond, dans le cas d'ions He^{2+} , à un courant ionique de 16 fA. Le courant mesuré dans la cage de Faraday FC6 est donc très faible et nécessite l'emploi d'un SubPicoAmpèremètre (Keithley modèle 6430). Les courants lus par le SubPicoAmpèremètre sont moyennés sur 100 mesures consécutives. La mesure du courant dans la cage de Faraday est réalisée avec et sans ions afin de soustraire le bruit de fond dû à d'éventuels courants de fuites.

Ainsi, le rapport entre le courant I_{cf6} d'ions de charge Q lu dans la cage de Faraday CF6 et le taux de comptage (dn/dt) lu sur les galettes de microcanaux nous donne le rendement Ω des galettes :

$$\Omega = \frac{Qe \frac{dn}{dt}}{I_{cf6}} \quad \text{éq. 3-16}$$

La mesure du rendement des galettes de microcanaux a été réalisée plusieurs fois au cours des différentes campagnes de mesure. Ces rendements ont été obtenus pour des ions et des énergies cinétiques différentes. Le résultat de ces mesures est présenté dans la figure 3-10.

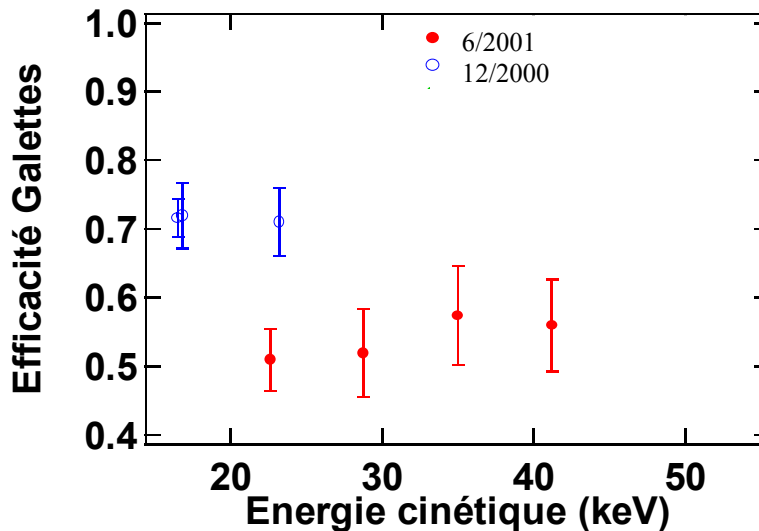


Figure 3-10 « Efficacité des galettes de microcanaux en fonction de l'énergie cinétique des ions incidents »

Le rendement semble être indépendant de l'énergie cinétique des ions incidents. Par contre, nous observons que l'efficacité de détection de nos galettes de microcanaux diminue au cours du temps. Il est donc primordial de faire ces mesures de rendement après chaque campagne de mesures. Dans l'idéal, il serait préférable de mesurer l'efficacité après chaque mesure de section efficace ce qui, pour des raisons de temps, ne nous a pas été possible de faire.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons donc utilisé la valeur du rendement moyen déterminé à partir des mesures de juin 2001 soit : $\Omega = 0.532 \pm 0.029$ (5.5%)

3.4.4 Mesure de la vitesse des ions <v>

La vitesse V des ions incidents est déterminée par leur charge Q , leur masse M et le potentiel d'accélération U appliqué à la source. Le module de la vitesse V des ions (en non relativiste) s'écrit alors:

$$V = \left(\frac{2QU}{M} \right)^{1/2} \quad \text{éq. 3-17}$$

Les sources d'incertitudes associées à la mesure de vitesse des ions incidents sont multiples. Tout d'abord, le potentiel appliqué à la source est mesuré par l'intermédiaire d'un pont diviseur de tension calibrée à 0.1%. Les incertitudes de lecture du voltmètre utilisé sont négligeables (<1%). Une seconde source d'incertitudes provient de la valeur de la masse

atomique M des ions et en particulier la présence d'isotopes (pour l'hélium, elle est négligeable). Une autre source d'incertitude concerne probablement la distribution des vitesses des ions en sortie de notre source d'ions RCE qui n'est pas connue.

3.4.5 Mesure du flux d'ions incidents I

Le flux d'ions incidents $I(e^*Q)$ est mesuré dans la cage de Faraday polarisée FC3 figure 2-2. Il est moyenné sur 100 mesures. L'incertitude associée à cette mesure du courant d'ions I est de l'ordre de 0.3 à 0.5%.

3.4.6 Mesure du flux de photons

Le flux de photons est mesuré à partir du courant lu sur la photodiode (calibrée à 5% au PTB) située devant l'analyseur à 90° . Ce courant est moyenné sur 100 mesures et l'écart type de cette distribution est calculé. Rappelons que la contribution des ordres supérieurs diffractés par le réseau est négligeable du fait de l'utilisation d'un filtre en aluminium. L'incertitude totale sur le flux de photons $J/(\eta^*e)$ au premier ordre est de l'ordre de l'incertitude sur η , soit 5 à 6%.

3.4.7 Mesure de la transmission de l'analyseur

La transmission totale T des deux analyseurs en série est mesurée sur les ions incidents. Elle correspond au rapport des courants lus avant et après le système d'analyseurs dans les cages de Faraday CF3 et CF6.

3.4.8 Mesure du facteur de forme

Une des étapes pour pouvoir mesurer une section efficace de photoionisation consiste à caractériser parfaitement les ions et les photons dans une région de l'espace pour laquelle, il est possible de définir le facteur de forme. C'est le rôle de la zone d'interaction (ZI) et des profilers (Figures 2-2 et 2-20). Le facteur de forme est un paramètre essentiel. Il correspond au recouvrement spatial des densités de courants d'ions et de photons intégrés sur la longueur L de la zone d'interaction.

3.4.8.1 Marquage des ions photoionisés

Afin de déterminer la section efficace, il faut connaître la longueur L sur laquelle les deux faisceaux interagissent. Seuls les ions ayant perdu une charge dans le volume de la zone d'interaction (ZI) doivent être pris en compte pour mesurer la section efficace. Or, dès leur déviation à 90° par le quadripôle, les ions vont commencer à interagir avec les photons. Il est donc nécessaire de discerner ceux qui vont être photoionisés à l'intérieur du volume d'interaction (ZI), de ceux, qui ont interagi avec le rayonnement à l'extérieur de ce volume.

Pour cela un voltage est appliqué sur la zone d'interaction (ZI), ce qui a pour effet de discriminer en énergie cinétique les photoions produits dans la zone d'interaction (ZI) : les ions incidents qui vont gagner une charge à l'intérieur de la zone d'interaction vont avoir leur vitesse modifiée par le potentiel appliqué sur la zone, d'une façon différente en entrant et en sortant de la zone. Ceux qui n'ont pas interagi vont être ralentis à l'intérieur de la zone d'interaction puis, n'ayant pas perdu de charge, ils vont être ré-accelérés à sa sortie, avec la même vitesse que celle avec laquelle ils y sont entrés. Il sera alors possible de séparer dans l'analyseur à 90° les ions photoionisés dans la zone d'interaction de ceux photoionisés à l'extérieur de celle-ci, comme l'indique le spectre présenté Figure 3-11:

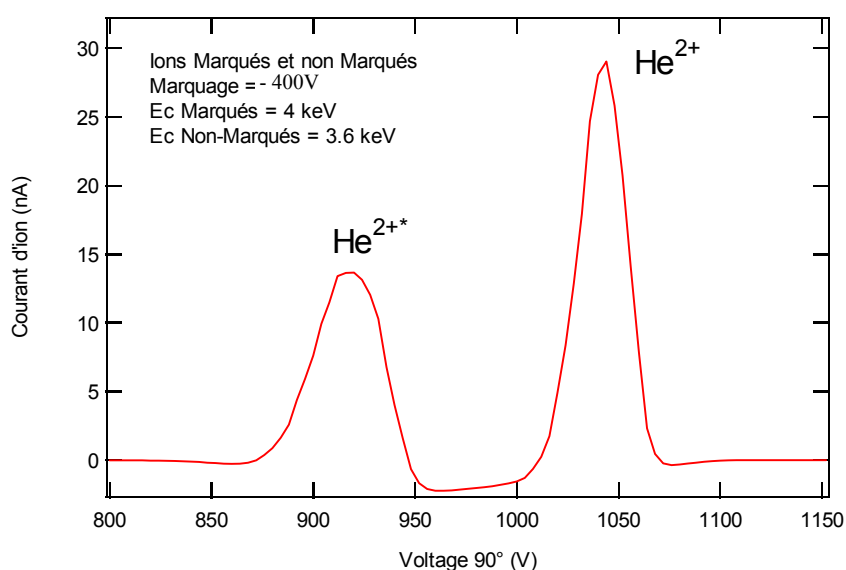


Figure 3-11 « Courant de photoions He^{2+*} marqués et He^{2+} non marqués lu dans cf4, à l'ordre zéro du monochromateur, en fonction du voltage appliqué à l'analyseur de charge à 90° »

Ce spectre correspond à la variation du courant d'ions mesuré dans la cage de faraday cf4 en fonction du voltage appliqué à l'analyseur à 90° , pour des ions He^+ incidents de 4 keV. Le voltage de l'analyseur à 30° est fixé et le voltage appliqué à la zone d'interaction pour le marquage des ions est de -400 Volts. Le pic observé à 920 Volts correspond aux photoions He^{2+*} produits à l'intérieur de la zone d'interaction et qui ont en sortie une énergie cinétique de

3.6 keV. Celui observé à 1040 Volts correspond aux photoions non marqués He^{2+} produits en dehors de la zone de marquage (ZI). Les deux pics sont nettement séparés et la sélection des ions marqués est alors possible.

3.4.8.2 Principe de la mesure du facteur de forme

Afin de mesurer le facteur de forme, nous disposons d'un système de profileurs (Chapitre 2 paragraphe 2.5). Ce dispositif permet de mesurer, en trois points z_i ($i = 1$ à 3) de la zone d'interaction (ZI), les profils d'intensités $I_{z_i}(x)$, $I_{z_i}(y)$ et $J_{z_i}(x)$, $J_{z_i}(y)$ des faisceaux d'ions et de photons perpendiculairement à l'axe de propagation z . En enregistrant alternativement, grâce au séquenceurs les courants d'ions puis de photons lus sur les fils horizontaux et verticaux du profileur, nous obtenons les profils d'intensité suivant X et suivant Y pour les deux faisceaux et pour les trois positions distinctes z_i de la zone d'interaction (ZI). Un exemple de profil obtenu est présenté sur la Figure 3.12

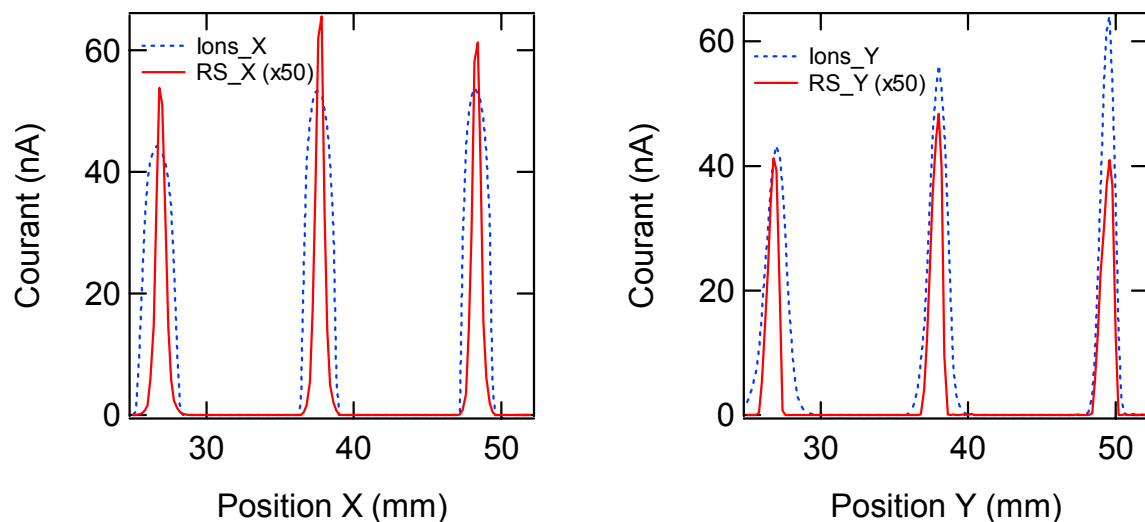


Figure 3-12 « Profils d'intensité des faisceaux d'ions et de photons suivant X et Y »

Sur cette figure, notons que le recouvrement des faisceaux de photons et d'ions est bon et que la focalisation du faisceau de photons est bien au centre de la zone d'interaction (ZI). Les pas Δx et Δy avec lesquels sont effectuées les mesures sont les mêmes dans les deux plans et valent 0.2 mm. Un tel dispositif ne nous permet pas de connaître l'intensité $I_{z_i}(x,y)$ et $J_{z_i}(x,y)$ des faisceaux en chaque point (x,y) . Il n'est donc pas possible de calculer directement la valeur exacte du facteur de forme $F(z_i)$ dont l'expression est :

$$F_{xy}(z_i) = \frac{\iint I_{z_i}(x,y) dx dy \times \iint J_{z_i}(x,y) dx dy}{\iint I_{z_i}(x,y) J_{z_i}(x,y) dx dy} \quad \text{éq. 3-18}$$

Diverses approximations sont alors nécessaires afin d'obtenir une valeur approchée du facteur de forme.

3.4.8.3 Approximations sur le facteur de forme

Une première approximation consiste à exprimer les distributions d'intensité des faisceaux d'ions $I(x,y)$ et de photons $J(x,y)$ comme étant égales aux produits des intensités des profils, mesurées en x et y :

$$I(x, y) = I(x)I(y) ; J(x, y) = J(x)J(y) \quad \text{éq. 3-19}$$

Le facteur de forme total F_{xy} s'écrit alors comme le produit de deux facteurs de forme indépendants sur x et y de sorte que :

$$\frac{\int I(x)dx \int J(x)dx}{\int I(x)J(x)dx} \times \frac{\int I(y)dy \int J(y)dy}{\int I(y)J(y)dy} = F_x \times F_y \approx F_{xy} \quad \text{éq. 3-20}$$

Une étude approfondie sur le facteur de forme a été réalisée par Rasmussen et Kjeldsen [3.13, 3.14]. Dans leur montage, le système de profileurs est constitué de fentes croisées qui traversent le faisceau. Les profils unidimensionnels $I(x), I(y), J(x), J(y)$ mais aussi les distributions bidimensionnelles de courant $I(x,y)$ et $J(x,y)$ peuvent ainsi être mesurés. Il est donc possible de comparer pour divers profils de faisceaux, les différences entre les facteurs de forme, calculés à partir des distributions bidimensionnelles $I(x,y)$ et $J(x,y)$ et calculés à partir des profils monodimensionnels. Ils ont montré que la variation du facteur de forme peut atteindre 15% entre les deux modes de calcul. Cette variation dépend du caractère symétrique ou non des profils de faisceaux. Toutefois cette différence se traduit par une variation du facteur de forme, intégré $\int \left(\frac{dz}{F_{xy}(z)} \right)$ sur la longueur L de la zone d'interaction, de moins de 1%.

L'approximation utilisée dans le cadre de notre étude génère une incertitude systématique très faible sur la section efficace finale mesurée.

Une seconde approximation vient du fait que la mesure des profils $I(x), I(y), J(x), J(y)$ se fait avec un pas discret. Nous devons donc approcher les intégrales par des sommations finies correspondant au pas de mesure $\delta x = \delta y = 0.2\text{mm}$. La forme intégrale du facteur de forme est alors assimilée à :

$$F_{xy} \approx \frac{\sum I(x) \sum J(x)}{\sum I(x)J(x)} \times \frac{\sum I(y) \sum J(y)}{\sum I(y)J(y)} \times \delta x \times \delta y \quad \text{éq. 3-21}$$

Ce type d'approximation entraîne une incertitude proportionnelle au nombre N de mesures et au cube du pas des mesures [3.15]. Dans le cas des profils ($f(x) = I(x)$ ou $J(x)$), nous négligerons l'incertitude associée à cette transformation car dans notre cas $N\delta x^3 \ll 1$.

En utilisant ces approximations, nous calculons le facteur de forme $F_{xy}(z_i)$ pour les trois points z_i de la zone d'interaction. Pour donner une expression du facteur de forme $F_{xy}(z)$ tout le long de la zone d'interaction, nous utilisons une approximation supplémentaire qui consiste à représenter sa variation selon z par un polynôme du second degré.

$$F_{xy}(z) = A(z_1, z_2, z_3) z^2 + B(z_1, z_2, z_3) z + C(z_1, z_2, z_3) \quad \text{éq. 3-22}$$

Le facteur de forme $F_{xy}(z)$ étant ainsi déterminé, il ne reste plus qu'à intégrer la fonction $1/F_{xy}(z)$ sur la longueur L de la zone d'interaction pour obtenir la valeur du terme Γ contenu dans l'expression de la section efficace expérimentale [éq. 3-15]. Ici encore, il existe une incertitude associée à la définition de la longueur L de la zone d'interaction (ZI). En effet, la longueur de la zone d'interaction n'est pas définie de façon mécanique (20cm) mais par le marquage des ions. Cette longueur peut donc varier par rapport à la longueur mécanique à cause des champs de fuites. Dans notre montage, l'importance de ces champs de fuite a été limitée, d'une part par les dimensions des ouvertures de la zone d'interaction (2 mm de diamètre en entrée et 7 mm en sortie) et d'autre part par le faible voltage de marquage appliqué sur la zone (typiquement 200 Volts). Cette incertitude sur l'intégration est également négligée. Pour finir, l'incertitude principale sur le facteur de forme provient du fait que les fils du profileur ne sont pas polarisés. Elle est de l'ordre de 3% sur la lecture des courants ce qui correspond aux incertitudes constatées pour des cages de Faraday non polarisées.

3.5 Résultats finaux sur l'hélium

Grâce à notre dispositif expérimental, il est donc possible de mesurer, à une énergie de photons donnée, la section efficace absolue de photoionisation. Les valeurs et incertitudes des différents paramètres sont récapitulées dans le tableau 3.3 ci-dessous, qui présente un exemple de mesures obtenues pour les ions He^+ .

Tableau 3-3 « Exemple de mesure de section efficace absolue dans l'hélium monochargé »

Type des photoions	Valeur	Incertitude
Energie de photons (eV)	65	± 0.07 (0.1%)
Vitesse des ions ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)	$4.39 \cdot 10^6$	$\pm 5.61 \cdot 10^3$ (0.12 %)
Taux de comptage (s^{-1})	90.18	± 2.03 (2.25%)
Flux de photons (s^{-1})	$5.90 \cdot 10^{12}$	$\pm 3.17 \cdot 10^{11}$ (5.37%)
Flux d'ions (s^{-1})	$3.00 \cdot 10^{12}$	$\pm 8.74 \cdot 10^{10}$ (0.3%)
Transmission (%)	0.9	± 0.05 (5.56%)
Efficacité des galettes	0.543	± 0.029 (7.52%)
Intégrale de F sur L (m^{-1})	44347	± 1464 (3.3%)
Section Efficace (Mb)	1.0538	± 0.257 (~24%)

Ce type de mesure est répété plusieurs fois à une même énergie de photons, avec des conditions expérimentales différentes, de telle sorte que ces déterminations peuvent être considérées comme indépendantes. La valeur finale de la section efficace est alors obtenue en faisant la moyenne pondérée des mesures

$$\sigma_{moy} = \frac{\sum_i \frac{\sigma_i}{(\delta\sigma_i)^2}}{\sum_i \frac{1}{(\delta\sigma_i)^2}} \quad \text{éq. 3-23}$$

et l'incertitude associée est donnée par : $\Delta\sigma_{moy} = \frac{1}{\sum_i \frac{1}{(\delta\sigma_i)^2}}$ éq. 3-24

Les spectres de section efficace relative de photoionisation sont ensuite normalisés à plusieurs énergies de photons grâce aux mesures de sections efficaces absolues décrites plus haut. Pour l'hélium, nous obtenons le spectre présenté sur la Figure 3.13 :

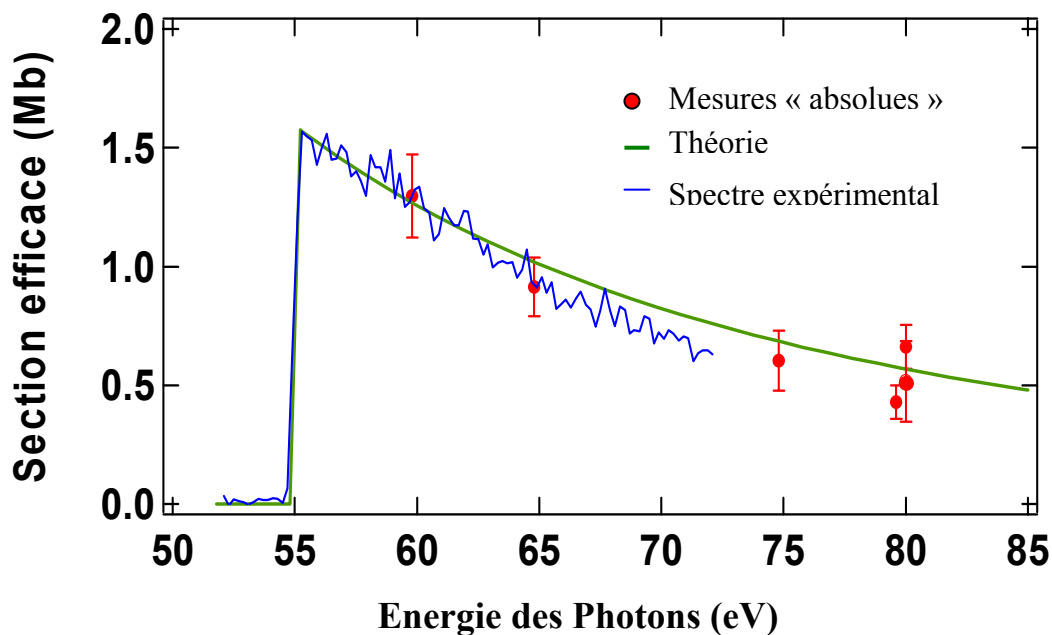


Figure 3-13 « Variation de la section efficace théorique et expérimentale de photoionisation de l'ion He^+ de 50 à 85 eV. »

Le spectre 3-14 ainsi normalisé (courbe continue bleue) est comparé à la variation théorique de la section efficace de photoionisation en sous-couche 1s dans l'ion hydrogénoïde He^+ [3.16] :

$$\sigma(1s) = \frac{2^9 \pi a_0^2}{3} \times \frac{Z^6}{(k^2 + Z^2)^4} \times \frac{e^{\left(\frac{-4Z}{k}\right)} \times \arctan\left(\frac{k}{Z}\right)}{1 - e^{\left(\frac{-2\pi Z}{k}\right)}} \quad \text{éq. 3-25}$$

$$K^2 = E - Z^2$$

où E est l'énergie des photons et Z la charge de l'ion hydrogénoïde.

Nos mesures et la courbe théorique sont, aux incertitudes de mesure près, en bon accord, ce qui valident ainsi notre procédure de détermination de mesures de sections efficaces absolues.

3.6 Bilan sur la mesure absolue de sections efficaces

Nous avons montré comment, à l'aide de notre montage expérimental, nous pouvons déterminer la variation, en fonction de l'énergie des photons incidents, de la section efficace absolue de photoionisation dans des ions multichargés. Les causes principales d'incertitude sont celles provenant de la mesure du flux de photons (~5 à 10%), de la mesure de l'efficacité des galettes (~5 à 10%), de la caractérisation du facteur de forme (de l'ordre de 5%) et de la mesure de transmission T qui varie avec la géométrie du faisceau d'ions. Ainsi, l'incertitude sur une mesure est inférieure à 30%. Elle peut être sensiblement améliorée en répétant plusieurs fois la même mesure pour atteindre une incertitude de mesure inférieure à 20%.

Chapitre 4 : Photoionisation des ions oxygène

4.1 Introduction

Les ions oxygène sont présents dans de nombreux plasmas naturels. On les trouve aussi bien dans les plasmas interstellaires et les plasmas atmosphériques (ionosphère) que dans les enveloppes stellaires. La grande majorité des données atomiques disponibles sur ces ions (Seuils d'ionisation, sections efficaces de photoionisation ou d'impact électronique...) est regroupée dans des bases de données comme par exemple la base « Opacity Project » [4.1 – 4.2]. Ces données sont, pour la plupart, tirées de codes de structures atomiques basés sur divers modèles théoriques comme, par exemple, le code Matrice-R [4.3].

Bien que d'importants calculs Matrice-R aient été réalisés en 1994 sur les ions oxygène par Nahar et Pradan [4.4], puis par Nahar en 1998 [4.5], ce n'est que très récemment que les premières mesures expérimentales de sections efficaces absolues de photoionisation ont été obtenues sur l'ion O^+ par Covington et al. [4.6] et par Kjeldsen et al. en 2002 [4.7]. Ces mesures ont été confrontées aux résultats R-Matrice.

Durant mon travail de thèse, des mesures absolues de sections efficaces de photoionisation dans les ions oxygène O^{2+} et O^{3+} ont pour la première fois été réalisées. Ces mesures viennent compléter les premiers résultats sur l'oxygène monochargé. En outre, la variation relative de section efficace de photoionisation dans l'ion O^{4+} a également été déterminée durant cette thèse. Afin d'interpréter ces nouvelles mesures expérimentales, j'ai réalisé, au CEA de Bruyères-le-Châtel, des calculs Multi-Configurationnels Dirac-Fock (MCDF) en utilisant le code de calcul développé par J. Bruneau [4.8]. En parallèle à ces calculs MCDF, de nouveaux calculs Matrice-R Relativiste (approximation de Breit-Pauli) ont été menés par S.Nahar sur la série iso-nucléaire des ions oxygène jusqu'à O^{4+} .

Dans ce chapitre, l'ensemble de nos résultats expérimentaux et théoriques sur les ions de la série iso-nucléaire de l'oxygène O^{2+} à O^{4+} sera présenté. Pour chaque ion, les diverses structures présentes dans les spectres expérimentaux seront analysées sur la base des résultats de nos calculs MCDF. Des résultats de calculs plus anciens, ainsi que les données des bases « Opacity Project » et du NIST, seront également comparés et confrontés aux résultats expérimentaux.

4.2 Résultats sur l'ion O^{2+}

Dans ce paragraphe seront décrits les résultats expérimentaux obtenus à Super-Aco sur la photoionisation des ions O^{2+} . Les procédures expérimentales d'acquisition et traitement des spectres bruts sont similaires à celles décrites pour les ions He^+ (Chapitre 3). Le spectre expérimental présenté sur la Figure 4-1 est le résultat de plusieurs acquisitions. Les différentes calibrations permettant d'établir la variation de la section efficace de photoionisation en valeur absolue ont été réalisées.

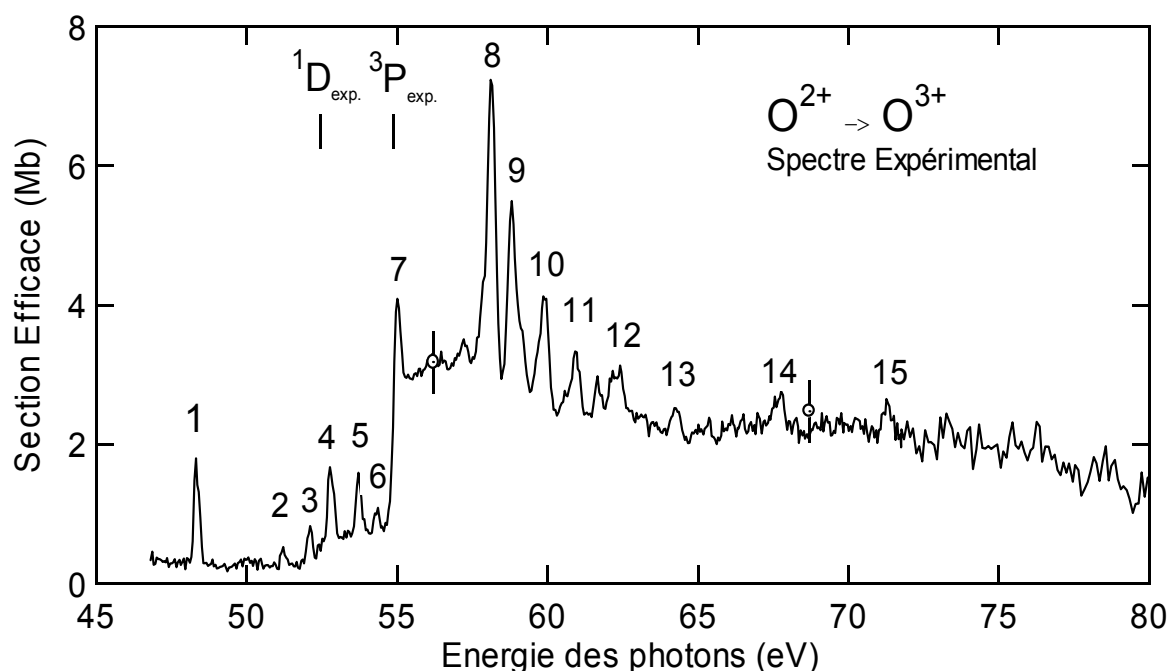


Figure 4-1 « Spectre expérimental de photoionisation de l'ion O^{2+} »

Ce spectre présente la variation de la section efficace absolue de photoionisation pour des ions incidents O^{2+} , mesurée sur une gamme d'énergie de photons qui s'étend de 45 à 80 eV. Dans ce domaine spectral, selon l'ouverture de fente du monochromateur, la résolution spectrale varie de 0.1 eV à 0.45 eV. La section efficace relative de photoionisation est normalisée en valeur absolue aux énergies de photons de 56.16 eV (3.18 ± 0.45 Mb) et de 68.25 eV (2.48 ± 0.42 Mb). Ces énergies de normalisation ont été choisies dans une région où les variations de sections efficaces sont faibles (i.e. entre les résonances). Les structures résonnantes les plus intenses sont numérotées de 1 à 15.

4.2.1 Description du spectre expérimental

L'ion O^{2+} dans l'état fondamental a pour configuration électronique $1s^2 2s^2 2p^2$. Les niveaux spectroscopiques en couplage LS qui correspondent à cette configuration sont ${}^3P_{0,1,2}$, 1D_2 et 1S_0 . Les seuils d'ionisation associés à ces termes sont récapitulés dans le Tableau 4-1. Ils vont nous permettre d'identifier certaines des structures observées expérimentalement. Notons, que dans la suite de ce chapitre, la sous-couche pleine $1s$ ne sera plus précisée dans l'écriture des configurations.

Tableau 4-1 «Position des seuils d'ionisation exprimée en eV dans O^{2+} à partir des 5 premiers niveaux»

Configuration (nl)	Niveau (LSJ π)	NIST [4.10]	MCDF	Nahar [4.5]	LUO [4.9]	O.P.	Exp.
$2s^2 2p^2$	${}^3P_0^+$	54.876	53.641	55.298	54,930	54.903	54.74
	${}^3P_1^+$	54.862	53.628	-	-	-	-
	${}^3P_2^+$	54.838	53.605	-	-	-	-
	${}^1D_2^+$	52.362	50.718	52.714	52,414	52.319	52.5
	${}^1S_0^+$	49.522	48.143	49.490	49,572	49.314	49.7
$2s^1 2p^3$	${}^5S_2^-$	47.397	47.109	47.899	47,450	47.709	-

Le niveau métastable $2s^1 2p^3 {}^5S_2^-$ a été inclus dans ce tableau car nous démontrerons qu'il intervient dans l'analyse du spectre expérimental de la Figure 4-1. Nous nous référerons dans un premier temps aux valeurs NIST, les autres valeurs seront comparées et commentées par la suite.

Nous observons distinctement sur le spectre expérimental deux types de structures : un fond continu et des structures résonnantes.

Analyse des seuils d'ionisation :

Dans la section efficace de photoionisation de l'ion O^{2+} montrée Figure 4-1, nous observons principalement une discontinuité du fond continu du signal d'ions O^{3+} à $54.74 \text{ eV} \pm 0.08 \text{ eV}$. Le Tableau 4-1 indique que cette discontinuité correspond à l'ouverture du seuil d'ionisation à partir des niveaux ${}^3P_{0,1,2}$ de l'ion O^{2+} . Les composantes 3P ne sont pas séparées expérimentalement à cause de la résolution instrumentale qui est inférieure à la séparation des niveaux du terme 3P . De manière générale, les composantes des n-tuplets ne seront jamais résolues expérimentalement. Une étude plus minutieuse du spectre expérimental montre qu'une seconde discontinuités du fond continu est visible pour une énergie des photons de $52.5 \pm 0.3 \text{ eV}$ qui est associée au seuil d'ionisation à partir du terme 1D .

Les seuils d'ionisation directe à partir des niveaux ${}^1S_0^+$ et ${}^5S_2^-$, qui devraient se trouver à respectivement 49.522 eV et 47.397 eV d'après la table du NIST, n'apparaissent pas clairement

dans le spectre expérimental. Nous observons toutefois un léger accroissement de la section efficace expérimentale aux alentours de 49.7 eV qui pourrait être attribué à l'ouverture du seuil 1S . L'absence de fond continu important associé à l'ouverture des seuils à partir des niveaux $^1S_0^+$ et $^5S_2^-$ indique que : la section efficace de photoionisation à partir de ces niveaux est très faible devant celles du $^3P_{0,1,2}^+$ et $^1D_2^+$ (ce qui est peu probable pour le 1S_0 puisqu'il correspond à la même configuration que les termes 3P et 1D) et/ou que les populations relatives d'ions O^{2+} initialement dans les niveaux $^1S_0^+$ et $^5S_2^-$ sont faibles.

Structures résonnantes :

Le second type de structures observées expérimentalement correspond à un accroissement local de la section efficace pour des valeurs discrètes de l'énergie des photons appelée résonance. Ces résonances, notées de 1 à 15, correspondent à des processus d'ionisation en deux étapes : une première étape de photoexcitation dans O^{2+} suivie d'une autoionisation vers l'état de charge suivant O^{3+} .

L'existence de résonances à des énergies de photons inférieures à 54.74 eV, c'est-à-dire en-dessous du seuil d'ionisation 3P , indique la présence d'ions O^{2+} dans un état métastable. Ces ions métastables sont produits dans le plasma de la source RCE. Ainsi, la résonance n°1, située en-dessous du seuil 1S , indique qu'il faut considérer, pour décrire le spectre expérimental, des niveaux d'énergie d' O^{2+} issus de la configuration $2s^1 2p^3$.

Tableau 4-2 «Positions et forces d'oscillateur des résonances observées expérimentalement»

n°	Position (eV)	Force d'oscillateur
1	48.29 (17)	$1.60 \cdot 10^{-2} \pm 0.73 \cdot 10^{-3}$
2	51.17 (15)	$2.37 \cdot 10^{-3} \pm 5.9 \cdot 10^{-4}$
3	52.06 (10)*	$6.45 \cdot 10^{-3} \pm 9.6 \cdot 10^{-4}$
4	52.80 (12)	$1.54 \cdot 10^{-2} \pm 2.2 \cdot 10^{-4}$
5	53.67 (10)	$9.11 \cdot 10^{-3} \pm 1.1 \cdot 10^{-3}$
6	54.27 (13)	$3.48 \cdot 10^{-3} \pm 9.8 \cdot 10^{-4}$
7	54.98 (11)	-
8	57.15 (16)	$6.33 \cdot 10^{-2} \pm 7.0 \cdot 10^{-3}$
9	58.06 (23)	$4.08 \cdot 10^{-2} \pm 6.5 \cdot 10^{-3}$
10	59.80 (28)	$2.67 \cdot 10^{-2} \pm 5.3 \cdot 10^{-3}$
11	60.86 (23)	$1.21 \cdot 10^{-2} \pm 2.5 \cdot 10^{-3}$
12	62.22 (21)*	-
13	64.19 (24)	$7.10 \cdot 10^{-3} \pm 1.6 \cdot 10^{-3}$
14	67.61 (23)*	$1.12 \cdot 10^{-2} \pm 6.1 \cdot 10^{-3}$
15	71.22 (24)*	$1.00 \cdot 10^{-2} \pm 3.1 \cdot 10^{-3}$

Les positions en énergie et les forces d'oscillateur des résonances du spectre expérimental sont récapitulées dans le Tableau 4.2. Dans ce Tableau, les forces d'oscillateur totales des principales résonances sont obtenues par un ajustement Gaussien des résonances du spectre expérimental. Nous obtenons alors la section efficace totale σ_{tot} (en Mb.eV) qui est proportionnelle à la force d'oscillateur f (sans dimension) totale [4.11] :

$$f_{tot} = \frac{\sigma_{tot}(Mb.eV)}{109,8} \quad \text{éq. 4-1}$$

Notons que ces forces d'oscillateur expérimentales sont indicatives, compte tenu du fait que les résonances observées expérimentalement peuvent provenir de plusieurs états autoionisants du fait de la bande passante expérimentale.

4.2.2 Présentation des résultats MCDF

Afin d'interpréter le spectre expérimental, j'ai réalisé des calculs Multi-Configurationnels Dirac Fock (MCDF) [4.8].

4.2.2.1 Principe des calculs MCDF

Le code de structure atomique détaillé MCDF est dérivé d'une approche de type Hartree-Fock [4.12]. La fonction d'onde totale Ψ_{MCDF} du système à n électrons est écrite sous la forme d'une combinaison linéaire de déterminants de Slater associée aux orbitales atomiques occupées i :

$$\Psi_{MCDF} = \sum_i C_i \Psi_{DF}^i \quad \text{éq. 4-2}$$

Ces déterminants Ψ_{DF}^i sont construits sur la base de fonctions monoélectroniques relativistes écrites sous la forme de Spineurs de Dirac $\Theta(r, \theta, \varphi)$ [4.13]:

$$\Theta_{nljm}(r, \theta, \varphi) = \frac{1}{r} \begin{pmatrix} P_{nlj}(r) & \Omega_{ljm}(\theta, \varphi) \\ iQ_{nlj}(r) & \Omega_{l'jm}(\theta, \varphi) \end{pmatrix} \quad \text{éq. 4-3}$$

Ces fonctions d'onde sont définies par les nombres quantiques n (principal), l (moment angulaire orbital), j (moment angulaire total) et m_j (projection de j sur axe de quantification) associés à la configuration électronique du système. Les fonctions d'onde monoélectroniques relativistes se décomposent en une partie radiale ($P_{nlj}(r)$ et $iQ_{nlj}(r)$) et une partie angulaire

$\Omega_{ijm}(\theta, \varphi)$ construite sur les harmoniques sphériques et des coefficients géométriques de Clebsch-Gordan [4.14]. Les fonctions radiales $P_{nlj}(r)$ et $Q_{nlj}(r)$ sont les inconnues du système, avec les coefficients C_i de l'équation [4-2]. La fonction d'onde totale Ψ_{MCDF} (normalisée), qui minimise l'énergie totale H du système à n électrons associé à une configuration, doit donc satisfaire aux équations variationnelles :

$$\frac{dE}{dC_i} = \frac{d\langle \Psi_{MCDF} | H | \Psi_{MCDF} \rangle}{dC_i} = 0 \quad \text{éq. 4-4}$$

$$\frac{dE}{dP_{nlj}} = \frac{d\langle \Psi_{MCDF} | H | \Psi_{MCDF} \rangle}{dP_{nlj}} = 0 \quad \text{éq. 4-5}$$

$$\frac{dE}{dQ_{nlj}} = \frac{d\langle \Psi_{MCDF} | H | \Psi_{MCDF} \rangle}{dQ_{nlj}} = 0 \quad \text{éq. 4-6}$$

auxquelles il faut ajouter les contraintes de normalisation de Ψ_{MCDF} et d'orthogonalité des fonctions d'onde radiales :

$$\langle \Psi_{MCDF} | \Psi_{MCDF} \rangle = 1 \quad \text{éq. 4-7}$$

$$\langle K_{nlj} | K_{n'l'j'} \rangle = 0 \quad \text{éq. 4-8}$$

Où $K_{nlj} = P_{nlj}, Q_{nlj}$. Dans le cas de la méthode MCDF, l'Hamiltonien choisi n'est autre que l'Hamiltonien de Dirac [4.15] défini (en unité atomiques) par:

$$\hat{H} = \sum_i h_i + \sum_{i>j} h_{ij} \quad \text{éq. 4-9}$$

$$h_i = c\alpha_i \cdot \hat{p}_i + (\beta_i - 1)c^2 + V_n(r_j) \quad \text{éq. 4-10}$$

$$h_{ij} = \frac{1}{r_{ij}} - \frac{\alpha_i \alpha_j}{r_{ij}} - \frac{1}{2} (\alpha_i \cdot \nabla_i)(\alpha_j \cdot \nabla_j) r_{ij} \quad \text{éq. 4-11}$$

où c est la vitesse de la lumière, α_k et β_k les matrices de Dirac qui agissent sur l'électron k ($k=i,j$), \mathbf{p}_i l'opérateur impulsion agissant sur l'électron i et V_n le potentiel créé par le noyau.

Le premier terme de l'équation 4-11 correspond à la répulsion coulombienne électron-électron, les deux autres termes correspondent à l'opérateur de Breit. Dans les calculs MCDF, l'opérateur de Breit n'est pas considéré pour la résolution des équations 4-4 à 4-6. Ce dernier est traité dans un second temps par la méthode des perturbations [4.16].

Mélange de configurations MCDF

Le développement de la fonction d'onde totale Ψ d'un système à n-électrons sur une base de fonctions Ψ_{MCDF} décrivant une seule configuration peut s'étendre à plusieurs configurations. On parle d'interaction de configurations. La matrice correspondant à l'Hamiltonien dans le cas d'une interaction de configurations s'écrira sous la forme :

$$\begin{pmatrix} (C_1) & \dots & (C_1 - C_2 \dots C_n) \\ \vdots & \dots & \vdots \\ (C_n - C_{n-1} \dots C_1) & \dots & (C_n) \end{pmatrix} = M_{IC} \quad \text{éq. 4-12}$$

Cette matrice d'interaction de configurations est constituée de n^2 sous-matrices. Les éléments diagonaux C_i de M_{IC} (Matrices diagonales) correspondent aux matrices carrées du cas monoconfigurationnel ($\langle \Psi_{MCDF} | H | \Psi_{MCDF} \rangle = H_{bb}$). Les éléments non diagonaux représentent l'interaction de configurations. Ils sont calculés comme des éléments de matrice ordinaires : $\langle \Psi_{MCDF} | H | \Psi'_{MCDF} \rangle = H_{bb'}$, à ceci près que les vecteurs de bases $\langle \Psi_{MCDF} |$ et $|\Psi'_{MCDF}\rangle$ appartiennent à des configurations différentes.

Méthode autoconsistante

La résolution des équations intégral-différentielles 4-4 à 4-8 se fait numériquement suivant un procédé d'itérations successives (Méthode autoconsistante [4.20]). Une première fonction d'onde Ψ_0 est d'abord construite sur la base de fonctions d'onde connues analytiquement [4.21]. Les équations 4-4 à 4-8 sont alors résolues donnant ainsi un jeu de coefficients C_{i0} et de fonctions d'onde radiales (numériques) $P_{nkj}^0(r)$ et $Q_{nlj}^0(r)$ qui minimisent l'énergie du système. Puis une nouvelle fonction d'onde Ψ_1 est construite en utilisant les nouvelles valeurs des coefficients C_{i0} et les nouvelles fonctions radiales. Et ainsi de suite jusqu'à ce que le système converge, autrement dit jusqu'à ce que $P_{nkj}^k(r) = P_{nkj}^{k+1}(r)$; $Q_{nlj}^k(r) = Q_{nlj}^{k+1}(r)$ et $C_{ik} = C_{ik+1}$.

Optimisation des fonctions d'onde

L'ensemble des calculs MCDF, présentés dans ce qui suit, sont réalisés en utilisant la méthode de l'état de transition de Slater [4.17]. Cette méthode de calcul est dérivée des méthodes Extended Average Level (EAL) et Extended Optimal Level (EOL) [4.18, 4.19] qui permettent d'optimiser plusieurs états au cours d'un même calcul. Ceci comparativement à un calcul où chaque état est optimisé en considérant les orbitales des autres niveaux comme « gelées ». Ils s'agit ici de minimiser la fonctionnelle de l'énergie définie par :

$$E = \left(\frac{\sum_{\alpha} (2J_{\alpha} + 1) E_{\alpha}}{2 \sum_{\alpha} (2J_{\alpha} + 1)} \right) + \left(\frac{\sum_{\beta} (2J_{\beta} + 1) E_{\beta}}{2 \sum_{\beta} (2J_{\beta} + 1)} \right) \quad \text{éq. 4-13}$$

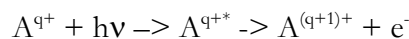
Où α court sur l'ensemble des états initiaux et β sur l'ensemble des états finaux, de sorte que la moitié des électrons actifs soient dans le groupe des états initiaux et l'autre moitié dans le groupe des états finaux.

Notons que dans le cas de l'effet photoélectrique et Auger, les deux groupes de configurations (qui diffèrent d'un électron) sont pris à égalité. Dans le cas de transitions radiatives de type dipolaire électrique où les configurations initiales et finales ont le même nombre d'électrons, les deux groupes de configuration sont déterminés par la parité de ces configurations.

Généralités sur les calculs MCDF :

Le code MCDF utilisé ne donne pas directement accès à la section efficace totale de photoionisation. Sur une plage d'énergie considérée, les calculs des sections efficaces de photoexcitation et de photoionisation directe sont effectués indépendamment négligeant de ce fait le terme d'interférence entre ces deux voies.

Grâce au calcul des sections efficaces de photoexcitation, nous avons accès à la position et à l'intensité des raies d'excitation vers des niveaux autoionisants :



De la même manière, le calcul de section efficace de photoionisation directe nous renseigne sur les variations du fond continu. Cette variation provient de l'ionisation directe des ions O^{2+} consécutive à l'ouverture successive des seuils d'ionisation directe à partir des termes 3P , 1D , 1S observés expérimentalement.

4.2.2.2 Détermination des seuils d'ionisation et des niveaux d'énergie

Choix des configurations :

Pour calculer les positions relatives des niveaux d'énergie de l'ion O^{2+} , nous avons considéré configurations :

- Les trois configurations de type $[2s2p]^4$, où les 4 électrons « externes » sont distribués dans les sous-couches 2s et 2p.

- Et les 63 configurations du type $[2s2p]^3 nl$ avec $n \in [3,9]$ et $l=0,1,2$.

Le nombre de niveaux d'énergie calculés par MCDF sur la base des 66 configurations est de 1532. Afin de calculer la position des seuils d'ionisation, il faut ajouter, aux 66 configurations précédentes, des configurations appartenant à l'état de charge suivant. Nous avons choisi les 3 premières configurations d' O^{3+} : $[2s2p]^3$.

Résultat des calculs MCDF de seuils et de niveaux :

Le seuil d'ionisation 2p de l'oxygène 2+ dans son état fondamental ($^3P_0^+$) est calculé à 53.641 eV d'énergie de photons. Les seuils d'ionisation calculés par MCDF pour les 5 niveaux suivants sont présentés dans le Tableau 4-1. Comparativement aux autres valeurs de seuils, celles calculées par MCDF sont plus élevées de 1.3 eV en énergie de photons. Ceci est probablement dû au nombre restreint de configurations utilisées pour décrire les ions O^{3+} . Notons toutefois que les positions relatives au fondamental des niveaux d'énergie sont, quant à elles, tout-à-fait similaires aux positions des autres sources théoriques et de l'expérience : 2.33 ± 0.58 eV entre les seuils correspondant aux termes 3P et 1D mesurés, contre 2.923 eV pour MCDF.

4.2.2.3 Détermination MCDF des sections efficaces de photoexcitation

Les configurations choisies pour le calcul de section efficace de photoexcitation sont les mêmes que celles (66 configurations) utilisées pour le calcul des niveaux.

Les sections efficaces de photoexcitation ont été calculées pour des énergies de photons comprises entre 0 et 100 eV. Les spectres théoriques ont été convolués par des profils de Lorentz de 0.25 eV afin de reproduire la largeur instrumentale moyenne sur le spectre. La description de ces spectres sur la gamme complète de l'énergie des photons est donnée en Annexe 2. Nous ne nous intéresserons ici qu'aux résonances dont l'énergie d'excitation correspond au domaine d'énergie expérimental, c'est-à-dire de 45 eV à 80 eV. En outre, les transitions dipolaires dont les énergies sont inférieures au seuil d'ionisation à partir du niveau de O^{2+} dont elles sont issues ne seront pas considérées puisqu'elles ne donneront pas lieu à une autoionisation vers des états de O^{3+} . Elles décroîtront via des processus radiatifs. Ces modes de décroissance ne sont pas détectés par spectrométrie ionique. Les spectres théoriques de photoexcitation calculés par MCDF, correspondant aux conditions expérimentales, sont montrés Figure 4-2.

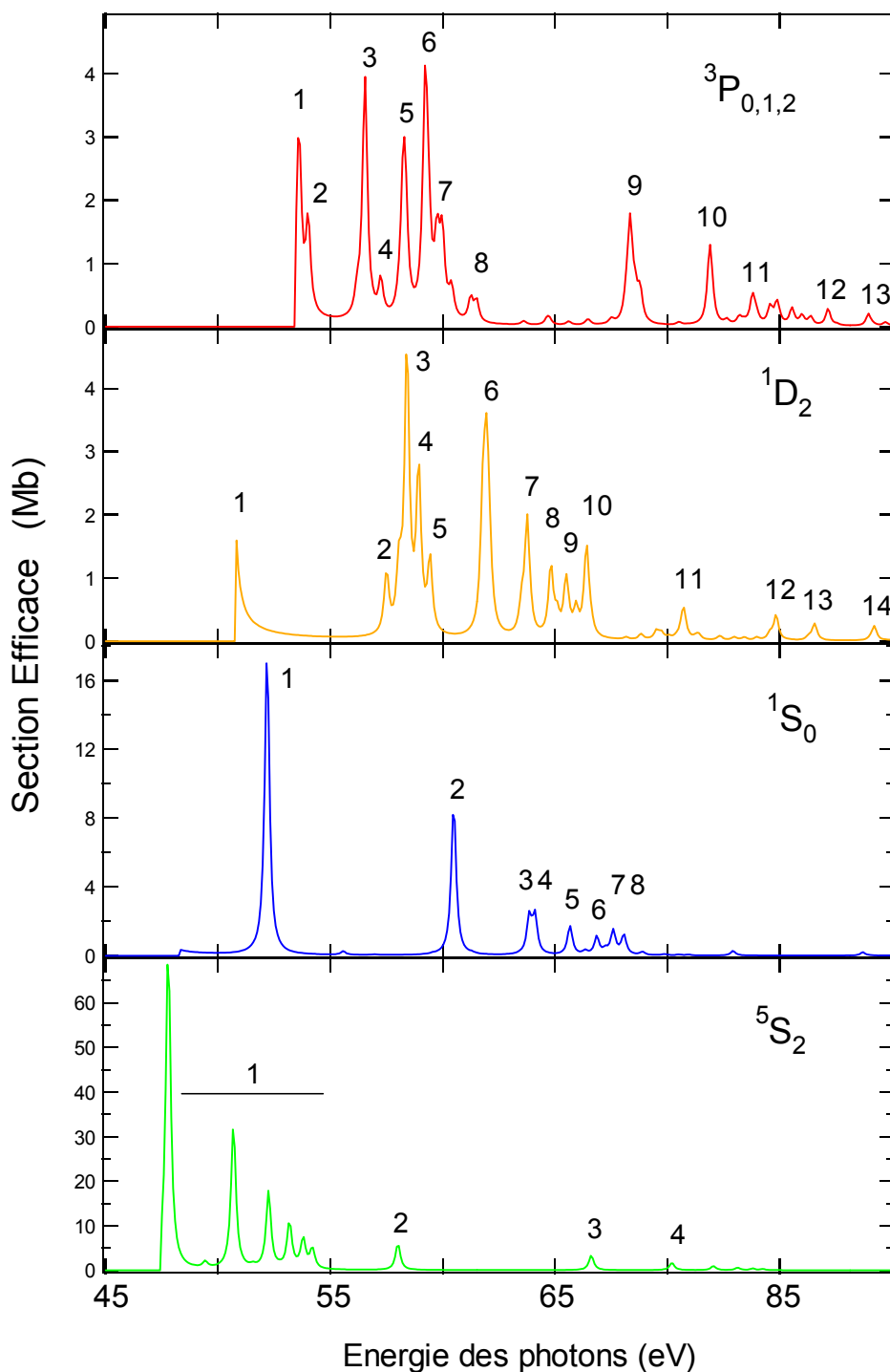


Figure 4-2 « Sections efficaces de photoexcitation calculées par MCDF, restreintes à la gamme d'énergie de photons expérimentale et tronquées au seuil d'ionisation pour chaque niveau initial. »

Comme nous l'avons indiqué, les composantes $J=0,1,2$ du terme 3P ne sont pas résolues expérimentalement. C'est pourquoi les contributions à la section efficace de ces composantes ont été sommées dans le spectre du haut de la Figure 4-2. Cette sommation tient compte du poids statistique g_{slj} associé à chaque niveau et qui est défini par :

$$g_{slj} = \frac{2J+1}{(2L+1)(2S+1)} \quad \text{éq. 4-14}$$

avec S le nombre quantique de spin du niveau et L son nombre quantique orbital.

Identification :

Les raies qui proviennent de chaque niveau initial peuvent être identifiées grâce au calcul MCDF. Cette identification est donnée dans les Tableaux 4.3 à 4.8. Seules les transitions dipolaires électriques ont été retenues, c'est-à-dire des transitions qui répondent aux règles de sélection suivantes :

$$\Delta J = 0, \pm 1 \quad (J_i = J_f = 0 \text{ interdite})$$

$$\Delta \pi \neq 0 \quad (\text{changement de parité})$$

Dans les Tableaux suivants, seules sont reportées les résonances dont la force d'oscillateur est supérieure à 0.1% de la force d'oscillateur totale pour le niveau.

Tableau 4-3 «Principales transitions dipolaires électriques calculées par MCDF à partir du niveau $^3P_0^+$ »

n°	Configuration	Niveau (LSJ π)	Energie (eV)	Force d'oscillateur
1	2s ¹ 2p ² 4p ¹	³ D ₁₋	53.569	1.4856 10 ⁻³
2	2s ¹ 2p ² 3p ¹	³ P ₁₋	54.016	7.4338 10 ⁻⁴
3	2s ¹ 2p ² 5p ¹	³ D ₁₋	56.538	1.6283 10 ⁻³
		³ P ₁₋	56.590	4.0026 10 ⁻⁴
4	2s ¹ 2p ² 3p ¹	³ P ₁₋	57.250	2.9804 10 ⁻⁴
5	2s ¹ 2p ² 6p ¹	³ D ₁₋	58.255	1.0437 10 ⁻³
		³ P ₁₋	58.368	6.6176 10 ⁻⁴
6	2s ¹ 2p ² 7p ¹	⁵ D ₁₋	59.214	2.9846 10 ⁻⁴
		³ D ₁₋	59.222	1.0437 10 ⁻³
		³ P ₁₋	59.319	5.2361 10 ⁻⁴
7	2s ¹ 2p ² 3p ¹	³ P ₁₋	59.756	5.8106 10 ⁻⁴
8	2s ¹ 2p ² 4p ¹	³ D ₁₋	61.378	-
		³ P ₁₋	61.436	-
9	2s ¹ 2p ² 4p ¹	³ P ₁₋	68.322	3.4102 10 ⁻⁴
		³ D ₁₋	68.376	5.0252 10 ⁻⁴
10	2s ¹ 2p ² 5p ¹	³ D ₁₋	71.913	4.2086 10 ⁻⁴
11	2s ¹ 2p ² 6p ¹	³ D ₁₋	73.807	-
12	2p ³ 5d ¹	³ P ₁₋	77.156	-
		³ D ₁₋	77.180	-
13	2p ³ 4d	³ D ₁₋	78.9729	-
		³ P ₁₋	78.983	-

Tableau 4-4 «Principales transitions dipolaires électriques calculées par MCDF à partir du niveau $^3P_1^-$ »

n°	Configuration	Niveau (LSJ π)	Energie (eV)	Force d'oscillateur
1	$2s^1 2p^2 4p^1$	$^3D_1^-$	53.591	$3.6171 \cdot 10^{-4}$
		$^3D_2^-$	53.599	$1.1205 \cdot 10^{-3}$
2	$2s^1 2p^2 3p^1$	$2p^4$	54.001	$2.5671 \cdot 10^{-4}$
		$^3P_1^-$	54.008	$3.1082 \cdot 10^{-4}$
		$^3P_2^-$	54.009	-
3	$2s^1 2p^2 5p^1$	$^3D_1^-$	56.525	$2.6919 \cdot 10^{-4}$
		$^3D_2^-$	56.536	$1.1968 \cdot 10^{-3}$
4	$2s^1 2p^2 3p^1$	$^3P_0^-$	57.25	-
		$^3P_1^-$		-
		$^3P_2^-$		-
5	$2s^1 2p^2 6p^1$	$^3D_2^-$	58.254	$7.7444 \cdot 10^{-4}$
		$^3P_0^-$	58.348	$2.6935 \cdot 10^{-4}$
6	$2s^1 2p^2 7p^1$	$2s^1 2p^3$	59.209	$2.6748 \cdot 10^{-4}$
		$^3D_2^-$	59.221	$1.0222 \cdot 10^{-3}$
		$^3P_0^-$	59.298	$2.4405 \cdot 10^{-4}$
7	$2s^1 2p^2 8s^1$	$^3S_2^-$	59.999	$4.8857 \cdot 10^{-4}$
8	$2s^1 2p^2 4p^1$	$^3D_1^-$	61.378	-
		$^3D_2^-$		-
9	$2s^1 2p^2 4p^1$	$^3D_1^-$	68.372	$3.7457 \cdot 10^{-4}$
		$^3D_2^-$		-
		$^3S_1^-$	68.789	$2.5001 \cdot 10^{-4}$
10	$2s^1 2p^2 5p^1$	$^3D_2^-$	71.924	$3.1901 \cdot 10^{-4}$
11	$2s^1 2p^2 6p^1$	$^1S_0^-$	73.834	-
		$^3D_{1,2}^-$		-
		$^3P_{0,1,2}^-$		-
		$^5D_{0,1}^-$	77.156	-
		$^3P_{0,1,2}^-$		-
12	$2p^3 5d^1$	$2p^3 3d^1$		-
		$^3D_{1,2}^-$		-
		$^3D_{1,2}^-$		-
13	$2p^3 4d^1$	$^3D_{1,2}^-$	78.983	-
		$^3P_{0,1,2}^-$		-
		$^1P_1^-$		-

Tableau 4-5 «Principales transitions dipolaires électriques calculées par MCDF à partir du niveau $^3P_2^+$ »

n°	Configuration	Niveau (LSJ π)	Energie (eV)	Force d'oscillateur
1	$2s^1 2p^2 4p^1$	$^3D_3^-$	53.588	$1.248 \cdot 10^{-3}$
		$^3D_2^-$		-
		$^3D_1^-$		-
2	$2s^1 2p^2 3p^1$	$^3P_2^-$	53.986	$6.0700 \cdot 10^{-3}$
		$^3P_1^-$		-
3	$2s^1 2p^2 5p^1$	$^3D_3^-$	56.559	$1.1459 \cdot 10^{-3}$
		$^3D_2^-$		-
		$^3D_1^-$	-	
		$^3P_2^-$	56.564	$6.1384 \cdot 10^{-4}$
4	$2s^1 2p^2 6p^1$	$^3P_1^-$	-	-
		$^3S_1^-$	57.9249	-
5	$2s^1 2p^2 6p^1$	$^3P_2^-$	58.344	$6.4797 \cdot 10^{-4}$
6	$2s^1 2p^2 7p^1$	$^3D_{2,1}^-$	-	-
		$^3D_3^-$	59.216	$1.0705 \cdot 10^{-3}$
		$^3D_2^-$		-
7	$2s^1 2p^2 3p^1$	$^3P_2^-$	59.295	$5.8916 \cdot 10^{-4}$
		$^3P_2^-$	59.798	$4.1909 \cdot 10^{-4}$
		$^3P_1^-$	-	-
8	$2s^1 2p^2 4p^1$	$^1S_1^-$	59.971	$5.4858 \cdot 10^{-4}$
		$^3D_{3,2,1}^-$	61.3798	-
9	$2s^1 2p^2 4p^1$	$^3P_{2,1}^-$	-	-
		$^3D_3^-$	68.363	$1.1459 \cdot 10^{-3}$
10	$2s^1 2p^2 5p^1$	$^3D_3^-$	71.902	$3.1359 \cdot 10^{-4}$
11	$2s^1 2p^2 6p^1$	$^3D_{3,2,1}^-$	73.834	-
		$^3P_{2,1}^-$		-
12	$2p^3 3d^1$	$^5D_{3,2,1}^-$	77.156	-
		$^3P_{2,1}^-$		-
13	$2p^3 4d^1$	$^3D_{3,2,1}^-$	78.983	-
		$^3P_{2,1}^-$		-
		$^1P_1^-$		-

Tableau 4-6 «Principales transitions dipolaires électriques calculées par MCDF à partir du niveau $^1D_2^-$ »

n°	Configuration	Niveau (LSJ π)	Energie (eV)	Force d'oscillateur
1	$2s^2 2p^1 7s^1$	$^3P_{2,1}^-$ $^1P_1^-$	51.099	-
2	$2s^1 2p^2 9p^1$	$^3D_{2,1}^-$	57.473	-
3	$2s^1 2p^2 4p^1$	$^3D_{3,2,1}^-$	58.336	-
4	$2s^1 2p^2 3p^1$	$^1P_1^-$	58.968	-
5	$2s^1 2p^2 4p^1$	$^3D_{3,2,1}^-$	59.336	-
6	$2s^1 2p^2 5p^1$	$^3P_{2,1}^-$	61.834	-
7	$2s^1 2p^2 6p^1$	$^3D_{3,2,1}^-$	63.815	-
8	$2p^3 3d^1$	$^5D_{3,2,1}^-$	64.833	-
	$2s^1 2p^2 7p^1$	$^1D_2^-$	64.858	-
9	$2s^1 2p^2 8p^1$	$^1F_3^-$	65.251	$2.5317 \cdot 10^{-4}$
10	$2s^1 2p^2 4p^1$	$^1D_2^-$	66.178	$6.1698 \cdot 10^{-4}$
11	$2s^1 2p^2 6p^1$	$^3D_{2,1}^-$	70.876	-
12	$2p^3 3d^1$	$^5D_{3,2,1}^-$	74.646	-
13	$2p^3 7d^1$	$^5D_{3,2,1}^-$	76.701	-
14	$2p^3 5d^1$	$^1F_3^-$	79.233	-

Tableau 4-7 «Principales transitions dipolaires électriques calculées par MCDF à partir du niveau $^1S_0^-$ »

n°	Configuration	Niveau (LSJ π)	Energie (eV)	Force d'oscillateur
1	$2s^1 2p^2 3p^1$	$^1P_1^-$	51.853	-
2	$2p^3 3s^1$	$^3D_1^-$	60.648	-
3	$2s^1 2p^2 5p^1$	$^3P_1^-$	63.650	-
4	$2s^1 2p^2 4p^1$	$^1P_1^-$	63.782	-
5	$2s^1 2p^2 6p^1$	$^3P_1^-$	65.467	-
6	$2s^1 2p^2 5p^1$	$^1P_1^-$	66.920	-
7	$2p^3 3d^1$	$^1P_1^-$	67.588	-
8	$2s^1 2p^2 6p^1$	$^3D_1^-$	68.301	-

Tableau 4-8 «Principales transitions dipolaires électriques calculées par MCDF à partir du niveau $^5S_2^-$ »

n°	Configuration	Niveau (LSJ π)	Energie (eV)	Force d'oscillateur
1	$1s^2 2s^1 2p^2 nd^1 (n=4-9)$	$^5P_{3,2,1}^+$	47.54 – 53.55	$1.6749 \cdot 10^{-2}$ – $6.3250 \cdot 10^{-4}$
2	$2p^3 3p^1$	$^5P_{3,2,1}^+$	57.776	$1.4208 \cdot 10^{-3}$ $1.0180 \cdot 10^{-3}$ $4.3158 \cdot 10^{-4}$
3	$2p^3 4p^1$	$^5P_{3,2,1}^+$	66.379 66.379	$7.9798 \cdot 10^{-4}$ $5.7170 \cdot 10^{-4}$
4	$2p^3 5p^1$	$^5P_{3,2,1}^+$	66.381 69.972 69.973	$3.4371 \cdot 10^{-4}$ $4.0385 \cdot 10^{-4}$ $2.8928 \cdot 10^{-4}$
			-	-

4.2.2.4 Détermination des sections efficaces de photoionisation directe

Il est également possible de calculer des sections efficaces de photoionisation directe à partir des différents états initiaux de O^{2+} . Ce calcul est beaucoup plus « gourmand » en ressource machine, et nécessite de restreindre les configurations utilisées. Ainsi, seules trois configurations ont été conservées pour décrire l'état initial de l'ion O^{2+} , à savoir : $2s^2 2p^2$, $2s^1 2p^3$ et $2s^0 2p^4$. De la même manière, trois configurations ont été utilisées pour décrire l'état final d' O^{3+} : $2s^2 2p^1$; $2s^1 2p^2$ et $2p^3$.

Pour chaque niveau, construit sur la base des 3 configurations de l'état initial, la section efficace de photoionisation vers les niveaux de O^{3+} a été calculée tous les 10 eV à partir de 60 eV. Les sections efficaces de photoionisation directe MCDF sont données dans le Tableau 4-9 :

Tableau 4-9 «Sections efficaces de photoionisation directe calculées par MCDF pour O^{2+} »

E (eV)	5S_2 (cm ²)	1S_0 (cm ²)	1D_2 (cm ²)	3P_0 (cm ²)	3P_1 (cm ²)	3P_2 (cm ²)
60	5.775 10 ⁻¹⁸	3.932 10 ⁻¹⁸	3.884 10 ⁻¹⁸	3.491 10 ⁻¹⁸	3.263 10 ⁻¹⁸	3.347 10 ⁻¹⁸
70	4.138 10 ⁻¹⁸	3.225 10 ⁻¹⁸	3.122 10 ⁻¹⁸	3.180 10 ⁻¹⁸	2.930 10 ⁻¹⁸	3.025 10 ⁻¹⁸
80	3.598 10 ⁻¹⁸	2.584 10 ⁻¹⁸	2.468 10 ⁻¹⁸	2.856 10 ⁻¹⁸	2.633 10 ⁻¹⁸	2.774 10 ⁻¹⁸
90	2.758 10 ⁻¹⁸	2.245 10 ⁻¹⁸	2.191 10 ⁻¹⁸	2.441 10 ⁻¹⁸	2.248 10 ⁻¹⁸	2.392 10 ⁻¹⁸

Afin de reproduire la variation des sections efficaces de photoionisation sur toute la gamme d'énergie expérimentale avec un pas plus fin, les sections efficaces de photoionisation à partir de chaque niveau sont approximées par une loi de puissance de la forme :

$$\sigma = y_0 + A \times \left(\frac{I}{h\nu} \right)^B \quad \text{éq. 4-15}$$

où y_0 , A et B sont les paramètres de l'ajustement et I l'énergie du seuil d'ionisation.

Notons que, pour chaque niveau de départ, il peut exister plusieurs seuils I à partir desquels une loi de puissance est ajustée. Ces seuils correspondent à l'ouverture successive de nouvelles voies d'ionisation directe vers O^{3+} . Par exemple, considérons les niveaux $2s^2 2p^1 \ ^2P_{1/2,3/2}$ et $2s 2p^2 \ ^4P_{1/2,3/2,5/2}$ d' O^{3+} . Ces groupes de niveaux sont séparés d'environ 8.5 eV. La section efficace de photoionisation calculée par MCDF sera non nulle à partir de 53.641 eV, ce qui correspond à la possibilité d'ioniser un électron 2p d' O^{2+} , à partir de la configuration $2s^2 2p^2$, vers la configuration $2s^2 2p$ de l'ion O^{3+} . Puis, 8.5 eV plus haut, il y aura à nouveau un accroissement de la section efficace de photoionisation directe, correspondant à la photoionisation d'un électron 2s vers la configuration $2s 2p^2$. L'ouverture des seuils satellites $2s^1 2p^3 + h\nu \rightarrow 2s^1 2p^2$

et $2p^3$ a été négligée ici, et seul le continuum qui correspond à l'ionisation d' O^{2+} vers le fondamental d' O^{3+} a été pris en compte pour l'ajustement par une loi de puissance.

La Figure 4-3 présente la variation des sections efficaces de photoionisation calculées par MCDF à partir de chaque niveau de départ d' O^{2+} sur la gamme expérimentale d'énergie de photons.

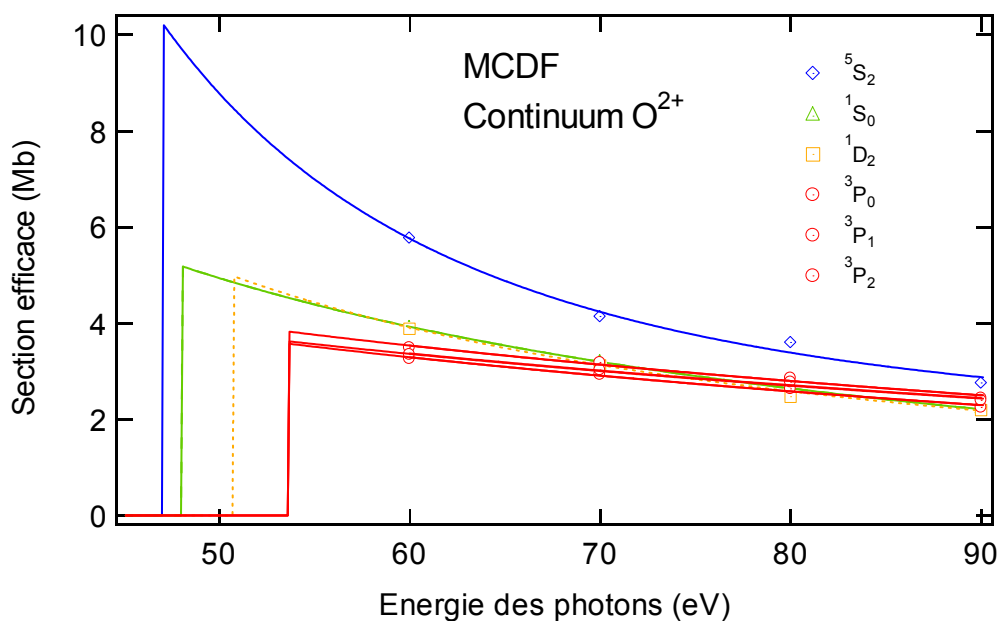


Figure 4-3 « Variation de la section efficace de photoionisation directe calculée par MCDF »

Les points de calcul MCDF correspondent aux 4 valeurs présentées dans le Tableau 4-9. Les lignes qui relient ces points correspondent à l'ajustement par la loi de puissance [éq. 4-15]. Les différents coefficients A, B et Y_0 utilisés pour l'ajustement sont récapitulés dans le Tableau 4-10 :

Tableau 4-10 « Tableau des coefficients utilisés pour les ajustements par des lois de puissance de la section efficace de photoionisation d' O^{2+} »

E (eV)	5S_2	1S_0	1D_2	3P_0	3P_1	3P_2
A	$1.08 \cdot 10^{-12}$	$1.34 \cdot 10^{-16}$	$1.31 \cdot 10^{-15}$	$4.37 \cdot 10^{-17}$	$4.13 \cdot 10^{-17}$	$3.81 \cdot 10^{-17}$
B	-3.0501	-0.7368	-1.4166	-0.0833	-0.0865	-0.0878
Y_0	$1.69 \cdot 10^{-18}$	$-2.67 \cdot 10^{-18}$	$-9.68 \cdot 10^{-20}$	$-2.76 \cdot 10^{-17}$	$-2.34 \cdot 10^{-17}$	$-2.32 \cdot 10^{-17}$

4.2.3 Présentation des résultats Matrice-R et Opacity Project

Parallèlement à nos calculs MCDF, des calculs ont été menés par S. Nahar en utilisant la méthode de la Matrice-R [4.22]. Ces nouveaux calculs réalisés sur l'oxygène font suite à ceux déjà publiés en 1998 [4.5]. Ils incluent un certain nombre de corrections relativistes introduites à l'approximation de Breit-Pauli. Ces corrections à l'Hamiltonien sont :

- Le terme de couplage spin-orbital qui représente l'interaction des moments cinétiques intrinsèques des électrons (spin) avec le champ magnétique créé par le mouvement des électrons dans le champ électrostatique du noyau. Cet effet relativiste est à l'origine de la structure fine de l'atome :

$$H_{ls} = \sum_i \frac{\alpha^2}{2} \frac{1}{r_i} \left(\frac{dV}{dr_i} \right) \vec{l}_i \cdot \vec{s}_i \quad \text{éq. 4-16}$$

- Le terme de Darwin qui prend en compte l'interaction entre les électrons et le champ coulombien du noyau dans le cadre relativiste [4.23].

$$H_d = + \sum_i \frac{\hbar^2}{8m_e^2 c^2} \Delta V_i \quad \text{éq. 4-17}$$

- Le terme de vitesse qui prend en compte la variation de la masse des électrons avec leurs vitesse. (Ce terme provient du développement limité de l'énergie E dans le cadre relativiste $E \approx m_e c^2 + P^2/2m - P^4/8m^3 c^2$)

$$H_v = - \sum_i \frac{\hbar^4 \nabla_i^4}{8m_e^3 c^2} \quad \text{éq. 4-18}$$

Pour ces trois opérateurs relativistes : r_i est la distance du $i^{\text{ème}}$ électron au noyau considéré comme ponctuel, α est la constante de structure fine, $V(r_i)$ est un potentiel approprié d'un électron i dans un atome à plusieurs électrons, et l_i et s_i le moment orbital et le spin de l'électron i .

La méthode de la R-Matrice est une résolution particulière des équations obtenues dans l'approximation dite du « Close-Coupling » [4.24]. Il s'agit d'un modèle de diffusion où le $N^{\text{ième}}$ électron du système est particularisé (projectile) par rapport au système atomique cible constitué par le noyau et les $N-1$ électrons. Initialement développée pour la physique nucléaire par Wigner et al. [4.25], la méthode de la Matrice-R (pour réaction) consiste à séparer l'espace en deux régions distinctes : une région interne « proche du noyau » et une région externe. Dans la région interne, l'ensemble des interactions du système électrons-noyau

est pris en compte, alors que pour la région externe, les termes d'échange sont négligés. Les fonctions d'onde « internes » et « externes » sont ensuite «raccordées» pour donner la fonction d'onde totale du système [4.22]. Pour ces calculs, la représentation précise du système cible est donc cruciale.

La base de configurations choisies par S. Nahar pour son calcul Matrice-R non relativiste de sections efficaces de photoionisation pour les termes $^3P, ^1S, ^1D$ d' O^{2+} sont les configurations d' O^{3+} suivantes : $[2s2p]^3$, $2s^2 3l$ avec $l=0,1,2$ et $2s2p 3l$ avec $l=0,1$. Pour le niveau 5S d' O^{2+} , seules les configurations $2s^2 2p$, $2s2p^2$, $2p^3$ de l'ion O^{3+} ont été retenues.

4.2.3.1 Positions des niveaux calculées

Les positions des 4 premiers niveaux d' O^{2+} calculées dans l'approximation de la Matrice-R est présentées dans le Tableau 4-1. Ces niveaux nous permettront d'identifier certaines des structures des spectres de section efficace calculées qui seront présentées plus loin, et notamment les seuils de certaines séries de Rydberg.

4.2.3.2 Section efficace à partir du terme 3P

Les spectres Matrice-R théoriques ont été restreints à la gamme d'énergie de photons expérimentale (45eV-80eV). Il s'agit ici de résultats non convolués par la bande passante expérimentale. Le spectre montré dans la partie inférieure de la Figure 4-4 est un agrandissement du spectre de la partie supérieure afin de faire ressortir la partie continue.

Ce spectre correspond à la variation de section efficace de photoionisation calculée par la Matrice-R de l'ion O^{2+} à partir du 3P . Il s'agit d'un calcul non relativiste. Les résultats du code Matrice-R donnent directement la section efficace de photoionisation. Ces spectres représentent non seulement la section efficace des processus résonnants, mais aussi la section efficace de photoionisation directe ainsi que les variations de section efficace produites par « l'interférence » entre les processus directs et résonnants [4.26].

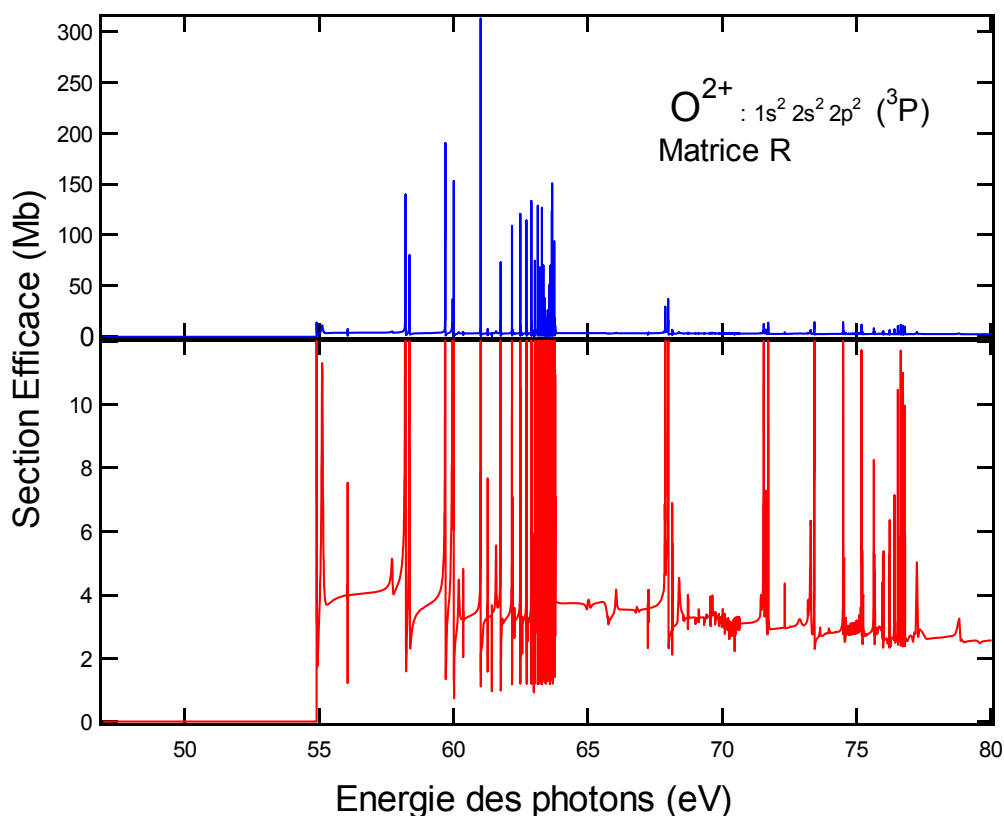


Figure 4-4 « Section efficace de photoionisation d' O^{2+} à partir du terme 3P »

Le seuil d'ionisation à partir du terme 3P du spectre de la Figure 4-4 a été décalé de façon à coïncider avec le seuil observé expérimentalement (54.74 eV). Cette technique dite (TECS) [4.27] de correction semi-empirique des seuils permet d'améliorer l'accord sur les positions des résonances entre les spectres expérimentaux et théoriques.

Notons que les premiers calculs de S. Nahar [4.5] indiquent un seuil 3P à 55.323 eV d'énergie de photons. Le spectre 4-4 présente un grand nombre de structures. On notera en particulier la présence d'une (ou plusieurs) série de Rydberg très intense qui converge à 63.79 eV d'énergie de photons, soit 8.46 eV au-dessus du seuil d'ionisation (noté 3P). Le seuil de convergence de cette série correspond donc au seuil $2s$ ($O^{3+} : 2s^1 2p^2$) conformément aux niveaux Matrice-R présentés dans les Tableaux 4-1 et 5-1. Il s'agit donc probablement d'une (ou plusieurs) série de Rydberg qui correspond aux processus suivants : $O^{2+} : 2s^2 2p^2 + h\nu \rightarrow O^{2+} : 2s^1 2p^2 np^1$, qui converge vers $O^{3+} : 2s^1 2p^2$. Notons que le calcul MCDF prédit également une série de Rydberg de type $2s \rightarrow np$ (voir Tableaux 4-3 à 4-5).

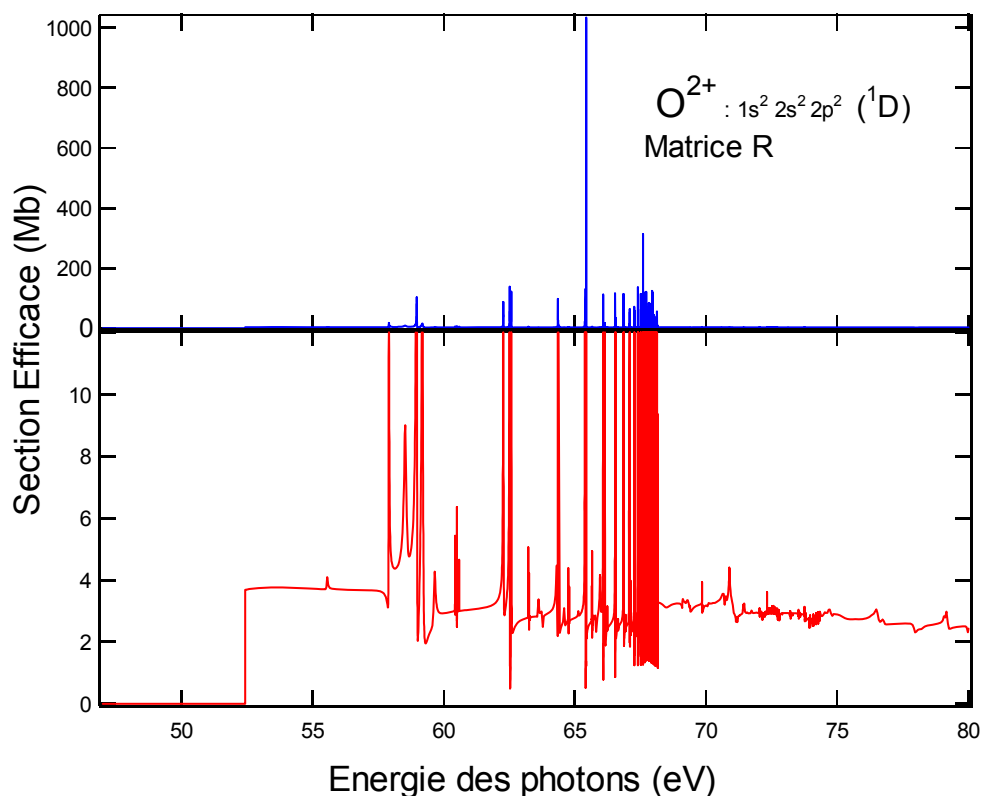
4.2.3.3 Section efficace à partir du terme 1D 

Figure 4-5 « Section efficace de photoionisation d' O^{2+} à partir du terme 1D »

Le seuil d'ionisation Matrice-R à partir du 1D a été également recalé sur le seuil expérimental (52.5 ± 0.5 eV). Notons que les premiers calculs sur l'oxygène effectués par S. Nahar donnent un seuil pour le 1D situé à 52.7 eV.

La variation de la section efficace de photoionisation à partir du niveau $^1D_2^+$ est présentée Figure 4-5. Le spectre présente ce qui semble être une série de Rydberg qui converge aux alentours de 68.16 eV d'énergie de photon. Compte tenu de la localisation en énergie des raies de cette série, il s'agit de la série présentée dans le Tableau 4-6 lors du calcul MCDF. Cette série correspond au processus de photoexcitation en sous-couche 2s suivant : $1s^2 2s^2 2p^2 + h\nu \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^2 np^1$. L'écart en énergie entre le seuil d'ionisation à partir du terme 3P et la limite de convergence de cette série est de 15.66 eV. Ainsi, d'après les données du Tableau 5-1, cet écart correspond à celui qui existe entre l'état fondamental de O^{3+} et son terme 2D à 15.88 eV.

Notons également sur la Figure 4-5 l'accroissement de la section efficace de photoionisation directe après 65 eV dû à l'ouverture du seuil d'ionisation en sous-couche 2s ($O^{3+}: 1s^2 2s^1 2p^2 (^2D)$).

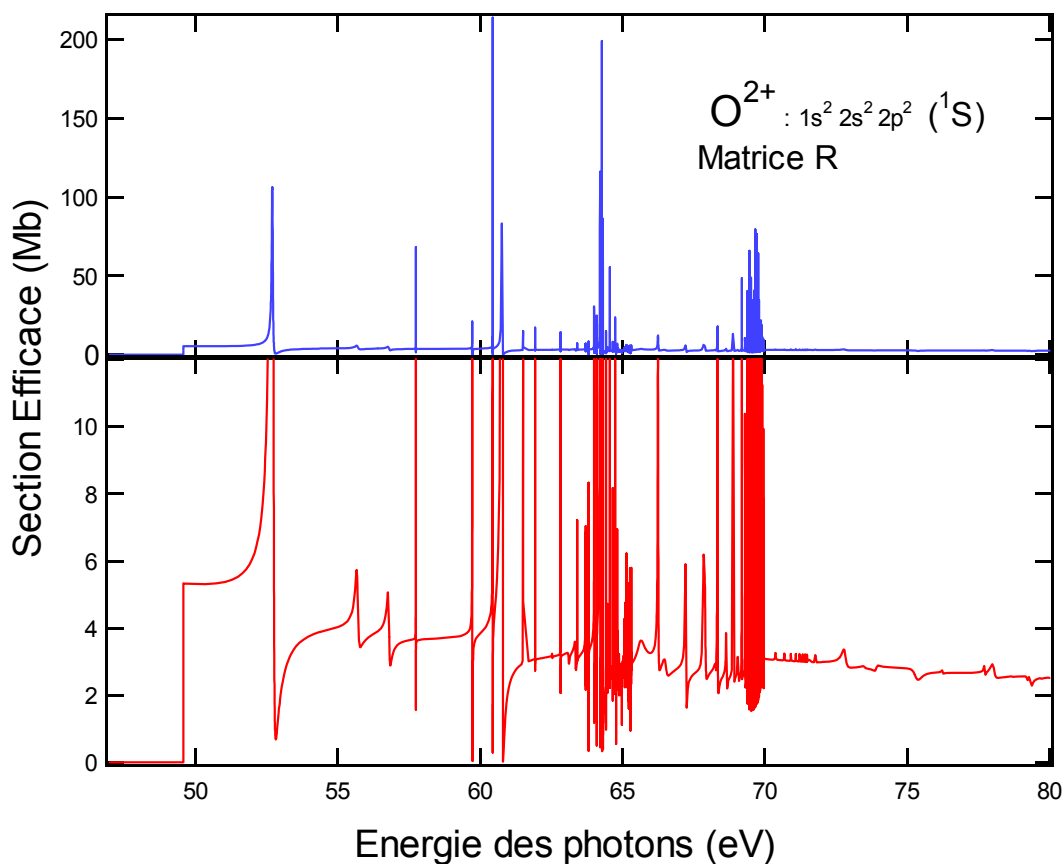
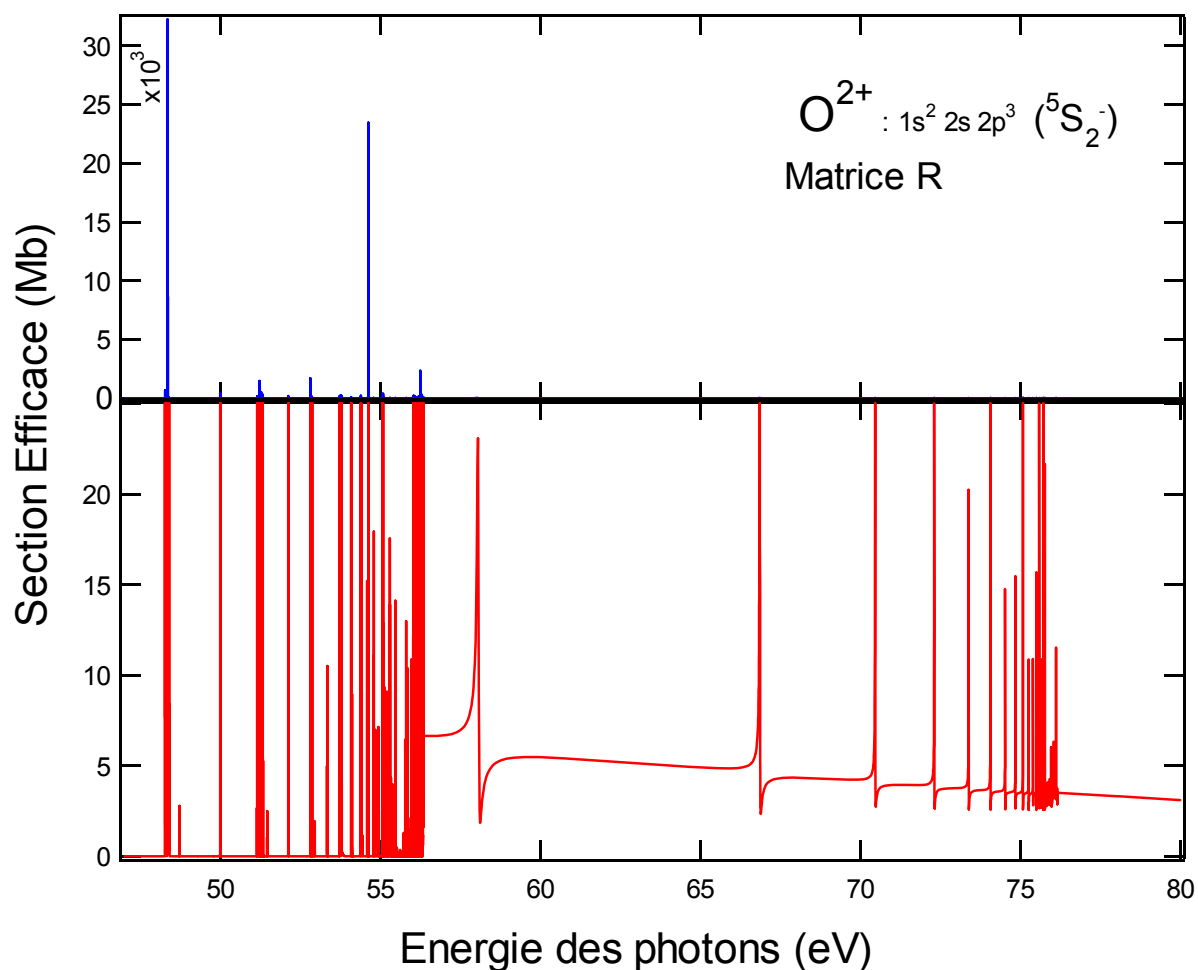
4.2.3.4 Section efficace à partir du terme 1S 

Figure 4-6 « Section efficace photoionisation à partir du terme 1S calculé par R-Matrice »

La variation de la section efficace de photoionisation à partir du niveau 1S est présentée sur la Figure 4-6. Le seuil d'ionisation correspondant se situe à 49.5 eV d'énergie de photons, ce qui correspond au seuil calculé par S.Nahar (49.49eV) [4.5]. Le groupe de raies vers 69 eV indique l'existence d'une série de Rydberg convergeant vers 70 eV, soit à près de 20 eV du fondamental de O^{2+} . Ce niveau de l'ion d' O^{3+} correspond à $^2S : 1s^2 2s^1 2p^2$, conformément au Tableau 5-1.

4.2.3.5 Section efficace à partir du terme 5S Figure 4-7 « Section efficace de photoionisation à partir du niveau $^5S_2^-$ »

A la différence des spectres qui précèdent, la section efficace de photoionisation à partir du 5S présentée sur la Figure 4-7 est calculée à l'approximation relativiste (calcul Breit-Pauli Matrice-R). Le seuil d'ionisation à partir du niveau 5S_2 à 48.3 eV d'énergie de photons. Cette position correspond à la position calculée par S.Nahar dans son article de 1998 (calcul non relativiste). Le spectre représenté sur la Figure 4-7, est dominé par deux séries de Rydberg. La première converge vers 56.35 eV, et la seconde vers de 76.22 eV. Le point de convergence de la première série peut être attribué au seuil 2s associé à la configuration $1s^2 2s^1 2p^2$ d' O^{3+} . En effet, l'écart en énergie entre ce seuil 2s et le seuil 5S_2 est de 8.06 eV. Cet écart correspond approximativement à l'écart en énergie entre les niveaux $1s^2 2s^2 2p^1 \ ^2P$ et $1s^2 2s^1 2p^2 \ ^4P$ d' O^{3+} . De la même manière, la seconde série de Rydberg semble converger vers le seuil 2s d' O^{2+} associé à un niveau d' O^{3+} de configuration $2p^3$.

4.2.4 Construction des spectres théoriques

Dans le but d'interpréter de façon détaillée le spectre expérimental de photoionisation de l'ion O^{2+} , nous avons reconstitué des spectres synthétiques à partir des résultats théoriques présentés dans le paragraphe précédent.

4.2.4.1 Détermination du pourcentage d'ions O^{2+} métastables

Comme nous l'avons déjà précisé, tous les ions incidents O^{2+} créés dans la source ECR ne sont pas produits dans l'état fondamental ($1s^2 2s^2 2p^2 \ ^3P_0$), et certains se trouvent dans des niveaux excités métastables ($\ ^3P_{1,2}$, $\ ^1D_2$, $\ ^1S_0$, $\ ^5S_2$). Notre montage expérimental ne permet pas de discriminer les contributions individuelles de ces ions métastables au signal total d'ions O^{3+} compté sur les galettes de micro-canaux. Ainsi, le spectre expérimental présenté Figure 4.1 correspond en fait à une superposition des sections efficaces de photoionisation d'ions O^{2+} à partir de chacun des états stable et métastables peuplés dans la source ECR. Les structures observées dans le spectre expérimental indiquent que les 6 premiers niveaux d'énergie de cet ion doivent être pris en compte. Malheureusement, les proportions d'ions métastables ne sont pas connues expérimentalement. Toutefois, les résultats de nos calculs MCDF et des calculs Matrice-R de S.Nahar, nous donnent accès aux sections efficaces de photoionisation à partir de chaque niveau. Ils nous permettent d'estimer le pourcentage d'ions O^{2+} métastables produits par la source. Pour cela, nous nous sommes basés sur la valeur de la section efficace de photoionisation directe aux différents seuils d'ionisation et donnée par le calcul MCDF. Dans le cas où les seuils d'ionisation ne sont pas observés expérimentalement, nous nous sommes basés sur les forces d'oscillateur des résonances clairement identifiées et provenant d'un seul et même niveau d' O^{2+} . La section efficace de photoionisation directe expérimentale peut s'écrire, selon les régions du spectre, de la façon suivante :

- En-dessous du seuil d'ionisation associé au terme $\ ^1S$, seule intervient la section efficace de photoionisation à partir du niveau $\ ^5S_2$. Nous pouvons donc écrire la section efficace mesurée S_{tot} comme étant égale à:

$$S_{tot}(h\nu < 49.5eV) \approx D_{\%} \sigma(^5S_2) \quad \text{éq. 4-19}$$

où $D_{\%}$ est le pourcentage d'ions dans l'état métastable correspondant au $\ ^5S_2$ et $\sigma(^5S_2)$ sa section efficace de photoionisation.

- De la même manière, la section efficace de photoionisation entre le seuil associé au terme 1S et au terme 1D s'exprime comme la somme des sections efficaces partielles issues du 1S_0 pondérées par les populations:

$$S_{tot}(49.5eV > h\nu > 52.5eV) \approx C\% \sigma(^1S_0) + D\% \sigma(^5S_2) \quad \text{éq. 4-20}$$

où $C\%$ est le pourcentage d'ions dans l'état métastable associé au terme 1S

- Et ainsi de suite pour le signal de photoionisation directe compris entre les seuils d'ionisation à partir du terme 1D et du 3P :

$$S_{tot}(52.5eV > h\nu > 54.9eV) \approx B\% \sigma(^1D_2) + C\% \sigma(^1S_0) + D\% \sigma(^5S_2) \quad \text{éq. 4-21}$$

Enfin, au-dessus du seuil à partir du 3P :

$$S_{tot>(> 54.9eV) \approx A\% \sigma(^3P_{0,1,2}) + B\% \sigma(^1D_2) + C\% \sigma(^1S_0) + D\% \sigma(^5S_2) \quad \text{éq. 4-22}$$

Notons par ailleurs que $A\% + B\% + C\% + D\% = 1$.

La section efficace de photoionisation directe à partir du 5S ne peut être observée expérimentalement car elle est très faible ($O^{2+} : 2s^1 2p^3 + h\nu \rightarrow 2s^2 2p^1 + e$). Le seuil d'ionisation à partir du terme 1S , bien que très peu marqué, est observé expérimentalement aux alentours de 49.5 eV d'énergie de photons. Pour l'état métastable (5S), nous avons utilisé la force d'oscillateur de la première résonance calculée par MCDF pour estimer sa population. Nous obtenons ainsi $D\% = 2\%$. L'estimation des poids respectifs pour chaque terme initial d' O^{2+} est donnée dans le Tableau 4-11:

Tableau 4-11 : « Pourcentage de métastables »

Niveaux	Poids
5S_2	~2%
1S_0	~3 %
1D_2	~12 %
$^3P_{0,1,2}$	~83 %

Maintenant que les pourcentages d'ions O^{2+} métastables sont établis, il est alors possible de construire des spectres théoriques synthétiques (MCDF et Matrice-R) qui soient directement comparables au spectre observé expérimentalement. Le traitement utilisé pour réaliser ces spectres diffère selon qu'il s'agisse des résultats des calculs MCDF ou Matrice-R.

4.2.4.2 Construction du spectre synthétique MCDF

Dans le cas MCDF, nous disposons des sections efficaces de photoionisation à partir de chaque niveau (Figure 4-3), et des sections efficaces de photoexcitation à partir des mêmes niveaux (Figure 4-2). Une première étape de la construction des spectres synthétiques MCDF va consister, pour chaque niveau de départ, à sommer la contribution des processus d'ionisation directe et des processus résonnants. Nous obtenons ainsi la variation de la section efficace totale de photoionisation à partir de chaque niveau, où les processus d'interférence entre les deux voies sont négligés. La section efficace totale de photoionisation devient :

$$\sigma_{tot}^{MCDF}(h\nu) = A_{\%}(\sigma_{3P}^{Ph}(h\nu) + \sigma_{3P}^{Ex}(h\nu)) + B_{\%}(\sigma_{1D_2}^{Ph}(h\nu) + \sigma_{1D_2}^{Ex}(h\nu)) + C_{\%}(\sigma_{1S_0}^{Ph}(h\nu) + \sigma_{1S_0}^{Ex}(h\nu)) + D_{\%}(\sigma_{5S_2}^{Ph}(h\nu) + \sigma_{5S_2}^{Ex}(h\nu)) \quad \text{éq. 4-23}$$

Les $\sigma_x^{Ph}(h\nu)$ et $\sigma_x^{Ex}(h\nu)$ correspondent respectivement aux sections efficaces de photoionisation et de photoexcitation calculées par MCDF à partir du terme x. Les pourcentages $A_{\%}$, $B_{\%}$, $C_{\%}$ et $D_{\%}$ sont ceux du Tableau 4-11. Nous obtenons ainsi le spectre MCDF synthétique montré Figure 4-8 :

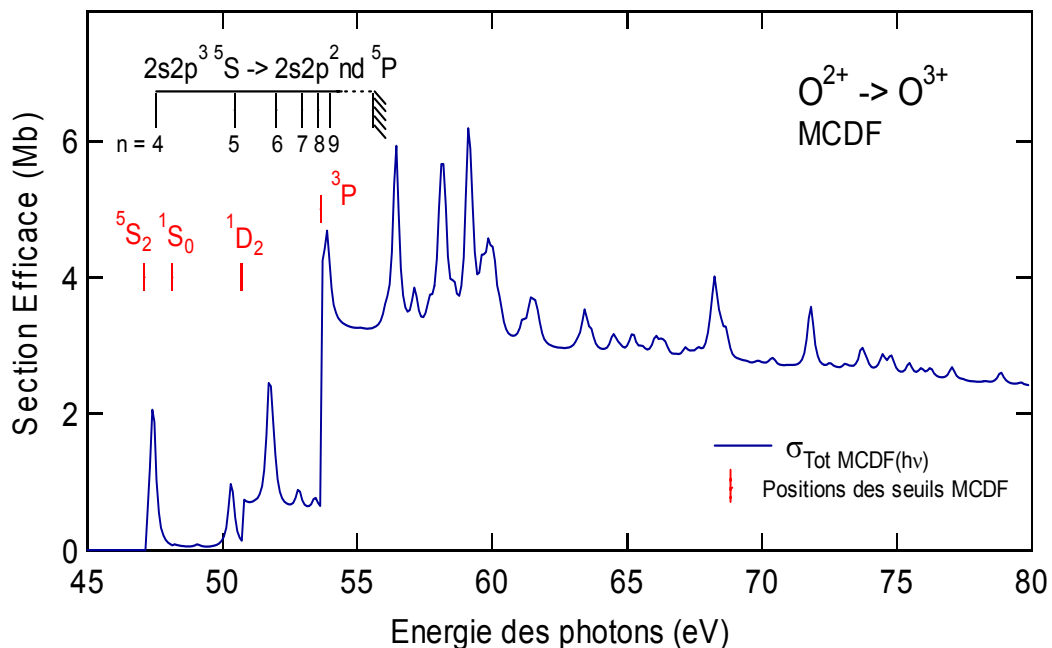


Figure 4-8 « Spectre MCDF simulant la variation de la section efficace totale de photoionisation de l'ion O^{2+} à partir de son niveau fondamental et des 5 premiers niveaux métastables »

Les positions des seuils d'ionisation calculées avec MCDF pour chaque niveau métastable (Tableau 4.1) sont reportées sur la Figure 4-8, ainsi que les positions des résonances de la série de Rydberg provenant du niveau 5S . Ce spectre, déduit des calculs MCDF et de l'estimation du

pourcentage d'ions O^{2+} métastables produits par la source RCE, est directement comparable au spectre expérimental. Il nous permettra d'identifier la majorité des structures observées expérimentalement.

4.2.4.3 Construction du spectre synthétique Matrice-R

Pour le calcul Matrice-R, les processus directs et résonnants sont déjà inclus sur les spectres des Figures 4-4, 4-5 et 4-6. Nous pouvons donc directement sommer les sections efficaces calculées avec le code Matrice-R à partir de chaque terme initial. Les poids utilisés pour chaque métastable sont ceux déterminés avec les résultats du calcul MCDF (Tableau 4-11). Le spectre obtenu est alors convolué par une gaussienne de largeur à mi-hauteur de 0.25eV pour simuler la bande passante expérimentale. Le résultat de ce traitement est présenté sur la Figure 4-9:

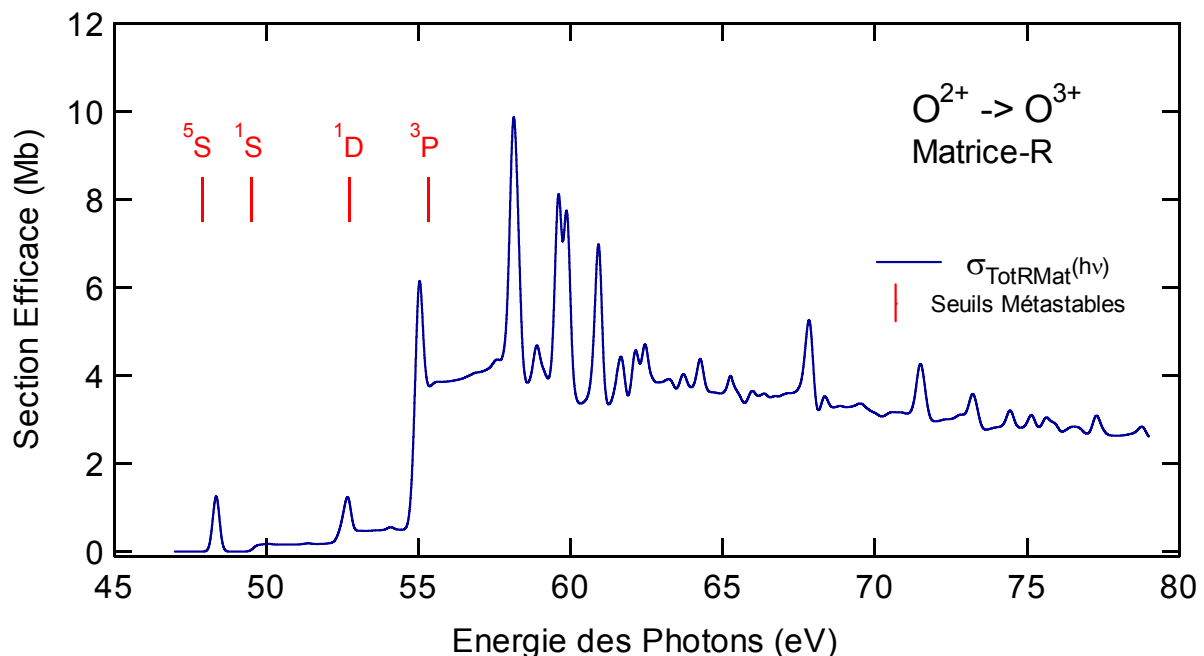


Figure 4-9 « Spectre Matrice-R simulant la variation de la section efficace totale de photoionisation expérimentale de l'ion O^{2+} à partir de son niveau fondamental et des 5 premiers niveaux métastables »

4.2.4.4 Récapitulation

La Figure 4-10 réunit le spectre expérimental, le spectre synthétique MCDF et le spectre synthétique Matrice-R.

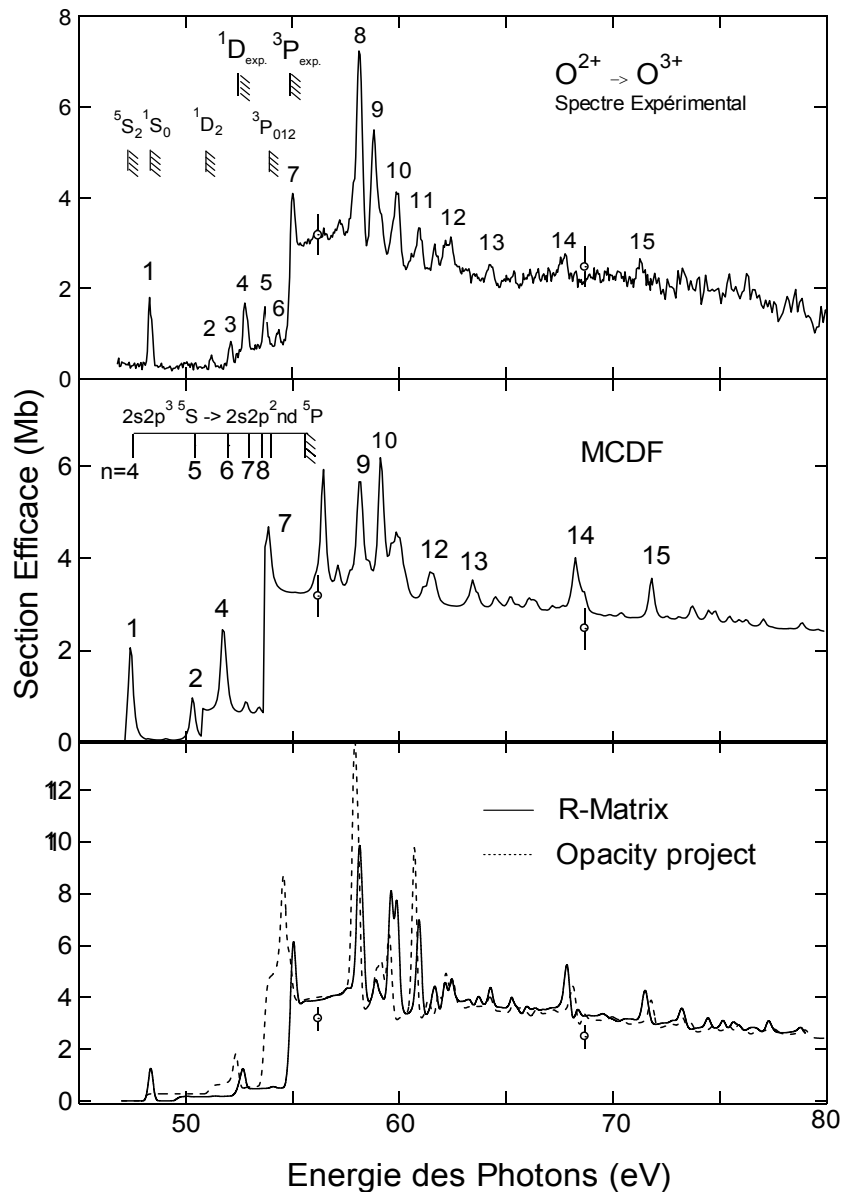


Figure 4-10 « Comparaison des divers résultats théoriques avec le spectre expérimental »

Sur les trois spectres sont reportées les mesures de sections efficaces absolues qui ont servi à la normalisation du spectre expérimental. Sur le spectre expérimental sont portées les positions des seuils d'ionisation à partir des termes 1D et 3P expérimentaux ainsi que les positions des seuils à partir des termes 5S , 1S , 1D et 3P . Sur le spectre MCDF sont reportées les positions des résonances identifiées, d'après le calcul MCDF, comme appartenant à une série de Rydberg de type : $2s2p^3 \rightarrow 2s2p^2nd$. Les raies expérimentales sont numérotées de 1 à 15. Le spectre en pointillé du dernier panneau est tiré de la Base de Donnée Opacity Project, qui a subi un traitement identique à celui effectué sur les résultats du calcul Matrice-R.

4.2.5 Interprétation et discussions

4.2.5.1 Interprétation du spectre expérimental sur la base du spectre MCDF

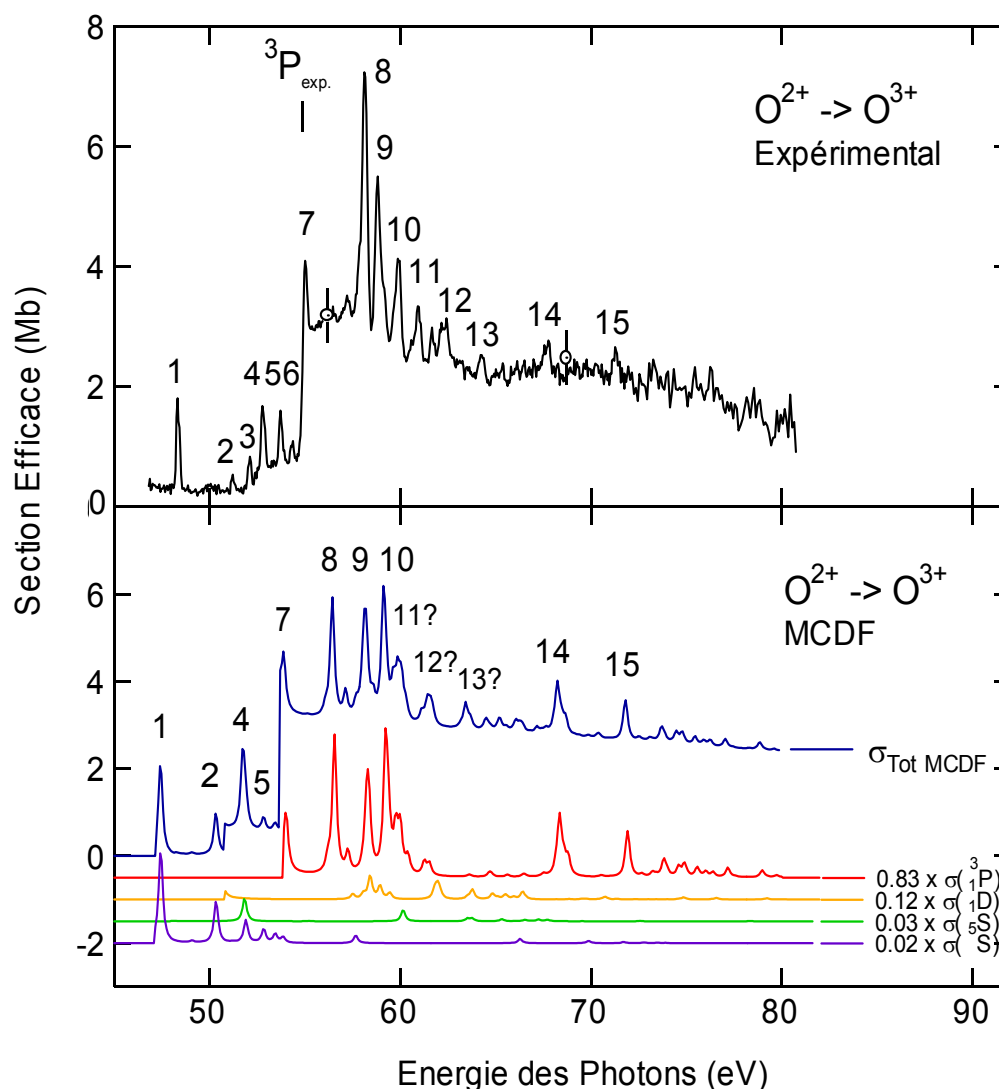


Figure 4-11 « Comparaison entre le spectre expérimental et le spectre théorique MCDF »

Pour interpréter les structures observées sur le spectre expérimental, les spectres expérimentaux et MCDF sont comparés sur la Figure 4-11. Les numéros des résonances correspondent à ceux indiqués dans le Tableau 4-2. Les sections efficaces de photoexcitation partielle à partir de chaque niveau initial sont également présentées sur la même Figure. Pour plus de lisibilité, le zéro des spectres de section efficace de photoexcitation partielle est décalé de -0.5 Mb pour le ³P et -1, -1.5 et -2 Mb pour le terme ¹D, ¹S et ⁵S respectivement. Ces sections efficaces MCDF sont également multipliées par leur poids respectif indiqué dans le Tableau 4-11.

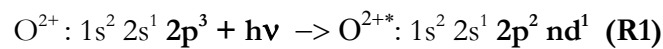
Assignation des résonances expérimentales grâce à MCDF:

L'allure du spectre synthétique MCDF reproduit correctement celle du spectre expérimental. Les intensités des résonances, et surtout du fond continu (photoionisation directe), sont sensiblement les mêmes. Notons toutefois qu'il existe un décalage entre les énergies des seuils expérimentaux et les seuils MCDF (Tableau 4-1) d'environ 0.7 eV. Ce décalage en énergie se retrouve sur la position des résonances. Les résonances du spectre expérimental situées en-dessous du seuil 3P (transitions numérotées de 1 à 6) sont pour la plupart issues uniquement du niveau $^5S_2^-$ d' O^{2+} . Seule la résonance n°4, située expérimentalement à 52.75 eV, semble avoir une contribution notable du niveau $^1S_0^-$. Le Tableau 4-12 résume l'assignation des résonances situées au-dessous du seuil d'ionisation à partir du terme 3P .

Tableau 4-12 « Identification par MCDF des résonances expérimentales situées sous le seuil à partir du 3P »

N°	Positions Exp. (eV)	Positions MCDF (eV)	Δ (eV)	J _f	Transition MCDF
1	48.29 (17)	47.533	0.757	3	$1s^2 2s^1 2p^3 (^5S_2^-) \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^2 4d^1 (^5P_{3,2,1}^+)$
		47.542	0.748	2	
		47.548	0.742	1	
2	51.17 (15)	50.437	0.733	3	$1s^2 2s^1 2p^3 (^5S_2^-) \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^2 5d^1 (^5P_{3,2,1}^+)$
		50.445	0.725	2	
		50.450	0.720	1	
3	52.06 (10)	ni	ni		Raie non identifiée
4	52.75 (12)	51.852	0.898	1	$1s^2 2s^2 2p^2 (^1S_0^+) \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^2 3p^1 (^1P_1^-)$
		51.970	0.780	3	$1s^2 2s^1 2p^3 (^5S_2^-) \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^2 6d^1 (^5D_{3,2,1}^+)$
		51.970	0.780	2	
		51.971	0.779	1	
		52.002	0.748	3	$1s^2 2s^1 2p^3 (^5S_2^-) \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^2 6d^1 (^5P_{3,2,1}^+)$
		52.009	0.741	2	
		52.013	0.737	1	
5	53.67 (10)	52.911	0.759	3	$1s^2 2s^1 2p^3 (^5S_2^-) \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^2 7d^1 (^5D_{3,2,1}^+)$
		52.914	0.756	2	
		52.915	0.755	1	
		52.940	0.730	3	$1s^2 2s^1 2p^3 (^5S_2^-) \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^2 7d^1 (^5P_{3,2,1}^+)$
		52.946	0.724	2	
6	54.27 (13)	52.949	0.721	1	
		53.524	0.746	3	$1s^2 2s^1 2p^3 (^5S_2^-) \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^2 8d^1 (^5D_{3,2,1}^+)$
		53.548	0.722	2	
		53.554	0.716	1	
		53.552	0.718	3	$1s^2 2s^1 2p^3 (^5S_2^-) \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^2 8d^1 (^5P_{3,2,1}^+)$
-	-	53.555	0.715	2	
		53.557	0.713	1	
		53.960 ...	-		$1s^2 2s^1 2p^3 (^5S_2^-) \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^2 9d^1 (^5D_{3,2,1}^+)$
		53.968 ...	-		$1s^2 2s^1 2p^3 (^5S_2^-) \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^2 9d^1 (^5P_{3,2,1}^+)$

La résonance n°3 du spectre expérimental, qui est située à 52.06 eV d'énergie de photon, n'est pas reproduite par les calculs MCDF. Sa position en énergie semble indiquer qu'il ne s'agit pas non plus de l'ouverture d'un seuil de photoionisation directe mais bien d'une résonance. Notons toutefois qu'il existe dans le spectre de photoexcitation MCDF une résonance située juste en-dessous du seuil à partir du terme 1D qui pourrait correspondre avec la résonance n°3. A part la résonance n°3, toutes les raies du spectre expérimental, en-dessous du seuil du fondamental d' O^{2+} , peuvent être identifiées. Les résonances expérimentales 1,2,(4),5,6 appartiennent à une seule et même série de Rydberg. Cette série correspond à la photoexcitation d'un électron en sous-couche 2p vers une sous-couche nd. Elle converge ($n \rightarrow \infty$) vers un état excité d' O^{3+} ($1s^2 2s^1 2p^2$) :



Analyse de la série de Rydberg (R1):

La position du seuil de convergence de cette série, ainsi que son défaut quantique, ont pu être déterminés à partir des positions des résonances observées expérimentalement et calculées par MCDF. Rappelons que le défaut quantique δ associée à une série de Rydberg est défini par :

$$n_i^* = n_i - \delta = \left(\frac{R_y Z^2}{E_b - E_i} \right)^{1/2} \quad \text{éq. 4-24}$$

Ou n_i est le nombre quantique principal sans correction, n^* le nombre quantique principal effectif, R_y la constante de Rydberg, Z la charge de l'ion considérée, E_b l'énergie du seuil d'ionisation de la série et E_i la position en énergie de la résonance associée au nombre quantique principale n_i .

Pour déterminer le défaut quantique et la limite de convergence E_b de cette série de Rydberg, nous avons ajusté les positions des résonances par une loi du type :

$$Y = E_b - \frac{Z^2 R_y}{(n - \delta)^2} \quad \text{éq. 4-25}$$

Le résultat des ajustements pour les résonances de la série de Rydberg calculé par le code MCDF et son pendant expérimental sont présentés dans la Figure 4-12 :

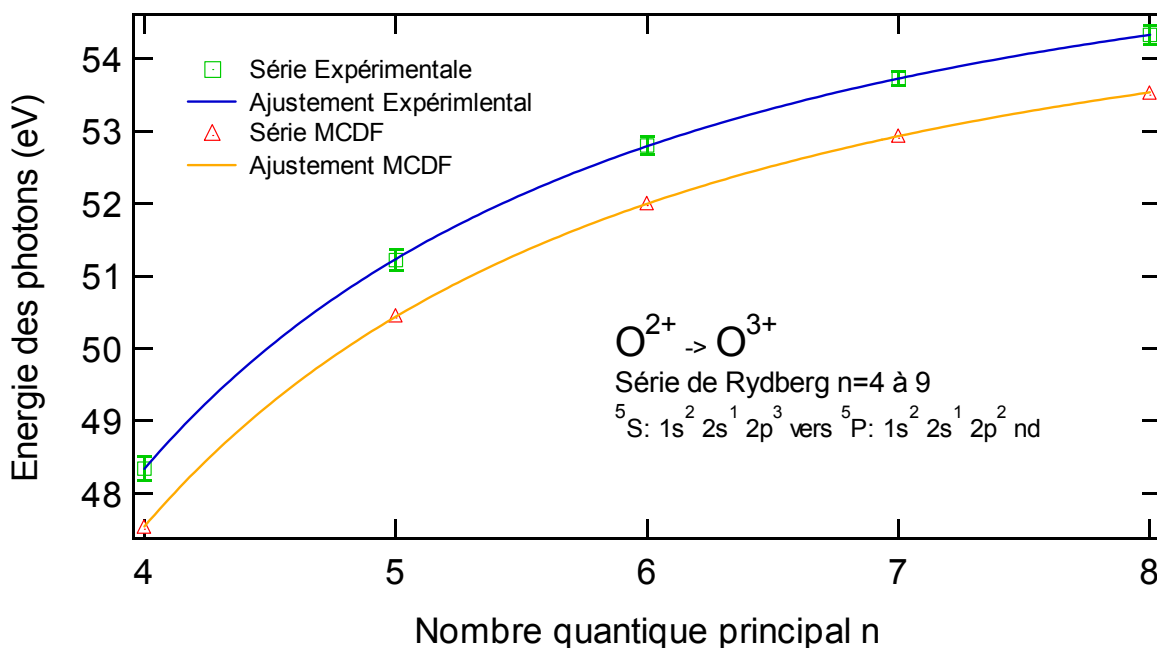


Figure 4-12 « Ajustement par une loi de puissance des positions des résonances calculées par le code MCDF et des résonances de la série de Rydberg expérimentale »

Après ajustement, nous obtenons l'énergie du seuil et le défaut quantique de la série de Rydberg (Tableau 4-13):

Tableau 4-13 « Seuil et défaut quantique de la série de Rydberg 1-6 »

Type	ESeuil (eV)	δ
Expérimental	56.221 ± 0.091	0.074 ± 0.053
MCDF	55.485 ± 0.007	0.0742 ± 0.0035

La valeur du seuil est de 56.22 eV pour le spectre expérimental et de 55.49 eV pour le spectre MCDF. Grâce à ces valeurs, il est alors possible de déterminer complètement le processus responsable des résonances 1 à 6 puisque nous savons que le niveau d' O^{3+} vers lequel converge cette série provient de la configuration $1s^2 2s^1 2p^2$.

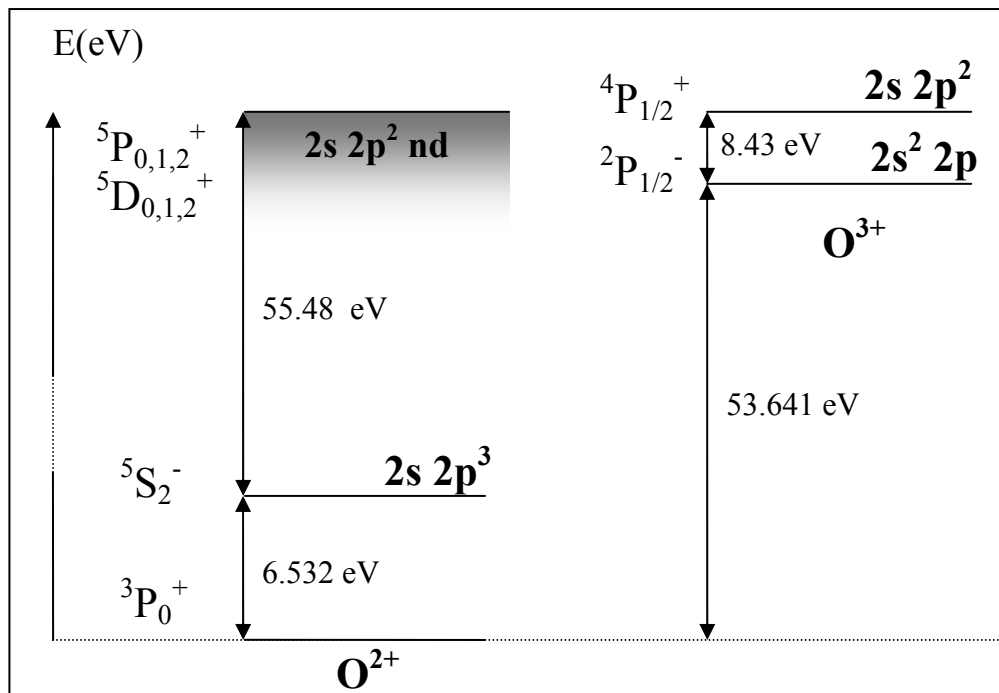


Figure 4-13 « Seuil de la série de Rydberg et détermination du niveau d' O^{3+} correspondant »

Ainsi, la Figure 4-13 présente le diagramme des niveaux d'énergie, calculés avec MCDF, qui sont impliqués dans la série de Rydberg 1 à 6. Le niveau de départ de la série $5S_2^-$ est situé à 6.532 eV du fondamental d' O^{2+} . La limite de convergence de la série (MCDF) a été calculée à 55.48 eV d'énergie de photons. D'autre part, le seuil du $3P$, calculé également avec MCDF, est situé à 53.641 eV d'énergie de photons. En conséquence, la série converge à 8.43 eV au-dessus du niveau fondamental $2P_{1/2}^-$ de l'ion O^{3+} . Nous verrons, dans le paragraphe consacré à la photoionisation d' O^{3+} , qu'il existe effectivement des niveaux situés à cette énergie : il s'agit des niveaux $4P_{1/2,3/2,5/2}^+$ situé, d'après MCDF, à 8.455 eV au-dessus du niveau fondamental $2P_{1/2}^-$ d' O^{3+} .

Conclusions sur l'identification des résonances sous le seuil d'ionisation à partir du terme $3P$

En dehors de la résonance n°3, les résonances en-dessous du seuil d'ionisation à partir du terme $3P$ sont donc parfaitement identifiées grâce à MCDF. Les transitions 1,2,4,5,6 appartiennent à une même série de Rydberg : $1s^2 2s^1 2p^3 (5S_2^-) \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^2 nd^1 (5D_{3,2,1}^+)$ et $(5P_{3,2,1}^+)$, qui converge vers des niveaux d' O^{3+} correspondant au terme $4P$.

La résonance 4 est « double » puisqu'elle correspond également à une transition résonnante à partir du niveau $1S_0^+$: $1s^2 2s^2 2p^2 (1S_0^+) \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^2 3p^1 (1P_1^-)$, ce qui explique sa plus grande intensité relative par rapport aux autres termes de la série de Rydberg 1-6.

Assignation des résonances au-dessus du seuil d'ionisation à partir du terme 3P de O^{2+} :

Au-dessus du seuil 3P , l'assignation est plus délicate et le spectre MCDF diffère du spectre expérimental. Une première analyse rapide indique que les résonances n°7, 12-15 du spectre expérimental sont correctement reproduites par MCDF, alors que les intensités et les positions des résonances 8 à 11 diffèrent sensiblement du spectre MCDF. Expérimentalement, les résonances 8 à 11 semblent appartenir à une série de Rydberg qui converge aux alentours de la raie n°12. Par ailleurs, du fait des populations relatives d'ions O^{2+} métastables [Tableau 4.11], il apparaît, d'après le calcul MCDF, que les forces d'oscillateur des résonances qui proviennent des niveaux $^5S_2^-$ et $^1S_0^+$ et, dans une moindre mesure du 1D_2 , sont faibles, voir négligeables devant celles des transitions qui proviennent du 3P . Notons également que les transitions 9 à 13 du spectre calculé avec MCDF, bien que majoritairement attribuées au $^3P_{0,1,2}$, sont perturbées par la présence de résonances provenant des autres niveaux.

En tenant compte des remarques ci-dessus, une tentative d'assignation a été réalisée pour les résonances 7 à 15 qui sont observées expérimentalement au-dessus du seuil 3P . Ces assignations sont présentées dans le Tableau 4-14 qui récapitule la position des transitions expérimentales et de celles calculées par MCDF, ainsi que leur assignation respective.

Tableau 4-14 « Assignation des résonances 7 à 15 du spectre expérimental à partir du calcul MCDF »

n°	Position Exp. (eV)	Position MCDF	Transition « MCDF »*
7	54.98	53.984	$2s^2 2p^2 (^3P_{0,1,2}^+) \rightarrow 2s^1 2p^2 4p^1$
8	57.15	56.559	$2s^2 2p^2 (^3P_{0,1,2}^+) \rightarrow 2s^1 2p^2 5p^1$
9	58.06	58.303	$2s^2 2p^2 (^3P_{0,1,2}^+) \rightarrow 2s^1 2p^2 6p^1$
		58.386	$2s^2 2p^2 (^1D_2^+) \rightarrow 2s^1 2p^2 6p^1$
10	59.81	59.217	$2s^2 2p^2 (^3P_{0,1,2}^+) \rightarrow 2s^1 2p^2 7p^1$
11	60.87	59.798	$2s^2 2p^2 (^3P_{0,1,2}^+) \rightarrow 2s^1 2p^2 3p^1$
		60.546	$2s^2 2p^2 (^1S_0^+) \rightarrow 2s^1 2p^2 4p^1$
12	62.22	61.378	$2s^2 2p^2 (^3P_{0,1,2}^+) \rightarrow 2s^1 2p^2 4p^1$
		61.958	$2s^2 2p^2 (^1D_2^+) \rightarrow 2s^1 2p^2 3p^1$
13	64.19	63.785	$2s^2 2p^2 (^1D_2^+) \rightarrow 2p^3 3s^1$
		63.868	$2s^2 2p^2 (^1S_0^+) \rightarrow 2p^3 3s^1$
14	67.61	68.353	$2s^2 2p^2 (^3P_{0,1,2}^+) \rightarrow 2s^1 2p^2 4p^1$
15	71.22	71.924	$2s^2 2p^2 (^3P_{0,1,2}^+) \rightarrow 2s^1 2p^2 5p^1$

* Les niveaux finaux sont répertoriés dans les Tableaux 4-3 à 4-7.

Les résonances expérimentales au-dessus du seuil du niveau fondamental de l'ion O^{2+} ne peuvent être identifiées avec certitude d'après les résultats des calculs MCDF. Contrairement à celles situées sous le seuil d'ionisation à partir du terme 3P , il n'y a pas de décalage constant en énergie entre les positions des résonances calculée par MCDF et les résonances expérimentales. La variation relative d'intensité des résonances 8-11 observées expérimentalement n'est pas reproduite par MCDF. Il semble toutefois se détacher des résultats MCDF, pour ces résonances, une série de Rydberg correspondant à l'excitation d'un électron en sous-couche 2s vers les sous-couches np : $2s^2 2p^2 + h\nu \rightarrow 2s^1 2p^2 np^1$.

Analyse de la série de Rydberg : $2s^2 2p^2 + h\nu \rightarrow 2s^1 2p^2 np^1$

Nous avons ajusté les positions expérimentales et théoriques des raies suivant la loi de puissance donnée [éq. 4.7] afin de déterminer le défaut quantique et la limite de convergence de la série. Le résultat de l'ajustement est donné dans la Figure 4-14 et le Tableau 4-15 :

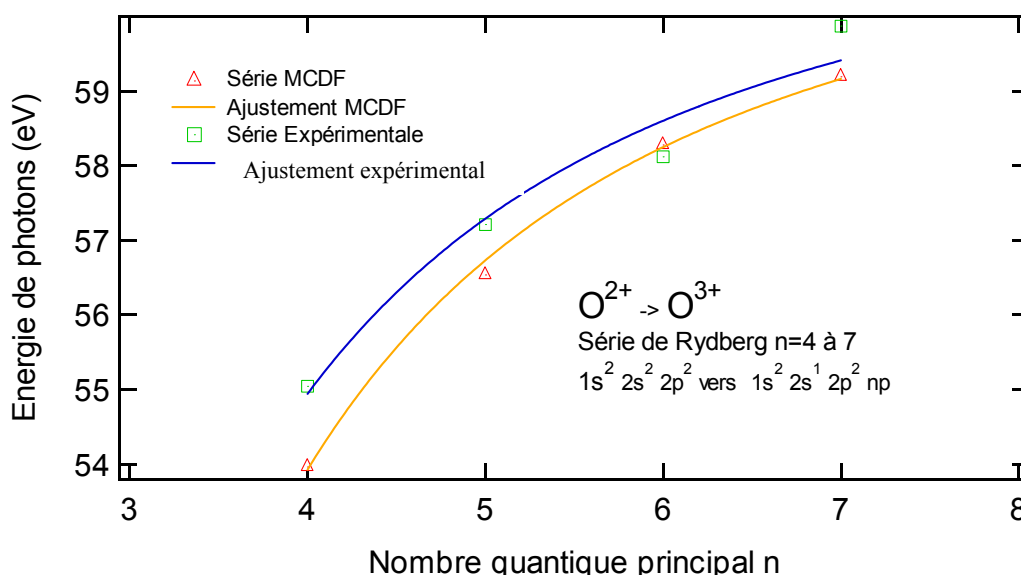


Figure 4-14 « Ajustement des positions des raies expérimentales et MCDF de la série de Rydberg »

Tableau 4-15 « Résultats de l'ajustement »

Type	ESeuil (eV)	δ
Expérimental	61.69 ± 0.46	0.241 ± 0.244
MCDF	61.681 ± 0.131	0.027 ± 0.056

La série de Rydberg devrait donc converger à 61.69 eV d'énergie de photons. Sur le spectre expérimental, l'on peut observer un léger accroissement de la section efficace au niveau de la

résonance notée 12. Cet accroissement peut être imputé à l'ouverture du seuil d'ionisation directe en sous-couche 2s à partir de la configuration fondamentale $1s^2 2s^2 2p^2$ de l'ion O^{2+} . La position du seuil 2s MCDF est en bon accord avec le seuil expérimental. Concernant les défauts quantiques, notons la forte valeur du défaut quantique expérimental comparativement au défaut quantique calculé avec les positions MCDF.

4.2.5.2 Comparaisons des spectres théoriques et expérimentaux

Une fois les résonances et les seuils du spectre expérimental identifiés grâce aux calculs MCDF, nous allons, dans les paragraphes qui suivent, confronter ces résultats à ceux obtenus par la méthode de la Matrice-R, ainsi qu'à ceux tirés des Base Données Opacity Project et NIST.

Comparaison de la position des niveaux et des seuils d'ionisation

Une première comparaison possible concerne la position et l'assignation des niveaux d'énergie d' O^{2+} . Les Tableaux A-2 (Annexe 2) regroupent les positions et les assignations des 40 premiers niveaux d' O^{2+} selon, respectivement, les résultats de notre code MCDF, les données présentes dans la base du NIST, les calculs réalisés par S.Nahar [4-5] avec un code Matrice-R, et les niveaux accessibles dans la base Opacity Project. Dans ce Tableau, les 12 premiers niveaux de chaque source coïncident sur le plan des termes spectroscopiques et des énergies qui leur sont attribuées. D'importantes disparités apparaissent ensuite entre les résultats MCDF comparativement aux résultats des bases du NIST, de l'Opacity Project et des calculs Matrice-R. Dès le douzième niveau, la présence de niveaux supplémentaires est donnée par nos calculs MCDF, et très rapidement tant les termes spectroscopiques que les positions en énergie des niveaux diffèrent considérablement selon les sources de données. Certains accords subsistent pourtant comme, par exemple, pour les niveaux 34 à 40. Il est toutefois facile d'imaginer que les disparités se renforcent pour les niveaux d'énergie supérieure. Ces désaccords entre les divers résultats théoriques entachent considérablement les possibilités d'identifications (universelles) pour les transitions résonnantes effectivement observées dans le spectre expérimental d' O^{2+} . Concernant les seuils d'ionisation, d'importants écarts en énergie subsistent entre les différentes sources de données, comme l'indique le Tableau [4-1] présenté en début de chapitre.

Discussion sur la comparaison des structures

Au regard de la Figure 4-10, les résonances situées en-dessous du seuil d'ionisation à partir de l'état fondamental d' O^{2+} sont correctement reproduites par les calculs théoriques MCDF et Matrice-R. Dans le calcul Matrice-R les résonances n°1 à 4 du spectre expérimental

apparaissent très clairement malgré des intensités relatives environ une fois et demi plus faibles. Notons que la raie expérimentale n°1 n'apparaît pas dans les données de la base Opacity Project car elles proviennent d'un calcul Matrice-R non-relativiste. Contrairement aux calculs MCDF, les transitions résonnantes n°2,3 et 5 du spectre expérimental n'apparaissent pas dans le spectre Matrice-R. L'intensité relative des résonances de la série de Rydberg : $1s^2 2s^1 2p^3 (^5S_2^-) \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^2 nd^1 (^5P_{3,2,1}^+)$ (dont la première résonance est la n°1), semble donc sous estimée dans le calcul Matrice-R.

Pour les résonances situées au-dessus du seuil d'ionisation d'O²⁺ à partir de son niveau fondamental ³P₀, l'accord entre les résultats Matrice-R et les résultats du calcul MCDF est plus probant. La résonance expérimentale n°7 est bien observée, avec une intensité légèrement sur-estimée dans le spectre Matrice-R. D'une manière générale, l'allure du spectre expérimental au-dessus du seuil d'ionisation à partir du terme ³P semble être mieux reproduite par le calcul Matrice-R. La décroissance d'intensité des résonances n°8 à 11 dans le spectre Matrice-R correspond bien à celle observée expérimentalement, contrairement aux calculs MCDF et aux données de la Base Opacity Project, où la résonance n°10 est plus intense que la n°9. Les résonances 12 à 15 sont correctement reproduites à la fois par MCDF et Matrice-R.

Notons pour finir que les pourcentages de métastables utilisés pour construire le spectre Matrice-R sont ceux déterminés grâce à MCDF. Il est donc difficile de comparer l'intensité des résonances obtenue par les deux modèles. Seules les intensités relatives des résonances à l'intérieur d'un même calcul, et pour un même terme de départ, sont réellement significatives. Nous avons donc recalculé le pourcentage d'ions métastables à partir des résultats du calcul Matrice-R (Paragraphe 4.6.1). Ces valeurs sont regroupées dans le Tableau 4-16 :

Tableau 4-16 « Pourcentages de métastables calculés (Matrice-R) »

Niveaux	Poids	(Valeur MCDF)
⁵ S ₂	~4%	2%
¹ S ₀	~ 5%	3%
¹ D ₂	~8 %	12%
³ P _{0,1,2}	~81 %	83%

Les poids trouvés sont similaires à ceux déduits des calculs MCDF.

Comparaison des sections efficaces dans le continu

Les sections efficaces de photoionisation directe qui sont obtenues par MCDF, R-Matrice et la base Opacity Project ont également été comparées. Le Tableau 4-17 regroupe les sections efficaces de photoionisation directe totales tirées respectivement du spectre expérimental, d'un

calcul Dirac Slater (DS) [4.28] et de nos résultats MCDF, ainsi que celles déduites du calcul Matrice-R :

Tableau 4-17 « Points expérimentaux et théoriques des sections efficaces de photoionisation directe »

Position (eV)	Expérience (Mb)	DS (Mb)	MCDF (Mb)	Matrice-R (Mb)
56	3.2 (6)	3.8	3.5	4.0
60	3.0 (5)	3.3	3.4	3.8
65	2.7 (4)	2.8	3.2	3.4
70	2.4 (4)	2.4	3.1	3.1
75	2.1 (4)	2.1	2.9	2.8
80	1.8 (3)	1.8	2.8	2.5

Il ressort de ce tableau que la meilleure estimation soit celle du calcul Dirac-Slater, bien que celui-ci soit moins raffiné sur le plan des interactions de configurations que les calculs MCDF et Matrice-R. Notons toutefois que les valeurs du calcul DS sont données uniquement pour le fondamental (i.e 100% de 3P). Le calcul MCDF est en bon accord jusqu'à 65 eV où il surestime alors les valeurs mesurées expérimentalement. Enfin les résultats du calcul Matrice-R sont systématiquement plus hauts que les points expérimentaux.

4.3 Résultats sur l'ion O^{3+}

4.3.1 Présentation des résultats expérimentaux

Comme pour l'ion oxygène deux fois chargé, nous avons mesuré, pour la première fois, la variation de la section efficace de photoionisation de l'ion O^{3+} dans son état fondamental, de configuration $1s^2 2s^2 2p^1$ ($^2P_{1/2,3/2}$), et dans certains états métastables. Ces mesures ont été obtenues pour des énergies de photons comprises entre 65 eV et 100 eV.

Après traitement des données expérimentales suivant la procédure décrite au Chapitre 3, nous obtenons le spectre présenté sur la Figure 4-15 :

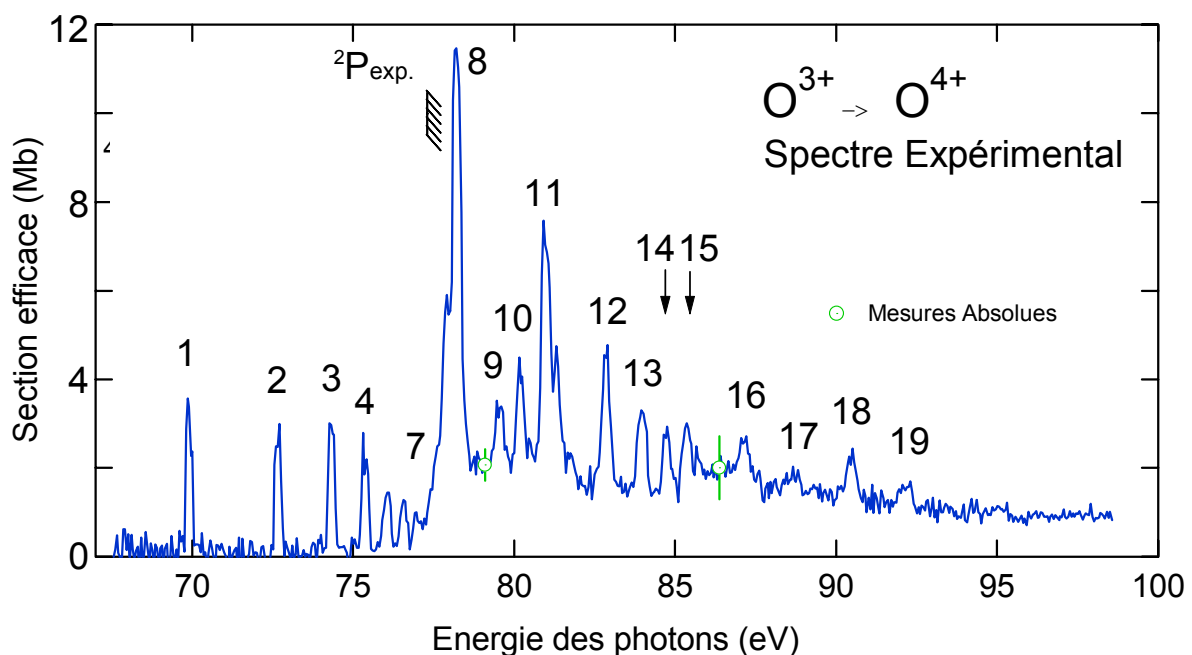


Figure 4-15 « Spectre de section efficace expérimentale de photoionisation de l'ion O^{3+} »

Ce spectre présente un fond continu qui est associé à l'ionisation directe de l'ion O^{3+} vers l'ion O^{4+} , ainsi qu'un grand nombre de structures résonnantes pour des énergies de photons discrètes. Ces raies sont numérotées de 1 à 19. La bande passante expérimentale pour ce spectre est comprise entre 0.1 et 0.3 eV.

Les mesures de sections efficaces absolues de photoionisation, ayant servi à normaliser ce spectre expérimental, ont été réalisées à 78.89 eV et 86.26 eV. Les moyennes pondérées des valeurs obtenues pour ces mesures sont égales à 2.07 ± 0.38 Mb et 2.01 ± 0.74 Mb respectivement.

Afin de détailler les structures résonnantes, nous avons réalisé pour cet ion un spectre à meilleure résolution mais sur une gamme d'énergie restreinte : de 74 eV à 93 eV. Ce spectre est présenté sur la Figure 4-16 :

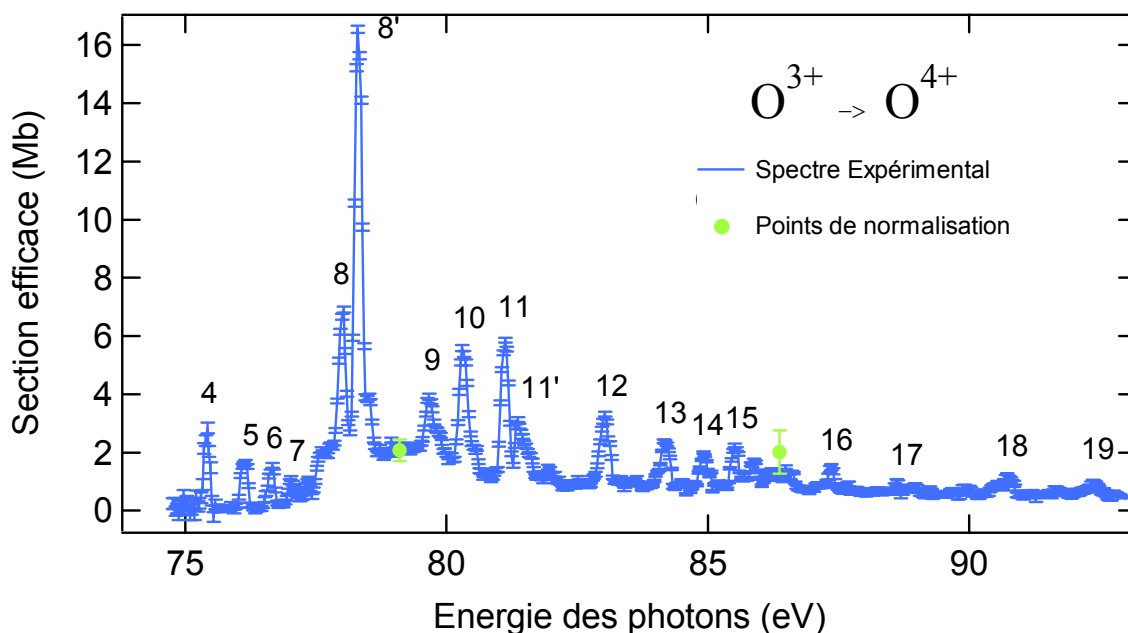


Figure 4-16 « Section efficace de photoionisation de l'ion O^{3+} entre 75 et 93 eV »

Dans ce spectre, la raie n°8 est ici résolue ainsi que la raie n°11. La résolution moyenne sur ce spectre est de l'ordre de 0.15 eV.

Description des seuils et niveaux d'énergie

Les spectres expérimentaux montrent un accroissement du fond continu de la section efficace aux alentours de 77.20 ± 0.15 eV. Cet accroissement correspond à l'ouverture d'un seuil d'ionisation directe. Ce seuil peut être attribué à la photoionisation directe de l'ion O^{3+} initialement dans son état fondamental (niveaux $^2P_{1/2}$ et $^2P_{3/2}$) vers l'état fondamental de l'ion O^{4+} ($1s^2 2s^2 \ ^1S_0$) conformément aux données qui sont tirées de la table du NIST, qui placent effectivement le seuil d'ionisation à partir du terme 2P à 77.35 eV d'énergie de photons.

Les positions des seuils d'ionisation directe à partir des cinq premiers niveaux d' O^{3+} tirées de la base du NIST, des calculs MCDF et des calculs Matrice-R, ainsi que ceux extraits de la base Opacity Project, sont présentées dans le Tableau 4-18 :

Tableau 4-18 « Positions des seuils extraits de NIST, des calculs MCDF et Matrice-R et de Opacity Project »

Configuration	Niveau $2s+1L_j^{\pi}$	Energie (eV) NIST	Energie (eV) MCDF	Energie (eV) Matrice-R	Energie (eV) Opacity Proj.
$1s^2 2s^2 2p^1$	$^2P_{1/2}^-$	0 (77.350)	0 (76.131)	0(77.166)	0(77.166)
	$^2P_{3/2}^-$	0.047	0.046	-	-
$1s^2 2s^1 2p^2$	$^4P_{1/2}^-$	8.857	8.455	8.745	8.745
	$^4P_{3/2}^-$	8.873	8.471	-	-
	$^4P_{5/2}^-$	8.896	8.492	-	-

Ce Tableau indique que la position en énergie des niveaux $^2P_{1/2}^-$ et $^2P_{3/2}^-$ est très proche. Leurs contributions respectives aux résonances expérimentales et aux seuils de photoionisation directe ne sont donc pas séparées expérimentalement, compte-tenu de la bande passante expérimentale. Le seuil de photoionisation directe à partir du premier état métastable d' O^{2+} , prédit par NIST aux alentours de 68.5 eV, correspond à la configuration $1s^2 2s^1 2p^2$ ($^4P_{1/2,3/2,5/2}^+$). Il n'est pas observé expérimentalement, ce qui indique que la population relative d'ions produits dans ces états métastables est faible devant la population de l'état fondamental, et/ou que leur section efficace de photoionisation sont faibles. Malgré tout, l'existence des résonances 1 à 7 sur le spectre expérimental (Figure 4-15) indique la présence d'ions O^{3+} dans les états métastable associés aux niveaux du terme 4P .

Description des structures résonnantes

Le spectre expérimental de la Figure 4-15 présente 19 raies principales. Leur position, et force d'oscillateur sont récapitulées dans le Tableau 4-19 :

Tableau 4-19 « Détails des résonances du spectre expérimentales »

n°	Niveaux initiaux d' O^{3+} Possibles	Position (eV)	Force d'oscillateur ($\times 10^{-3}$)
1	$^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	69.75 (6)	42,63 ± 3,69
2	$^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	72.54 (6)	37,41 ± 6,55
3	$^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	74.22 (6)	39,05 ± 6,20
4	$^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	75.28 (7)	32,68 ± 8,44
5	$^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	75.97 (6)	20,91 ± 2,60
6	$^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	76.48 (6)	15,50 ± 3,53
7	$^4P_{1/2,3/2}^-$	76.91 (6)	-
8	$^2P_{1/2,3/2}^- + ^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	78.22 (6)	46,32 ± 6,50
9	$^2P_{1/2,3/2}^- + ^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	79.59 (7)	5,42 ± 1,29
10	$^2P_{1/2,3/2}^- + ^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	80.14 (9)	5,69 ± 1,27
11	$^2P_{1/2,3/2}^- + ^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	81.27 (6)	24,68 ± 4,16
12	$^2P_{1/2,3/2}^- + ^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	82.83 (6)	9,96 ± 0,83
13	$^2P_{1/2,3/2}^- + ^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	83.95 (6)	6,88 ± 0,94
14	$^2P_{1/2,3/2}^- + ^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	84.73 (6)	4,35 ± 0,82
15	$^2P_{1/2,3/2}^- + ^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	85.37 (7)	2,80 ± 0,64
16	$^2P_{1/2,3/2}^- + ^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	85.7 (7)	6,56 ± 1,16
17	$^2P_{1/2,3/2}^- + ^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	87.14 (7)	4,06 ± 0,83
18	$^2P_{1/2,3/2}^- + ^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	90.51 (6)	4,06 ± 0,83
19	$^2P_{1/2,3/2}^- + ^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$	92.17 (7)	2,54 ± 0,86

Nous avons réalisé des calculs MCDF afin d'identifier les structures du spectre expérimental. Ces identifications feront l'objet du paragraphe suivant.

4.3.2 Présentation des résultats MCDF

4.3.2.1 Détermination des seuils et des niveaux d'énergie

Du fait de la présence d'ion O^{3+} métastables, nous avons inclus, pour le calcul MCDF, les configurations suivantes : $1s^2 [2s2p]^3$ et $1s^2 [2s2p]^2 nl$ avec $n < 12$ et $l = 0, 1, 2$. $[2s2p]^x$ signifie que les x électrons peuvent être distribués sur les sous-couches $2s$ et $2p$. Les positions des seuils d'ionisation d' O^{3+} ont été calculées par l'ajout des deux premières configurations d' O^{4+} , c'est-à-dire les configurations $1s^2 2s^2$ (fondamental) et $1s^2 2s^1 2p^1$. Le seuil d'ionisation directe d' O^{3+} dans son état fondamental est calculé par MCDF à 76.36 eV d'énergie de photons. Les énergies des cinq premiers niveaux d' O^{3+} sont regroupées dans le Tableau 4-17. Ces niveaux calculés par MCDF sont identiques du point de vue de leur terme spectroscopique à ceux extraits de la table de NIST (Tableau 4.18). Leur position en énergie diffère très légèrement selon les niveaux de 0.05 à 0.4 eV au maximum. Ce calcul MCDF confirme l'identification du seuil observé expérimentalement à 77.20 ± 0.15 eV d'énergie de photon comme étant effectivement le seuil d'ionisation à partir des niveaux $^2P_{1/2,3/2}$ d' O^{3+} .

Contrairement aux données du NIST qui prédisent parfaitement la position du seuil expérimental, nos calculs MCDF surestiment cette valeur. Cet écart entre les positions des seuils expérimentaux et calculés par MCDF est du même ordre de grandeur que celui observé pour l'ion O^{2+} (0.7eV). Un jeu de configuration élargi permettrait probablement d'améliorer les valeurs calculées par MCDF.

4.3.2.2 Détermination de la section efficace de photoexcitation

La section efficace de photoexcitation est déterminée en utilisant le même jeu de configurations que celui cité précédemment pour le calcul de la position des niveaux d'énergie d' O^{3+} , exception faite des deux configurations d' O^{4+} . Pour toutes les transitions calculées, seules celles issues des cinq premiers niveaux seront considérées pour notre interprétation du spectre expérimental.

De la même manière que pour l'ion O^{2+} , les sections efficaces de photoexcitation ont été calculées sur un domaine spectral plus large (0-115eV) que le domaine expérimental (68-100eV). Ces spectres sont présentés en annexe 2.

Pour plus de clarté, nous nous limiterons ici au domaine expérimental. Par ailleurs, toutes les transitions dont l'énergie est inférieure aux seuils d'ionisation directe des niveaux dont elles sont issues ne seront pas prises en compte puisqu'elles ne pourront être observées expérimentalement.

Principales transitions dipolaires à partir des niveaux $^2P_{1/2,3/2}^-$

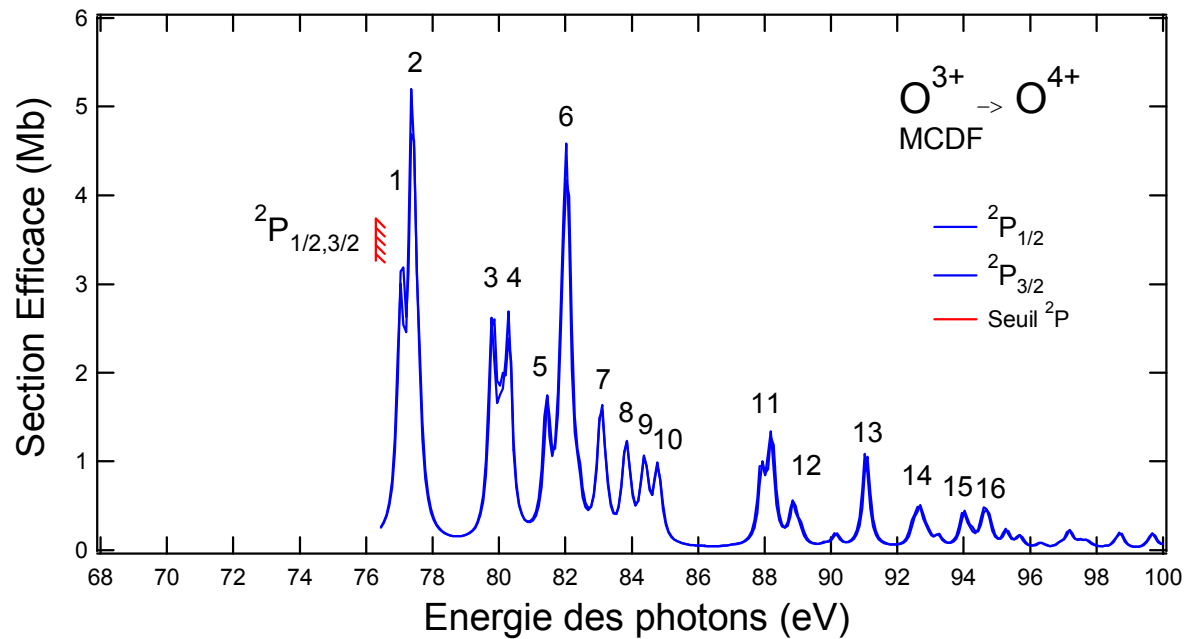


Figure 4-17 « Spectre de section efficace de photoexcitation à partir des niveaux du 2P »

Le résultat de l'identification MCDF des raies 1 à 16 présentes sur le spectre de la Figure 4-17 est récapitulé dans le Tableau 4-20 :

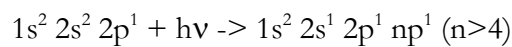
Tableau 4-20 « Identification des transition 1 à 16 à partir du $^2P_{1/2}^-$ et $^2P_{3/2}^-$ »

n°	Transition	Position MCDF (eV)	Force d'oscillateur
1	$(^2P_{1/2,3/2}^-) \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 (^2P_{1/2}^+)$	77.115 eV	$19.66 \cdot 10^{-3}$
	$(^2P_{1/2,3/2}^-) \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 (^2P_{3/2}^+)$		
	$(^2P_{1/2,3/2}^-) \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 (^4S_{3/2}^+)$		
	$(^2P_{1/2,3/2}^-) \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 (^4P_{1/2}^+)$		
	$(^2P_{1/2,3/2}^-) \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 (^4P_{3/2}^+)$		
2	$(^2P_{1/2}^-) \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 (^2D_{3/2}^+)$	77.364	-
	$(^2P_{3/2}^-) \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 (^2D_{3/2,5/2}^+)$		
3	$(^2P_{1/2}^-) \rightarrow 2p^2 3d^1 (^2D_{3/2}^+)$	79.779	$15.44 \cdot 10^{-3}$
	$(^2P_{3/2}^-) \rightarrow 2p^2 3d^1 (^2D_{3/2,5/2}^+)$		
4	$(^2P_{1/2}^-) \rightarrow 2s 2p 6p (^4P_{1/2,3/2}^+)$	80.279	-
	$(^2P_{3/2}^-) \rightarrow 2s 2p 6p (^4P_{1/2,3/2,5/2}^+)$		
5	$(^2P_{1/2}^-) \rightarrow 2p^2 3d^1 (^2D_{3/2}^+, ^2F_{3/2}^+)$	81.445	-
	$(^2P_{1/2,3/2}^-) \rightarrow 2p^2 3s^1 (^2S_{1/2}^+)$		
	$(^2P_{3/2}^-) \rightarrow 2p^2 3d^1 (^2D_{3/2,5/2}^+)$		
	$(^2P_{3/2}^-) \rightarrow 2p^2 3d^1 (^2F_{7/2,5/2,3/2}^+)$		
6	$(^2P_{1/2}^-) \rightarrow 2s^1 2p^1 7p^1 (^4P_{1/2,3/2}^+)$	82.028	$14.09 \cdot 10^{-3}$
	$(^2P_{1/2}^-) \rightarrow 2s^1 2p^1 7p^1 (^2D_{3/2}^+)$		
	$(^2P_{3/2}^-) \rightarrow 2s^1 2p^1 7p^1 (^2D_{3/2,5/2}^+)$		
	$(^2P_{3/2}^-) \rightarrow 2s^1 2p^1 7p^1 (^4P_{1/2,3/2,5/2}^+)$		
	$(^2P_{1/2,3/2}^-) \rightarrow 2s^1 2p^1 4p^1 (^2D_{1/2,3/2,5/2}^+)$		

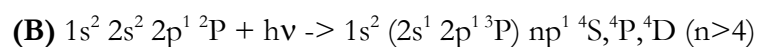
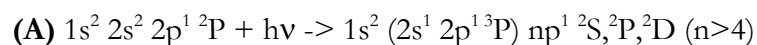
7	$(^2P_{1/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 8p^1 (^2D_{3/2}^+)$ $(^2P_{3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 8p^1 (^2D_{3/2,5/2}^+)$	83.110	$2.4 \cdot 10^{-3}$
8	$(^2P_{1/2,3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 9p^1 (^4D_{1/2,3/2}^+)$ $(^2P_{1/2,3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 9p^1 (^2P_{1/2}^+)$ $(^2P_{1/2,3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 9p^1 (^4P_{3/2}^+)$ $(^2P_{3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 9p^1 (^4P_{5/2}^+)$	83.79	-
9	$(^2P_{1/2,3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 10p^1 (^4P_{1/2,3/2}^+)$	84.36	-
10	$(^2P_{1/2,3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 11p^1 (^4P_{1/2,3/2}^+)$ $(^2P_{1/2,3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 11p^1 (^2P_{1/2}^+)$ $(^2P_{3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 11p^1 (^4D_{5/2,7/2}^+)$	84.776	-
11	$(^2P_{1/2,3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 (^2D_{3/2}^+)$ $(^2P_{3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 (^2D_{5/2}^+)$	87.941	$5.81 \cdot 10^{-3}$
12	$(^2P_{1/2,3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 (^2P_{1/2,3/2}^+)$ $(^2P_{1/2,3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 (^2S_{1/2}^+)$	88.19	-
13	$(^2P_{1/2}) \rightarrow 2s^0 2p^2 4s^1 (^2D_{3/2}^+)$ $(^2P_{3/2}) \rightarrow 2s^0 2p^2 4s^1 (^2D_{3/2,5/2}^+)$	89.857	$2.50 \cdot 10^{-3}$
14	$(^2P_{1/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 6p^1 (^2P_{1/2,3/2}^+)$ $(^2P_{1/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 6p^1 (^2D_{3/2}^+)$ $(^2P_{3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 6p^1 (^2P_{3/2}^+)$ $(^2P_{3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 4p^1 (^2D_{3/2,5/2}^+)$	91.022	$1.75 \cdot 10^{-3}$
15	$(^2P_{1/2,3/2}) \rightarrow 2s^0 2p^2 4p^1 (^2P_{1/2}^+)$ $(^2P_{1/2,3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 7p^1 (^2P_{3/2}^+)$	92.604	-
16	$(^2P_{1/2,3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 8p^1 (^2S_{1/2}^+)$ $(^2P_{1/2,3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 8p^1 (^2D_{3/2}^+)$ $(^2P_{1/2,3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 8p^1 (^2P_{3/2}^+)$ $(^2P_{3/2}) \rightarrow 2s^1 2p^1 8p^1 (^2D_{5/2}^+)$	93.937	-

D'après ce Tableau, le spectre de la Figure 4-17 présente plusieurs séries de Rydberg :

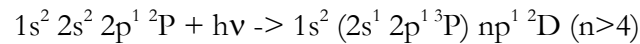
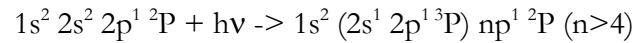
- Le premier groupe, très perturbé, (raies numérotées 1-10) correspond à l'excitation d'un électron en sous-couche 2s vers des sous-couches np :



Elles convergent vers les états de l'ion O^{4+} de configuration $1s^2 2s^1 2p^1$ aux alentours de 85 eV d'énergie de photons. Cette énergie correspond au terme 3P de l' O^{4+} (cf. Figure 4-19). En couplage LS, cette série se « décompose » en 6 séries distinctes :

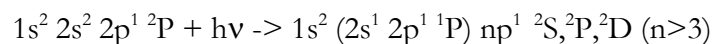


Notons que les séries **(B)** auront une intensité très faible pour des raisons de spin comparativement aux séries **(A)**. Ainsi, le spectre (MCDF) de la Figure 4-17 et le Tableau 4-20 indiquent que les raies 1,3,5 et 2,4,6 correspondent respectivement aux séries :

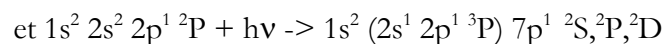
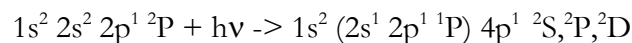


La série $1s^2 2s^2 2p^1 \ ^2P + h\nu \rightarrow 1s^2 (2s^1 2p^1 \ ^3P) np^1 \ ^2S \ (n>4)$ n'est pas résolue dans le spectre convolué de la Figure 4-17 mais, bien que moins intense, elle contribue aux intensités des résonances 1,3,5. Les résonances 7 à 10 proviennent également des séries (A), mais elles ne sont pas séparées.

- Les séries qui correspondent aux raies 6, 11 à 16 convergent plus haut en énergie (> 94eV). Cette énergie indique qu'il s'agit du terme 1P de l' O^{4+} (cf. Figure 4-19). Ces séries sont donc les suivantes :



Remarquons que la raie n°6 provient à la fois des transitions non résolues:



ce qui explique son intensité relative par rapport aux autres raies du spectre de la Figure 4-17.

D'une manière générale, le caractère « perturbé » de ces séries s'explique par le grand nombre de niveaux accessibles associés à une même configuration. Par exemple, la transition n°6 contient pas moins de neuf transitions qui se superposent dans le spectre expérimental du fait de leur proximité en énergie. Les seuils de convergence et défauts quantiques de ces séries seront détaillés par la suite.

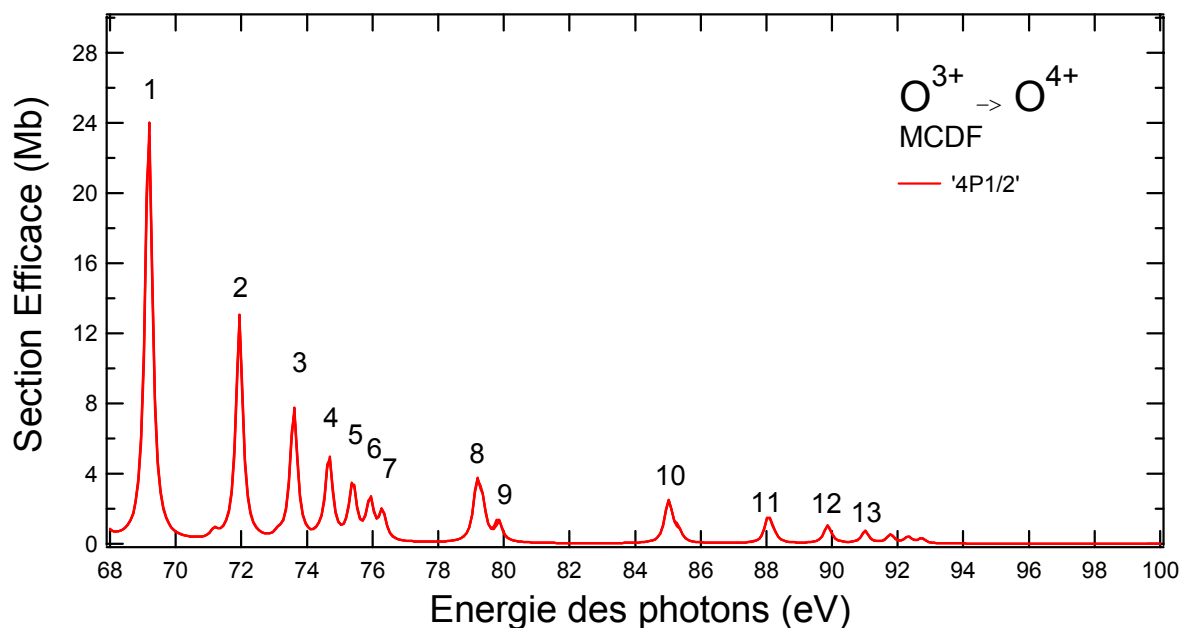
Principales transitions dipolaires à partir des niveaux ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+$


Figure 4-18 « Spectre de section efficace de photoexcitation à partir des niveaux du 4P d' O^{3+} calculé avec le code MCDF»

Le spectre de section efficace de photoexcitation à partir des niveaux métastables ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+$ (Figure 4-18) présente 13 raies principales. L'identification de la position attribuée à ces résonances sont présentées dans le Tableau 4-21.

Les transitions à partir des niveaux ${}^4P_{1/2,3/2}$ correspondent pour la grande majorité d'entre elles à des transitions vers des niveaux ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}$ et ${}^4D_{1/2,3/2,5/2,7/2}$. Notons également que le spectre est dominé par la présence de deux séries de Rydberg. La première concerne les résonances 1 à 7, et correspond à des transitions du type :

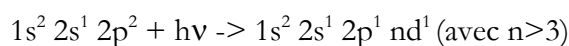
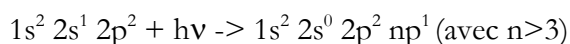


Tableau 4-21 « Identification des transition 1 à 13 du spectre 4-18 »

n°	Transitions* (Utilisé règles de sélections sur J)	Position de la résonances (eV)	Force d'oscillateur
1	${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 5d^1 {}^4D_{1/2,3/2,5/2,7/2}^-$ ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 5d^1 {}^4P_{1/2,3/2,5/2}$	69.203	$50.796 \cdot 10^{-3}$
2	${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 6d^1 {}^4D_{1/2,3/2,5/2,7/2}^-$ ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 6d^1 {}^4P_{1/2,3/2,5/2}$	71.951	$25.656 \cdot 10^{-3}$
3	${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 7d^1 {}^4F_{1/2,3/2,5/2,7/2}^-$ ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 7d^1 {}^4D_{1/2,3/2,5/2,7/2}^-$	73.617	$12.441 \cdot 10^{-3}$
4	${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 8d^1 {}^4F_{5/2,7/2}^-$ ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 8d^1 {}^4D_{1/2,3/2,5/2,7/2}^-$	74.7	-
5	${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 9d^1 {}^4D_{1/2,3/2,5/2,7/2}^-$	75.449	-
6	${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 10d^1 {}^2D_{1/2,3/2,5/2}^-$ ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 10d^1 {}^4D_{1/2,3/2,5/2,7/2}^-$ ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 10d^1 {}^4F_{1/2,3/2,5/2,7/2}^-$	75.949	-
7	${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 11d^1 {}^2D_{1/2,3/2,5/2}^-$ ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 11d^1 {}^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$ ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 11d^1 {}^4D_{1/2,3/2,5/2,7/2}^-$ ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 11d^1 {}^4F_{1/2,3/2,5/2,7/2}^-$	76.282	-
8	${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^0 2p^2 4p^1 {}^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$ ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^0 2p^2 4p^1 {}^4D_{1/2,3/2,5/2,7/2}^-$	79.196	$10.889 \cdot 10^{-3}$
9	${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^0 2p^2 4p^1 {}^2D_{3/2,5/2}^-$ ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^0 2p^2 4p^1 {}^2D_{3/2,5/2}^-$	79.863	-
10	${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^0 2p^2 5p^1 {}^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$ ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^0 2p^2 5p^1 {}^4D_{1/2,3/2,5/2,7/2}^-$	85.026	$6.473 \cdot 10^{-3}$
11	${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^0 2p^2 6p^1 {}^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$ ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^0 2p^2 6p^1 {}^4D_{1/2,3/2,5/2,7/2}^-$	88.024	$3.661 \cdot 10^{-3}$
12	${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^0 2p^2 7p^1 {}^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$ ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^0 2p^2 7p^1 {}^4D_{1/2,3/2,5/2,7/2}^-$	89.856	$2.497 \cdot 10^{-3}$
13	${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^0 2p^2 8p^1 {}^4P_{1/2,3/2,5/2}^-$ ${}^4P_{1/2,3/2,5/2}^+ \rightarrow 1s^2 2s^0 2p^2 8p^1 {}^4D_{1/2,3/2,5/2,7/2}^-$	91.022	-

La seconde série, plus haute en énergie de photons (transitions 8-13), correspond à l'excitation d'un électron 2s vers des sous-couches np de type :



4.3.2.3 Détermination de la section efficace de photoionisation directe

Le calcul de la variation de section efficace de photoionisation directe est effectué indépendamment de la section efficace de photoexcitation. Le nombre de configurations de base a été restreint afin de limiter la durée du calcul. Les six configurations retenues sont les configurations de type $O^{3+} [2s2p]^3$ et $O^{4+} [2s2p]^2$. La section efficace de photoionisation a été calculée en 10 points également espacés sur toute la gamme d'énergie de photon expérimentale. Ces valeurs sont présentées dans le Tableau 4.22 :

Tableau 4-22 « Sections efficaces de photoionisation directe calculées par MCDF »

Energie des Photons (eV)	$\sigma(^2P_{1/2})$ (Mb)	$\sigma(^2P_{3/2})$ (Mb)	$\sigma(^4P_{1/2})$ (Mb)	$\sigma(^4P_{3/2})$ (Mb)	$\sigma(^4P_{5/2})$ (Mb)
77	1.139	1.138	-	-	-
80	1.035	1.034	2.414	2.38	2.422
83	0.943	0.942	2.1862	2.166	2.207
86	0.862	0.861	1.996	1.977	2.017
89	1.456	1.462	1.827	1.808	1.847
92	1.365	1.372	1.674	1.656	1.693
95	1.284	1.291	1.538	1.552	1.556
98	1.461	1.468	1.916	1.898	1.93
101	1.3811	1.388	1.786	1.768	1.799
104	1.409	1.415	1.668	1.651	1.679
107	1.392	1.396	1.56	1.543	1.57

Expérimentalement, les composantes du terme 2P et du terme 4P n'étant pas séparées, leur contribution respective à la section efficace totale a été sommée en tenant compte du poids statistique g_{sij} de chacune. Puis ces valeurs ont été ajustées à des lois de puissance [éq. 4-9] afin de reproduire la variation des sections efficaces sur toute la gamme d'énergie expérimentale. Nous obtenons ainsi les spectres présentés sur la Figure 4-19:

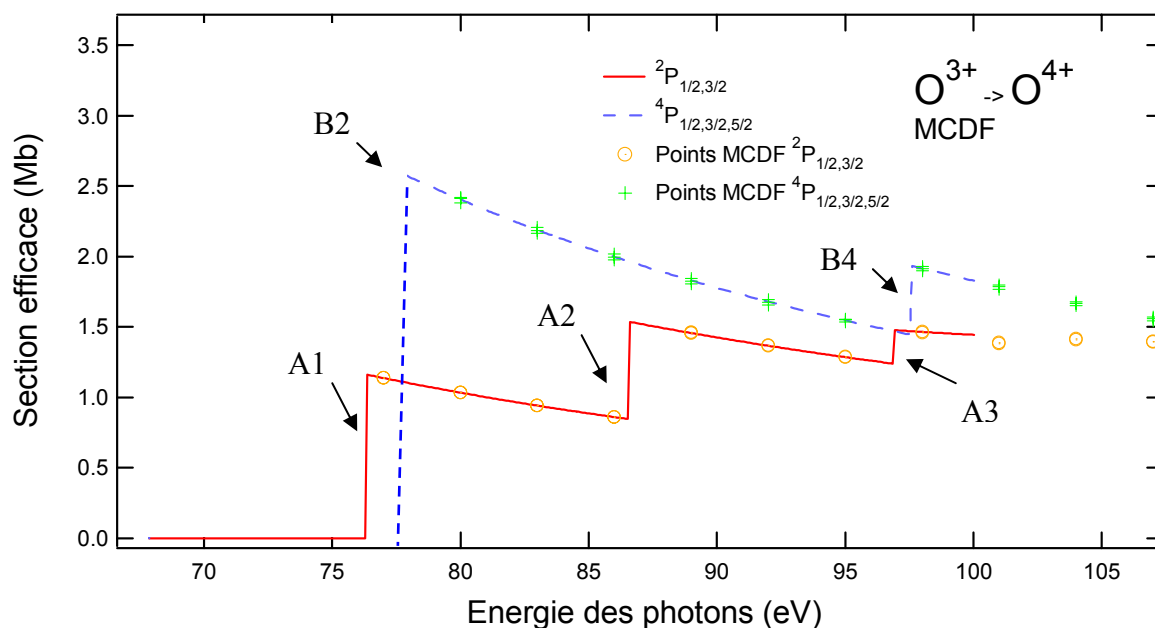
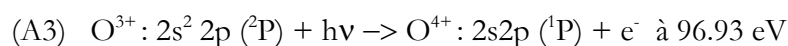
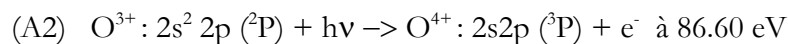
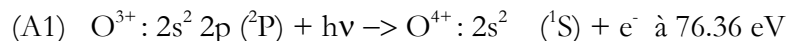
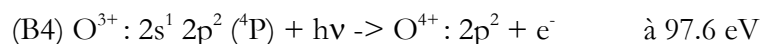
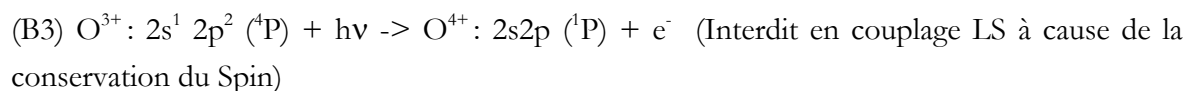
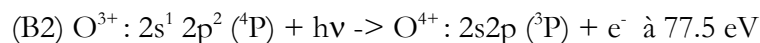
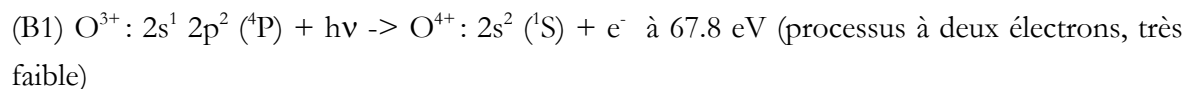


Figure 4-19 « Variation des sections efficaces de photoionisation directe ajustée à partir des résultats MCDF »

Le section efficace de photoionisation directe à partir des niveaux $^2P_{1/2,3/2}$ présente trois accroissements successifs à 76.3, 86.61 et 96.93 eV. Ces accroissements correspondent à l'ouverture des seuils d'ionisation vers les trois premiers niveaux d'O⁴⁺:



De la même manière, le spectre de section efficace d'ionisation directe MCDF à partir des niveaux $^4P_{1/2,3/2,5/2}$ d'O³⁺ présente trois seuils d'ionisations successifs :



4.3.3 Présentation et description des résultats Matrice-R

Les spectres Matrice-R présentés ici ont été calculés par S.Nahar en 2002. Les niveaux d'énergie et les positions des seuils ont déjà été donnés Tableau 4-17 (valeurs Matrice-R publiées en 1998). Le calcul est réalisé sur la base des 20 premiers niveaux d' O^{4+} . Ils ont pour configurations: $1s^2 2s^2$, $1s^2 2s 2p$, $1s^2 2p^2$, $1s^2 2s 3s$, $1s^2 2s 3p$ et $1s^2 2s 3d$.

Section efficace de photoionisation à partir du terme 2P

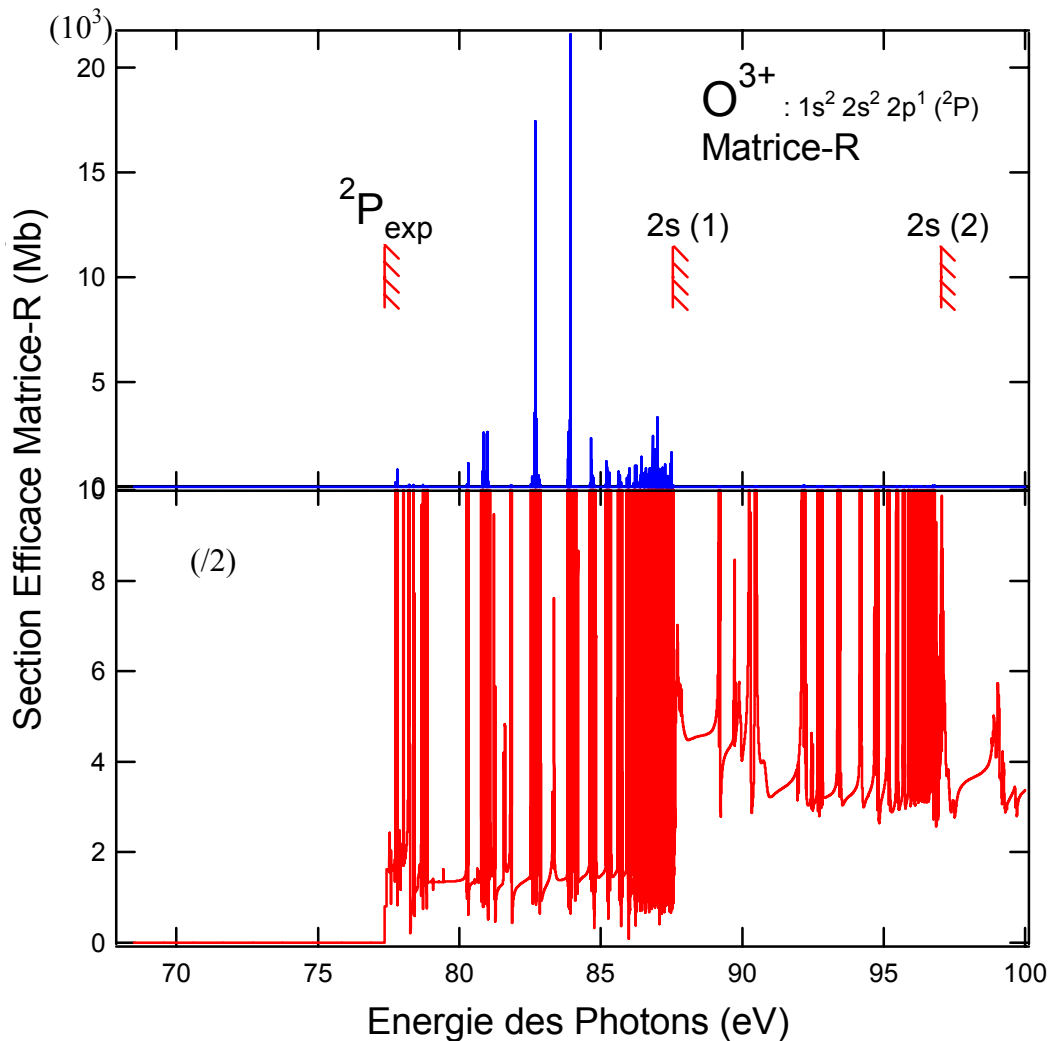
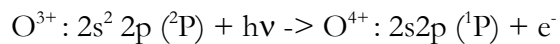
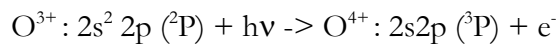


Figure 4-20 « Section efficace de photoionisation d' O^{3+} Matrice-R à partir du terme 2P »

Le spectre supérieur de la Figure 4-20 présente la variation de la section efficace de photoionisation pour une énergie de photons comprise entre 68 et 100 eV. Le spectre présenté dans la partie inférieure de la Figure 4-20 présente la même variation de la section

efficace agrandie de sorte à faire ressortir les détails des structures résonnantes et des seuils. L'échelle des ordonnées est à multiplier par 2.

Le seuil d'ionisation à partir du terme 2P , initialement calculé à 77.202 par S.Nahar en 1998, a été recalé sur le seuil du spectre expérimental à 77.25 eV. Notons la présence de deux séries de Rydberg qui convergent à 87.54 et 97.036 eV d'énergie de photons. Il s'agit très probablement des séries qui convergent vers les seuils 2s suivants :



Ces seuils ont précédemment été calculés à 86.60 eV et 96.93 eV par MCDF.

Section efficace à partir du terme 4P

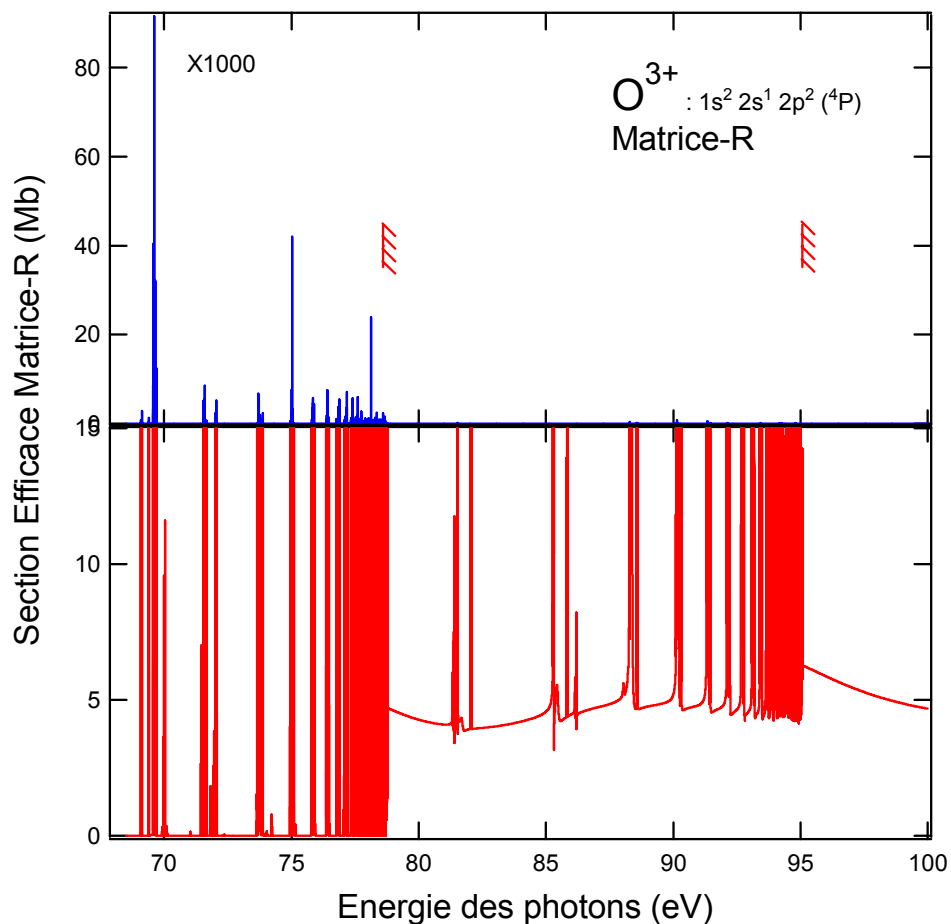
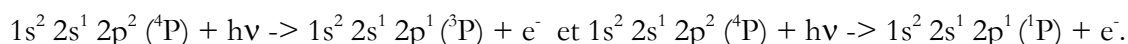


Figure 4-21 « Section efficace de photoionisation Matrice-R à partir du terme 4P d' O^{3+} »

La Figure 4-21 présente la variation de la section efficace de photoionisation à partir du terme 4P . Le seuil du 4P correspond au seuil calculé par S.Nahar en 1998 à 68.45 eV. Ce spectre est

dominé par la présence de deux séries de Rydberg bien séparées. Ces séries convergent à 78.80 et 95.09 eV d'énergie de photons. Il s'agit probablement des seuils des processus :



4.3.4 Construction des spectres théoriques MCDF et Matrice-R

Des spectres synthétiques ont été réalisés. Nous avons, grâce aux résultats du calcul MCDF, déterminé les pourcentages d'ions O^{3+} produits dans les états associés aux niveaux $^2P_{1/2,3/2}$ et dans les états métastables associés aux niveaux $^4P_{1/2,3/2,5/2}$. Nous nous sommes basés, pour cette détermination, sur la comparaison des intensités calculées par MCDF et mesurées du seuil d'ionisation d' O^{3+} associé au terme 2P , ainsi que sur la surface calculée par MCDF et expérimentale de la résonance n°1 du spectre de la Figure 4.17 produite uniquement à partir des niveaux du terme 4P . Les pourcentages obtenus sont donnés dans le Tableau 4-23 :

Tableau 4-23 « pourcentage d'ions O^{3+} produit dans les états associés au 2P et 4P »

Niveaux	Pourcentage
$2s^2 2p \ ^2P_{1/2,3/2}$	A% = 86 %
$2s^1 2p^2 \ ^4P_{1/2,3/2,5/2}$	B% = 14 %

Ainsi, le spectre résultant des calculs MCDF de section efficace totale pour l'ion O^{3+} est obtenu en trois étapes : Tout d'abord, les sections efficaces de photoexcitation et photoionisation directe sont sommées pour chaque niveau de départ. Puis les composantes j du terme 2P et du terme 4P sont sommées en tenant compte de leur poids statistique [éq. 4-9]. Enfin, les sections efficaces totales du 2P et 4P sont sommées en tenant compte cette fois-ci des pourcentages d'ions qui figurent dans le Tableau 4-23. Au final, la section efficace MCDF de photoionisation pour le spectre synthétique est telle que :

$$\sigma_{tot}^{MCDF}(h\nu) = A\%(\sigma_{2P}^{Ph}(h\nu) + \sigma_{2P}^{Ex}(h\nu)) + B\%(\sigma_{4P}^{Ph}(h\nu) + \sigma_{4P}^{Ex}(h\nu))$$

où $\sigma_x^{Ph}(h\nu)$ et $\sigma_x^{Ex}(h\nu)$ sont les sections efficaces de photoionisation et d'excitation pour les niveaux $x=^2P$ et 4P . Les spectres Matrice-R présentés Figures 4-20 et 4-21 sont sommés en utilisant les mêmes pourcentages qu'avec MCDF. Ils sont ensuite convolués par une gaussienne de largeur à mi-hauteur 0.25 eV.

Nous obtenons alors la Figure 4-22 qui présente le spectre expérimental et les spectres synthétiques Matrice-R et MCDF.

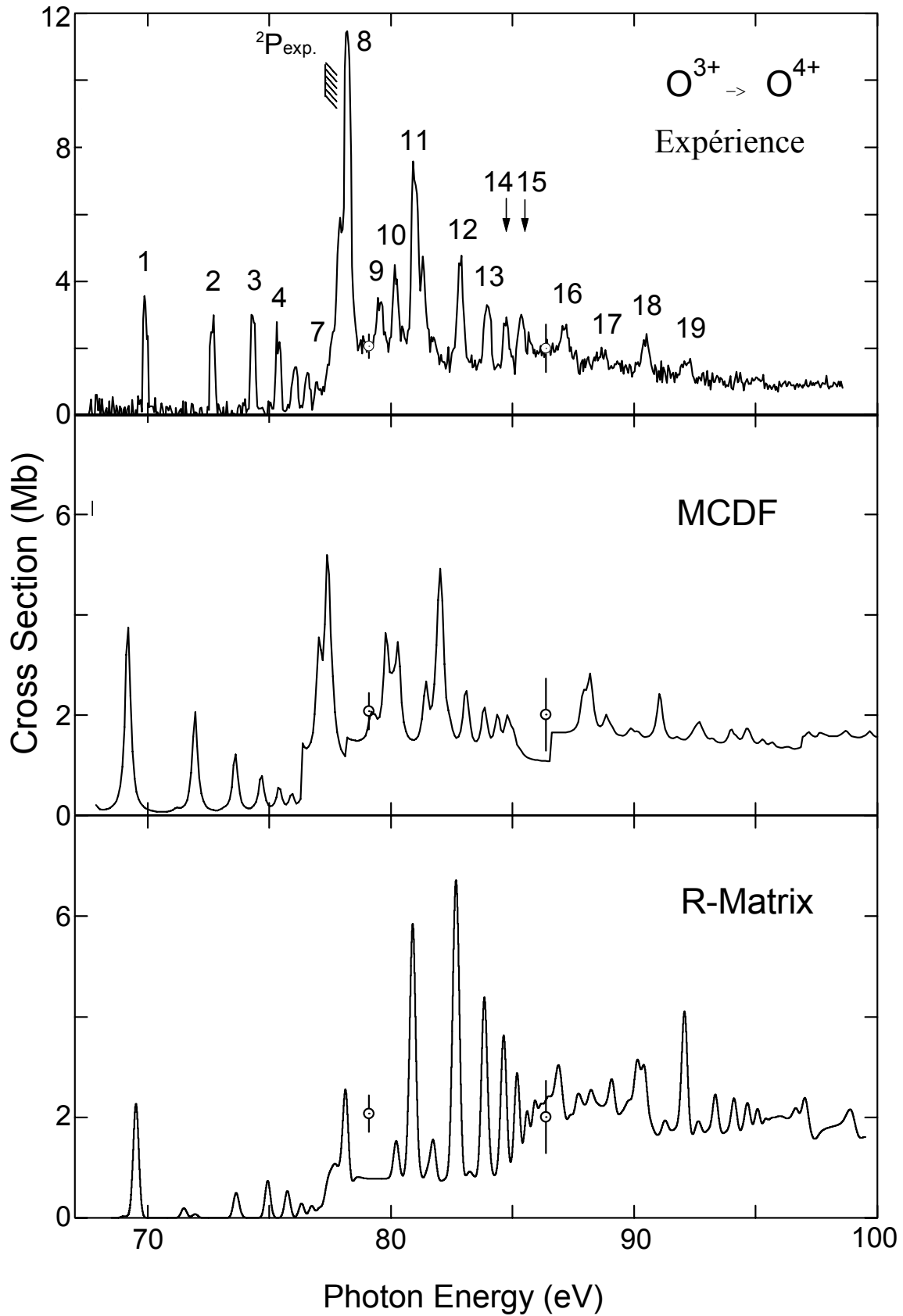


Figure 4-22 « Comparaison des spectres synthétiques MCDF et Matrice-R avec le spectre expérimental »

4.3.5 Interprétation et discussion

4.3.5.1 Interprétation du spectre expérimental sur la base des calculs MCDF

Grâce au spectre tiré du calcul MCDF nous avons tenté d'identifier les résonances observées dans le spectre expérimental. La Figure 4-23 présente, sur un même graphique, le spectre expérimental (spectre du haut) et les spectres MCDF (en bas) pour une gamme d'énergie de photons comprise entre 68 et 100 eV :

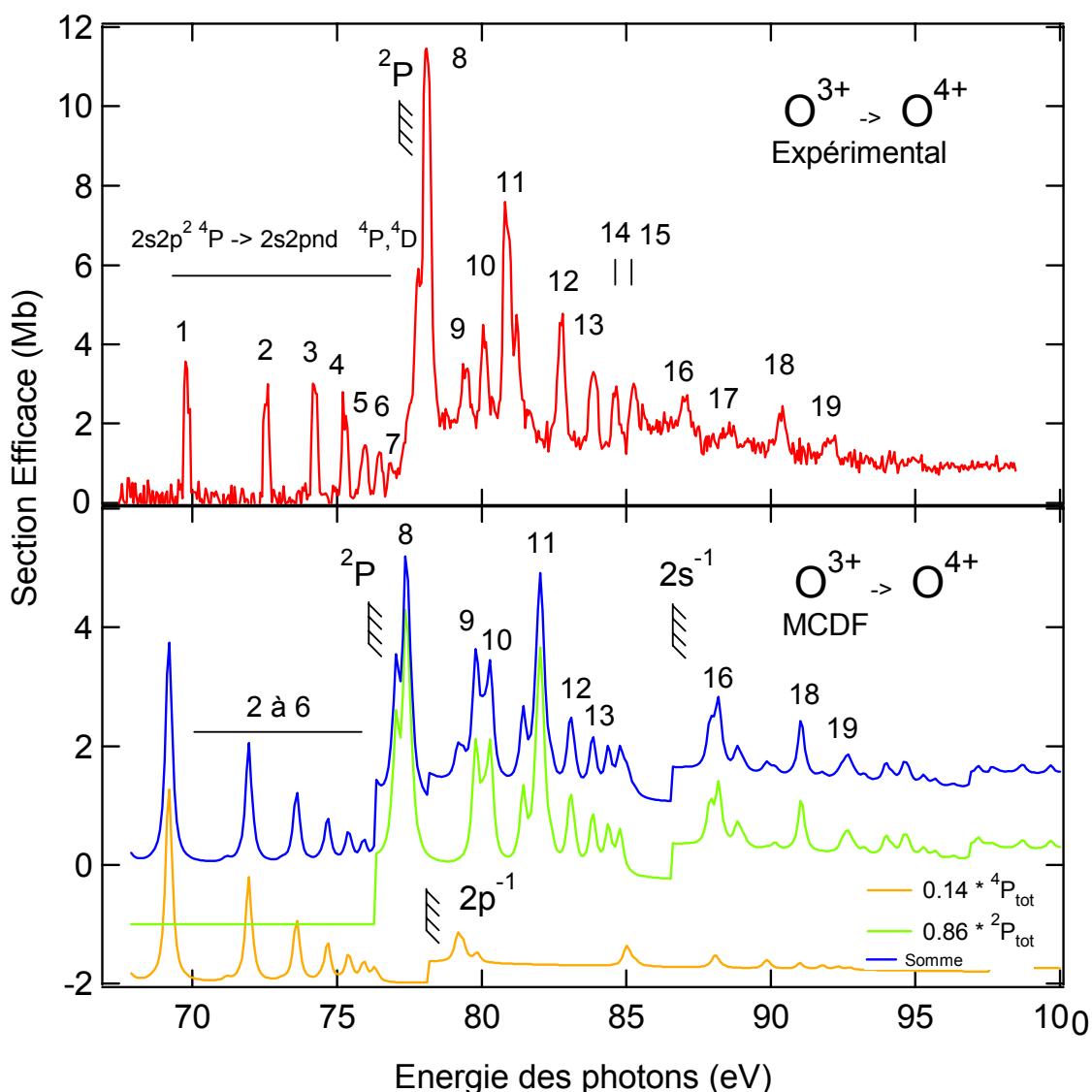


Figure 4-23 « Spectres MCDF et expérimental de la section efficace de photoionisation entre 68 et 100 eV »

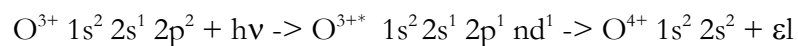
La section efficace MCDF totale de photoionisation, et les sections efficaces partielles MCDF de photoexcitation à partir des termes 2P et 4P pondérées par leur pourcentage respectif.

En comparant le spectre expérimental et les spectres MCDF, il ressort très clairement que les résonances 1 à 7 proviennent exclusivement du 4P , alors que les résonances 8 à 19 proviennent

essentiellement du 2P . Nous allons donc séparer les résonances qui sont situées en-dessous de 77.2 eV de celles placées au-dessus de ce même seuil.

Raies 1 à 7 en-dessous du seuil d'ionisation à partir du terme 2P

Le spectre basé sur le calcul MCDF de section efficace de la Figure 4-23 reproduit correctement les résonances 1 à 7 présentes dans le spectre expérimental. Ces résonances proviennent des niveaux $^4P_{1/2,3/2,5/2}$ et correspondent, d'après MCDF, à une série de Rydberg associée à la photoexcitation d'un électron en sous-couche 2p vers les orbitales nd, suivie d'une autoionisation vers O^{4+} :



Le spectre synthétique (MCDF) de la Figure 4.23 indique que les termes de cette série dont le nombre quantique principal n est inférieur à 5 ne donnent pas lieu à une autoionisation vers O^{4+} , car elles sont situées en-dessous du seuil d'ionisation à partir du terme 4P placé d'après les calculs MCDF à 67.85 eV. La position de la résonance associée à la photoexcitation d'un électron 2p vers la sous-couche 4d est calculée par MCDF à environ 64 eV (voir annexes), soit plus de 3 eV en-dessous du seuil d'ionisation à partir du terme 4P calculé par MCDF. Cette série converge au-dessus du seuil d'ionisation à partir de l'état fondamental d' O^{3+} puisque la raie expérimentale numéro 7 coïncide avec la transition : $O^{3+} 1s^2 2s^1 2p^2 + hv \rightarrow O^{3+*} 1s^2 2s^1 2p^1 11d^1$.

L'ouverture du seuil d'ionisation, qui correspond à la limite de convergence de la série vers la configuration $1s^2 2s^1 2p^1$ de l'ion O^{4+} , n'est pas observée expérimentalement. Aucun accroissement du fond continu notable n'est observé dans le spectre expérimental. L'observation de ce seuil et des résonances de $n > 11$ est rendue difficile par la présence des nombreuses résonances qui sont attribuées par MCDF à des photoexcitations à partir du terme 2P .

Afin de caractériser complètement cette série de Rydberg, nous avons pu déterminer sa limite de convergence ainsi que son défaut quantique, calculés par MCDF et déterminés expérimentalement. Pour cela, nous avons utilisé la même procédure que pour l'ion O^{2+} .

En « ajustant » les positions des raies 1 à 7 du spectre MCDF et du spectre expérimental, nous pouvons déterminer la limite de convergence de la série de Rydberg et son défaut quantique. La Figure 4-24 présente le résultat de l'ajustement des positions des résonances en fonction du nombre quantique principal.

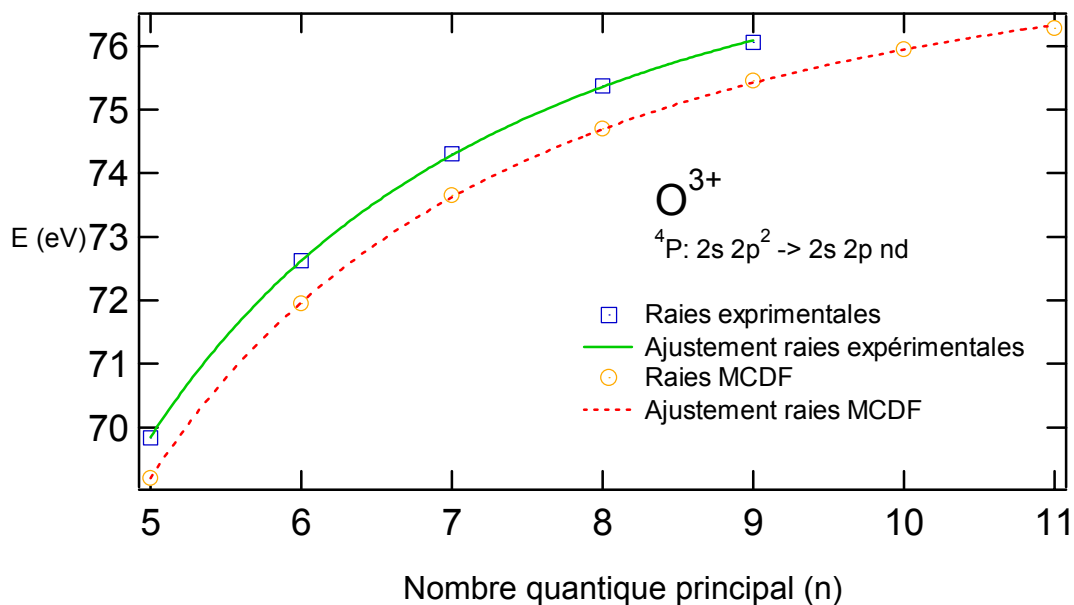
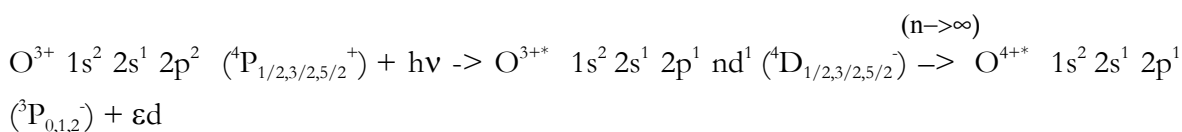


Figure 4-24 « Ajustement par une loi de puissance des positions des résonances 1 à 7 en fonction du nombre quantique principal »

La courbe supérieure correspond à l'ajustement par une loi de puissance de la série de raies calculées par MCDF, et la courbe inférieure à l'ajustement de la série expérimentale. Le seuil de convergence MCDF est trouvé à 78.15 eV d'énergie de photons et celui expérimental à 78.73 eV. Dans les deux cas, le défaut quantique déterminé pour cette série est de 0.07 ± 0.01 . Notons qu'il existe un décalage constant de 0.6 eV +/- 0.05 entre l'énergie des résonances calculée par MCDF et celle du spectre expérimental.

Grâce à la position du seuil, il est possible de déterminer le niveau d' O^{4+} vers lequel converge cette série, la configuration $1s^2\ 2s^1\ 2p^1\ d'O^{4+}$. Comme nous le détaillerons dans la partie consacrée à O^{4+} , les niveaux MCDF associés à cette configuration sont : $^3P_{0,1,2}$ situés à 10.250 eV du niveau fondamental d' O^{4+} ($2s^2\ ^1S_0^+$) et $^1P_1^-$ situé à 20.597 eV du fondamental. Rappelons que le seuil MCDF pour le fondamental d' O^{4+} à partir des niveaux 4P métastables d' O^{3+} est à $76.36 - 8.47 = 67.89$ eV d'énergie de photons. Ainsi le niveau d' O^{4+} vers lequel converge la série est le terme 3P , puisque $67.89 + 10.16 \sim 78.05$ eV ; ce qui est cohérent avec les 78.15 eV trouvés précédemment.

En conclusion, la série de Rydberg observée expérimentalement est identifiée par MCDF comme étant la série :



Identification des raies 8 à 19 au-dessus du seuil d'ionisation à partir du terme 2P

Les sections efficaces MCDF partielles présentées sur la Figure 4-23 indiquent que les résonances présentes au-dessus du seuil d'ionisation de l'état fondamental d' O^{3+} proviennent principalement des niveaux $^2P_{1/2,3/2}$. La contribution des résonances provenant du terme 4P sera négligée pour l'assignation des résonances expérimentales 8 à 19. Une identification des résonances 8 à 19 est proposée dans le Tableau 4-24.

Tableau 4-24 « Identification des résonances expérimentales 8 à 19 »

n°	Transitions	Pos. MCDF (eV)	Force d'oscillateur MCDF* (10^{-3})	Pos. Exp. (eV)	Force d'oscillateur Exp. (10^{-3})
8	$^2P_{1/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 \ ^2D_{3/2^+}$ $^2P_{3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 \ ^2D_{3/2,5/2^+}$	77.115	16.89	78.22 (6)	46.32
9	$^2P_{1/2^-} \rightarrow 2p^2 3d^1 \ ^2D_{3/2^+}$ $^2P_{3/2^-} \rightarrow 2p^2 3d^1 \ ^2D_{3/2,5/2^+}$	79.779	-	79.59 (7)	5.42
10	$^2P_{1/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 6p^1 \ ^4P_{1/2,3/2^+}$ $^2P_{3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 6p^1 \ ^4P_{1/2,3/2,5/2^+}$	80.279	13.27	80.24 (9)	5.69
11	$^2P_{1/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 7p^1 \ ^4P_{1/2,3/2^+}$ $^2P_{1/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 7p^1 \ ^2D_{3/2^+}$ $^2P_{3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 7p^1 \ ^2D_{3/2,5/2^+}$ $^2P_{3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 7p^1 \ ^4P_{1/2,3/2,5/2^+}$	82.028	-	81-81.37 (6)	24.68
12	$^2P_{1/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 8p^1 \ ^2D_{3/2^+}$ $^2P_{3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 8p^1 \ ^2D_{3/2,5/2^+}$	83.110	-	82.93 (6)	-
13	$^2P_{1/2,3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 9p^1 \ ^4D_{\ 3/2,5/2^+}$ $^2P_{1/2,3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 9p^1 \ ^2P_{1/2^+}$ $^2P_{1/2,3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 9p^1 \ ^4P_{3/2^+}$ $^2P_{3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 9p^1 \ ^4P_{5/2^+}$	83.79	12.10	84.05 (6)	6.88
14	$^2P_{1/2,3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 10p^1 \ ^4D_{1/2,3/2^+}$	-	-	84.83 (6)	4.35
15	$^2P_{1/2,3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 11p^1 \ ^4D_{1/2,3/2^+}$	-	-	85.48 (7)	2.80
16	$^2P_{1/2,3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 \ ^2D_{3/2^+}$ $^2P_{3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 \ ^2D_{5/2^+}$	87.941 ?	-	85.81 (7)	6.56
17	$^2P_{1/2,3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 \ ^2P_{1/2,3/2^+}$ $^2P_{1/2,3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 5p^1 \ ^2S_{1/2^+}$	-	4.99	87.25 (7)	4.06
18	$^2P_{1/2^-} \rightarrow 2p^2 4s^1 \ ^2D_{3/2^+}$ $^2P_{3/2^-} \rightarrow 2p^2 4s^1 \ ^2D_{3/2,5/2^+}$	91.022	-	90.62 (6)	4.10
19	$^2P_{1/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 6p^1 \ ^2P_{1/2,3/2^+}$ $^2P_{1/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 6p^1 \ ^2D_{3/2^+}$ $^2P_{3/2^-} \rightarrow 2s^1 2p^1 6p^1 \ ^2P_{3/2^+}, \ ^2D_{3/2,5/2^+}$	92.604	2.15	92.29 (7)	2.54

*Les forces d'oscillateur calculées par MCDF sont pondérées par la population d'ions O^{3+} dans l'état fondamental.

Remarquons que les résonances 8,10-15 semblent appartenir à une même série de Rydberg. Cette série correspond à l'excitation d'un électron en sous-couche 2s à partir de la configuration fondamentale d' $O^{3+} 2s^2 2p$ vers une configuration excitée de type $2s 2p np$.

Cette série semble très perturbée expérimentalement, et les intensités relatives ainsi que les forces d'oscillateur sont très mal reproduites par le calcul MCDF. Nous avons calculé sa limite de convergence et son défaut quantique associé en utilisant un ajustement suivant la loi de puissance [éq. 4-15]. Cet ajustement est présenté Figure 4-25 :

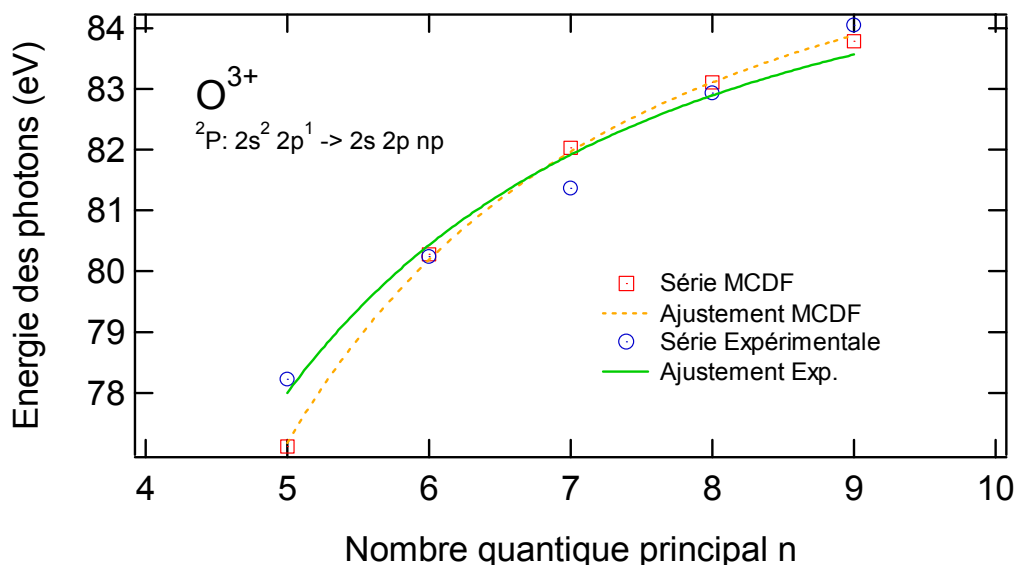


Figure 4-25 « Détermination de la limite de convergence de la série $2s^2 2p \rightarrow 2s2pnp$ »

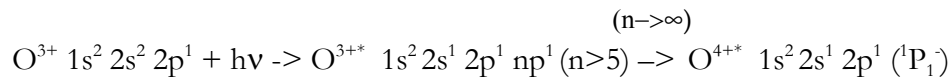
Dans cette figure sont présentés les résultats des ajustements des positions des énergies des raies (ronds bleus) de la série expérimentale et celles calculées par MCDF (carrés rouges) en fonction de leur nombre quantique principal. Les valeurs des seuils et des défauts quantiques déduits de ces ajustements sont données dans le Tableau 4-25 :

Tableau 4-25 « Seuils d'ionisation de la série de Rydberg calculés avec MCDF et de la série expérimentale »

Type	Seuil (eV)	Défaut quantique
MCDF	86.71 ± 0.07	0.22 ± 0.03
Exp.	86.06 ± 0.39	0.16 ± 0.22

Le seuil expérimental pour la série est calculé à 86.06 eV, ce qui est compatible avec le faible accroissement de la section efficace expérimentale observé dans le spectre expérimental aux alentours de 86.3 eV. Cette valeur du seuil est confirmée par le calcul MCDF.

Notons toutefois que la résonance $n=7$, c'est-à-dire la raie expérimentale $n^{\circ}11$, est très fortement décalée en énergie dans le spectre expérimental. Son intensité relative par rapport aux raies 10 et 12 de la série est également anormalement intense. Rappelons que, pour chaque configuration de la série, il existe un grand nombre de termes, et donc de transitions associées qui peuvent perturber le spectre expérimental. Malgré ces problèmes d'intensité relative, il est possible d'assigner les résonances 8,10 à 15 à la série de Rydberg suivante :



La limite de convergence de cette série de Rydberg tirée des calculs MCDF est de 86.71 eV. Elle concorde avec la position du niveau $2s2p {}^1P_1^-$ situé, d'après MCDF, à 20.60 eV au-dessus du niveau fondamental d' $O^{4+} 2s^2 {}^1S_0^+$. En d'autres termes, l'ouverture du seuil correspondant à l'ionisation directe en sous-couche 2p est donc située à $76.36 + 20.597$ eV d'énergie de photons, soit environ 86.9 eV, ce qui est effectivement observé expérimentalement à environ 86.5 eV. Cette valeur est cohérente avec l'allure de la section efficace de photoionisation directe calculée par le code MCDF (Tableau 4-22 et Figure 4-19).

L'identification des résonances 16 à 19 est donnée à titre indicatif. Elle est basée sur les forces d'oscillateur calculées par MCDF, mais la correspondance des énergies des transitions est peu satisfaisante.

4.3.5.2 Comparaison de la position des niveaux d'énergie

Dans le but de comparer les prédictions théoriques des divers codes de structure atomique et bases de données, nous avons regroupé, dans le tableau donné en annexe A-4, les positions en énergie des 30 premiers niveaux d' O^{3+} . Dans ce Tableau sont donnés dans l'ordre : les termes et configurations des niveaux calculés par MCDF, leurs positions MCDF en eV, les termes et configurations des niveaux tirés de la base de donnée du NIST suivis de leurs positions en eV, puis les termes et positions des niveaux Matrice-R d' O^{3+} calculés par S.Nahar, suivis de la position en eV de ces mêmes niveaux tirés de la base Opacity Project.

Notons que les positions en énergie diffèrent entre MCDF et la base de NIST jusqu'à près de 1eV pour certains niveaux. En revanche, MCDF et NIST sont en accord concernant les termes et configurations associés à ces 30 premiers niveaux. Il n'en est pas de même pour les résultats Matrice-R de S.Nahar de 1998 et de la base de données Opacity Project. En effet, si on omet l'écart en énergie, on constate que les termes des niveaux diffèrent pour Matrice-R à partir du 19^e niveau d'énergie. La présence de niveau supplémentaire dans MCDF et NIST par rapport à Matrice-R est probablement liée au fait que les calculs Matrice-R présentés ici ne sont pas relativistes.

Pour conclure cette comparaison, des différences significatives apparaissent pour la description des niveaux d'énergie d' O^{3+} selon que l'on utilise un code ou un autre. Ces différences se répercutent sur la position des seuils d'ionisation directe.

4.3.5.3 Comparaison des sections efficaces de photoionisation directe

Nous avons comparé pour O^{3+} les sections efficaces de photoionisation directe, calculées par MCDF et Matrice-R, avec celle mesurée expérimentalement. Le Tableau 4-26 regroupe

quelques points de section efficaces pris sur le spectre expérimental et comparés aux valeurs théoriques MCDF et Matrice-R. Des points extraits d'un calcul Dirac Slater [4.23] sont également présentés.

Tableau 4-26 « Comparaison des sections efficaces de photoionisation directe »

Position eV	Expérience Mb	D.S Mb	MCDF Mb	Matrice-R Mb
79	1.88 (3)	1.12	1.58	0.81
85	1.97 (15)*	0.93	1.72	1.24*
90	1.59 (10)*	0.81	1.67	2.06*
95	1.07 (8)	1.62	1.43	1.98
100	-	1.46	1.56	-

* Perturbée par la proximité d'une résonance

Les valeurs Matrice-R du tableau ci-dessus sont tirées directement des spectres de la Figure 4.22. Au regard du Tableau 4.26 et des spectres de la Figure 4.22, il apparaît clairement que la section efficace de photoionisation directe est sous-estimée par MCDF, R-Matrice et D.S entre le seuil 77.5 et 85.5 eV. Par ailleurs, la décroissance expérimentale de la section efficace de photoionisation directe avec l'énergie de photon est plus importante que celle calculée. Au-dessus de 85.5eV, les calculs théoriques surestiment alors la section efficace. Rappelons qu'un seuil $2s^{-1}$ a été identifié grâce au calcul MCDF aux alentours de 86.1 eV. Ce seuil apparaît clairement dans les spectres MCDF (Figure 4.22), et de façon spectaculaire dans le calcul Matrice-R à 86 eV (Figure 4.22), mais il n'est pas si marqué dans le spectre expérimental (85.1 eV). Cette remarque explique l'écart important entre les sections efficaces théoriques et expérimentales observé après 85 eV.

4.3.5.4 Comparaison des structures résonnantes des spectres

Les résonances 1 à 7 du spectre expérimental sont parfaitement reproduites et identifiées par le spectre MCDF. Par contre, les résultats du calcul matrice-R semblent avoir du mal à reproduire correctement les forces d'oscillateur de ces mêmes résonances. La résonance expérimentale n°8 apparaît dans les deux calculs juste au-dessus du seuil 2P . Notons toutefois que l'intensité Matrice-R pour cette résonance est près de 3 fois plus faible que celle qui est observée expérimentalement. Les détails des résonances 9 à 12, tant sur le plan des énergies que sur celui des amplitudes, sont mal reproduits par les deux calculs. Par contre, les deux calculs semblent bien reproduire la présence de la série de Rydberg (résonances expérimentales 11 à 15) qui converge aux alentours de 85.5 eV.

4.4 Résultats sur l'ion O^{4+}

4.4.1 Présentation des résultats expérimentaux

La variation relative de la section efficace de photoionisation pour l'ion O^{4+} a été mesurée pour une gamme d'énergie de photons qui s'étend de 100 à 130 eV. Le spectre obtenu est présenté sur la Figure 4-26 :

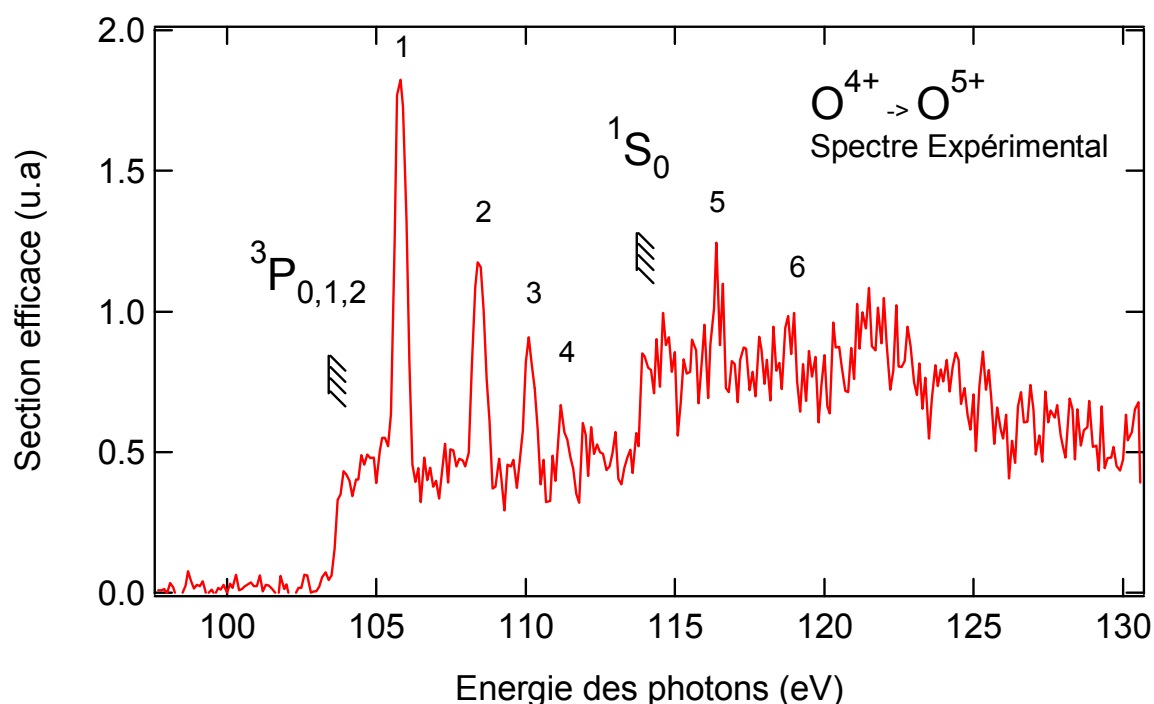


Figure 4-26 « Section efficace expérimentale de photoionisation pour l'ion O^{4+} »

Contrairement à O^{2+} et O^{3+} , nous n'avons pas réussi sur SU6 à mesurer des sections efficaces absolues pour normaliser nos spectres. La résolution expérimentale varie ici de 0.25 à 0.5 eV.

Identification des seuils d'ionisation

Le spectre de la Figure 4-26 présente deux accroissements successifs du fond continu à 103.49 eV et 113.67 eV. Ces accroissements de la section efficace expérimentale correspondent à l'ouverture des seuils d'ionisation directe à partir des niveaux : $1s^2 2s 2p \ ^3P_{0,1,2}^+$ (103.49 eV) et $1s^2 2s^2 \ ^1S_0^+$ (113.67 eV). Ces assignations sont confirmées par les valeurs du Tableau 4-27 qui regroupe les positions des 5 premiers niveaux d' O^{4+} tirées de la table du NIST, des calculs MCDF et Matrice-R, ainsi que de la base Opacity Project.

Tableau 4-27 « Positions relatives des niveaux pour O⁴⁺ »

Configuration	Niveaux (^{2s+1} L _J ^π)	Exp.	NIST	MCDF	Opacity – Project = Matrice-R (S.Nahar 98)
1s ² 2s ²	¹ S ₀ ⁺	113.67 (13)	113.89	113.54	113.65
1s ² 2s 2p	³ P ₀ ⁻	103.49 (5)	103.73	103.30	103.47
	³ P ₁ ⁻	-	103.71	103.28	-
	³ P ₂ ⁻	-	103.59	103.24	-
	¹ P ₁ ⁻	-	94.202	92.94	93.72

L'absence de fond continu et de résonances en-dessous de 103.65 eV d'énergie de photons indique que seuls les niveaux ¹S₀⁺ et ³P_{0,1,2}⁻ sont peuplés dans le faisceau d'ion O⁴⁺. L'écart en énergie entre les deux seuils expérimentaux (10.18 eV) est en très bon accord avec l'écart entre les niveaux ¹S₀⁺ et ³P_{0,1,2}⁻ de la table de NIST, MCDF et Matrice-R (~10.16 eV). La résolution expérimentale ne permet pas de séparer les trois composantes du terme ³P.

Identification des structures résonnantes

Le spectre expérimental présente 5 résonances. Compte tenu des positions des seuils d'ionisation, il est clair que les résonances 1 à 4 correspondent uniquement à des transitions à partir de la configuration 1s² 2s 2p (³P). Les positions et forces d'oscillateur des 5 raies expérimentales sont récapitulées dans le Tableau 4-28.

Tableau 4-28 « Détail des résonances du spectre expérimental d'O⁴⁺ »

n°	Niveau initial	Position de la résonance (eV)	Force d'oscillateur (10 ⁻³)
1	³ P _{0,1,2} ⁻	105.81 (12)	5.9 ± 0.7
2	³ P _{0,1,2} ⁻	108.45 (10)	3.2 ± 0.4
3	³ P _{0,1,2} ⁻	110.13 (11)	2.1 ± 0.4
4	³ P _{0,1,2} ⁻	111.25 (21)	1.3 ± 0.5
5	³ P _{0,1,2} ⁻ + ¹ S ₀ ⁺	116.41 (15)	1.1 ± 0.6
6	³ P _{0,1,2} ⁻ + ¹ S ₀ ⁺	118.90 (20)	-

4.4.2 Résultats MCDF sur O^{4+}

4.4.2.1 Seuils d'ionisation et niveaux d'énergie

Les positions des niveaux d'énergie et des seuils d'ionisation ont été calculées à l'aide du code MCDF. Pour ce calcul, les 41 configurations choisies sont les configurations suivantes : $1s^2 [2s2p]^2$ et $[2s2p]^1nl$ avec $n=3$ à 9 et $l=0,1,2$, ainsi que les configurations d' O^{5+} : $1s^2 2s^1$ et $1s^2 2p^1$. Les cinq premiers niveaux d' O^{4+} sont présentés dans le Tableau 4-28.

4.4.2.2 Section efficace de photoexcitation

Les sections efficaces de photoexcitation entre 100 et 130 eV à partir des niveaux 1S_0 et $^3P_{0,1,2}$ sont présentées sur la Figure 4-27 :

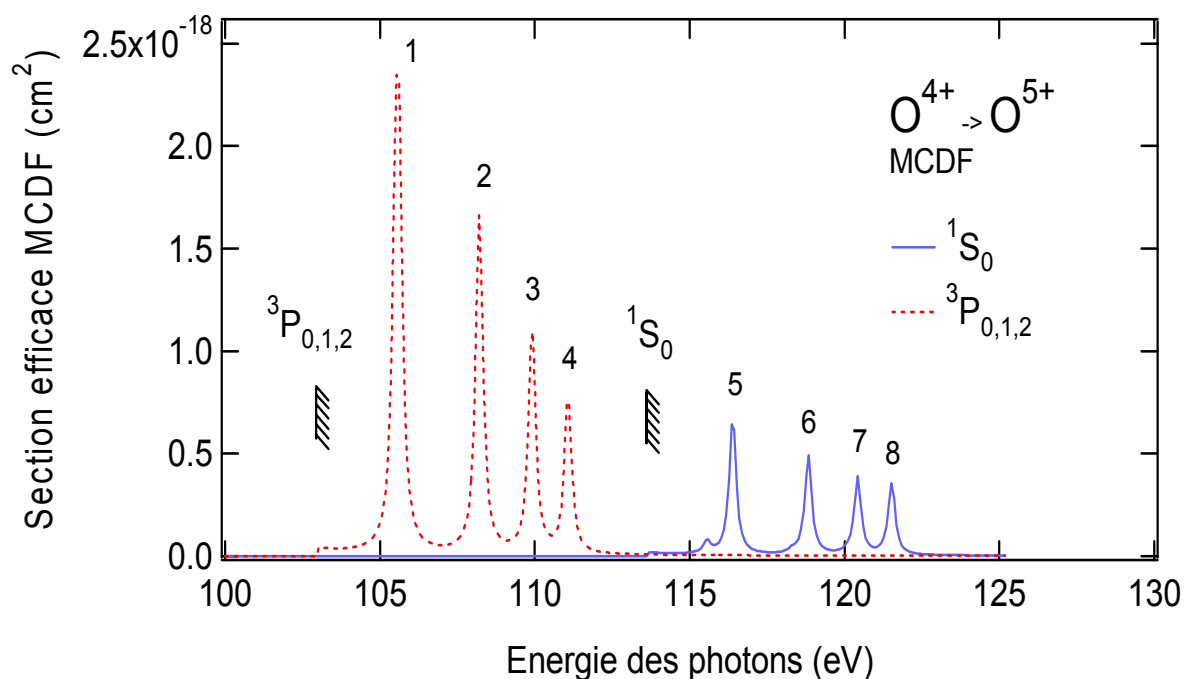


Figure 4-27 « Sections efficaces de photexcitation MCDF pour O^{4+} »

La courbe en pointillés correspond à la somme pondérée des sections efficaces à partir des niveaux $^3P_{0,1,2}$. La courbe pleine correspond à la section efficace à partir du niveau fondamental d' O^{4+} . Les spectres ont été convolués par une Lorentzienne de 0.25 eV de largeur à mi-hauteur pour simuler la bande passante expérimentale.

Transitions à partir du $^1S_0^-$:
Tableau 4-29 « Principales transitions calculées par MCDF à Partir du $^1S_0^+$ »

n°	Configuration finale	Transition	Energie MCDF (eV)	Force d'oscillateur $\times 10^{-4}$
1	$1s^2 2p^1 6d^1$	$^1S_0^+ \rightarrow ^1P_1^-$	116.39	3.53
2	$1s^2 2p^1 7d^1$	$^1S_0^+ \rightarrow ^1P_1^-$	118.83	2.55
3	$1s^2 2p^1 8d^1$	$^1S_0^+ \rightarrow ^1P_1^-$	120.42	1.91
4	$1s^2 2p^1 9d^1$	$^1S_0^+ \rightarrow ^1P_1^-$	121.52	1.76

Sur cette gamme d'énergies, le spectre de photoexcitation à partir du niveau $^1S_0^+$ de l'ion O^{4+} correspond, d'après le calcul MCDF, à une série de Rydberg. Cette série correspond à l'excitation « simultanée » des deux électrons en sous-couche 2s rendue possible grâce aux mélanges de configurations. Il est étonnant de constater qu'un processus faisant intervenir deux électrons domine le spectre MCDF sur cette gamme d'énergies de photons. En principe, ce type d'excitation a une section efficace très faible comparée à celle des transitions de type $2s^2 \rightarrow 2s np$.

Transition à partir du $^3P_{0,1,2}^-$

Seules les transitions les plus intenses situées à des énergies plus grandes que la valeur du seuil MCDF 3P (103.3 eV) seront considérées.

Tableau 4-30 « Principales transitions calculées par MCDF à partir des niveaux $^3P_{0,1,2}^-$ »

n°	Configuration finale	Transition	Energie (eV)	Force d'oscillateur $\times 10^{-4}$
1	$1s^2 2p^1 6p^1$	$^3P_0^- \rightarrow ^3D_1^+$	105.51	7.71
		$^3P_0^- \rightarrow ^3S_1^+$	105.56	4.16
		$^3P_0^- \rightarrow ^3P_1^+$	105.66	2.12
		$^3P_1^- \rightarrow ^3D_2^+$	105.50	6.13
		$^3P_1^- \rightarrow ^3P_0^+$	105.62	2.24
		$^3P_1^- \rightarrow ^3P_2^+$	105.66	1.81
		$^3P_2^- \rightarrow ^3D_3^+$	105.50	5.88
		$^3P_2^- \rightarrow ^3P_2^+$	105.62	5.56
		$^3P_2^- \rightarrow ^3P_1^+$	105.61	3.06
2	$1s^2 2p^1 7p^1$	$^3P_0^- \rightarrow ^3P_1^+$	108.24	1.97
		$^3P_0^- \rightarrow ^3D_1^+$	108.18	4.99
		$^3P_1^- \rightarrow ^3D_2^+$	108.16	3.92
		$^3P_1^- \rightarrow ^3P_1^+$	108.23	2.06
		$^3P_2^- \rightarrow ^3D_3^+$	108.17	3.56
		$^3P_2^- \rightarrow ^3P_2^+$	108.24	3.53
3	$1s^2 2p^1 8p^1$	$^3P_2^- \rightarrow ^3P_1^+$	108.23	1.95
		$^3P_0^- \rightarrow ^3P_1^+$	109.89	3.7
		$^3P_1^- \rightarrow ^3D_2^+$	109.88	2.62
		$^3P_2^- \rightarrow ^3D_3^+$	109.88	2.29
4	$1s^2 2p^1 9p^1$	$^3P_2^- \rightarrow ^3P_2^+$	109.93	2.40
		$^3P_0^- \rightarrow ^3P_1^+$	111.06	2.77

En résumé, les transitions 1 à 4 appartiennent à une série de Rydberg. Elles correspondent à la photoexcitation d'un électron en sous-couche 2s à partir de la configuration $1s^2 2s 2p$ vers des sous couches np ($n < 10$). Les raies 1 à 4 de cette série regroupent de multiples transitions entre niveaux que la résolution instrumentale empêche de distinguer.

4.4.2.3 Détermination de la section efficace de photoionisation

Le calcul MCDF de la section efficace de photoionisation directe est réalisé en utilisant les configurations de base $1s^2 [2s2p]^2$ et $1s^2 [2s2p]^1$. Le Tableau 4-31 regroupe les valeurs des sections efficaces calculées entre 106 et 124 eV :

Tableau 4-31 « Points de section efficace de photoionisation directe calculés par MCDF pour O^{4+} »

Energie des photons (eV)	$\sigma(^3P_{0,1,2})$ (Mb)	$\sigma(^1S_0^+)$ (Mb)
106	0.6045	-
109	0.5627	-
112	0.5213	-
115	0.4855	0.7026
118	-	0.6676
121	-	0.6536
124	-	0.6036

Ces valeurs ont été ajustées par une loi de puissance sur toute la gamme d'énergie expérimentale, soit de 100 à 130 eV. Le résultat de cette ajustement est présenté sur la Figure 4-28 :

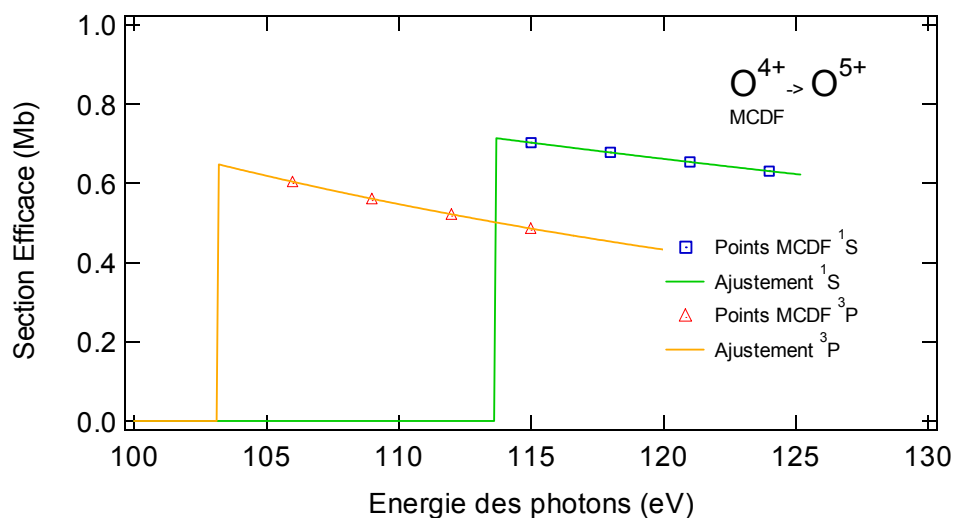


Figure 4-28 « Sections efficaces de photoionisation directe calculées par MCDF »

Les composantes du 3P ont été sommées en tenant compte de leurs poids statistiques. Qu'il s'agisse des sections efficaces à partir du 3P ou du 1S , les deux sections efficaces seront inférieures au Mb. Elles seront par la suite sommées aux sections efficaces de photoexcitation afin de construire un spectre synthétique.

4.4.3 Résultats Matrice-R

Pour ces calculs Matrice-R, S. Nahar a représenté les fonctions d'ondes « d' O^{4+} et celle d' O^{5+} + électron libre » sur la base des neuf configurations : $[1s^2 nl]$ avec $n=2-4$ et $l=0-3$.

Les sections efficaces de photoionisation à partir des termes 3P et 1S sont présentées sur les Figures 4.29 (1S) et 4.30 (3P). Il s'agit ici de calculs non relativistes.

Section efficace à partir du terme 1S

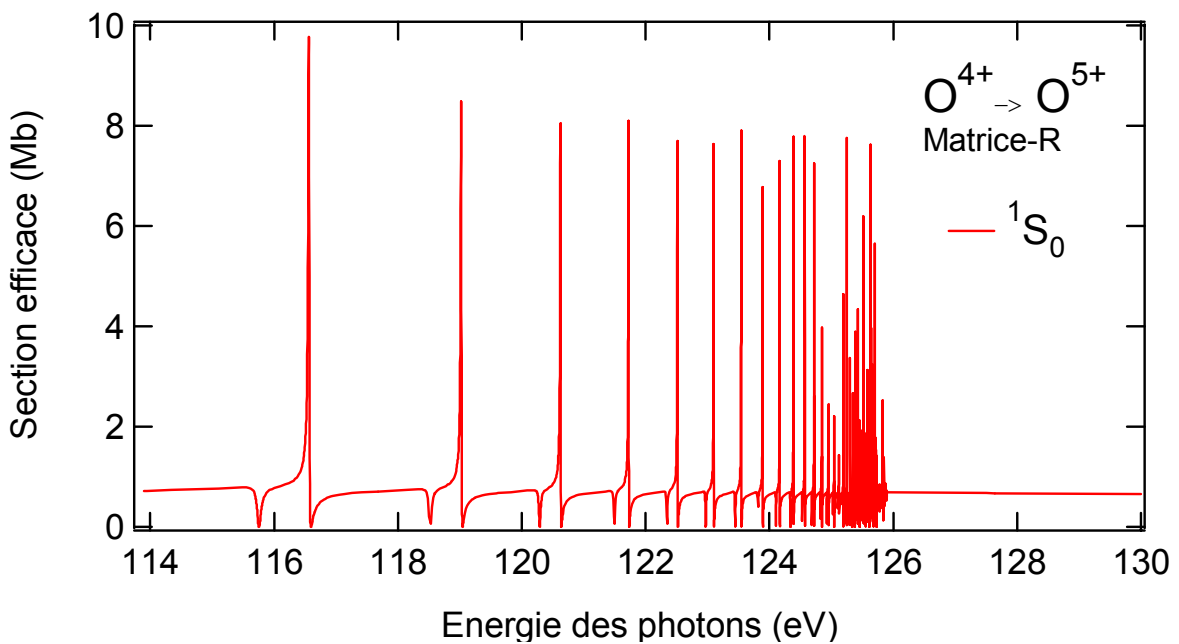


Figure 4-29 « Section efficace Matrice-R à partir de 1S_0 »

Nous observons dans le spectre une série de raies appartenant à une ou plusieurs séries de Rydberg qui convergent vers 125.89 eV.

Section efficace à partir du terme 3P

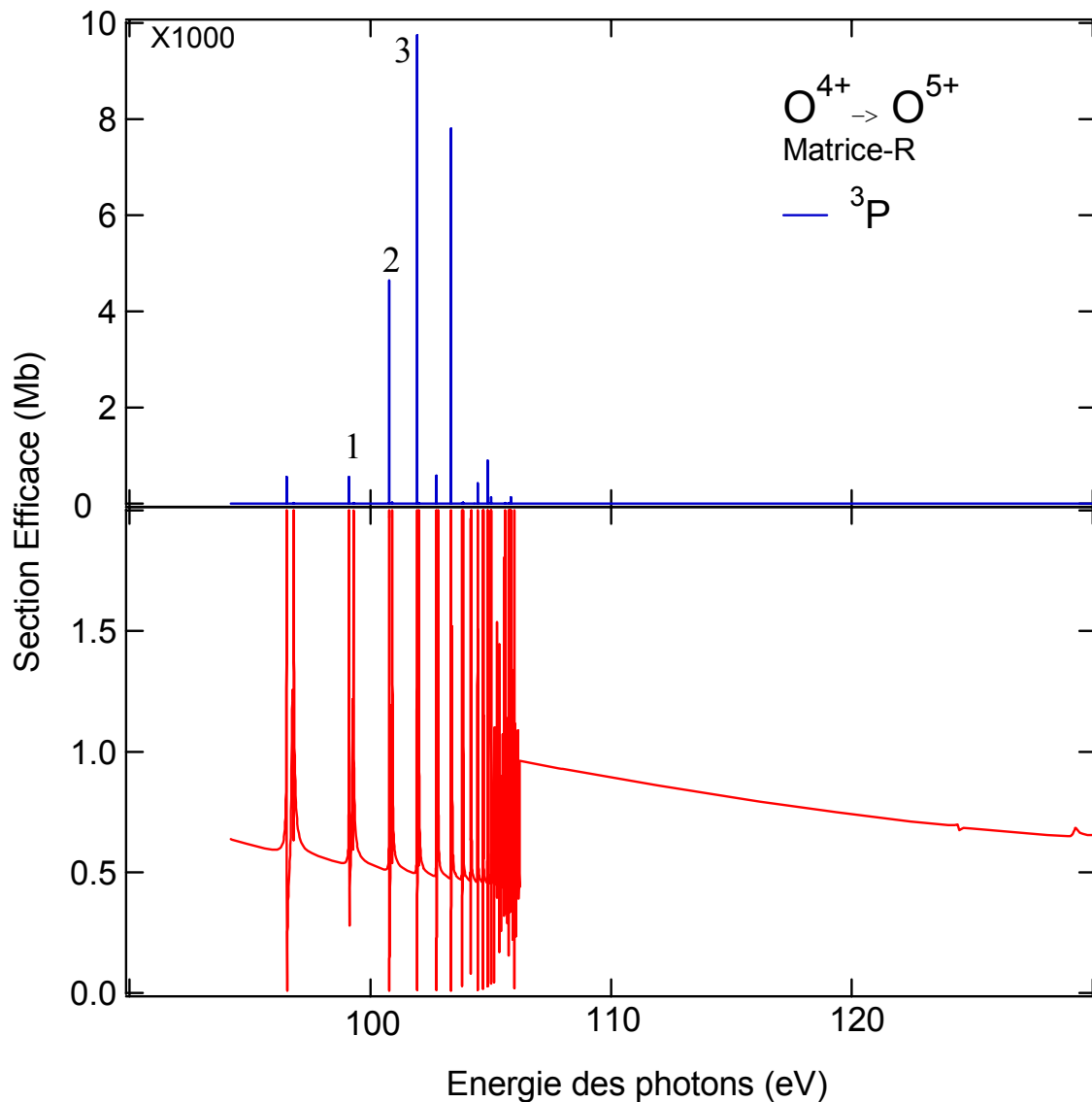


Figure 4-30 « Section efficace Matrice-R à partir de 3P »

On constate que la force d'oscillateur des résonances à partir de 3P est beaucoup plus intense que pour celles à partir du 1S . Par contre, les sections efficaces de photoionisation directe sont du même ordre de grandeur. Le spectre est dominé par la présence d'une ou plusieurs séries de Rydberg qui convergent vers 106.21 eV.

4.3.4 Pourcentage d'ions métastables

Un spectre synthétique construit à partir des résultats MCDF a été réalisé afin d'interpréter notre spectre expérimental. Cette fois-ci, le spectre expérimental indique que seuls les quatre premiers niveaux de l'ion O^{4+} sont à considérer, ceux associés aux termes 1S et 3P . Expérimentalement, nous observons les deux seuils associés à ces termes. Le premier correspond au 3P , alors que le second est la somme des sections efficaces de photoionisation directe à partir des termes 3P et 1S . Nous avons donc directement le pourcentage d'ion O^{4+} associé aux termes 3P et 1S :

$$S_1 = A_{\%} \sigma_{3p}$$
$$S_2 = A_{\%} \sigma_{3p} + B_{\%} \sigma_{1s}$$

Connaissant les hauteurs S_1 et S_2 des seuils expérimentaux ainsi que le rapport des sections efficaces de photoionisation directe MCDF $\sigma(^3P)/\sigma(^1S)$, nous trouvons que les deux termes sont peuplés de manière équivalente ($A_{\%}=B_{\%}\sim 50\%$).

Ces pourcentages connus, nous pouvons construire les spectres synthétiques MCDF en sommant les sections efficaces de photoionisation directe et de photoexcitation pour chaque terme en tenant compte de leur population relative. Ce spectre est présenté sur la Figure 4-31.

4.3.5 Interprétation du spectre expérimental sur la base des résultats MCDF

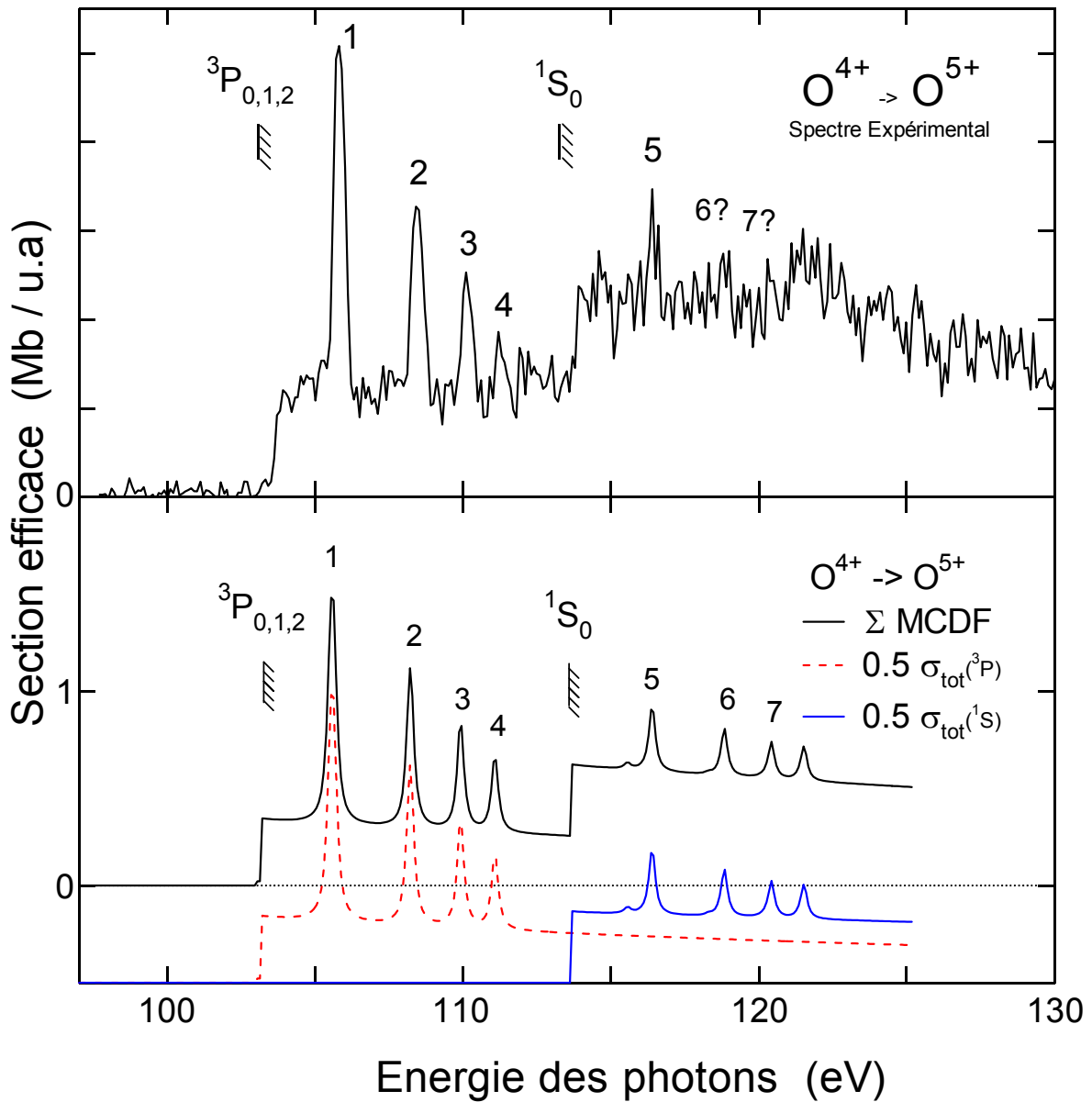
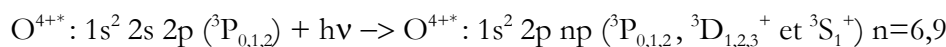


Figure 4-31 « Spectre expérimental comparé au spectre de photoionisation calculé avec MCDF »

La Figure 4-31 présente, sur la même gamme d'énergie de photons, le spectre expérimental (en haut) et les spectres MCDF (en bas) de photoionisation de O^{4+} . Les contributions 3P (en pointillés) et 1S (trait plein) sont présentées décalées de -0.5 Mb.

Identification des résonances expérimentales 1 à 4 :

Les raies expérimentales 1 à 4 correspondent à la série de Rydberg :



Si on calcule à présent la position du seuil de cette série de raies grâce à un ajustement par une loi de puissance, nous obtenons la Figure 4.32 ci-dessous pour les raies MCDF et expérimentales :

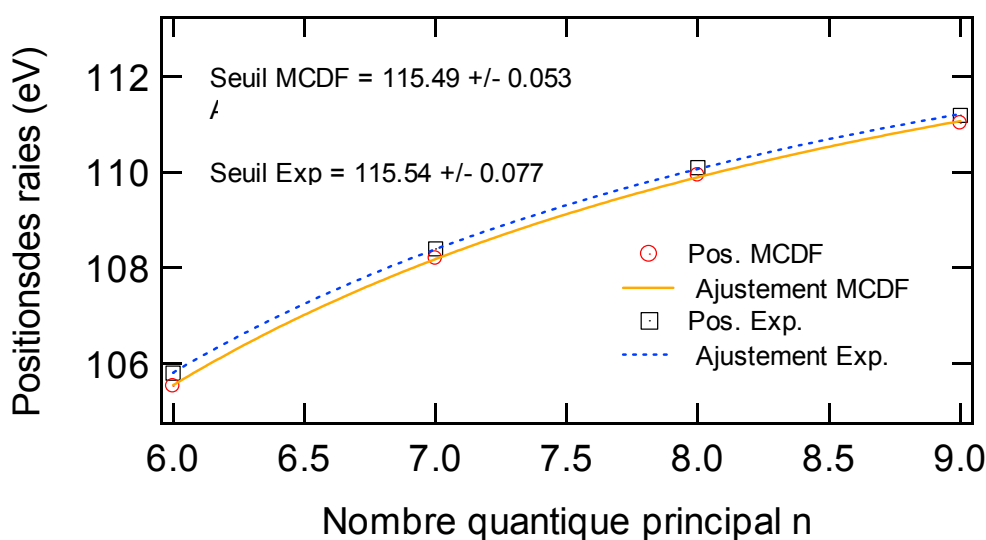


Figure 4-32 « Ajustement par une loi de puissance des positions expérimentales et MCDF des raies 1 à 4 »

Dans les deux cas, la limite de convergence est aux alentours de 115.5 eV, c'est-à-dire 1.8 eV au-dessous du seuil du fondamental à 113.7 eV. Cette limite de convergence correspond aux niveaux $^2P_{1/2,3/2}$ d' O^{5+} .

Identification des résonances expérimentales 5 à 7 :

Les résonances à partir du niveau fondamental $^1S_0^+$ sont beaucoup moins intenses que les raies 1 à 4. Seule la résonance expérimentale n°5 sort distinctement du bruit de fond. Toutefois, des fluctuations de la section efficace expérimentale apparaissent pour des énergies proches des énergies calculées pour les raies 6 et 7. Ainsi, la transition expérimentale n°5 correspond bien à la première résonance n=6 de la série de Rydberg MCDF $1s^2 2s^2 \rightarrow 1s^2 2p nd$ (n>5). Cette série converge à 125.46 eV d'énergie de photon. Cette limite de convergence correspond au seuil d'ionisation en sous-couche 2p à partir du fondamental.

Récapitulation des identifications :

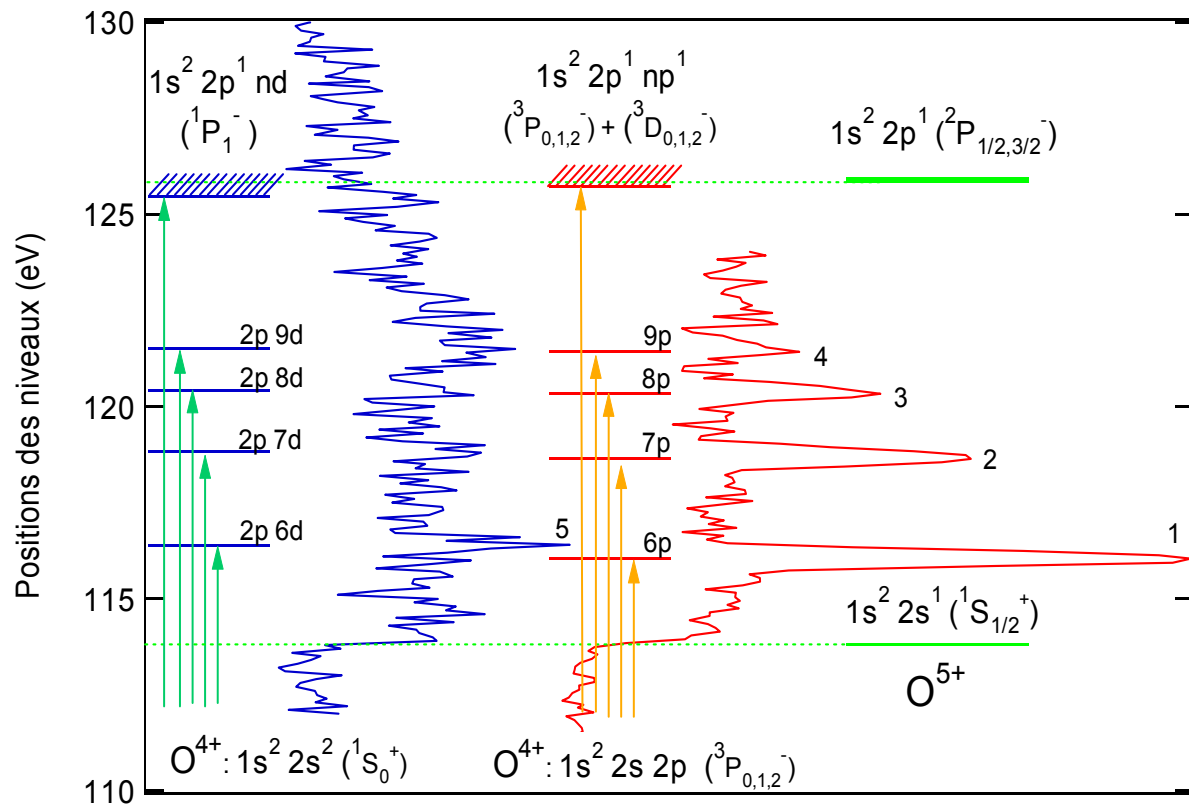


Figure 4-33 « Schéma des niveaux d'O4+ et O5+ »

La Figure 4-33 présente un récapitulatif des identifications des résonances expérimentales à partir des résultats MCDF. Les limites de convergence des séries de Rydberg calculées par MCDF sont également présentées. La référence en énergie de ces niveaux d'énergie est donnée par la position du niveau fondamental de l'ion $O^{4+} ({}^1S_0^+)$. A droite de chaque série de niveaux d' O^{4+} est présentée la portion de spectre expérimental recalée en énergie par rapport au seuil d'ionisation directe expérimental vers le niveau fondamental d' O^{5+} , de sorte que l'échelle d'énergie soit référencée en valeur absolue par rapport au niveau fondamental ${}^1S_0^+$ de l'ion O^{4+} . On s'abstrait ainsi de l'échelle d'énergie de photons qui dépend du niveau de départ de l'ion considéré. Les portions de spectres expérimentaux de photoionisation issus de 1S et de 3P sont alors directement comparables au schéma de niveaux. Le seuil d'ionisation directe vers les niveaux $1s^2 2p ({}^2P_{1/2,3/2}^-)$ d' O^{5+} n'est pas clairement observé expérimentalement alors qu'il devrait se situer aux alentours de 125.5 eV.

4.3.6 Comparaisons des Spectres Exp./MCDF/Matrice-R

Les résultats des calculs MCDF et Matrice-R sont comparés au spectre expérimental dans la Figure 4-34. Le pourcentage d'ion métastable utilisé pour le spectre synthétique Matrice-R est le même que celui MCDF.

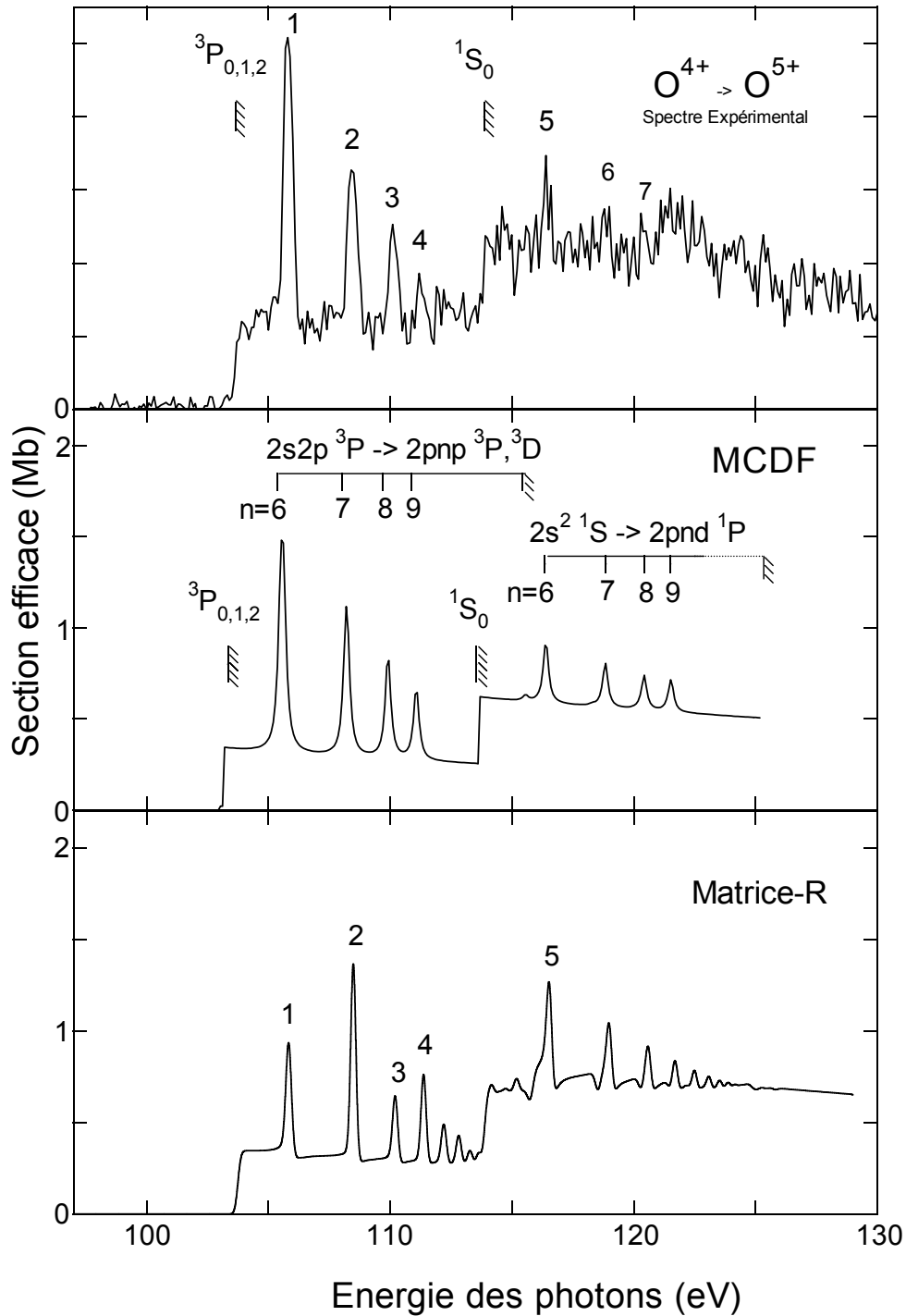


Figure 4-34 « Comparaison des spectres expérimentaux, MCDF et Matrice-R »

Sur la Figure 4-34, le spectre Matrice-R est construit en convoluant les données brutes par une Gaussienne de 0.25 eV, et en sommant les contributions des termes 1S et 3P après pondération du pourcentage de métastable estimé avec MCDF (Paragraphe 4.3.4).

Ne disposant pas de mesures expérimentales absolues, seules les prédictions MCDF et Matrice-R seront comparées. La Figure 4.34 indique que la correspondance entre les deux codes pour la partie non résonnante du spectre est très bonne (contrairement aux résultats sur O^{2+} et O^{3+}). Pour les résonances, un désaccord existe entre MCDF et Matrice-R, en particulier en ce qui concerne les intensités relatives des résonances 1 à 4.

Une comparaison des positions et des identifications des niveaux d' O^{4+} est présentée dans le Tableau 4-31. Ce tableau regroupe les positions des 20 premiers niveaux d' O^{4+} calculés par MCDF, Matrice-R tiré de la base Opacity, Matrice-R tiré de l'article de S. Nahar de 1998, ainsi que les positions de la table du NIST.

Tableau 4-32 « Comparaison des positions et identification des niveaux »

type (MCDF/NIST)	E MCDF (eV)	E NIST (eV)	Matrice-R type (Nahar 98)	Matrice-R E(Nahar)	Matrice-R E(opa)	n°
$2s2$ ($1S$ $0+$)	0.000	0	$2s2$ ($1S$ $0+$)	0	0	1
$2s1$ $2p1$ ($3P$ $0-$)	10.238	10,159	$2s1$ $2p1$ ($3P$ $0-$)	10,1864	10,1728	2
$2s1$ $2p1$ ($3P$ $1-$)	10.254	10,176				3
$2s1$ $2p1$ ($3P$ $2-$)	10.291	10,214				4
$2s1$ $2p1$ ($1P$ $1-$)	20.600	19,688	$2s1$ $2p1$ ($1P$ $1-$)	19,924	19,9376	5
$2p2$ ($3P$ $0+$)	26.874	26,465	$2p2$ ($3P$ $0+$)	26,6424	26,6424	6
$2p2$ ($3P$ $1+$)	26.892	26,485				7
$2p2$ ($3P$ $2+$)	26.924	26,518				8
$2p2$ ($1D$ $2+$)	29.650	28,729	$2p2$ ($1D$ $2+$)	28,8864	28,9	9
$2p2$ ($1S$ $0+$)	37.311	35,693	$2p2$ ($1S$ $0+$)	36,2848	36,38	10
$2s1$ $3s1$ ($3S$ $1+$)	67.532	67,816	$2s1$ $3s1$ ($3S$ $1+$)	67,66	67,6464	11
$2s1$ $3s1$ ($1S$ $0+$)	69.383	69,589	$2s1$ $3s1$ ($1S$ $0+$)	69,4416	69,4416	12
$2s1$ $3p1$ ($1P$ $1-$)	71.853	72,013	$2s1$ $3p1$ ($1P$ $1-$)	71,8624	71,8488	13
$2s1$ $3p1$ ($3P$ $0-$)	72.049	72,258	$2s1$ $3p1$ ($3P$ $0-$)	72,1028	72,1072	14
$2s1$ $3p1$ ($3P$ $1-$)	72.053	72,263				15
$2s1$ $3p1$ ($3P$ $2-$)	72.062	72,272				16
$2s1$ $3d1$ ($3D$ $1+$)	74.363	74,483	$2s1$ $3d1$ ($3D$ $1+$)	74,2968	74,2968	17
$2s1$ $3d1$ ($3D$ $2+$)	74.364	74,484				18
$2s1$ $3d1$ ($3D$ $3+$)	74.366	74,487				19
$2s1$ $3d1$ ($1D$ $2+$)	76.159	75,954	$2s1$ $3d1$ ($1D$ $2+$)	75,82	75,7656	20

Contrairement aux états de charge précédents, les positions et les identifications des 30 premiers niveaux d'énergie de l'ion d' O^{4+} sont identiques pour les diverses sources de données. Quelques écarts en énergie subsistent, mais ils sont pour la plupart inférieurs à 0.2 eV.

4.5 Conclusions sur les ions oxygène

Grâce à notre montage expérimental, les premières mesures de sections efficaces de photoionisation en valeur absolue ont été réalisées pour les ions oxygène deux et trois fois ionisés. La variation relative de section efficace dans l'ion O^{4+} a également été obtenue à super ACO. Ces mesures ont été confrontées à des résultats théoriques obtenus grâce à l'utilisation d'un code MCDF et d'un code Matrice-R. Ils ont également été comparés aux données des bases de données NIST et Opacity Project.

Il ressort de ces comparaisons qu'il est nécessaire de faire des calculs relativistes pour décrire correctement les processus observés expérimentalement et ceci même pour des ions légers peu ionisés. Le cas de l'ion O^{2+} en est la meilleure illustration puisque les raies qui proviennent du 5S ne sont pas reproduites dans le cas du calcul non relativiste.

Les sections efficaces de photoionisation directe calculées par MCDF et Matrice-R sont globalement en bon accord avec les résultats expérimentaux.

La majorité des résonances observées dans les spectres expérimentaux ont pu être identifiées grâce aux résultats de nos calculs MCDF. Toutefois, d'importantes disparités existent pour les forces d'oscillateur de certaines résonances entre les calculs et les raies observées expérimentalement, notamment pour les ions O^{2+} et O^{3+} . De telles disparités existent également avec les résultats Matrice-R.

Chapitre 5 : Etude de la série isonucléaire du samarium

Nous avons mesuré les sections efficaces de photoionisation simple et double des ions samarium de deux à quatre fois ionisés. Cette étude nous permet de sonder les limites des codes de calcul détaillés de structures atomiques, comme par exemple MCDF, et de tester les modèles basés sur une approche statistique. Le samarium est un ion lourd qui possède une structure électronique plus complexe que celles des ions oxygène précédemment étudiés. C'est un élément de la famille des lanthanides. Neutre, il a pour configuration fondamentale $[\text{Kr}] 5s^2 5p^6 4f^6 6s^2$. Les configurations fondamentales des ions étudiés est donc : $[\text{Kr}] 5s^2 5p^6 4f^{6-q}$ avec $q=2,4$. Sauf mention particulière, les sous-couches 1s à 4d sont totalement occupées.

Pour ces ions, l'existence d'une couche de valence 4f ouverte engendre, du fait des différents couplages possibles, un grand nombre de niveaux d'énergie associés à chaque configuration **[5.1]**. Lors d'un processus de photoexcitation dans ces ions, comme par exemple le passage d'un électron en sous-couche 4d vers la sous-couche 4f (ou 5p lorsque celle-ci est ouverte), les configurations photoexcitées vont alors présenter un nombre encore plus important de niveaux d'énergie. Les dispersions en énergie des niveaux initiaux et finaux étant relativement étendues (typiquement quelques dizaines d'eV), nous allons observer expérimentalement des faisceaux de raies non résolues appelés Unresolved Transition Arrays (U.T.A) **[5.4]**.

Le calcul de l'ensemble des transitions possibles s'avère extrêmement coûteux en ressources informatiques. Ainsi, pour décrire de tels systèmes, le recours à des modèles statistiques peut être utile **[5.2 - 5.8]**.

Ce chapitre sera consacré à l'étude des processus de photoionisation simple et double sur la série isonucléaire des ions samarium, de Sm^{2+} à Sm^{4+} . Les résultats expérimentaux inédits obtenus seront analysés à l'aide d'une approche basée sur la notion d'énergie moyenne de configuration **[5.9]**, et à l'aide du formalisme U.T.A développé par J. Bauche et coll. **[5.8]**.

5.1 Présentation des résultats expérimentaux pour l'ion Sm^{2+}

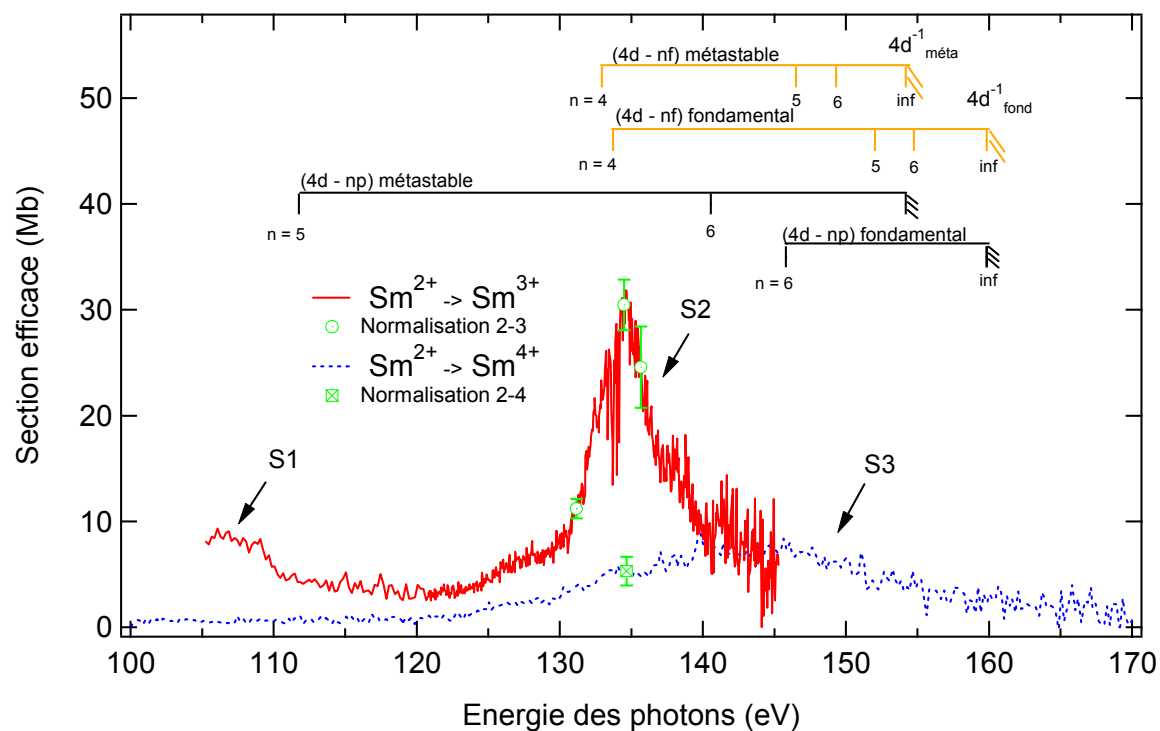


Figure 5-1 « Spectres expérimentaux obtenus pour l'ion samarium $2+$ »

Sur la Figure 5-1, sont présentés les spectres de photoionisation simple (courbe pleine) et double (courbe pointillée) de l'ion Sm^{2+} . La variation des sections efficaces a été mesurée sur une gamme d'énergie de photons comprise entre 100 et 170 eV. Les valeurs moyennes et les incertitudes des points de mesure de section efficace absolue qui ont servi à la normalisation de ces spectres sont également reportées sur la Figure 5-1. Ces données sont regroupées dans le Tableau 5-1 :

Tableau 5-1 « Récapitulatif des points de normalisation en valeur absolue »

Spectre	Energie (eV)	Valeur (Mb)	Incertitude (Mb)	Nombre de mesures
$\text{Sm}^{2+} \rightarrow \text{Sm}^{3+}$	131.16	11.2	0.9	4
$\text{Sm}^{2+} \rightarrow \text{Sm}^{3+}$	134.48	30.5	2.4	2
$\text{Sm}^{2+} \rightarrow \text{Sm}^{3+}$	135.66	24.6	3.9	3
$\text{Sm}^{2+} \rightarrow \text{Sm}^{4+}$	134.48	5.3	1.4	2

Dans ces spectres, nous observons trois structures de type faisceaux de transitions non résolues. Celles-ci sont numérotées S1, S2 et S3. Les positions expérimentales, les variances et les sections efficaces au maximum de ces structures ont été estimées par un ajustement Gaussien. Ces valeurs sont regroupées dans le Tableau 5-2 :

Tableau 5-2 « Position, largeur et intensité des faisceaux de transitions expérimentaux »

Référence	Energie (eV)	σ (eV)	Intensité (Mb)
S1 ($\text{Sm}^{2+} \rightarrow \text{Sm}^{3+}$)	107.10 ± 0.24	3.774 ± 0.324	9.064 ± 0.20
S2 ($\text{Sm}^{2+} \rightarrow \text{Sm}^{3+}$)	134.68 ± 0.05	2.802 ± 0.087	18.39 ± 0.43
S3 ($\text{Sm}^{2+} \rightarrow \text{Sm}^{4+}$)	143.46 ± 0.15	13.808 ± 0.277	6.591 ± 0.01

Une première analyse qualitative indique que la voie d'ionisation double résonnante est peu intense pour des énergies de photon correspondant à la structure S1 présente dans le spectre d'ionisation simple. Par ailleurs, la voie d'ionisation double, qui a une intensité notable à la même énergie de photon que la structure S2, possède un maximum décalé de 8.78 eV par rapport à la voie d'ionisation simple.

5.2 Interprétation des spectres expérimentaux pour l'ion Sm^{2+}

Afin d'interpréter ces mesures, nous allons adopter une approche qualitative basée sur les notions d'énergie moyenne et de variance des distributions des niveaux d'énergie associés à une configuration du système étudié [5.1]. En ce qui concerne les énergies moyennes de configuration, elles sont calculées à l'approximation non-relativiste en utilisant une version modifiée du programme développé par Ankudinov et al. [5.9]. Par ailleurs, les probabilités de décroissances radiatives (τ_r) et d'autoionisation (τ_a), utilisées pour l'analyse des mesures, ont été calculées pour des configurations [5.10].

5.2.1 Etude de l'ionisation simple : $\text{Sm}^{2+} \rightarrow \text{Sm}^{3+}$

Nous avons calculé le seuil d'ionisation du Sm^{2+} à 23.97 eV. Cette valeur explique la présence d'un fond continu sur la gamme d'énergie de photons étudiée. Les structures résonnantes notées S1, S2 et S3 sont interprétées comme provenant de processus de photoexcitation en sous-couches internes vers des niveaux autoionisants de l'ion Sm^{2+} .

5.2.1.1 Détermination des configurations métastables :

A l'image des résultats obtenus sur les ions oxygène, il est raisonnable de supposer l'existence, dans le faisceau d'ions incidents, d'ions Sm^{2+} dans des configurations métastables. Le Tableau 5-3 regroupe les positions moyennes des premières configurations de l'ion Sm^{2+} .

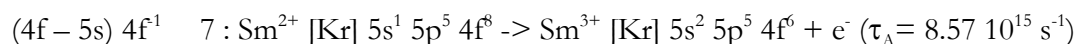
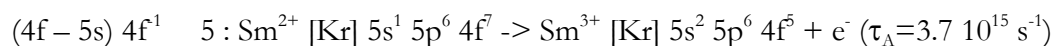
Tableau 5-3 « Tableau des 7 premières configurations de l'ion Sm^{2+} »

n°	Configuration	Parité	Energie	Energie	$\sigma(\text{eV})$
			Absolue($\times 10^4$) Hartree	relative(eV)	
1	$5s^2 5p^6 4f^6$	+	-1,0034189	0	6.81
2	$5s^2 5p^6 4f^5 5d^1$	-	-1,0034008	4.89	6.40
3	$5s^2 5p^5 4f^7$	+	-1,0033382	21.96	7.13
4	$5s^2 5p^5 4f^6 5d^1$	-	-1,0033352	22.77	7.03
----- Seuil Sm^{2+} -----					
5	$5s^1 5p^6 4f^7$	-	-1,0032688	40.84	6.91
6	$5s^1 5p^6 5d^1 4f^6$	+	-1,0032629	42.45	6.88
7	$5s^1 5p^5 4f^8$	-	-1,0031872	63.05	7.48

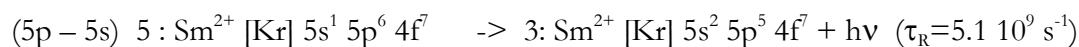
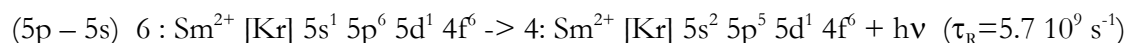
Dans tout ce qui suit, les processus rencontrés seront écrits sous la forme : $(n_i l_i - n_f l_f) n_a l_a^{-1}$ où, $n_i l_i$ représente la sous-couche initiale de l'électron, $n_f l_f$ la sous-couche d'arrivée et $n_a l_a^{-1}$ la sous-couche « émettrice » d'électron dans le cas de processus ionisant.

Cas des configurations 5 à 7 :

Les configurations 5 à 7 du Tableau 5-3 sont situées au-dessus du seuil d'ionisation de l'ion Sm^{2+} . Certaines d'entre-elles peuvent autoioniser spontanément avec une forte probabilité vers l'ion Sm^{3+} . C'est le cas, par exemple des configurations 5 et 7 :



Elles peuvent également décroître de façon radiative comme c'est le cas, par exemple, des configurations 5 et 6 qui peuvent se relaxer vers, respectivement, les configurations 3 et 4 :



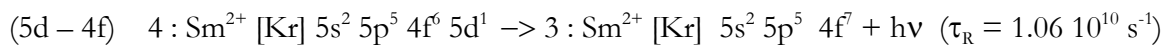
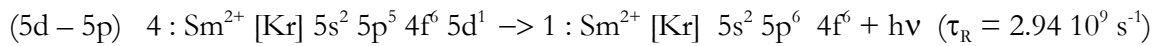
Notons que la configuration 6 a également plusieurs voies de relaxation par autoionisation possibles vers l'ion Sm^{3+} . Ces voies d'autoionisation ont des probabilités du même ordre de grandeur que celles des configurations 5 et 7. Au final, les configurations 5, 6 et 7 ne participeront pas au spectre expérimental car elles se relaxeront, soit par des processus d'autoionisation, soit par décroissance radiative, avant d'interagir avec les photons du rayonnement synchrotron.

Cas des configurations 1 à 4 :

Les configurations 1 à 4 sont situées en-dessous du seuil d'ionisation de Sm^{2+} . Leur probabilité d'autoionisation vers Sm^{3+} est donc nulle. Seule la configuration 3 a la même parité que la configuration fondamentale. La configuration 2 peut relaxer radiativement vers la configuration fondamentale de Sm^{2+} :



La configuration 4 peut également relaxer radiativement vers la configuration fondamentale 1 et la configuration métastable 3:



Les τ_R calculés sont grands devant le rapport (V_{ion}/d) où V_{ion} et d désignent respectivement la vitesse des ions en sortie de source et la distance séparant la source RCE et la zone d'interaction. Il est donc raisonnable de supposer que les ions dans les configurations 2 et 4 se seront désexcitées avant d'arriver dans la zone d'interaction. En définitive, seule la configuration n°3 de type $\text{Sm}^{2+} 5s^2 5p^5 4f^7$ a la même parité et une énergie moyenne voisine de la configuration fondamentale. Sa désexcitation radiative vers la configuration 2 sera peu probable puisqu'elle implique un processus à 3 électrons. Elle sera donc la seule configuration métastable ayant un temps de vie assez long pour participer au spectre expérimental (Figure 5-1).

5.2.1.2 Interprétation des processus résonnants : configuration fondamentale

En nous appuyant sur les travaux de Sugar [5.11], nous nous attendons à trouver sur la gamme d'énergie de photons des transitions de type (4d – 4f). Dans notre cas, l'énergie moyenne d'excitation (4d – 4f) à partir de la configuration fondamentale de Sm^{2+} est calculée à 133.72 eV. Cette valeur est en bon accord avec la structure S2 du spectre expérimental. Le seuil d'ionisation directe en sous-couche 4d à partir de la configuration fondamentale a été calculé à 159.84 eV. Il est noté $4d_{\text{fond}}^1$ sur la Figure 5-1. La position de ce seuil indique la possibilité d'observer des transitions (4d – nf) ($n > 4$) à partir de la configuration fondamentale sur la gamme d'énergie expérimentale. Le Tableau 5-4 regroupe les positions des énergies moyennes des transitions (4d – nf) avec $n = 4$ à 6.

Tableau 5-4 « Positions des transitions 4d-nf et du seuil $4d^1$ à partir de la configuration fondamentale »

Photoexcitation	Energie des photons (eV)
$4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^6 \rightarrow 4d^9 5s^2 5p^6 4f^7$	133.72
$\rightarrow 4d^9 5s^2 5p^6 4f^6 5f^1$	152.03
$\rightarrow 4d^9 5s^2 5p^6 4f^6 6f^1$	154.75

$$\rightarrow 4d^9 5s^2 5p^6 4f^6 nf^1 \quad (n \rightarrow \infty)$$

159.84

Les transitions (4d – nf), où $n > 4$, se situent au-dessus de la structure S2 observée dans la voie d'ionisation simple. Elles peuvent toutefois contribuer aux processus résonnants d'ionisation double. De la même manière, il existe une série de transitions de type (4d – np) $n > 5$ qui converge également vers le seuil $4d^1$. La position de la transition (4d – 6p) a été calculée à 145.80 eV d'énergie de photons. Elle est donc également en dehors de la structure S1 dans la voie d'ionisation simple, mais peut contribuer au signal de double ionisation (Voir Figure 5-1).

5.2.1.3 Interprétation des processus résonnants : configuration métastable

A partir de la configuration métastable $5s^2 5p^5 4f^7$, l'énergie d'excitation (4d – 4f) est calculée à 132.93 eV. Cette valeur est comparable à celle mesurée pour la structure S2 (Figure 5.1). Le seuil d'ionisation en sous-couche 4d à partir de la configuration métastable est calculé à 154.18 eV d'énergie de photons. Il est noté $4d^1_{\text{meta}}$ sur la Figure 5-1. Comme pour la configuration fondamentale, on peut s'attendre à observer une série de transitions (4d – nf) $n > 3$ et (4d – np) ($n > 4$) à partir de la configuration métastable. Leurs positions sont regroupées dans le Tableau 5-5.

Tableau 5-5 « Positions des transitions 4d-nf,np et du seuil $4d^1$ à partir de la configuration métastable »

Photoexcitation	Energie des photons (eV)
(4d – nf) $4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^7 \rightarrow 4d^9 5s^2 5p^5 4f^8$	132.93
$\rightarrow 4d^9 5s^2 5p^5 4f^7 5f^1$	146.51
$\rightarrow 4d^9 5s^2 5p^5 4f^7 6f^1$	149.31
$\rightarrow 4d^9 5s^2 5p^5 4f^7 nf^1 \quad (n \rightarrow \infty)$	154.18
(4d – np) $4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^7 \rightarrow 4d^9 5s^2 5p^6 4f^7$	111.76
$\rightarrow 4d^9 5s^2 5p^5 4f^7 6p^1$	140.56
$\rightarrow 4d^9 5s^2 5p^5 4f^7 np^1 \quad (n \rightarrow \infty)$	154.18

Les transitions (4d – nf) ($n > 4$) à partir de la configuration métastable sont situées au-dessus de la structure S2 dans la voie d'ionisation simple. Elles pourront toutefois contribuer à l'ionisation double. La photoexcitation (4d – 5p) à partir de la configuration métastable est située à une énergie calculée à 111.76 eV. Cette valeur est proche de celle de la structure expérimentale S1. Notons que les photoexcitations (4d – 6p) et (4d – 7p) peuvent également contribuer aux spectres de simple et double ionisation.

D'une manière générale, les énergies des configurations photoexcitées accessibles par transition de type (4d – nf) ($n > 3$) ou (4d – np) ($n \geq 5$) à partir des configurations fondamentales et métastables sont supérieures au seuil d'ionisation de l'ion Sm^{2+} . Elles pourront donc relaxer par autoionisation vers des configurations de Sm^{3+} . Comme nous le verrons par la suite, une partie d'entre elles contribue au signal d'ionisation double.

5.2.2 Etude de l'ionisation double : $\text{Sm}^{2+} \rightarrow \text{Sm}^{4+}$ **Tableau 5-6** « Tableau des configurations participant aux voies de simple et double ionisation de Sm^{2+} »

Ions	Numéro	Configuration	Parité	Energie Absolue ($\times 10^4$ Hartree)	Energie relative (eV)	σ (eV)
Sm^{2+}	2.1	$4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^6$	+	-1,0034189	0	6,81
	2.2	$4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^7$	+	-1,0033382	21,96	7,13
	2.3	$4d^9 5s^2 5p^6 4f^7$	-	-1,0029275	133,72	12,9
	2.4	$4d^9 5s^2 5p^6 4f^6 6p^1$	-	-1,0028831	145,80	13,29
	2.5	$4d^9 5s^2 5p^6 4f^6 5f^1$	-	-1,0028602	152,03	13,30
	2.6	$4d^9 5s^2 5p^6 4f^6 6f^1$	-	-1,0028502	154,75	13,30
	2.7	$4d^9 5s^2 5p^5 4f^8$	-	-1,0028497	154,89	12,40
	2.8	$4d^9 5s^2 5p^5 4f^7 6p^1$	-	-1,0028216	162,52	13,28
	2.9	$4d^9 5s^2 5p^5 4f^7 5f^1$	-	-1,0027997	168,47	13,27
	2.10	$4d^9 5s^2 5p^5 4f^7 6f^1$	-	-1,0027895	171,27	13,17
Sm^{3+}	3.1	$4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^5$	-	-1,0033308	23,97	6,42
	3.2	$4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^6$	-	-1,0032652	41,82	7,05
	3.3	$4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^4 5f^1$	-	-1,0032217	53,66	5,67
	3.4	$4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^5 5f^1$	-	-1,0031797	65,09	6,70
	3.5	$4d^{10} 5s^1 5p^6 4f^6$	+	-1,0031922	61,69	6,88
	3.6	$4d^{10} 5s^2 5p^4 4f^7$	-	-1,0031907	62,09	7,42
	3.7	$4d^{10} 5s^1 5p^5 4f^7$	+	-1,0031239	80,27	7,80
	3.8	$4d^{10} 5s^2 5p^3 4f^8$	-	-1,0031074	84,76	7,31
	3.9	$4d^{10} 5s^1 5p^4 4f^8$	+	-1,0030464	101,36	8,17
	3.10	$4d^{10} 5s^0 5p^6 4f^7$	-	-1,0030457	101,55	6,93
	3.11	$4d^{10} 5s^0 5p^5 4f^8$	-	-1,0029743	120,98	6,91
	3.12	$4d^9 5s^2 5p^6 4f^6$	+	-1,0028315	159,84	13,2
	3.13	$4d^9 5s^2 5p^6 4f^5 6p^1$	+	-1,0027498	182,07	13,13
	3.14	$4d^9 5s^2 5p^6 4f^5 5f^1$	+	-1,0027220	189,64	13,15
	3.15	$4d^9 5s^2 5p^5 4f^6 6p^1$	+	-1,0027083	193,37	13,57
	3.16	$4d^9 5s^2 5p^6 4f^5 6f^1$	+	-1,0027037	194,62	13,14
	3.17	$4d^9 5s^2 5p^5 4f^6 5f^1$	-	-1,0026813	200,71	13,58
	3.18	$4d^9 5s^2 5p^5 4f^6 6f^1$	-	-1,0026632	205,64	13,57
Sm^{4+}	4.1	$4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^4$	+	-1,0031664	68,71	5,66
	4.2	$4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^5$	+	-1,0031296	78,72	6,67
	4.3	$4d^{10} 5s^2 5p^4 4f^6$	+	-1,0030715	94,53	7,40
	4.4	$4d^{10} 5s^1 5p^6 4f^5$	-	-1,0030475	101,06	6,50
	4.5	$4d^{10} 5s^2 5p^3 4f^7$	+	-1,0030071	112,06	7,60
	4.6	$4d^{10} 5s^1 5p^5 4f^6$	-	-1,0030010	113,71	7,82
	4.7	$4d^{10} 5s^1 5p^4 4f^7$	-	-1,0029376	130,97	8,512
	4.8	$4d^{10} 5s^2 5p^2 4f^8$	+	-1,0029234	134,83	7,25
	4.9	$4d^{10} 5s^0 5p^6 4f^6$	+	-1,0029162	136,79	6,897
	4.10	$4d^{10} 5s^0 5p^5 4f^7$	+	-1,0028617	151,62	7,204

4.11	$4d^{10} 5s^1 5p^3 4f^8$	-	-1,0027018	195,13	8,849
4.12	$4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^8$	-	-1,0026705	203,65	13,13

* La séparation discontinue indique la position du seuil d'ionisation vers l'état de charge suivant

L'analyse de la voie d'ionisation double de l'ion Sm^{2+} est plus complexe et nécessite une analyse détaillée des voies de décroissance ionisantes, à partir des configurations photoexcitées considérées précédemment. Le Tableau 5-6 regroupe les positions et les variances des énergies moyennes de configurations impliquées dans les processus de photoionisation double. Ces énergies sont référencées par rapport à l'énergie moyenne de la configuration fondamentale de l'ion Sm^{2+} .

5.2.2.1 Transition 4d – 4f à partir de la configuration fondamentale

La Figure 5-2 présente l'ensemble des configurations accessibles par simple et double ionisation à partir d'une excitation (4d – 4f) dans la configuration fondamentale $5s^2 5p^6 4f^6$ de l'ion Sm^{2+} .

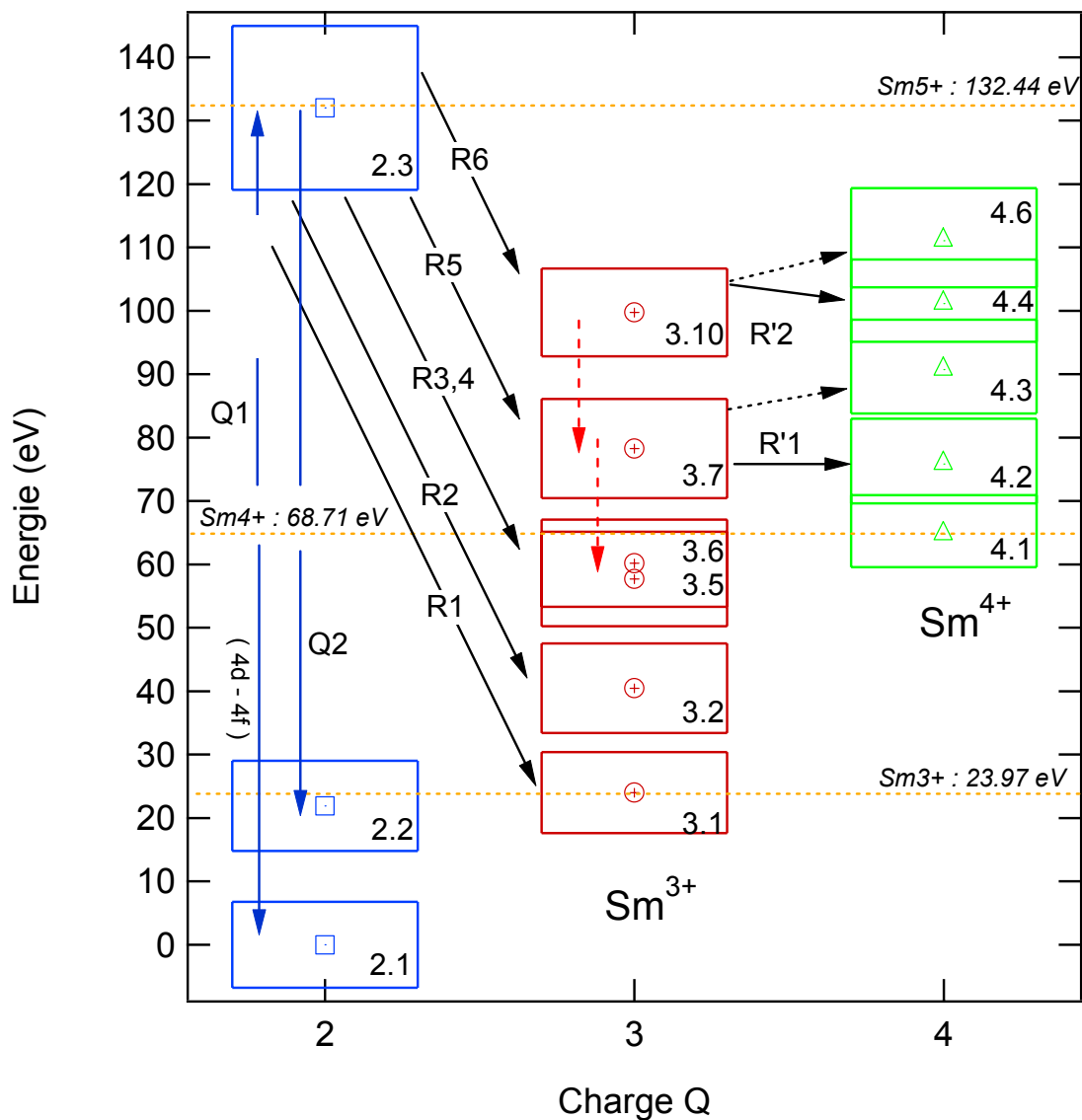
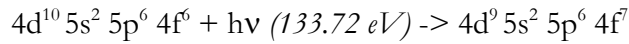


Figure 5-2 « Schéma des configurations de Sm^{2+} , Sm^{3+} et Sm^{4+} participant à l'ionisation simple et double de l'ion Sm^{2+} à partir d'une excitation (4d – 4f) dans la configuration fondamentale »

Le processus de photoexcitation en sous-couche 4d à partir de la configuration fondamentale **2.1** aboutit à la configuration excitée **2.3** :



La configuration **2.3** peut relaxer radiativement (Q1,Q2) vers les configurations **2.1** et **2.2**. Les probabilités de décroissance radiative (4f – 4d) et (5p – 4d) ont été calculées respectivement à $2.57 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$ et $4.11 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$. La configuration photoexcitée **2.3** est située bien au-dessus du seuil d'ionisation de l'ion Sm^{2+} . Elle peut donc également relaxer par autoionisation vers l'ion Sm^{3+} . Plusieurs voies d'autoionisation sont énergétiquement ouvertes. Elles sont numérotées R1 à R6 dans la Figure 5-2. Ces relaxations et leurs probabilités sont récapitulées dans le Tableau 5-7 :

Tableau 5-7 « Récapitulatif des relaxations de la configuration **2.3** »

Configuration initiale	n°	Processus	Configuration finale	Probabilité (s ⁻¹)
2.3 : [Xe 4d ⁹] 5s ² 5p ⁶ 4f ⁷	Q1	(4f – 4d)	2.1 : 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁶ 4f ⁶	$2.57 \cdot 10^{11}$
	Q2	(5p – 4d)	2.2 : 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁷	$4.11 \cdot 10^{10}$
	R1	(4f – 4d) 4f ⁻¹	3.1 : 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁶ 4f ⁵	$2.53 \cdot 10^{17}$
	R2	(4f – 4d) 5p ⁻¹	3.2 : 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁶	$5.87 \cdot 10^{16}$
	R3	(4f – 4d) 5s ⁻¹	3.5 : 4d ¹⁰ 5s ¹ 5p ⁶ 4f ⁶	$9.04 \cdot 10^{15}$
	R4	(5p – 4d) 5p ⁻¹	3.6 : 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁴ 4f ⁷	$1.11 \cdot 10^{15}$
	R5	(5p – 4d) 5s ⁻¹	3.7 : 4d ¹⁰ 5s ¹ 5p ⁵ 4f ⁷	$3.26 \cdot 10^{14}$
	R6	(5s – 4d) 5s ⁻¹	3.10 : 4d ¹⁰ 5s ⁰ 5p ⁶ 4f ⁷	$4.28 \cdot 10^{14}$

Nous constatons que les processus de décroissance radiative Q1 et Q2 sont négligeables comparés aux processus d'autoionisation. Parmi les voies de relaxation autoionisantes possibles de la configuration **2.3**, seules R5 et R6 aboutissent à des configurations (**3.7** et **3.10**) situées au-dessus du seuil d'ionisation de l'ion Sm^{3+} . Les configurations **3.7** et **3.10** sont donc énergétiquement les seules à pouvoir contribuer au signal d'ionisation double de l'ion Sm^{2+} . Ces processus sont regroupés dans Tableau 5-8 :

Tableau 5-8 « Relaxations autoionisantes R'1 et R'2 »

Configuration initiale	n°	Processus	Configuration finale	Proba. (s ⁻¹)
3.7 : $\text{Sm}^{3+} 4d^{10} 5s^1 5p^5 4f^7$	R'1	(4f – 5s) 4f ⁻¹	4.2 : $\text{Sm}^{4+} 4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^5$	$3.241 \cdot 10^{15}$
3.10 : $\text{Sm}^{3+} 4d^{10} 5s^0 5p^6 4f^7$	R'2	(4f – 5s) 4f ⁻¹	4.4 : $\text{Sm}^{4+} 4d^{10} 5s^1 5p^6 4f^5$	$6.488 \cdot 10^{15}$

Toutefois, les probabilités R5 et R6 sont près de 100 fois plus faibles que les probabilités associées aux relaxations R1 à R4. En outre, les configurations **3.7** et **3.10** peuvent décroître de façon radiative. Les τ_r associés à ces processus sont petits, comparés aux τ_a des relaxations R'1

et R'2. En conclusion, les processus résonnants conduisant à l'ion Sm^{4+} à partir de la configuration fondamentale de l'ion Sm^{2+} , pour une photoexcitation (4d – 4f), seront très peu probables.

5.2.2.2 Transition 4d – nf à partir de la configuration fondamentale

Les configurations photoexcitées $4d^9 5s^2 5p^6 4f^6 nf^1$ présentent un grand nombre de relaxations possibles. Les relaxations radiatives ont des probabilités faibles devant celles de l'autoionisation. Elles seront donc négligées. Les processus d'autoionisation possibles vers des configurations de l'ion Sm^{3+} sont récapitulés dans le Tableau 5-9 :

Tableau 5-9 « Récapitulatif des relaxations des configurations 2.5 et 2.6 »

Configuration initiale	Processus	Configuration finale	Probabilité (s^{-1})	n°
$4d^9 5s^2 5p^6 4f^6 nf^1$ (n>4) [2.5 n=5, 2.6 n=6]	(nf – 4d) $4f^1$	3.1 : $4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^5$		R1
	(nf – 4d) $5p^{-1}$	3.2 : $4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^6$		R2
	(nf – 4d) $5s^{-1}$	3.3 : $4d^{10} 5s^1 5p^6 4f^6$		R3
	(4f – 4d) $4f^1$	$4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^4 nf^1$ (n>4)		R4
	(4f – 4d) $5p^{-1}$	$4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^5 nf^1$ (n>4)	$5.6 \cdot 10^{16}$ (n=5)	R5
	(4f – 4d) $5s^{-1}$	$4d^{10} 5s^1 5p^5 4f^5 nf^1$ (n>4)	$8.5 \cdot 10^{15}$ (n=5)	R6
	(5p – 4d) $5p^{-1}$	$4d^{10} 5s^2 5p^4 4f^6 nf^1$ (n>4)		R7
	(5p – 4d) $5s^{-1}$	$4d^{10} 5s^1 5p^5 4f^6 nf^1$ (n>4)		R8
	(5s – 4d) $5s^{-1}$	$4d^{10} 5s^0 5p^6 4f^6 nf^1$ (n>4)		R9

Relaxations R1 à R4(n=5) et R5(n=5) :

Les configurations de Sm^{3+} issues des autoionisations R1 à R3 et R4 (n=5), R5 (n=5) ne peuvent pas contribuer au signal d'ionisation double, car elles sont situées en-dessous du seuil d'ionisation de Sm^{3+} (voir Tableau 5-6).

Relaxation R4 (n>5) :

La relaxation R4 ne peut jamais aboutir à une configuration de Sm^{3+} autoionisante. En effet, ces configurations s'écrivent : $4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^4 nf^1$. Elles ont donc les sous-couches 4d, 5s, 5p complètes. Énergétiquement, cette série converge vers le fondamental de l'ion Sm^{4+} (4.1).

Relaxation R5 (n>5) à R9 :

Toutes les relaxations R5(n>5) à R9 aboutissent à des configurations excitées de l'ion Sm^{3+} qui peuvent relaxer par autoionisation vers des niveaux de Sm^{4+} .

Il existe donc des voies d'ionisation double ouvertes pour des photoexcitations 4d-nf (n>5) à partir de la configuration fondamentale. Par ailleurs, rappelons que les processus d'ionisation directe en sous-couche 4d sont autorisés à partir de 159.64 eV. La présence d'un trou en sous-couche 4d rend les processus de décroissance Auger fortement probables, de sorte que la photoionisation directe en sous-couche 4d favorise la voie de double ionisation. Toutefois,

aucun signal notable n'est observé au-delà des seuils 4d, semblant indiquer que la contribution de la photoionisation double directe reste faible.

5.2.2.3 Transition 4d – np (n>5) à partir de la configuration fondamentale

La série d'excitations (4d – np) peut également contribuer à la voie d'ionisation double à partir de la configuration fondamentale. Ici encore, les probabilités de décroissance radiative seront négligées devant les probabilités d'autoionisation des configurations excitées qui présentent une sous-couche 4d ouverte. Le Tableau 5-10 regroupe l'ensemble des processus de relaxation ionisante consécutifs à la photoexcitation (4d – np) à partir de la configuration fondamentale.

Tableau 5-10 « Récapitulatif des relaxations possibles »

Configuration initiale	Processus	Configuration finale	Probabilité (s ⁻¹) (n=6)	n°
4d ⁹ 5s ² 5p ⁶ 4f ⁶ np ¹ (n>5) (2.4 ; n=6)	(np – 4d) 4f ¹	3.1 : 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁶ 4f ⁵	1.81 10 ¹⁵	R1
	(np – 4d) 5p ⁻¹	3.2 : 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁶	6.17 10 ¹²	R2
	(np – 4d) 5s ⁻¹	3.3 : 4d ¹⁰ 5s ¹ 5p ⁶ 4f ⁶	3.53 10 ¹³	R3
	(4f – 4d) 4f ¹	4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁶ 4f ⁴ np ¹ (n>5)	1.90 10 ¹⁷	R4
	(4f – 4d) 5p ⁻¹	4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁵ np ¹ (n>5)	5.40 10 ¹⁶	R5
	(4f – 4d) 5s ⁻¹	4d ¹⁰ 5s ¹ 5p ⁵ 4f ⁵ np ¹ (n>5)	8.39 10 ¹⁵	R6
	(5p – 4d) 5p ⁻¹	4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁴ 4f ⁶ np ¹ (n>5)	1.21 10 ¹⁵	R7
	(5p – 4d) 5s ⁻¹	4d ¹⁰ 5s ¹ 5p ⁵ 4f ⁶ np ¹ (n>5)	3.96 10 ¹⁴	R8
	(5s – 4d) 5s ⁻¹	4d ¹⁰ 5s ⁰ 5p ⁶ 4f ⁶ np ¹ (n>5)	4.14 10 ¹³	R9

L'analyse de ces décroissances est la même que pour la série (4d – nf). Les relaxations R1 à R3 contribuent uniquement au signal d'ionisation simple. Les relaxations R4 ne peuvent décroître par autoionisation vers des configurations de Sm⁴⁺, ceci quelque soit n. Toutes les transitions R5(n>5) à R9 peuvent contribuer au signal d'ionisation double.

5.2.2.4 Transition 4d – 4f à partir de la configuration métastable 2.2

La Figure 5-3 présente l'ensemble des configurations accessibles par simple et double ionisation lors d'une excitation (4d – 4f) à partir de la configuration métastable 2.2 : $5s^2 5p^5 4f^7$ de l'ion Sm^{2+} .

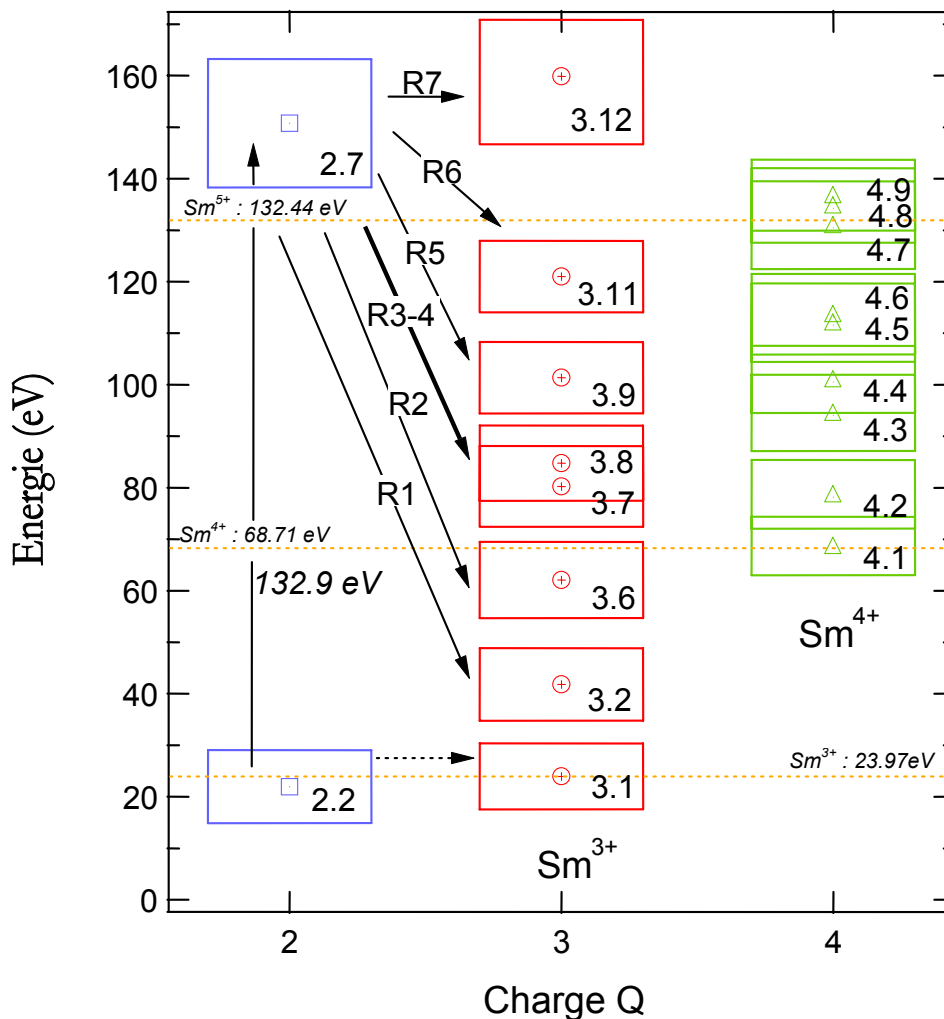


Figure 5-3 « Schéma des configurations de Sm^{2+} , Sm^{3+} et Sm^{4+} participant à l'ionisation simple et double de l'ion Sm^{2+} lors d'une excitation 4d-4f à partir de la configuration métastable 2.2 »

Un premier examen de la Figure 5-3 indique qu'une partie non négligeable des niveaux de la configuration 2.2 peut relaxer par autoionisation vers les niveaux de la configuration fondamentale de l'ion Sm^{3+} . Le temps de relaxation ($\sim 10^{-17}$ s) associé à ce processus est petit devant la durée du trajet séparant la sortie de la source d'ion et la zone d'interaction ; il est donc raisonnable d'imaginer que ces niveaux ne contribueront pas au spectre de photoionisation observé expérimentalement, et que seule une partie assez faible des ions dans la configuration 2.2 sera dans un état métastable.

Comme précédemment (paragraphe 5.3.2.2), nous négligerons les relaxations radiatives de la configuration photoexcitée **2.7** : $4d^9 5s^2 5p^5 4f^8$ (10^{-11} s^{-1}) devant les processus d'autoionisation possibles numérotés R1 à R7 dans la Figure 5-3. Ceux-ci sont récapitulés dans le Tableau 5-11 :

Tableau 5-11 « Récapitulatif des relaxations de la configuration **2.7** »

Configuration initiale	n°	Processus	Configuration finale	Probabilité (s^{-1})
2.7 : $4d^9 5s^2 5p^5 4f^8$	R1	$(4f - 4d) 4f^1$	3.2 : $4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^6$	$3.153 \cdot 10^{17}$
	R2	$(4f - 4d) 5p^{-1}$	3.6 : $4d^{10} 5s^2 5p^4 4f^7$	$5.218 \cdot 10^{16}$
	R3	$(4f - 4d) 5s^{-1}$	3.7 : $4d^{10} 5s^1 5p^5 4f^7$	$9.614 \cdot 10^{15}$
	R4	$(5p - 4d) 5p^{-1}$	3.8 : $4d^{10} 5s^2 5p^3 4f^8$	$7.305 \cdot 10^{14}$
	R5	$(5p - 4d) 5s^{-1}$	3.9 : $4d^{10} 5s^1 5p^4 4f^8$	$2.968 \cdot 10^{14}$
	R6	$(5s - 4d) 5s^{-1}$	3.11 : $4d^{10} 5s^0 5p^5 4f^8$	$4.776 \cdot 10^{13}$
	R7	$(4f - 5p) 4f^1$	3.12 : $4d^9 5s^2 5p^6 4f^6$	$1.211 \cdot 10^{16}$

Relaxation R1 et R2 :

Les relaxations R1 et R2 à partir de la configuration **2.7** aboutissent aux configurations **3.2** et **3.6** de l'ion Sm^{3+} . Ces configurations sont situées en-dessous du seuil d'ionisation de l'ion Sm^{3+} . Elles participeront donc uniquement au signal d'ionisation simple.

Relaxation R3 :

Cette relaxation : $(4f - 4d) 5s^{-1}$ aboutit à la configuration **3.7** : $4d^{10} 5s^1 5p^5 4f^7$ de l'ion Sm^{3+} . A partir de la configuration **3.7** plusieurs décroissances vers l'ion Sm^{4+} sont possibles :

Tableau 5-12 « Récapitulatif des relaxations possibles de **3.7** vers l'ion Sm^{4+} »

Configuration initiale	Processus	Configuration finale	Critère énergétique
3.7 : $4d^{10} 5s^1 5p^5 4f^7$	$(4f - 5s) 4f^1$	4.2 : $4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^5$	Possible
	$(4f - 5s) 5p^{-1}$	4.3 : $4d^{10} 5s^2 5p^4 4f^6$	Possible
	$(4f - 5p) 4f^1$	4.4 : $4d^{10} 5s^1 5p^6 4f^5$	Impossible
	$(5p - 5s) 5p^{-1}$	4.5 : $4d^{10} 5s^2 5p^3 4f^7$	Impossible

Nous observons que toutes les relaxations envisagées ne sont pas possibles du point de vue énergétique et que seules les voies **3.7** -> **4.2** et **3.7** -> **4.3** de l'ion Sm^{4+} sont autorisées. La relaxation R3 pourra donc participer au signal d'ionisation simple et double de l'ion Sm^{2+} .

Relaxation R4 :

La relaxation R4 $(5p - 5d) 5p^{-1}$ aboutit à la configuration **3.8** : $4d^{10} 5s^2 5p^3 4f^8$ de l'ion Sm^{3+} . A partir de la configuration **3.8**, la seule voie de décroissance possible (autre que radiative) est celle aboutissant à la configuration **4.3** : $4d^{10} 5s^2 5p^4 4f^6$ de l'ion Sm^{4+} . R4 pourra donc participer à la voie d'ionisation simple et double de l'ion Sm^{2+} .

Relaxation R5 :

La relaxation R5 ($5p - 4d$) $5s^{-1}$ aboutit à la configuration **3.9** : $4d^{10} 5s^1 5p^4 4f^6$ de Sm^{3+} . Comme pour R4, plusieurs relaxations vers Sm^{4+} sont possibles, mais seule la relaxation vers la configuration **4.3** : $4d^{10} 5s^2 5p^4 4f^6$ est énergétiquement possible. Les autres configurations (**4.5**, **4.6** et **4.8**) ne sont pas accessibles.

Relaxation R6 :

La relaxation R6 ($5s - 5d$) $5s^{-1}$ aboutit à la configuration **3.11** : $4d^{10} 5s^0 5p^5 4f^6$ de l'ion Sm^{3+} . A partir de cette configuration, plusieurs processus d'autoionisation sont envisageables. Les configurations d'arrivée possibles de l'ion Sm^{4+} sont **4.6**, **4.7**, **4.9** et **4.11**. Énergétiquement, seules **4.6** et **4.7** sont accessibles à partir de **3.11**. Le processus R6 participera donc également au signal d'ionisation simple et double de l'ion Sm^{2+} .

Relaxation R7 :

La relaxation R7 correspond au processus ($4f - 5p$) $4f^{-1}$ à partir de la configuration **2.7**. Cette relaxation aboutit à la configuration **3.12** $4d^9 5s^2 5p^6 4f^6$ de l'ion Sm^{3+} qui conserve un trou en sous-couche 4d. Cette configuration peut décroître par effet Auger vers les configurations **4.1** à **4.4**, **4.6** et **4.9** de l'ion Sm^{4+} comme l'indique les valeurs du Tableau 5-13 :

Tableau 5-13 « Récapitulatif des relaxations ionisantes à partir de la configuration **3.12** »

Configuration initiale (Sm^{2+})	Processus	Configuration finale (Sm^{3+})	Probabilité (s^{-1})
3.12 : $4d^9 5s^2 5p^6 4f^6$	($4f - 4d$) $4f^{-1}$	4.1 : $4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^4$	$1.91 \cdot 10^{17}$
	($4f - 4d$) $5p^{-1}$	4.2 : $4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^5$	$5.61 \cdot 10^{16}$
	($5p - 4d$) $5p^{-1}$	4.3 : $4d^{10} 5s^2 5p^4 4f^6$	$1.23 \cdot 10^{15}$
	($4f - 4d$) $5s^{-1}$	4.4 : $4d^{10} 5s^1 5p^6 4f^5$	$8.44 \cdot 10^{15}$
	($5p - 4d$) $5s^{-1}$	4.6 : $4d^{10} 5s^1 5p^5 4f^6$	$3.97 \cdot 10^{14}$
	($5s - 4d$) $5s^{-1}$	4.9 : $4d^{10} 5s^0 5p^6 4f^6$	$4.10 \cdot 10^{13}$

Nous avons également calculé les probabilités de décroissance radiative de la configuration **3.12** pour la transition ($4f - 4d$) : $2.27 \cdot 10^{11} s^{-1}$ et la transition ($5p - 4d$) : $4.7 \cdot 10^{10} s^{-1}$. Elles sont donc négligeables devant celles d'autoionisation.

Notons que **3.12** est située au-dessus du seuil d'ionisation de l'ion Sm^{4+} calculé à 132.44 eV. La voie d'ionisation triple semble donc ouverte. Toutefois, seule la configuration fondamentale $4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^6$ de l'ion Sm^{5+} est énergétiquement accessible à partir de la configuration **4.9**. Une telle transition nécessite un processus à trois électrons, ce qui est très peu probable. En définitive, la relaxation R7 contribue donc au signal d'ionisation simple et double de l'ion Sm^{2+} et la voie d'ionisation triple est négligeable.

Conclusions sur la transition 4d – 4f à partir de la configuration métastable :

D'après le Tableau 5-11, les relaxations R3 à R6 sont les moins probables. Elles contribuent donc faiblement au signal observé Figure 5-1 dans la voie de simple et double ionisation. Les relaxations R1 et R2 sont parmi les plus probables. Elles contribuent fortement à la voie d'ionisation simple, mais pas à la voie double car les configurations **3.2** : $4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^6$ et **3.6** : $4d^{10} 5s^2 5p^4 4f^7$ sont situées en-dessous du seuil d'ionisation de Sm^{3+} . Enfin la relaxation R7 n'est ouverte qu'à partir de 145.8 eV d'énergie de photons. Sa probabilité est du même ordre que R3, elle contribuera au signal d'ionisation double. Notons que R1 reste 30 fois plus probable que R7.

5.2.2.5 Transition 4d – nf à partir de la configuration métastable 2.2

Les positions des transitions (4d – nf) (n=5,6), ainsi que la position du seuil d'ionisation en sous-couche 4d à partir de la configuration métastables sont présentées sur la Figure 5-1 et dans le Tableau 5-5. Les processus de relaxation possibles après une transition (4d – nf) à partir de la configuration métastable sont récapitulés dans le Tableau 5-14 :

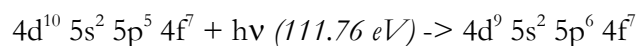
Tableau 5-14 « Récapitulatif des relaxations ionisantes possibles pour une photoexcitation 4d – nf (n>5) »

Configuration initiale	Processus	Configuration finale	n°
$4d^9 5s^2 5p^5 4f^7 nf^1 (n>5)$	$(nf - 4d) 4f^1$	3.2 : $4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^6$	R1
	$(nf - 4d) 5p^{-1}$	3.6 : $4d^{10} 5s^2 5p^4 4f^7$	R2
	$(nf - 4d) 5s^{-1}$	3.7 : $4d^{10} 5s^1 5p^5 4f^7$	R3
	$(4f - 4d) 4f^1$	$4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^5 nf^1$	R4
	$(4f - 4d) 5p^{-1}$	$4d^{10} 5s^2 5p^4 4f^6 nf^1$	R5
	$(4f - 4d) 5s^{-1}$	$4d^{10} 5s^1 5p^5 4f^6 nf^1$	R6
	$(5p - 4d) 5p^{-1}$	$4d^{10} 5s^2 5p^3 4f^7 nf^1$	R7
	$(5p - 4d) 5s^{-1}$	$4d^{10} 5s^1 5p^4 4f^7 nf^1$	R8
	$(5s - 4d) 5s^{-1}$	$4d^{10} 5s^0 5p^5 4f^7 nf^1$	R9
	$(nf - 5p) 4f^1$	3.12 : $4d^9 5s^2 5p^6 4f^6$	R10

Les relaxations R1 à R3 ne peuvent pas contribuer à la voie d'ionisation double, car les configurations **3.2**, **3.6** et **3.7** sont en-dessous du seuil d'ionisation de Sm^{2+} . Les configurations accessibles suivant le processus R4 peuvent autoioniser vers la configuration fondamentale **4.1** de l'ion Sm^{4+} . De même, la configuration accessible par relaxation R5 peut décroître vers la configuration métastable **4.2** de l'ion Sm^{4+} . Enfin, les relaxations R4 à R10 aboutissent à des configurations qui peuvent contribuer au signal de double ionisation. D'une manière générale, les transitions (4d – nf) (n>5) peuvent participer à la voie d'ionisation simple et double. Elles contribueront fortement au signal d'ionisation double au-dessus de n=6.

5.2.2.6 Transition 4d – 5p à partir de la configuration métastable 2.2

Le processus de photoexcitation en sous-couche 4d à partir de la configuration métastable 2.2 s'écrit :



La configuration photoexcitée n'est autre que la configuration 2.4 dont les modes de décroissances possibles ont été étudiés dans le paragraphe précédent. Les processus résonnants d'ionisation double à partir d'une excitation (4d – 5p) dans la configuration métastable seront donc très peu probables. En définitive, nous comprenons pourquoi, nous n'observons pas expérimentalement de signal d'ionisation double résonnant à cette énergie de photon. Seul, l'ionisation résonnante simple vers Sm^{3+} est probable.

5.2.2.7 Transition 4d – np à partir de la configuration métastable 2.2

Les positions des transitions (4d – np) (n=5,6), ainsi que la position du seuil d'ionisation en sous-couche 4d à partir de la configuration métastable, sont présentées sur la Figure 5-1. Comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent, la voie d'ionisation double pour les transitions 4d-5p semble très peu probable, puisque aucun signal d'ionisation double n'est observé à l'énergie d'excitation correspondante. (La position de la transition (4d – 6p) coïncide avec un léger accroissement de la section efficace expérimentale pour la voie d'ionisation simple.)

D'une manière générale, les transitions (4d – np) (n>5) participent à la voie d'ionisation simple et double. Les relaxations ionisantes possibles à partir d'une photoexcitation (4d – np) (n>5) sont présentées dans le Tableau 5-15 :

Tableau 5-15 « Récapitulatif des relaxations ionisantes possibles pour une photoexcitation 4d – np (n>5) »

Configuration initiale	Processus	Configuration finale	Probabilité (s ⁻¹)	n°
4d ⁹ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁷ np ¹ (n>5)	(np – 4d) 4f ⁻¹	3.2 : 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁶	1.23 10 ¹⁴	R1
	(np – 4d) 5p ⁻¹	3.6 : 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁴ 4f ⁷	2.96 10 ¹³	R2
	(np – 4d) 5s ⁻¹	3.7 : 4d ¹⁰ 5s ¹ 5p ⁵ 4f ⁷	6.19 10 ¹²	R3
	(4f – 4d) 4f ⁻¹	4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁵ np ¹	2.62 10 ¹⁷	R4
	(4f – 4d) 5p ⁻¹	4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁴ 4f ⁶ np ¹	5.22 10 ¹⁶	R5
	(4f – 4d) 5s ⁻¹	4d ¹⁰ 5s ¹ 5p ⁵ 4f ⁶ np ¹	9.42 10 ¹⁵	R6
	(5p – 4d) 5p ⁻¹	4d ¹⁰ 5s ² 5p ³ 4f ⁷ np ¹	7.95 10 ¹⁴	R7
	(5p – 4d) 5s ⁻¹	4d ¹⁰ 5s ¹ 5p ⁴ 4f ⁷ np ¹	3.23 10 ¹⁴	R8
	(5s – 4d) 5s ⁻¹	4d ¹⁰ 5s ⁰ 5p ⁵ 4f ⁷ np ¹	4.51 10 ¹³	R9
	(np – 5p) 4f ⁻¹	3.12 : 4d ⁹ 5s ² 5p ⁶ 4f ⁶	7.28 10 ¹⁵	R10

Comme pour les transitions (4d – nf), les relaxations R1 à R3 ne peuvent pas contribuer à la voie d'ionisation double car les configurations 3.2, 3.6 et 3.7 sont en-dessous du seuil d'ionisation de Sm^{3+} . Les configurations accessibles suivant le processus R4 peuvent autoioniser vers la configuration fondamentale 4.1 de l'ion Sm^{4+} . De même, la configuration

accessible par relaxation R5 peut décroître vers la configuration métastable **4.2** de l'ion Sm^{4+} . Enfin, les relaxations R4 à R10 aboutissent à des configurations qui peuvent contribuer au signal de double ionisation.

5.2.3 Conclusions sur le spectre expérimental de Sm^{2+}

Dans le cadre d'une simple analyse basée sur la notion d'énergie moyenne de configuration, il est possible de donner une interprétation des structures observées dans les voies d'ionisation simple et double (Figure 5-1).

Concernant le spectre d'ionisation simple, la structure résonnante S1 est identifiée comme provenant d'une photoexcitation (4d – 5p) à partir de la configuration métastable **2.2** : $4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^7$ de l'ion Sm^{2+} . Toutefois, seule une partie des niveaux de cette configuration est réellement métastable, car tous ne sont pas situés en-dessous du seuil d'ionisation. La quantité d'ions dans la configuration métastable **2.2** devrait donc être assez faibles ce qui n'est pas compatible avec le signal observé expérimentalement et qui pourrait être un indice de l'existence d'un fort mélange de configurations entre **2.1** et **2.2**.

Dans l'approximation où les configurations **2.1** et **2.2** sont distinctes, la structure expérimentale S2 peut être interprétée comme provenant essentiellement de la photoexcitation (4d – 4f) à partir des configurations fondamentale **2.1** : $4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^6$ et des photoexcitations (4d – 4f) et (4d – 6p) à partir de la configuration métastable **2.2**.

Concernant la voie de double ionisation, la configuration **2.3** : $4d^9 5s^2 5p^6 4f^7$ accessible soit par photoexcitation (4d – 5p) à partir de la configuration **2.2**, soit par photoexcitation (4d – 4f) à partir de la configuration fondamentale **2.1**, décroît principalement par autoionisation vers des configurations situées en-dessous du seuil d'ionisation de Sm^{3+} . On comprend donc pourquoi, il n'y a pas de structure intense observée dans la voie d'ionisation double sous la structure S1.

De la même manière, il y a peu de voies d'ionisation double pour la photoexcitation (4d – 4f) à partir de la configuration fondamentale. Seule une transition (4d – 4f) à partir de la configuration métastable contribue de façon significative à l'ionisation double de l'ion Sm^{2+} .

En définitive, la structure S3 observée dans la voie d'ionisation double peut donc être attribuée essentiellement aux processus d'excitation (4d – nf) ($n > 4$) et (4d – np) ($n > 5$) à partir des configurations **2.1** et **2.2**.

Cette approche configurationnelle nous a donc permis d'identifier, par des considérations énergétiques, quelles étaient les natures probables des structures observées expérimentalement, et quels processus étaient impliqués dans l'ionisation simple et double des ions Sm^{2+} sur la gamme d'énergie de photon expérimentale. L'approximation configurationnelle n'est pas suffisante car elle ne permet pas de comprendre les largeurs et les intensités des structures observées. Ainsi, la question de l'intensité de la structure S1 et de la position relative de la structure S2 comparativement à la structure S3 reste ouverte.

5.3 Etude de la série isonucléaire du Samarium de Sm^{2+} à Sm^{4+}

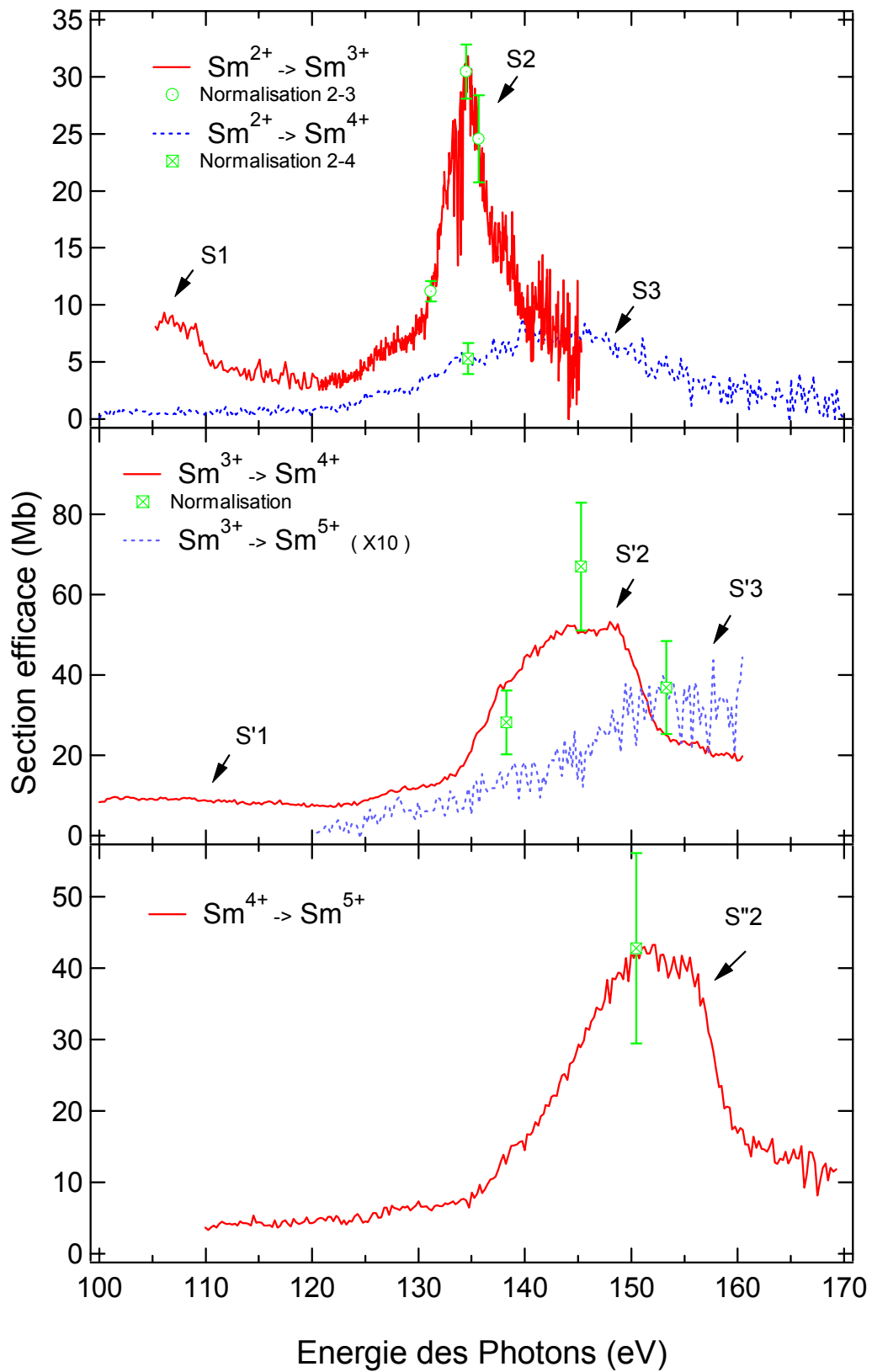


Figure 5-4 « Spectres expérimentaux obtenus pour les ions Sm^{2+} à Sm^{4+} »

La Figure 5-4 présente les résultats qui ont été obtenus sur les ions de la série isonucléaire du Samarium. Les deux spectres du panneau supérieur de la figure 5-6 correspondent à la variation des sections efficaces expérimentales de photoionisation simple (Courbe pleine) et double (courbe pointillée) de l'ion Sm^{2+} déjà présentées dans le paragraphe 5.2. Le panneau central présente la variation des sections efficaces de photoionisation simple (courbe pleine) et double (courbe pointillée) mesurées pour l'ion Sm^{3+} . Notons que le spectre d'ionisation double de Sm^{3+} a été multiplié par 10. Enfin, le dernier panneau correspond aux ions Sm^{4+} . Tous ces spectres sont présentés sur la même gamme d'énergie de photons, c'est-à-dire de 100 à 170 eV. Les structures résonnantes expérimentales sont numérotées S1 à S3 pour Sm^{2+} , S'2 et S'3 pour Sm^{3+} et S''2 pour Sm^{4+} .

5.3.1 Interprétation des structures expérimentales

Afin d'interpréter les spectres de photoionisation des ions Sm^{3+} et Sm^{4+} nous avons, comme pour l'ion Sm^{2+} , réalisé une étude basée sur les énergies moyennes de configurations. Dans cette optique, les tableaux 5-16 à 5-18 récapitulent les positions des configurations des ions Sm^{3+} , Sm^{4+} et Sm^{5+} qui participent aux processus de photoionisation.

Tableau 5-16 « Tableau des configurations de Sm^{3+} »

n°	Configuration	Parité	Energie Absolue ($\times 10^4$ Hartree)	Energie relative (eV)	Dispersion (eV)
(*)					
3.1	$5s^2 5p^6 4f^5$	-	-1,0033308	0	6,42
3.2	$5s^2 5p^6 4f^4 5d^1$	+	-1,0032868	11,97	5,65
3.3	$5s^2 5p^5 4f^6$	-	-1,0032652	17,85	7,05
3.4	$5s^2 5p^5 4f^5 5d^1$	+	-1,0032414	24,32	6,65
3.5	$5s^2 5p^6 4f^4 5f^1$	-	-1,0032277	28,05	5,67
3.6	$5s^1 5p^6 4f^6$	+	-1,0031922	37,71	6,88
3.7	$5s^2 5p^4 4f^7$	-	-1,0031907	38,12	7,42
3.8	$5s^2 5p^5 4f^5 5f^1$	-	-1,0031808	40,81	6,70
3.9	$4d^9 5s^2 5p^6 4f^6$	+	-1,0028315	135,87	13,2
3.10	$4d^9 5s^2 5p^5 4f^7$	+	-1,0027729	151,82	13,3

* Les numéros ne correspondent pas à ceux du Tableau 5-6

Tableau 5-17 « Tableau des configurations de Sm⁴⁺ »

n°	Configuration	Parité	Energie Absolue	Energie relative	Dispersion
(*)			(x10 ⁴ Hartree)	(eV)	(eV)
4.1	5s ² 5p ⁶ 4f ⁴	+	-1,0031664	0 (44,47 eV)	5,66
4.2	5s ² 5p ⁵ 4f ⁵	+	-1,0031296	10,02	6,67
4.3	5s ² 5p ⁴ 4f ⁶	+	-1,0030715	25,82	7,40
4.4	5s ¹ 5p ⁶ 4f ⁵	-	-1,0030475	32,35	7,40
4.5	5s ² 5p ³ 4f ⁷	+	-1,0030071	43,35	7,60
4.6	5s ¹ 5p ⁵ 4f ⁶	-	-1,0030010	45,01	7,82
4.7	5s ¹ 5p ⁴ 4f ⁷	-	-1,0029376	62,26	8,51
4.8	5s ⁰ 5p ⁶ 4f ⁶	+	-1,0029255	65,55	6,89
4.9	5s ⁰ 5p ⁵ 4f ⁷	+	-1,0028617	82,91	7,20
4.10	4d ⁹ 5s ² 5p ⁶ 4f ⁵	-	-1,0026705	134,94	13,13
4.11	4d ⁹ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁶	-	-1,0026307	145,77	13,55

* Les numéros ne correspondent pas à ceux du Tableau 5-6

Tableau 5-18 « Tableau des configurations de Sm⁵⁺ »

n°	Configuration	Parité	Energie Absolue	Energie relative	Dispersion
(*)			(x10 ⁴ Hartree)	(eV)	(eV)
5.1	5s ² 5p ⁶ 4f ³	-	-1,0029300	0 (64 eV)	4,504
5.2	5s ² 5p ⁵ 4f ⁴	-	-1,0029103	5,36	5,931
5.3	5s ² 5p ⁴ 4f ⁵	-	-1,0028747	15,05	7,056
5.4	5s ¹ 5p ⁶ 4f ⁴	-	-1,0028296	27,32	5,734
5.5	5s ² 5p ³ 4f ⁶	-	-1,0028248	28,62	7,61
5.6	5s ¹ 5p ⁵ 4f ⁵	+	-1,0028008	35,16	7,53
5.7	5s ¹ 5p ⁴ 4f ⁶	+	-1,0027576	46,91	8,57
5.8	5s ⁰ 5p ⁶ 4f ⁵	+	-1,0027148	58,56	6,498
5.9	5s ⁰ 5p ⁵ 4f ⁶	-	-1,0026783	68,49	7,17
5.10	4d ⁹ 5s ² 5p ⁶ 4f ⁴	+	-1,0024316	135,62	12,49
5.11	4d ⁹ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁵	+	-1,0024138	140,47	13,39

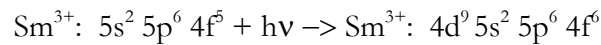
* Les numéros ne correspondent pas à ceux du Tableau 5-6

5.3.2 Etude des processus de photoionisation dans Sm³⁺

D'après le tableau 5-16, nous avons déterminé que seule la configuration Sm³⁺: 5s² 5p⁵ 4f⁶ est métastable et participe au spectre expérimental. Nous allons considérer ici uniquement les photoexcitations de type (4d – 4f) à partir de la configuration fondamentale (3.1, Tableau 5-16) ainsi que (4d – 4f), (4d – 5p) à partir de la configuration métastable (3.3, Tableau 5-16).

Contrairement à Sm^{2+} , tous les niveaux de la configuration **3.3** sont situés en-dessous du seuil d'ionisation de Sm^{3+} à 44.47 eV. On pourrait donc s'attendre à observer un signal associé aux photoexcitations à partir de la configuration **3.3** plus fort (Structure S1), ce qui ne semble pas être le cas. Nous reviendrons sur ce point dans la partie « discussions » de ce Chapitre, paragraphe 5.4.4. Les séries (4d – nf) ($n > 5$) et (4d – np) ($n > 5$) vont également contribuer aux voies de simple et double ionisation. Leurs contributions interviendront à partir de 165.67 eV pour la transition (4d – 5f), et 158.10 eV pour la transition (4d – 6p) à partir de la configuration fondamentale, et 153 eV pour la transition (4d – 6p) à partir de la configuration métastable. Par ailleurs, le seuil d'ionisation directe en sous-couche 4d à partir de la configuration fondamentale **3.1** de l'ion Sm^{3+} est calculé à 179.46 eV (énergie des photons), et 172.52 eV à partir de la configuration métastable **3.3**.

5.3.2.1 Photoexcitation (4d – 4f) à partir de la configuration fondamentale



La Figure 5-5 présente les configurations de Sm^{3+} et Sm^{4+} qui participent aux processus de photoionisation lors d'une photoexcitation (4d – 4f) à partir de la configuration **3.1**.

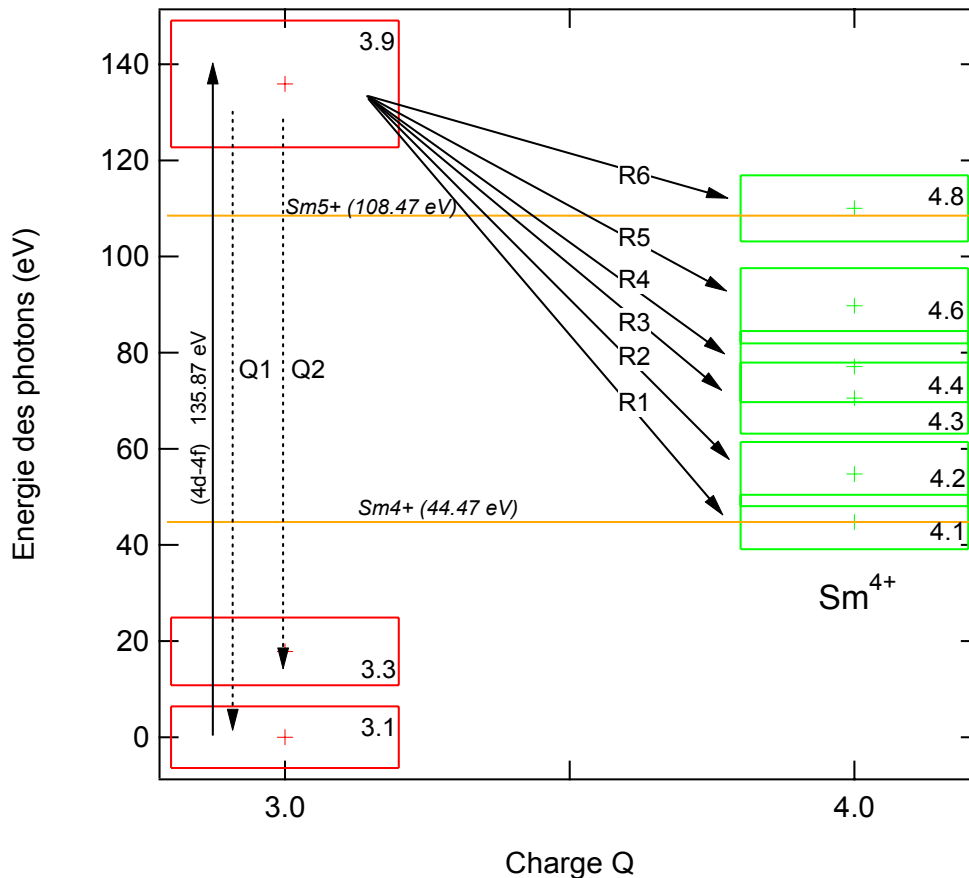


Figure 5-5 « Schéma des configurations impliquées dans les processus d'ionisation simple et double de Sm^{3+} lors d'une excitation (4d – 4f) à partir de la configuration fondamentale **3.1** »

L'énergie de cette transition est calculée à 135.87 eV. Contrairement au cas de l'ion Sm^{2+} , notons que cette valeur diffère de façon importante de celle du faisceau de transitions expérimental qui est mesurée aux alentours de 145 eV. Ce désaccord peut s'expliquer par le fait que nous identifions l'énergie de la transition à une différence d'énergie moyenne de configuration. Cette valeur sera corrigée, lorsque nous aborderons le calcul des deux premiers moments des faisceaux de transitions. A partir de la configuration photoexcitée, plusieurs modes de relaxation sont possibles. Ces relaxations sont résumées dans le Tableau 5-19 :

Tableau 5-19 « Récapitulatif des principales relaxations à partir de la configuration **3.9** »

Configuration initiale	n°	Processus	Configuration finale	Probabilité (s ⁻¹)
3.9 : $4d^9 5s^2 5p^6 4f^6$	Q1	(4f – 4d)	3.1 – $\text{Sm}^{3+} 4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^5$	$2.27 \cdot 10^{11}$
	Q2	(5p – 4d)	3.3 – $\text{Sm}^{3+} 4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^6$	$4.70 \cdot 10^{10}$
	R1	(4f – 4d) $4f^{-1}$	4.1 – $\text{Sm}^{4+} 4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^4$	$1.91 \cdot 10^{17}$
	R2	(4f – 4d) $5p^{-1}$	4.2 – $\text{Sm}^{4+} 4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^5$	$5.61 \cdot 10^{16}$
	R3	(5p – 4d) $5p^{-1}$	4.3 – $\text{Sm}^{4+} 4d^{10} 5s^2 5p^4 4f^6$	$1.22 \cdot 10^{15}$
	R4	(4f – 4d) $5s^{-1}$	4.4 – $\text{Sm}^{4+} 4d^{10} 5s^1 5p^6 4f^5$	$8.44 \cdot 10^{15}$
	R5	(5p – 4d) $5s^{-1}$	4.6 – $\text{Sm}^{4+} 4d^{10} 5s^1 5p^5 4f^6$	$3.97 \cdot 10^{14}$
R6	(5s – 4d) $5s^{-1}$	4.8 – $\text{Sm}^{4+} 4d^{10} 5s^0 5p^6 4f^6$	$4.11 \cdot 10^{13}$	

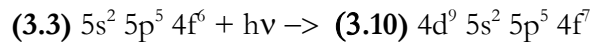
Les relaxations notées Q1 et Q2 sont des transitions radiatives. Elles sont négligeables devant les probabilités d'autoionisation associées aux relaxations R1 à R6. Les configurations de l'ion Sm^{4+} accessibles par autoionisation selon les processus R1 à R5 sont situées en-dessous du seuil d'ionisation de Sm^{4+} , situé à 108.47 eV au-dessus du fondamental. Il n'y aura donc pas d'ionisation double possible. La relaxation R6 aboutit à la configuration **4.8**, dont une partie des niveaux est située au-dessus du seuil d'ionisation de Sm^{4+} . Toutefois, nos calculs indiquent, compte-tenu des énergies moyennes des configurations de Sm^{5+} , que la configuration **4.8** ne peut pas relaxer par autoionisation, car la configuration **5.4** : $4d^{10} 5s^1 5p^6 4f^4$ de Sm^{5+} , première configuration accessible par autoionisation, est située au-dessus de la configuration **4.8**.

En conclusion, comme pour l'ion Sm^{2+} , il n'y aura pas de voie d'ionisation double à partir d'une photoexcitation (4d – 4f) dans la configuration fondamentale de l'ion Sm^{3+} . Seule l'ionisation simple est probable.

5.3.2.2 Photoexcitation (4d – 5p) à partir de la configuration métastable

L'énergie d'excitation (4d – 5p) à partir de la configuration métastable **3.3** est de 118.02 eV. La configuration photoexcitée qui correspond à cette transition (4d – 5p) n'est autre que la configuration **3.9**. Les voies de relaxation sont donc les mêmes que précédemment. Il y aura donc uniquement de l'ionisation simple pour cette transition. Notons que contrairement à Sm^{2+} , il n'y a pas de structure marquée observée expérimentalement aux alentours de 118 eV dans la voie d'ionisation simple.

5.3.2.3 Photoexcitation (4d – 4f) à partir de la configuration métastable



La Figure 5.6 indique la position des énergies moyennes de configurations contribuant au spectre expérimental pour des ions incidents initialement dans la configuration métastable 3.3 et ayant subi une photoexcitation (4d – 4f).

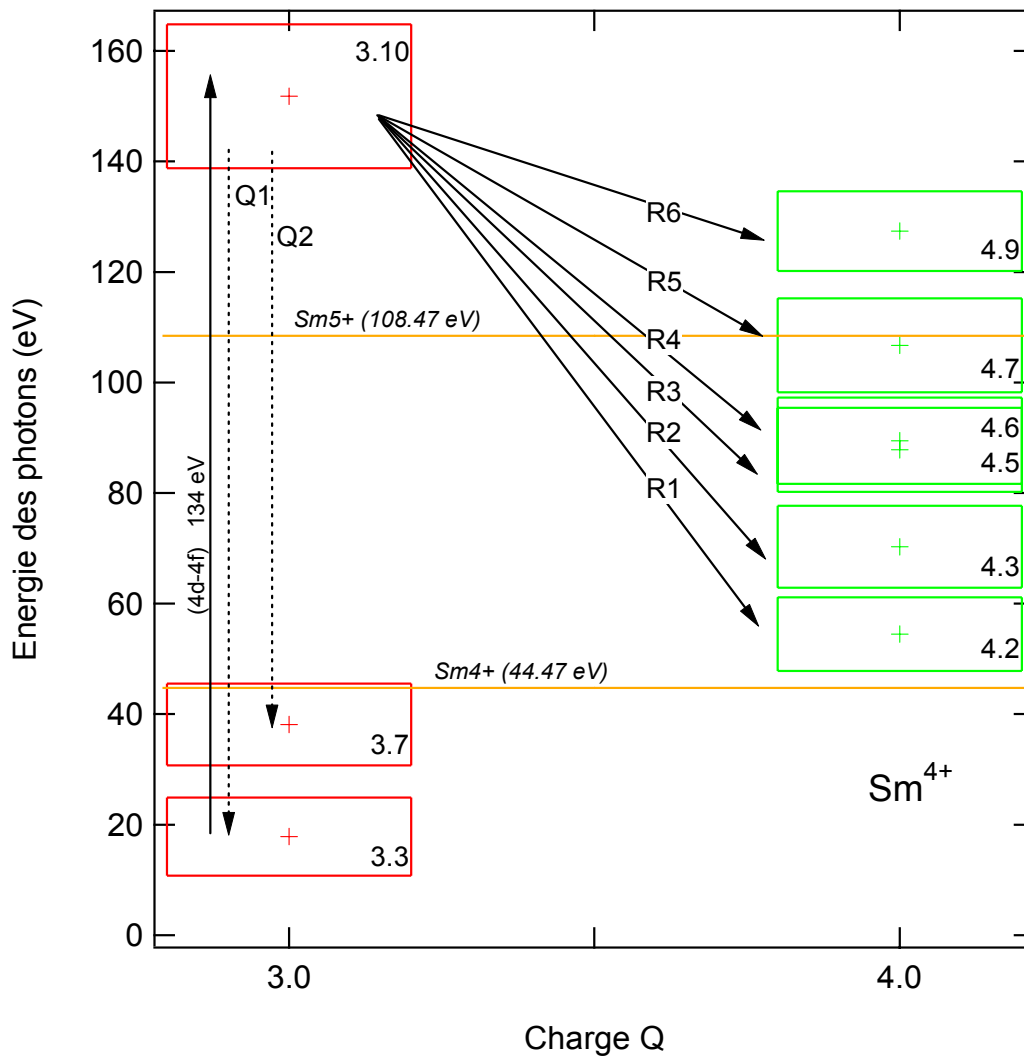


Figure 5-6 « Schéma des configurations impliquées dans les processus d'ionisation résonnante simple et double de Sm^{3+} lors d'une excitation (4d – 4f) à partir de la configuration métastable 3.3 »

L'énergie de cette transition est à 134 eV. A partir de la configuration photoexcitée, plusieurs modes de relaxation sont possibles. Ces relaxations sont regroupées dans le Tableau 5-20 :

Tableau 5-20 « Récapitulatif des principales relaxations à partir de la configuration 3.10 »

Configuration initiale (Sm ³⁺)	n°	Processus	Configuration finale	Probabilité (s ⁻¹)
3.10 – 4d ⁹ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁷	Q1	(4f – 4d)	3.3 – Sm ³⁺ : 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁶	2.59 10 ¹¹
	Q2	(5p – 4d)	3.7 – Sm ³⁺ : 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁴ 4f ⁷	2.64 10 ¹⁰
	R1	(4f – 4d) 4f ¹	4.2 – Sm ⁴⁺ : 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁵	2.62 10 ¹⁷
	R2	(4f – 4d) 5p ⁻¹	4.3 – Sm ⁴⁺ : 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁴ 4f ⁶	5.27 10 ¹⁶
	R3	(5p – 4d) 5p ⁻¹	4.5 – Sm ⁴⁺ : 4d ¹⁰ 5s ² 5p ³ 4f ⁷	8.06 10 ¹⁴
	R4	(4f – 4d) 5s ⁻¹	4.6 – Sm ⁴⁺ : 4d ¹⁰ 5s ¹ 5p ⁵ 4f ⁶	9.50 10 ¹⁵
	R5	(5p – 4d) 5s ⁻¹	4.7 – Sm ⁴⁺ : 4d ¹⁰ 5s ¹ 5p ⁴ 4f ⁷	3.24 10 ¹⁴
R6	(5s – 4d) 5s ⁻¹	4.9 – Sm ⁴⁺ : 4d ¹⁰ 5s ⁰ 5p ⁵ 4f ⁷	4.44 10 ¹³	

Les relaxations Q1 et Q2 sont radiatives. Elles ont des probabilités faibles comparativement à celles des processus d'autoionisation notés R1 à R6. Parmi tous les processus d'autoionisation permis, seuls R5 et R6 aboutissent à des configurations situées au-dessus du seuil d'ionisation de Sm⁴⁺ calculé à 108.47 eV. Les autoionisations R1 à R5 participeront donc uniquement au signal d'ionisation simple. La probabilité d'autoionisation de la configuration **3.10** suivant le processus R6 est la plus faible, ce processus ne contribuera donc que faiblement à la voie d'ionisation double.

5.3.2.4 Conclusion sur l'interprétation des ions Sm³⁺

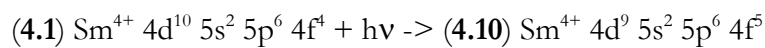
Le spectre expérimental d'ionisation simple peut être interprété comme provenant des photoexcitations (4d – 4f) à partir de la configuration fondamentale (structure S'2) et métastable et (4d – 5p) à partir de la configuration métastable (Structure S'1). Les transitions (4d – nf) et (4d – np) sont situées plus haut en énergie.

Concernant la voie d'ionisation double, nous avons vu dans ce qui précède qu'aucune relaxation à partir des configurations fondamentale et métastable ne permettait, du point de vue énergétique, de rendre compte du signal d'ionisation double observé. En conclusion, ce signal provient vraisemblablement de photoexcitation (4d – nf) (n>5) et (4d – np) (n>5). Ceci pourrait expliquer pourquoi le signal d'ionisation double est faible, comparé à celui enregistré pour l'ion Sm²⁺ où plus de voies d'ionisation double sont ouvertes. Notons que le rapport des forces d'oscillateur entre les voies d'ionisation simple et double est de S'3/S'2=0.8 pour Sm³⁺ contre S3/S2=11.9 pour Sm²⁺.

5.3.3 Etude des processus de photoionisation dans Sm^{4+}

Pour l'ion Sm^{4+} , seul le spectre correspondant à l'ionisation simple a été mesuré. Il est présenté sur le panneau inférieur de la Figure 5-6. Le seuil d'ionisation directe en sous-couche 4f (64 eV) est ouvert sur la gamme d'énergie de photon expérimentale. Le seuil d'ionisation double est calculé à 151.16 eV. Le seuil d'ionisation en sous-couche 4d à partir de la configuration fondamentale est calculé à 199.95 eV. De même, le seuil $4d^{-1}$ à partir de la configuration métastable se situe à 194.78 eV.

5.3.3.1 Photoexcitation (4d – 4f) à partir de la configuration fondamentale



L'énergie d'excitation (4d – 4f) à partir de la configuration fondamentale $4.1 \text{ } 4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^4$ est calculée à 133.94 eV. La Figure 5-7 présente le schéma des configurations impliquées dans le processus d'ionisation simple de l'ion Sm^{4+} sur la gamme d'énergie de photon expérimentale, associé à la photoexcitation (4d – 4f) :

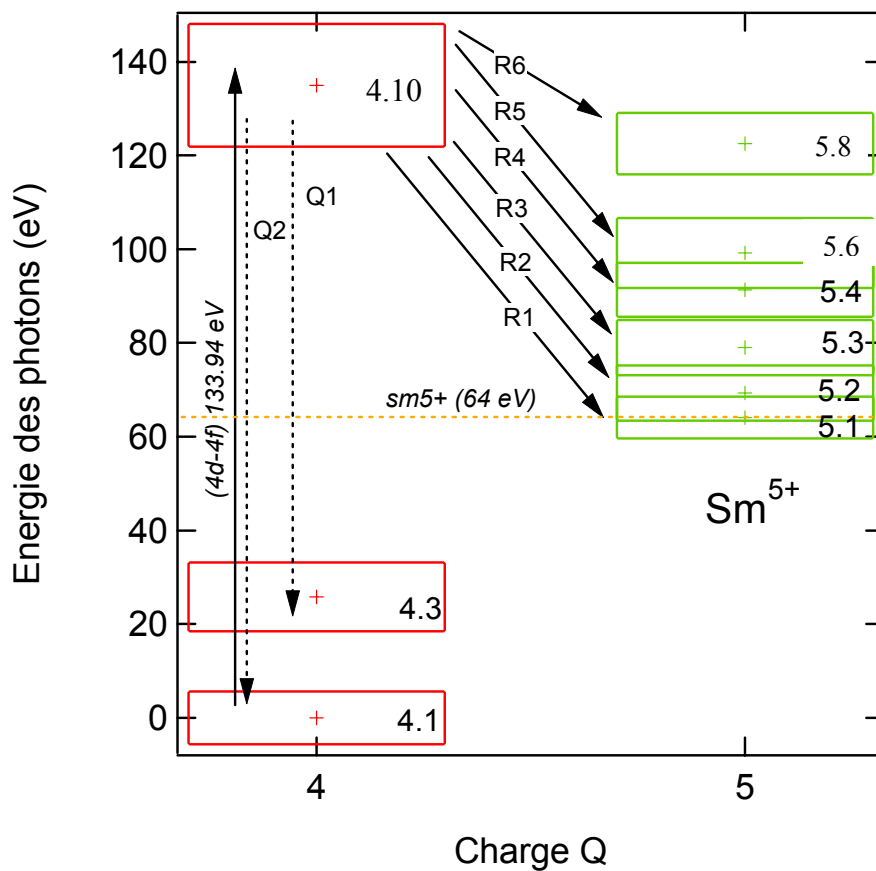


Figure 5-7 « Schéma des configurations impliquées dans les processus d'ionisation simple de Sm^{4+} pour une excitation (4d – 4f) à partir de la configuration fondamentale 4.1 »

Les processus possibles de relaxation à partir de la configuration photoexcitée **4.10** sont récapitulés dans le Tableau 5-21. Nous pouvons constater qu'une nouvelle fois, comme pour les autres états de charge, les probabilités de décroissance radiative à partir de la configuration photoexcitée sont négligeables devant les processus d'autoionisation.

Tableau 5-21 « Récapitulatif des relaxations à partir de la configuration 4.10 »

Configuration initiale (Sm ⁴⁺)	n°	Processus	Configuration finale	Probabilité (s ⁻¹)
4.10 - 4d ⁹ 5s ² 5p ⁶ 4f ⁵	Q1	(4f – 4d)	4.1 – Sm ⁴⁺ 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁶ 4f ⁴	1.91 10 ¹¹
	Q2	(5p – 4d)	4.3 – Sm ⁴⁺ 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁶	5.40 10 ¹⁰
	R1	(4f – 4d) 4f ⁻¹	5.1 – Sm ⁵⁺ 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁶ 4f ³	1.29 10 ¹⁷
	R2	(4f – 4d) 5p ⁻¹	5.2 – Sm ⁵⁺ 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁴	5.12 10 ¹⁶
	R3	(5p – 4d) 5p ⁻¹	5.3 – Sm ⁵⁺ 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁴ 4f ⁵	1.34 10 ¹⁵
	R4	(4f – 4d) 5s ⁻¹	5.4 – Sm ⁵⁺ 4d ¹⁰ 5s ¹ 5p ⁶ 4f ⁴	7.52 10 ¹⁵
	R5	(5p – 4d) 5s ⁻¹	5.6 – Sm ⁵⁺ 4d ¹⁰ 5s ¹ 5p ⁵ 4f ⁵	4.15 10 ¹⁴
R6	(5s – 4d) 5s ⁻¹	5.8 – Sm ⁵⁺ 4d ¹⁰ 5s ⁰ 5p ⁶ 4f ⁵	3.65 10 ¹³	

Notons également que toutes les configurations **5.1** à **5.8** accessibles par les processus de relaxation R1 à R6 sont situées en-dessous du seuil d'ionisation de Sm⁵⁺. La voie d'ionisation double est donc fermée pour cette transition (4d – 4f) initiale. Comme pour les autres états de charge, les processus de décroissance à partir d'une photoexcitation (4d – 5p) dans la configuration métastable **4.2** sont identiques à ceux de la transition (4d – 4f) à partir de la configuration fondamentale **4.1**. L'énergie de cette transition est calculée à 120.6 eV. Comme pour Sm³⁺, il n'y a pas de structure qui soit comparable à celle observée (S1) dans Sm²⁺ pour cette transition.

5.3.3.2 Photoexcitation (4d – 4f) à partir de la configuration métastable

L'énergie d'excitation (4d – 4f) à partir de la configuration métastable **4.2** 5s² 5p⁵ 4f⁵ de l'ion Sm⁴⁺ vers la configuration **4.11**: 4d⁹ 5s² 5p⁵ 4f⁶ est calculée à 133.48 eV. Les processus possibles de relaxation par autoionisation à partir de la configuration photoexcitée **4.11** sont récapitulés dans le Tableau 5-22.

Tableau 5-22 « Récapitulatif des relaxations à partir de la configuration 4.11 »

Configuration initiale (Sm ⁴⁺)	n°	Processus	Configuration finale	Probabilité (s ⁻¹)
4.11 - 4d ⁹ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁶	Q1	(4f – 4d)	4.2 – Sm ⁴⁺ 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁵	2,28 10 ¹¹
	Q2	(5p – 4d)	4.3 – Sm ⁴⁺ 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁴ 4f ⁶	4,15 10 ¹⁰
	R1	(4f – 4d) 4f ⁻¹	5.2 – Sm ⁵⁺ 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁵ 4f ⁴	1,94 10 ¹⁷
	R2	(4f – 4d) 5p ⁻¹	5.3 – Sm ⁵⁺ 4d ¹⁰ 5s ² 5p ⁴ 4f ⁵	4,95 10 ¹⁶
	R3	(5p – 4d) 5p ⁻¹	5.5 – Sm ⁵⁺ 4d ¹⁰ 5s ² 5p ³ 4f ⁶	8,87 10 ¹⁴
	R4	(4f – 4d) 5s ⁻¹	5.6 – Sm ⁵⁺ 4d ¹⁰ 5s ¹ 5p ⁵ 4f ⁵	8,73 10 ¹⁵
R5	(5p – 4d) 5s ⁻¹	5.7 – Sm ⁵⁺ 4d ¹⁰ 5s ¹ 5p ⁴ 4f ⁶	3,45 10 ¹⁴	

Les relaxations radiatives seront une nouvelle fois négligeables devant les relaxations par autoionisation. Les configurations **5.2** à **5.10** sont situées en-dessous du seuil d'ionisation de l'ion Sm⁵⁺. Il n'y aura donc pas de voie de relaxation possible vers Sm⁶⁺ à partir d'une photoexcitation (4d – 4f) dans la configuration métastable de Sm⁴⁺, et seule l'ionisation simple est possible pour cette photoexcitation.

5.4 Analyse basée sur une approche U.T.A

5.4.1 Principe du Modèle U.T.A

Le principe du modèle UTA, développé par J. Bauche et al. [5.7] pour décrire les transitions dans des systèmes atomiques et ioniques, consiste à s'affranchir d'un calcul de structure détaillé, en calculant les premiers moments de la distribution en énergie des transitions dipolaires qui sont possibles entre les distributions de niveaux de deux configurations C et C'. L'énergie moyenne totale d'une configuration à N électrons s'écrit [5.1] :

$$E_{av} = \frac{\sum_b \langle b|H|b\rangle}{N_b} \quad \text{éq. 5-1}$$

(N_b = nombre de fonctions d'onde de base)

dans le cas d'un Hamiltonien non relativiste l'énergie moyenne peut s'écrire [5.1] :

$$E_{av} = \sum_{i=1}^N (E_i^n + E_i^k) + \frac{1}{2} \sum_{i=1} \sum_{i \neq j} E^{ij} \quad \text{éq. 5-2}$$

avec la contribution cinétique E_i^k, la contribution de l'interaction électron – noyau E_iⁿ, et le terme représentant l'énergie moyenne d'interaction électron – électron E^{ij} qui s'écrit :

$$E_{e-e}^{av} = F_{ij}^0 - \frac{1}{2} \sum_k \begin{pmatrix} l_i & k & l_j \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}^2 G_{ij}^k \quad : \text{électrons non équivalents} \quad \text{éq. 5-3}$$

$$E_{eq}^{av} = F_{ii}^0 - \frac{2l_i + 1}{4l_i + 1} \sum_k \begin{pmatrix} l_i & k & l_i \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}^2 F_{ii}^k \quad : \text{électrons équivalents}$$

avec :

$$F_{ij}^k = \int_0^\infty \int_0^\infty \frac{2r_{<}^k}{r_{>}^{k+1}} |P_i(r_1)|^2 \times |P_j(r_2)|^2 dr_1 dr_2$$

$$G_{ij}^k = \int_0^\infty \int_0^\infty \frac{2r_{<}^k}{r_{>}^{k+1}} P_i(r_1) * P_j(r_2) P_j(r_1) P_i(r_2) dr_1 dr_2 \quad \text{éq. 5-4}$$

$r_{>}$ **respct.** $r_{<} = \max, \min(r_1, r_2)$

Dans le cas d'électrons équivalents (i=j):

$$k=0,2,4,\dots,\min(2l_i,2l_j)$$

et $G^k=F^k$

et pour des électrons non équivalents :

$$k=|l_i-l_j|, |l_i-l_j|+2, |l_i-l_j|+4,\dots, l_i+l_j$$

Lors d'une transition entre une configuration C et une configuration C', l'énergie moyenne des transitions n'est pas égale à la différence des énergies moyennes de chaque configuration.

La méthode U.T.A consiste à calculer l'énergie moyenne de transition $E_{\text{moy}}(C,C')$ entre deux configurations C et C' en pondérant l'expression de l'énergie moyenne par la force de raie (à l'approximation dipolaire électrique) $w_{bb'}$, de la transition entre l'état b et b' de sorte que les moments associés à l'interaction s'écrivent :

$$E_{\text{moy}}^n(C - C') = \frac{\sum_{bb'} (\langle b'|H|b' \rangle - \langle b|H|b \rangle)^n w_{bb'}}{W} \quad \text{éq. 5-5}$$

Où b et b' représentent les états quantiques des configurations C et C', n est l'ordre du moment (n=1,2), $w_{bb'}$, et W sont définis par :

$$w_{bb'} = \langle b | - \sum_{i=1, N'} r_i | b' \rangle^2$$

$$W = \sum_{bb'} w_{bb'} \quad \text{éq. 5-6}$$

En définitive, l'énergie moyenne associée aux faisceaux de transitions entre les configurations (C) et (C') peut s'écrire, dans le cas général, comme la différence des énergies moyennes de chaque configuration, à laquelle est ajoutée un terme correctif tenant compte de la restriction des niveaux de (C') accessibles à partir de ceux de la configuration (C) par transition dipolaire électrique :

$$E_{\text{moy}}(C - C') = E_{\text{moy}}(C) + E_{\text{moy}}(C') + \delta E(C - C') \quad \text{éq. 5-7}$$

Dans le cas de tableau de transition de type $[l^N l' - l^N l']$, $\delta E = 0$. Pour les transitions du type $[l^N - l^{N-1} l']$, l'expression de δE s'écrit comme une combinaison linéaire d'intégrales de Slater :

$$\delta E(nl^{N+1} - nl^N n'l') = \frac{N(2l+1)(2l'+1)}{(4l+1)} \left[\sum_{k \neq 0} f_k F^k(nl, n'l') + \sum_k g_k G^k(nl, n'l') \right] \quad \text{éq. 5-8}$$

Les coefficients f_k et g_k sont données par :

$$f_k = \begin{pmatrix} l & k & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l & k & l' \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} l & k & l \\ l & 1 & l' \end{Bmatrix} \quad \text{éq. 5-9}$$

$$g_k = \begin{pmatrix} l & k & l' \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}^2 \left[\frac{2\delta(k,1)}{3} - \frac{1}{[2(2l+1)(2l'+1)]} \right]$$

Notons que pour des transitions entre sous-couches de même n , δE peut devenir relativement grand. Les formules des termes correctifs δE dans le cas de faisceaux de transition de type $p \leftrightarrow s$, $d \leftrightarrow p$ ou $f \leftrightarrow d$ sont données ci-dessous :

$$p \leftrightarrow s : \delta E(p, s) = \frac{N}{(4l+1)} \left[\frac{1}{2} G^1(p, s) \right]$$

$$d \leftrightarrow p : \delta E(d, p) = \frac{N}{(4l+1)} \left[-\frac{1}{5} F^2(d, p) + \frac{19}{15} G^1(d, p) - \frac{3}{70} G^3(d, p) \right] \quad \text{éq. 5-10}$$

$$f \leftrightarrow d : \delta E(f, d) = \frac{N}{(4l+1)} \left[-\frac{8}{35} F^2(f, d) + \frac{2}{21} F^4(f, d) + \frac{137}{70} G^1(f, d) - \frac{2}{105} G^3(f, d) - \frac{5}{231} G^5(f, d) \right]$$

La variance associée au faisceau de transitions peut également être calculée :

$$\sigma^2 = (E_{\text{moy}}^2(C - C')) - (E_{\text{moy}}(C - C'))^2 \quad \text{éq. 5-11}$$

L'expression des variances pour des configurations de type $[nl^N]$ et $[nl^N n'l'^{N'}]$ a été calculée par Bauche-Arnoult et al. [5.5]. La variance des énergies des transitions entre deux configurations C et C' dans le cas général d'un faisceau de transitions défini par $C-C' = [l_1^{N_1}, l_2^{N_2}, l_3^{N_3}, \dots - l_1^{N_1-1}, l_2^{N_2+1}, l_3^{N_3}, \dots]$ peut s'écrire dans l'approximation du champ central comme une combinaison linéaire des variances des transitions mono-électroniques [5.8].

5.4.2 Validation de notre code U.T.A

Afin de valider notre code développé sur les bases du modèle U.T.A, nous avons réalisé un calcul de type « MCDF » restreint à un cas monoconfigurationnel non-relativiste (dans ce cas, la vitesse de la lumière est considérée comme infinie) pour les transitions (4d – 4f) à partir de la configuration fondamentale **2.1** de l'ion Sm^{2+} . Le calcul a également pu être effectué pour les transitions (4d – 5p) à partir de la configuration métastable **2.2**. Les résultats des calculs « MCDF » et UTA pour ces transitions sont présentés sur la Figure 5-8.

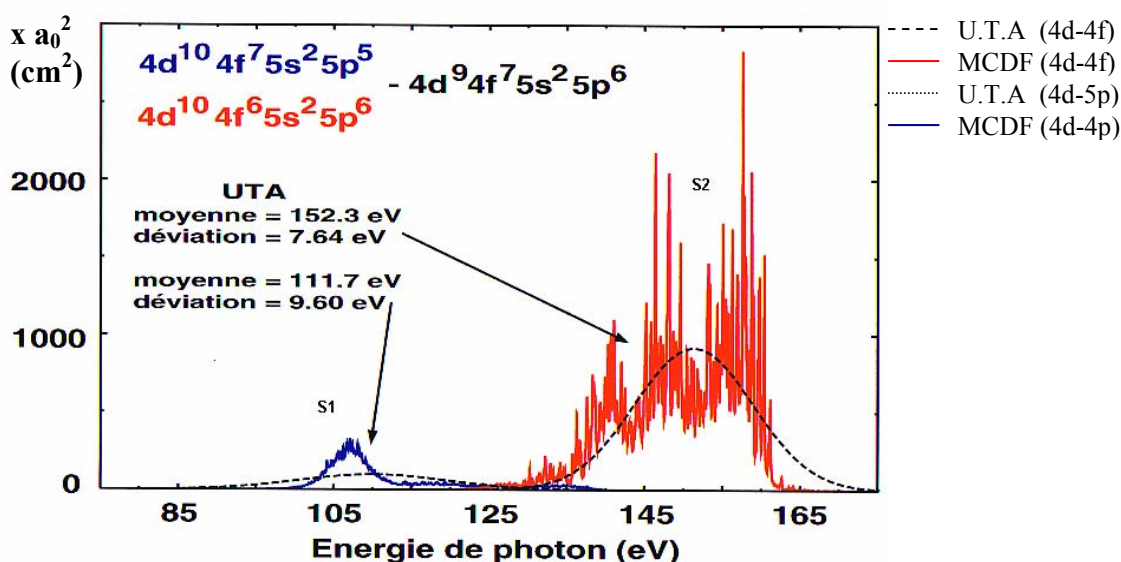


Figure 5-8 « Comparaison des calculs MCDF et U.T.A pour les transitions $4d^{10} 5s^2 5p^6 4f^6 \rightarrow 4d^9 5s^2 5p^6 4f^7$ et $4d^{10} 5s^2 5p^5 4f^7 \rightarrow 4d^9 5s^2 5p^6 4f^7$ dans l'ion Sm^{2+} »

Sur la Figure 5-8, les enveloppes Gaussiennes des U.T.A sont normalisées à la force d'oscillateur totale des structures « MCDF » S1 et S2. Les positions des faisceaux de transitions calculées avec U.T.A sont compatibles avec les résultats des calculs « MCDF ». Les distributions des forces d'oscillateur calculées par « MCDF » sont difficilement reproduites par des enveloppes Gaussiennes. En effet, l'U.T.A associé à la transition (4d – 5p) présente une large queue de distribution entre 110 et 145 eV. De même l'U.T.A associé à la transition (4d – 4f) présente trois sous-structures distinctes. Sur ces deux exemples, nous pouvons conclure, au moins pour les énergies moyennes des transitions, que les calculs U.T.A sont en bon accord avec les calculs « MCDF ».

5.4.3 Présentation des résultats du code U.T.A

Pour chaque ion, les positions, les largeurs et les enveloppes Gaussiennes des faisceaux de transitions calculées avec le code U.T.A, sont comparées aux résultats expérimentaux (Figure 5-9).

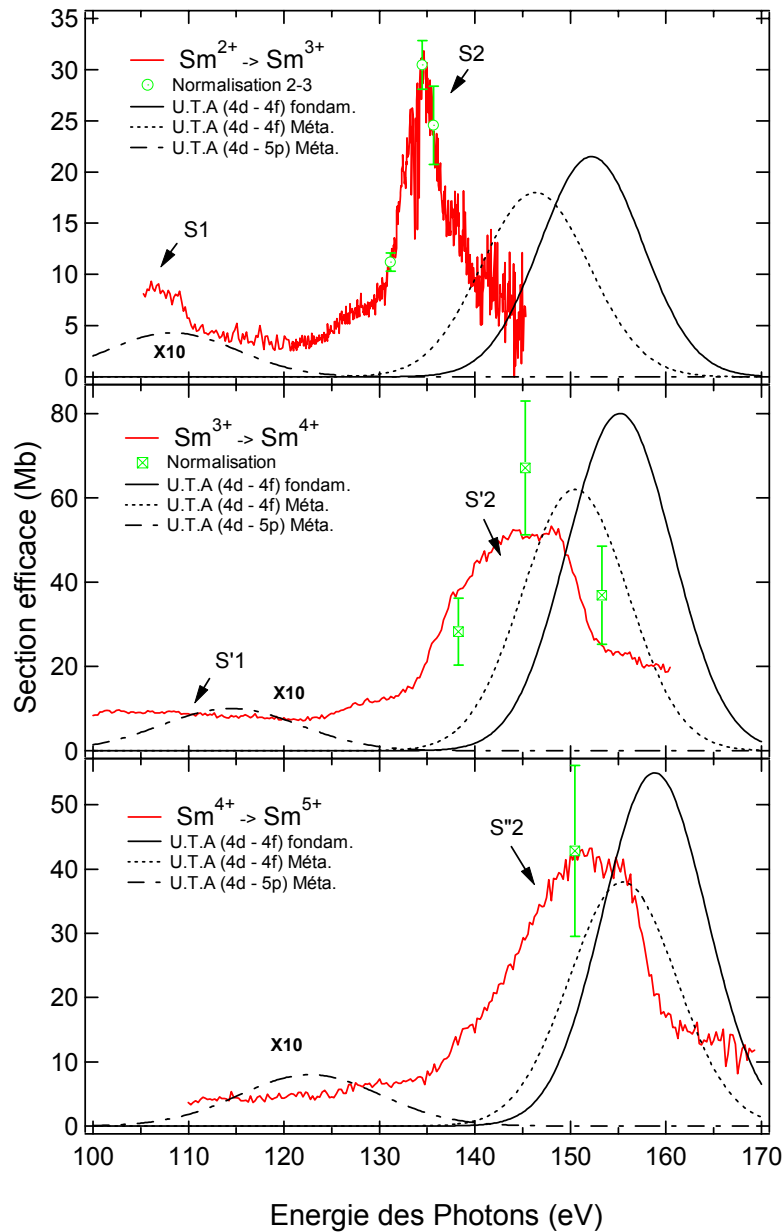


Figure 5-9 « Comparaisons des spectres expérimentaux avec les résultats de notre calcul U.T.A »

Sur ces figures, nous avons conservé uniquement les spectres expérimentaux d'ionisation simple.

Les enveloppes Gaussiennes des U.T.A correspondant aux transitions (4d – 4f) à partir de la configuration fondamentale sont obtenues en se normalisant à la force d'oscillateur totale de la structure expérimentale correspondante. Les enveloppes Gaussiennes des faisceaux de

transitions (4d – 4f) et (4d – 5p) à partir des configurations métastables sont obtenues grâce aux valeurs relatives des forces d'oscillateur à l'absorption théoriques présentées dans le Tableau 5-23 et définis par :

$$f_{abs}(nl \rightarrow n'l') = pop(nl) \times [Deg(n'l') - Pop(n'l')] \times \frac{2\Delta E(nl, n'l')}{3} \times \max(l, l') \times \left[\langle \varphi_{nl} | r | \varphi_{n'l'} \rangle \right]^2$$

où, pop(x) et Deg(x) représentent le nombre d'électrons et la dégénérescence de la sous couche x, $\Delta E(nl, n'l')$ est l'énergie moyenne de la transition, $\langle \varphi_{nl} | r | \varphi_{n'l'} \rangle$ est le terme associé aux fonctions d'ondes radiales des configurations (sous couches) nl et n'l'.

Les différents paramètres des faisceaux de transitions, calculés avec le code U.T.A et mesurés expérimentalement, sont récapitulés dans le Tableau 5-23 :

Tableau 5-23 «Caractéristiques des faisceaux de transition»

n°	Transition	Position Exp. (eV)	σ (eV)	Force d'osc.	Position U.T.A (eV)	Déviaton U.T.A (eV)	f(abs)	Position <C> - <C'> (eV)
S1	Sm ^{2+*} /4d – 5p	107.10 ± 0.24	3.774 ± 0.324	~0.7	111.7	9.6	0.112	111.75
S2	Sm ^{2+*} /4d – 4f	134.68 ± 0.05	2.802 ± 0.087	-	146.3	7.9	4.143	132.93
S2	Sm ²⁺ /4d – 4f	134.68 ± 0.05	2.802 ± 0.087	~2.4	152.3	7.6	4.787	133.72
S'1	Sm ^{3+*} /4d – 5p	-	-	~4.3	118.0	10.2	0.118	118.02
S'2	Sm ^{3+*} /4d – 4f	-	-	-	150.5	7.8	4.827	133.97
S'2	Sm ³⁺ /4d – 4f	145.01 ± 0.09	9.104 ± 0.238	~10	155.2	7.78	5.413	135.87
S''1	Sm ^{4+*} /4d – 5p	-	-	~1.2	120.6	10.4	0.123	120.6
S''2	Sm ^{4+*} /4d – 4f	-	-	-	155.5	7.9	5.432	135.75
S''2	Sm ⁴⁺ /4d – 4f	151.29 ± 0.09	9.848 ± 0.134	~7.5	158.8	7.6	5.976	134.94

* configuration excitée : 4d¹⁰ 5s² 5p⁵ 4f^(x+1) (x=6,5,4)

5.4.4 Discussion sur la série isonucléaire du samarium

5.4.4.1 Positions des U.T.A

Une première analyse de la Figure 5-9 et du Tableau 5-23 indique que les positions des U.T.A calculées par notre code sont systématiquement surestimées par rapport aux positions expérimentales. Ce désaccord semble diminuer lorsque l'état de charge augmente.

Les positions des maxima des U.T.A qui sont associés aux transitions (4d – 4f) (voie d'ionisation simple) se décalent vers les hautes énergies avec l'état de charge. Le modèle UTA prévoit bien ce décalage avec l'état de charge.

Bas états de charge

Il est intéressant de noter que le décalage en énergie entre l'U.T.A (4d – 4f) de l'ion Sm^{2+} et Sm^{3+} semble très prononcé (10.43 eV sur le spectre expérimental) comparativement au décalage qui existe entre les U.T.A des transitions (4d – 4f) des ions Sm^{3+} et Sm^{4+} (6.28 eV). Ce fort décalage entre Sm^{2+} et Sm^{3+} n'est pas correctement reproduit par nos calculs U.T.A puisqu'ils donnent une dérive de la position des U.T.A (4d – 4f) beaucoup plus lente pour les premiers états de charge comme l'indique la Figure 5-10.

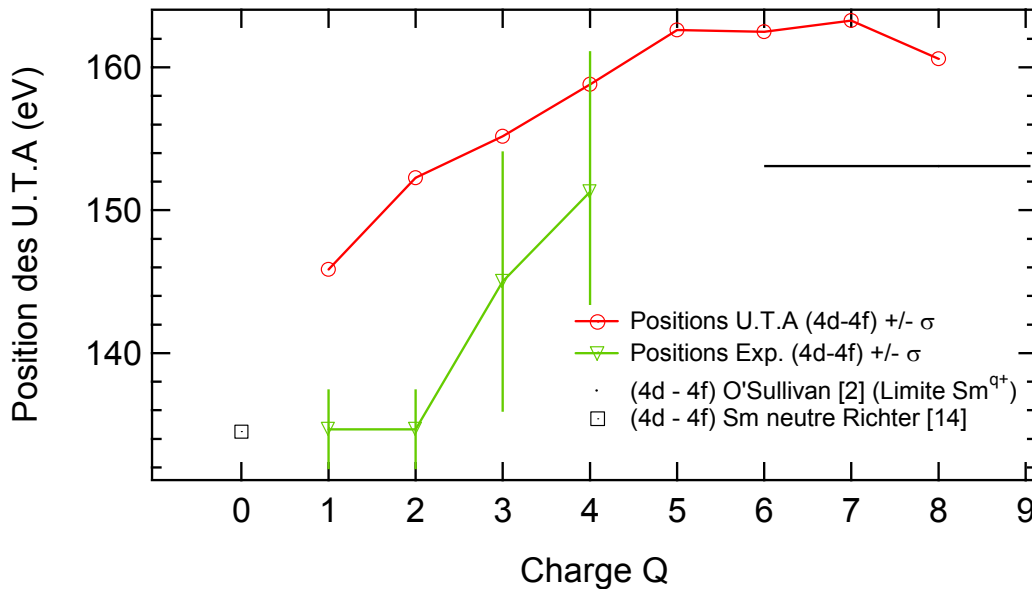


Figure 5-10 « Positions des faisceaux de transitions (4d – 4f) en fonction du degré de charge de l'ion »

Cette Figure présente une comparaison entre les positions des U.T.A (4d – 4f) calculées en fonction de l'état de charge de Sm^{1+} à Sm^{8+} , et les positions des U.T.A (4d – 4f) mesurées expérimentalement. Les barres verticales correspondent aux variances des faisceaux de transitions. La position asymptotique des U.T.A (4d – 4f) pour des états de charge $Q > 9$ calculée par O'Sullivan et al. [5.2] est reportée dans la Figure 5-10 par le trait horizontal

La position de la transition (4d – 4f) dans le samarium neutre, mesurée par Richter et al. [5.14], est également présentée dans cette figure. La position du Sm^{1+} est tirée de mesures très bruitées effectuées durant cette thèse.

La discontinuité de pente entre les ions de charge inférieure à 2+ et les ions de charge supérieure peut avoir plusieurs causes :

- Elle pourrait par exemple être interprétée en terme d'interaction de configurations puisqu'il s'agit d'état de charge peu élevé :

En effet, pour expliquer nos observations expérimentales, il faudrait que l'interaction de configuration décale l'U.T.A vers les basses énergies et diminue sa largeur. Toutefois, d'après les travaux de A.Bar-Shalom et al. [5.12], l'effet d'interaction de configurations aurait tendance à décaler les U.T.A vers les hautes énergies et à accroître leur largeur, surtout pour les

transitions entre orbitales de même n comme c'est le cas pour la transition ($4d - 4f$). De même, les travaux de O'Sullivan [5.2] indiquent que l'interaction de configurations n'a pas beaucoup d'effet sur les densités de niveaux, mais qu'elle affecte de façon importante les intensités des raies constitutives de l'U.T.A., et particulièrement aurait comme effet d'éteindre les raies à basse énergie au profit des raies à haute énergie, et donc de décaler les positions moyennes des U.T.A vers les hautes énergies. Ces deux conclusions semblent donc en contradiction avec les observations expérimentales pour Sm^{2+} , à ceci près que les études susmentionnées portent sur des états de charge élevée.

Toujours dans le cadre de l'interaction de configurations, une autre hypothèse possible pour interpréter ce décalage entre Sm^{q+} ($q < 3$) et Sm^{3+} , rejoint les travaux de Richter et al. [5.14] traitant de la contraction progressive de l'orbitale $4f$ par rapport au seuil d'ionisation directe en sous-couche $4d$. En effet, ils ont mesuré la variation de section efficace relative de photoabsorption entre 80 eV et 180 eV du barium au terbium neutre (remplissage progressif de l'orbitale $4f$). Ils ont constaté qu'à partir du samarium, l'énergie de la transition ($4d - 4f$) devient progressivement inférieure au seuil d'ionisation directe en sous-couche $4d$ (contraction de l'orbitale $4f$ avec l'état de charge), ce qui se traduit par l'apparition progressive d'une structure résonnante et d'une diminution du signal du continuum (transfert de force d'oscillateur du continue au résonnant). Ce même phénomène a été également décrit par Bizau et al. sur les séries isonucléaires du barium (Ba^{3+} à Ba^{5+}) [3.12] et du xénon (Xe^{2+} à Xe^{7+}) [5.15]. Ainsi, l'on pourrait expliquer la différence de position moyenne observée dans Sm^{q+} $q < 3$ par le fait que l'orbitale $4f$ n'est pas totalement contractée, et que la structure observée expérimentalement correspond à un mélange d'ionisation directe dans le continuum et de résonnant ($4d - 4f$), ceci contrairement à ce qui se passe dans l'ion Sm^{3+} .

- D'autres hypothèses peuvent également être avancées :

Rappelons que la voie d'ionisation double dans l'ion Sm^{2+} est également accessible dès la transition ($4d - 4f$), contrairement au cas du Sm^{3+} . Ainsi, il faut non seulement tenir compte de l'ionisation simple mais aussi de l'ionisation double pour estimer la position expérimentale de l'U.T.A qui est associé à la transition ($4d - 4f$) dans l'ion Sm^{2+} . Ceci a pour effet d'augmenter l'énergie moyenne, ce qui devient alors en meilleur accord avec les valeurs U.T.A calculées.

Enfin, on peut imaginer un peuplement non statistique des niveaux des configurations fondamentales et métastables de l'ion Sm^{2+} dans la source RCE, ce qui expliquerait l'écart de position observé pour cet ion par rapport au modèle U.T.A qui fait l'hypothèse d'un peuplement statistique des niveaux des configurations.

Hauts états de charge

Concernant les états de charge plus élevés, la quasi constance de la position des U.T.A calculée pour les hauts états de charges $Q > 5$ est en accord avec les travaux de O'Sullivan et al. [5.2]. Toutefois, nos valeurs sont plus élevées que la position asymptotique calculée par O'Sullivan,

ce qui pourrait indiquer que la position en énergie de l'U.T.A diminue pour $q > 7$ comme le suggère notre valeur pour $Q=8$. Par ailleurs, les positions semblent légèrement surestimées dans nos calculs par rapport aux valeurs expérimentales. L'inflexion de la pente entre $Q = 5$ et $Q=7$ est probablement liée à la contraction progressive de l'orbitale 4f sous l'orbitale 5p sous l'effet de l'augmentation de la charge effective du noyau due à la diminution de l'écrantage par les électrons externes.

La Figure 5-11 présente les positions des énergies moyennes de configuration que nous avons calculées pour des ions Sm^{6+} à Sm^{9+} , ceci pour différents remplissages des sous-couches 5p et 4f.

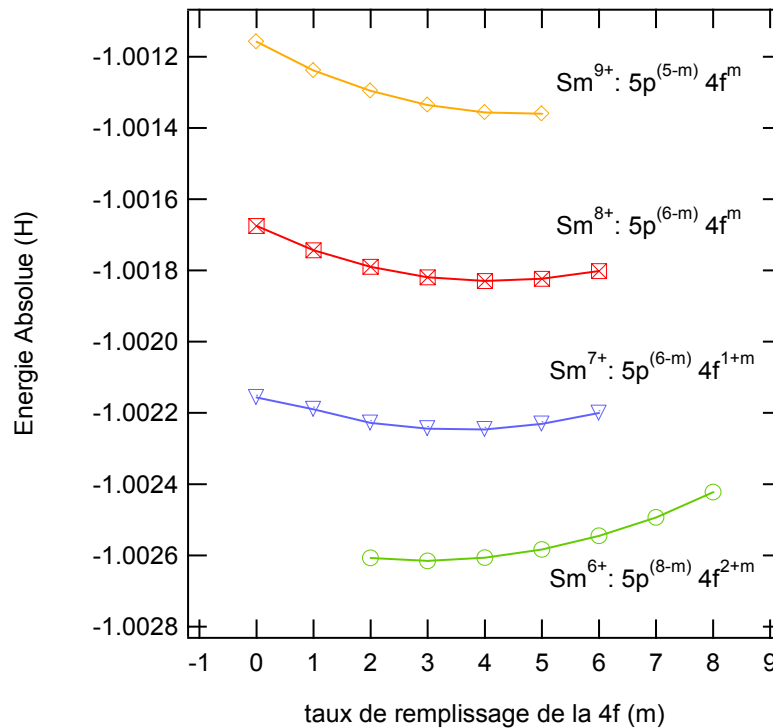


Figure 5-11 « Energie des configurations en fonction du taux de remplissage de la sous couche 4f »

Notons que la configuration la plus basse pour les ions Sm^{8+} est calculée comme étant $5s^2 5p^2 4f^4$, ce qui correspond effectivement aux prédictions de calcul précédent réalisé par O'Sullivan [5.2] grâce à un code de type Froese-Fisher HF [5.13].

5.4.4.2 Largeurs et intensités des U.T.A

Expérimentalement, les intensités et les largeurs des faisceaux de transitions mesurées pour les ions Sm^{2+} et Sm^{3+} sont comparables, aux incertitudes de normalisation en valeur absolue près. Les largeurs (variances) et intensités relatives des faisceaux de transitions (4d – 4f) calculées sont en relativement bon accord avec les résultats expérimentaux pour les ions Sm^{3+} et Sm^{4+} .

Les rapports des forces d'oscillateur expérimentales entre les faisceaux de transitions (4d – 5p) et (4d – 4f) pour ces deux états de charge sont de 0.43 pour Sm^{3+} et 0.16 pour Sm^{4+} . Il est de

0.29 pour Sm^{2+} . Nous pouvons donc considérer, qu'expérimentalement, ce rapport $S1/S2$ est quasiment constant quel que soit l'état de charge. Les rapports calculés à partir des forces de raie (Tableau 5-23) sont également constants mais sous-estimés d'un facteur 10 ($(S1/S2) \sim 0.02$). En d'autres termes, les intensités relatives des faisceaux de transitions ($4d - 4f$) et ($4d - 5p$) sont très mal reproduites par les calculs.

5.5 Conclusions sur le Samarium

Grâce à notre montage expérimental, nous avons pu réaliser des mesures de sections efficaces absolues de photoionisation dans les ions Sm^{2+} à Sm^{4+} .

Nous avons pu identifier suivant une approche configurationnelle et en l'absence de calcul détaillé de type MCDF (très coûteux en ressources informatiques), les principales transitions susceptibles d'être responsables des structures expérimentales observées sur la série isonucléaire du Samarium Sm^{2+} à Sm^{4+} pour les voies d'ionisation simple et double.

La comparaison des résultats expérimentaux et ceux de nos calculs basés sur le modèle U.T.A (sans interaction de configurations) présente un bon accord concernant les positions des U.T.A pour les ions Sm^{3+} et Sm^{4+} . Il n'en va pas de même avec l'ion Sm^{2+} où les intensités, positions, largeur des U.T.A sont très mal reproduites par les calculs, notamment en ce qui concerne les intensités relatives des structures S1 et S2. D'une manière générale, les intensités relatives et largeurs des faisceaux de transitions sont très mal reproduites pour tous les états de charge.

Pour expliquer ces désaccords, plusieurs hypothèses sont mises en avant, dont par exemple l'interaction de configurations pour les bas états de charges, où encore un peuplement non statistique des niveaux des configurations qui rendent caduques nos calculs U.T.A.

Chapitre 6 : Conclusions et perspectives

Dans ce mémoire de thèse ont été étudiés les processus de photoionisation dans les ions des séries isonucléaires de l'oxygène (ions d'intérêt astrophysique) et du samarium, sur une gamme d'énergies de photons comprise entre 30 et 170 eV. Les résultats présentés dans cette thèse sur les ions Sm^{2+} à Sm^{4+} et O^{2+} à O^{3+} constituent les premières mesures de sections efficaces absolues pour ces ions jamais réalisées.

Nous avons montré comment il est techniquement possible, grâce à notre montage expérimental, de mesurer par spectrométrie ionique des sections efficaces absolues de photoionisation dans des ions multichargés avec une précision de l'ordre de 15%, en couplant une source d'ions à « Résonance Cyclotronique Electronique » (RCE) au rayonnement synchrotron émis par un onduleur. Les techniques et procédures de mesures de sections efficaces utilisées ont été décrites de façon détaillée et validées sur l'hélium monochargé.

Série isonucléaire de l'Oxygène :

Grâce à des calculs « Multi Configurationnel Dirac Fock » (MCDF) menés au CEA/DAM de Bruyères-le-Châtel sur les ions Oxygène, nous avons pu identifier la plupart des processus de photoionisation directs et résonnants, responsables des diverses structures observées dans les spectres mesurés. Notons que les identifications sont d'autant meilleures que l'état de charge est élevé et donc la complexité électronique réduite. Cette constatation traduit les difficultés qu'ont nos modèles de structures atomiques détaillés à prendre en compte parfaitement des effets de corrélation électronique dès lors que le nombre d'électrons à considérer est élevé.

Nos résultats expérimentaux obtenus sur l'oxygène, ainsi que nos calculs MCDF ont été également comparés aux résultats de calculs Matrice-R et de données (calculées) tirées des bases du NIST et de l'Opacity Project. Il ressort de ces comparaisons que, si globalement les diverses sources de données atomiques sont en accord sur le plan qualitatif, de nombreux points de divergence apparaissent notamment pour les positions des seuils d'ionisation, les positions des niveaux d'énergie calculés et leur assignation, ainsi que les intensités des structures observées.

Ces disparités ont plusieurs origines, certaines étant par exemple structurelles, car les codes comparés n'utilisent pas la même approche pour décrire les systèmes atomiques. Ainsi, nous avons montré qu'un calcul relativiste était nécessaire pour pouvoir interpréter le spectre de photoionisation de l'ion O^{2+} , alors qu'il s'agit pourtant d'un ion léger peu ionisé. D'autres disparités sont liées aux choix des bases de configurations utilisées pour les calculs multiconfigurationnels.

Une extension souhaitable de ces travaux concerne l'étude de séries isoélectroniques dans des ions multichargés d'intérêt astrophysique. Outre l'apport de nouvelles données atomiques mesurées, l'intérêt d'une telle étude réside dans la possibilité de tester plus en avant la capacité

des modèles théoriques à prendre en compte les effets relatifs des interactions électron-noyau par rapport aux corrélations électroniques sur des structures électroniques bien identifiées. Dans cette optique, des mesures de sections efficaces absolues préliminaires ont été réalisées au cours de cette thèse sur l'anneau de stockage ASTRID au Danemark, dans des ions N^{2+} , O^{3+} et F^{4+} comme l'indique la Figure 6-1

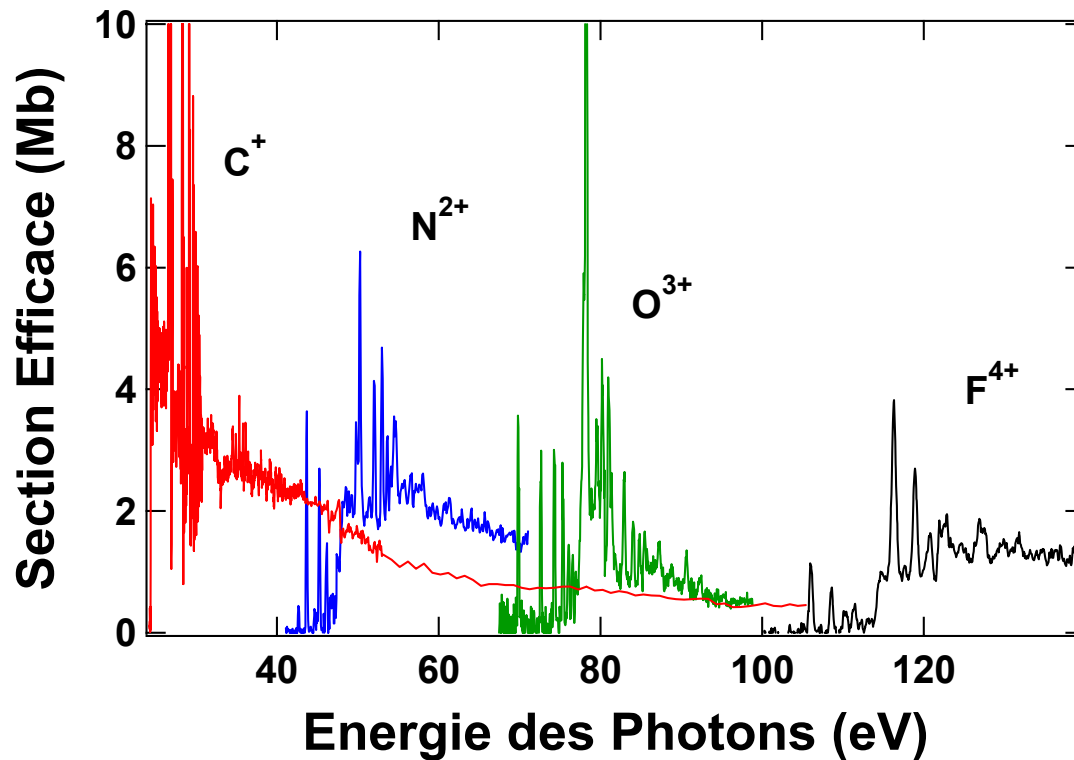


Figure 6-1 « Variation des sections efficaces de photoionisation dans les ions de la série isoélectronique du bore »

La Figure 6-1 présente nos tout derniers résultats (hors C^+ [3.3]) obtenus sur la série isoélectronique du bore. Les calculs MCDF sur ces ions ont d'ores et déjà été effectués. Ils seront comparés, comme pour l'oxygène, aux résultats des bases de données Opacity Project et NIST.

Série isonucléaire du samarium :

Concernant les ions de la série isonucléaire du samarium Sm^{2+} à Sm^{4+} , la complexité de la structure électronique de ces ions ne nous a pas permis d'utiliser le code MCDF afin d'interpréter les spectres expérimentaux. Le recours à une analyse basée sur les énergies moyennes de configuration a donc été nécessaire. Cette analyse a été complétée par des calculs utilisant la méthode statistique U.T.A. Grâce à ces calculs, une interprétation des spectres expérimentaux obtenus a été donnée. Plusieurs points restent toutefois difficile à élucider notamment en ce qui concerne les variations d'intensité des U.T.A d'un état de charge à

l'autre. On soupçonne notamment une importante contribution des interactions de configuration pour les ions faiblement chargés.

Ainsi, il serait intéressant d'étendre cette étude à des éléments, moins complexes que le samarium, qui présenteraient des structures de type U.T.A, mais pour lesquelles des calculs de structures atomiques détaillés multiconfigurationnels de type MCDF (ou MCHF) pourraient être effectués. En parallèle, l'utilisation de code U.T.A prenant en compte l'interaction de configuration pourrait également être envisagé.

Amélioration du dispositif expérimental :

D'une manière générale, nos mesures restent à l'heure actuelle limitées par les performances des sources d'ions et de rayonnement dont nous disposons. C'est pourquoi, une nouvelle source d'ions ECR est en cours de développement. Elle nous permettra non seulement d'accéder à des états de charge plus élevés, mais aussi d'obtenir des flux d'ions plus importants. Ce gain net de flux aura pour conséquence d'augmenter notre sensibilité de détection.

De plus, les systèmes de sélection des ions (actuellement un filtre de Wien) ainsi que l'analyseur de charge électrostatique seront avantageusement remplacés par des séparateurs magnétiques possédant une meilleure résolution. Ce nouveau montage expérimental devrait prendre place de façon permanente sur SOLEIL. Il nous permettra de couvrir un domaine spectral étendu (de quelques eV à 1 keV) avec une résolution instrumentale fortement accrue.

Les performances attendues de l'anneau de stockage de 3^{ème} génération SOLEIL, combinées à celles de notre nouvelle source d'ions, feront de notre montage l'un des plus élaboré et des plus performants consacré à l'étude des processus de photoionisation dans les ions multichargés, incluant notamment la possibilité d'analyser en énergie et en angle les électrons émis lors des processus de photoionisation.

Conclusion générale

La mesure de section efficace absolue de photoionisation dans les ions multichargés constitue une véritable avancée en physique atomique et physique des plasmas. Ce type d'information faisait jusqu'à présent défaut, limitant ainsi les possibilités de validation des résultats des divers codes de structures atomiques détaillées utilisés en amont de nombreux codes de modélisation de plasmas. Les perspectives associées à une comparaison systématique et directe de résultats de mesures expérimentales et de résultats théoriques permettront, à plus ou moins court terme, d'affiner nos modèles et de borner de façon pertinente leur domaine de validité.

Chapitre 7 : Annexes

Annexe A1 : Comparatif des niveaux dans O²⁺

Niveaux (MCDF)	E (eV) MCDF	Type NYST	E (eV) NYST	Type Nahar	E (eV) (Nahar)	E(op. Proj.)	n°
<i>2s2 2p2 (3P 0+)</i>	53,641	<i>2s2 2p2 (3P 0+)</i>	54,876	<i>3P</i>	55,29	54,903	1
<i>2s2 2p2 (3P 1+)</i>	0,013	<i>2s2 2p2 (3P 1+)</i>	0,014				2
<i>2s2 2p2 (3P 2+)</i>	0,036	<i>2s2 2p2 (3P 2+)</i>	0,037				3
<i>2s2 2p2 (1D 2+)</i>	2,923	<i>2s2 2p2 (1D 2)</i>	2,513	<i>1D</i>	2,59	2,584	4
<i>2s2 2p2 (1S 0+)</i>	5,498	<i>2s2 2p2 (1S 0+)</i>	5,354	<i>1S</i>	5,80	5,589	5
<i>2s1 2p3 (5S 2-)</i>	6,532	<i>2s1 2p3 (5S 2-)</i>	7,479	<i>5S</i>	7,39	7,194	6
<i>2s1 2p3 (3D 3-)</i>	15,355	<i>2s1 2p3 (3D 3-)</i>	14,881	<i>3D</i>	15,06	14,85	7
<i>2s1 2p3 (3D 2-)</i>	15,359	<i>2s1 2p3 (3D 2-)</i>	14,884				8
<i>2s1 2p3 (3D 1-)</i>	15,36	<i>2s1 2p3 (3D 1-)</i>	14,885				9
<i>2s1 2p3 (3P 2-)</i>	18,152	<i>2s1 2p3 (3P 2-)</i>	17,653	<i>3P</i>	18,22	17,76	10
<i>2s1 2p3 (3P 1-)</i>	18,152	<i>2s1 2p3 (3P 1-)</i>	17,653				11
<i>2s1 2p3 (3P 0-)</i>	18,154	<i>2s1 2p3 (3P 0-)</i>	17,654				12
<i>2p3 4p1 (1D 2-)</i>	24,839	<i>2s1 2p3 (1D 2-)</i>	23,191	<i>1D</i>	23,71	23,46	13
<i>2s1 2p3 (3S 1-)</i>	25,704	<i>2s1 2p3 (3S 1-)</i>	24,435	<i>3S</i>	25,10	24,76	14
<i>2s1 2p2 7p1 (1P 1-)</i>	27,594	<i>2s 2p3 (1P*)</i>	26,093	<i>1P</i>	26,99	26,52	15
<i>2s2 2p1 3s1 (3P 0-)</i>	32,172	<i>2s2 2p1 3s1 (3P 0-)</i>	33,135	<i>3P</i>	33,06	33,19	16
<i>2s2 2p1 3s1 (3P 1-)</i>	32,187	<i>2s2 2p1 3s1 (3P 1-)</i>	33,150				17
<i>2s2 2p1 3s1 (3P 2-)</i>	32,218	<i>2s2 2p1 3s1 (3P 2-)</i>	33,182				18
<i>2s2 2p1 3s1 (1P 1-)</i>	33,068	<i>2s2 2p1 3s1 (2P*)</i>	33,857	<i>1P</i>	33,91	33,93	19
<i>2s2 2p1 3p1 (1P1+)</i>	35,153	<i>2p4 (3P 2)</i>	35,181	<i>3P</i>	35,95	35,26	20
<i>2s2 2p1 3p1 (3D 1+)</i>	35,485	<i>2p4 (3P 1)</i>	35,208				21
<i>2s2 2p1 3p1 (3D 2+)</i>	35,502	<i>2p4 (3P 0)</i>	35,220				22
<i>2s2 2p1 3p1 (3D 3+)</i>	35,529	<i>2s2 2p 3p (1P 1)</i>	36,074	<i>1P</i>	35,87	36,08	23
<i>2s2 2p1 3p1 (3S 1+)</i>	35,923	<i>2s2 2p(2P*)3p (3D 1)</i>	36,434	<i>3D</i>	36,28	36,47	24
<i>2s2 2p1 3p1 (3P 0+)</i>	36,183	<i>2s2 2p(2P*)3p (3D 2)</i>	36,451				25
<i>2s2 2p1 3p1 (3P 1+)</i>	36,19	<i>2s2 2p(2P*)3p (3D 3)</i>	36,479				26
<i>2s1 2p2 3p1 (3P 2+)</i>	36,198	<i>2s2 2p1 3p1 (3S 1+)</i>	36,892	<i>3S</i>	36,72	36,92	27
<i>2p4 (3P 2+)</i>	36,599	<i>2p4 (1D 2)</i>	36,983	<i>1D</i>	37,79	37,12	28
<i>2p4 (3P 1+)</i>	36,617	<i>2s2 2p(2P*) 3p (3P 0)</i>	37,225	<i>3P</i>	37,11	37,25	29
<i>2p3 3p1 (3P 0+)</i>	36,624	<i>2s2 2p(2P*) 3p (3P 1)</i>	37,233				30
<i>2s2 2p1 3p1 (1D 2+)</i>	37,271	<i>2s2 2p(2P*) 3p (3P 2)</i>	37,250				31
<i>2s2 2p1 3p1 (1S 0+)</i>	38,229	<i>2s2 2p(2P*) 3p (1D 2)</i>	38,011	<i>1D</i>	38,46	38,06	32
<i>2p4 (1D 2+)</i>	39,087	<i>2s2 2p(2P*) 3p (1S 0)</i>	38,906	<i>1S</i>	39,39	39,00	33
<i>2s2 2p1 3d1 (3F 2-)</i>	39,327	<i>2s2 2p(2P*) 3d (3F* 2)</i>	40,228				34
<i>2s2 2p1 3d1 (3F 3-)</i>	39,346	<i>2s2 2p(2P*) 3d (3F* 3)</i>	40,252				35
<i>2s2 2p1 3d1 (3F 4-)</i>	39,368	<i>2s2 2p(2P*) 3d (3F* 4)</i>	40,274				36
<i>2s2 2p1 3d1 (1D 2-)</i>	39,379	<i>2s2 2p(2P*) 3d (1D* 2)</i>	40,262				37
<i>2s2 2p1 3d1 (3D 1-)</i>	39,653	<i>2s2 2p1 3d1 (3D 1-)</i>	40,571				38
<i>2s2 2p1 3d1 (3D 2-)</i>	39,659	<i>2s2 2p1 3d1 (3D 2-)</i>	40,577				39
<i>2s2 2p1 3d1 (3D 3-)</i>	39,669	<i>2s2 2p1 3d1 (3D 3-)</i>	40,586				40

Annexe A2 : Sections efficaces MCDF de photoexcitation dans O^{2+}

Les sections efficaces de photoexcitation ont été calculées pour des énergies comprises entre 0 à 100 eV. Les spectres bruts ont été convolués par des profils de Lorentz de 250 meV afin de simuler une largeur expérimentale. Ces spectres (MCDF) de photoexcitation à partir des 6 premiers niveaux d'énergies de l'ion O^{2+} sont présentés dans la figure A-2-1 :

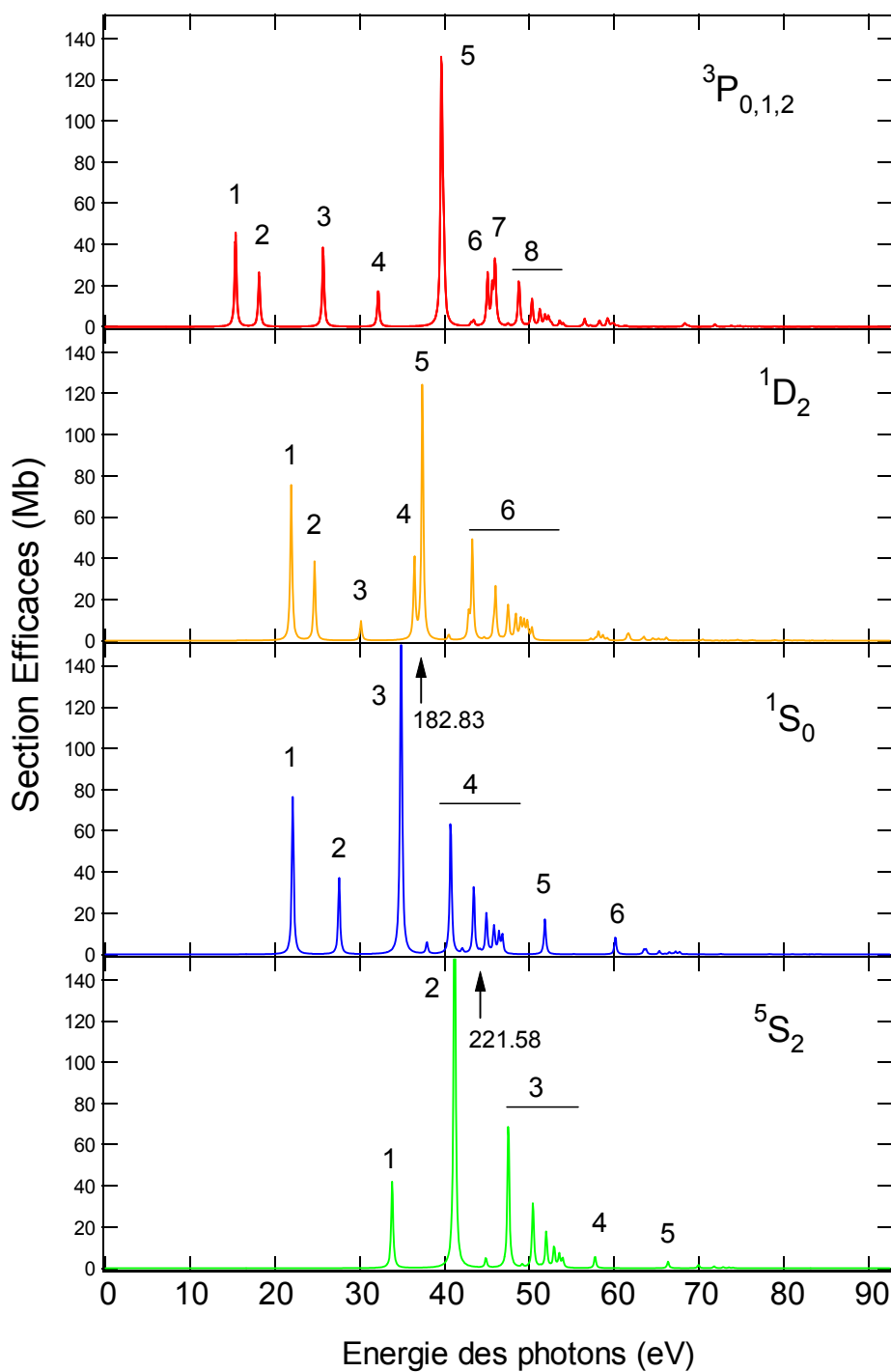


Figure A-2-1 « Résultats du calcul pour l'ion O^{2+} »

Identification des résonances

Il est possible, grâce au calcul MCDF, d'identifier la totalité des transitions pour chacun des 6 niveaux de départ. La description détaillée de tous les processus de photoexcitation pour cet ion de 0 à 100eV dépasse le cadre de cette thèse et seules seront détaillées dans les tableaux suivant les transitions les plus intenses. Celles-ci sont numérotées sur la figure A-2-1.

Tableau A-2-1 « Principales transitions à partir du niveau $^3P_0^+$ »

n°	Configuration	Niveau (LSJ π)	Energie (eV)	Force d'oscillateur (u.a)
1	$2s^1 2p^3$	$^3D_1^-$	15.360	$2.3620 \cdot 10^{-2}$
2	$2s^1 2p^3$	$^3P_1^-$	18.152	$1.3483 \cdot 10^{-2}$
3	$2s^1 2p^3$	$^3P_1^-$	25.703	$1.9851 \cdot 10^{-2}$
4	$2s^2 2p^1 3s^1$	$^3P_1^-$	32.187	$0.9586 \cdot 10^{-3}$
5	$2s^2 2p^1 3d^1$	$^3D_1^-$	39.616	$2.3620 \cdot 10^{-2}$
6	$2s^2 2p^1 3p^1$	$^3D_1^-$	45.085	$1.2984 \cdot 10^{-2}$
7	$2s^2 2p^1 4d^1$	$^3D_1^-$	45.967	$1.5738 \cdot 10^{-2}$
8	$2s^2 2p^1 nd^1$ (n=5 - 9)	$^3D_1^- - ^1P_1^-$	48.791 – 52.335	$1.1491 \cdot 10^{-2} - 2.5470 \cdot 10^{-4}$

Tableau A-2-2 « Principales transitions à partir du niveau $^3P_1^+$ »

n°	Configuration	Niveau (LSJ π)	Energie (eV)	Forces d'oscillateur (u.a)
1	$2s^1 2p^3$	$^3D_2^-$	15.346	$1.76835 \cdot 10^{-2}$
		$^3D_1^-$	15.347	$5.8128 \cdot 10^{-3}$
2	$2s^1 2p^3$	$^3P_{0,1,2}^-$	18.139	$4.5560 \cdot 10^{-3} / 3.494 \cdot 10^{-3} / 5.510 \cdot 10^{-3}$
3	$2s^1 2p^3$	$^3S_1^-$	25.691	$1.9864 \cdot 10^{-2}$
4	$2s^2 2p^1 3s^1$	$^3P_0^-$	32.159	$3.2000 \cdot 10^{-3}$
		$^3P_1^-$	32.174	$2.39498 \cdot 10^{-3}$
		$^3P_2^-$	32.205	$3.9966 \cdot 10^{-3}$
5	$2s^2 2p^1 3d^1$	$^3D_1^-$	39.640	$5.2385 \cdot 10^{-2}$
		$^3D_2^-$	39.646	$1.5653 \cdot 10^{-2}$
6	$2s^2 2p^1 3p^1$	$^3D_1^-$	45.098	$9.7564 \cdot 10^{-3}$
		$^3D_2^-$	45.072	$3.0979 \cdot 10^{-3}$
7		$^3D_1^-$	45.953	$3.5894 \cdot 10^{-3}$
		$^3D_2^-$	45.960	$1.1676 \cdot 10^{-2}$
8	$2s^2 2p^1 nd^1$ (n=5 - 9)	-	48.752 – 52.224	-

Tableau A-2-3 « Principales transitions à partir du niveau $^3P_2^+$ »

n°	Configuration	Niveau (LSJ π)	Energie (eV)	Force d'oscillateur (u.a)
1	$2s^1 2p^3$	$^3D_3^-$	15.319	$1.9606 \cdot 10^{-2}$
		$^3D_2^-$	15.323	$3.4287 \cdot 10^{-3}$
2	$2s^1 2p^3$	$^3P_2^-$	18.116	$1.0313 \cdot 10^{-2}$
		$^3P_1^-$	18.116	$3.3977 \cdot 10^{-3}$
3	$2s^1 2p^3$	$^3S_1^-$	25.668	$1.9892 \cdot 10^{-2}$
4	$2s^2 2p^1 3s^1$	$^3P_1^-$	32.151	$2.4053 \cdot 10^{-3}$
		$^3P_2^-$	32.182	$7.2026 \cdot 10^{-3}$
5	$2s^2 2p^1 3d^1$	$^3D_1^-$	39.617	$4.9077 \cdot 10^{-4}$
		$^3D_2^-$	39.617	$8.2751 \cdot 10^{-3}$
		$^3D_3^-$	39.632	$5.57071 \cdot 10^{-2}$
6	$2s^1 2p^2 3p^1$	$^3D_2^-$	45.05	$1.7824 \cdot 10^{-3}$
		$^3D_3^-$	45.077	$1.0766 \cdot 10^{-2}$
7	$2s^2 2p^1 4d^1$	$^3D_3^-$	45.931	$1.2666 \cdot 10^{-2}$
		$^3D_2^-$	45.938	$1.9475 \cdot 10^{-3}$
		$^3P_2^-$	46.061	$1.8741 \cdot 10^{-3}$
8	$2s^2 2p^1 nd^1$ (n=5 - 9)	-	48.77 – 52.224	-

Commentaires sur les tableaux et spectres de photoionisation à partir du $^3P_{0,1,2}$:

Tout d'abord, en ce qui concerne l'allure générale, les trois spectres qui correspondent aux composantes $J=0,1,2$ du 3P sont similaires en tout point. Les transitions identifiées par les numéros 5,7 et 8 dans les trois tableaux précédents semblent correspondre à une série de Rydberg provenant de l'excitation d'un électron en sous couche 2p vers nd, $n=[3,9]$. La force d'oscillateur associée domine largement l'allure du spectre de photoexcitation à partir des niveaux du terme 3P . Rappelons que le spectre théorique est calculé pour des configurations ayant un nombre quantique principal n inférieur à 9. Les transitions de cette série de $n>9$ ne sont pas calculées et n'apparaissent donc pas dans les spectres théoriques.

Tableau A-2-4 « Principales transitions à partir du niveau $^1D_2^+$ »

n°	Configuration	Niveau (LSJ π)	Energie (eV)	Force d'oscillateur (u.a)
1	$2p^3 4p^1$	$^1D_2^-$	21.916	$3.9100 \cdot 10^{-2}$
2	$2s^1 2p^2 7p^1$	$^1P_1^-$	24.671	$1.9770 \cdot 10^{-2}$
3	$2s^2 2p^1 3s^1$	$^1P_1^-$	30.145	$4.8649 \cdot 10^{-3}$
4	$2s^2 2p^1 3d^1$	$^3F_2^-$	36.40	$1.7637 \cdot 10^{-3}$
		$^1D_2^-$	36.456	$1.8484 \cdot 10^{-2}$
5	$2s^2 2p^1 3d^1$	$^1F_3^-$	37.392	$6.4870 \cdot 10^{-2}$
6	$2s^2 2p^1 nd^1$ (n=4-9)	-	42.85 – 49.9	-

Tableau A-2-5 « Principales transitions à partir du niveau $^1S_0^+$ »

n°	Configuration	Niveaux (LSJ π)	Energie (eV)	Force d'oscillateur (u.a)
1	$2s^1 2p^2 7p^1$	$^1P_1^-$	22.092	$3.9424 \cdot 10^{-2}$
2	$2s^2 2p^1 3s^1$	$^1P_1^-$	27.574	$1.9123 \cdot 10^{-2}$
3	$2s^2 2p^1 3d^1$	$^1P_1^-$	34.882	$9.4352 \cdot 10^{-2}$
4	$2s^2 2p^1 nd^1$ (n=4 - 9)	$^1P_1^-$	40.728 – 46.842	-
5	$2s^1 2p^2 3p^1$	$^1P_1^-$	51.825	$9.1489 \cdot 10^{-3}$
6	$2s^1 2p^2 4p^1$	$^1P_1^-$	60.167	$4.5630 \cdot 10^{-3}$

Commentaires sur les transitions à partir des niveaux $^1D_2^+$ et $^1S_0^+$

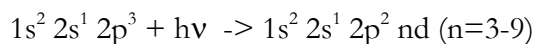
Les spectres de photoexcitation à partir des niveaux $^1D_2^+$ et $^1S_0^+$ sont largement dominés sur cette gamme d'énergie par la présence d'une série de Rydberg du type (raies 5-6 pour $^1D_2^+$ et 3-4 pour $^1S_0^+$) : $1s^2 2s^2 2p^2 + hv \rightarrow 1s^2 2s^2 2p nd$ (n=3-9)

Tableau A-2-6 « Principales transitions à partir du niveau $^5S_2^-$ »

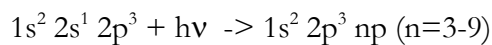
n°	Configuration	Niveau (LSJ π)	Energie (eV)	Force d'oscillateur (u.a)
1	$2s^1 2p^2 3s^1$	$^5P_3^+$	33.819	$1.0551 \cdot 10^{-2}$
		$^5P_2^+$	33.839	$7.5409 \cdot 10^{-3}$
2	$2s^1 2p^2 3d^1$	$^5P_3^+$	41.192	$3.3472 \cdot 10^{-2}$
		$^5P_2^+$	41.198	$3.1457 \cdot 10^{-2}$
3	$1s^2 2s^1 2p^2 nd$ (n=4-9)	$^5P_{123}$	47.533 – 53.652	$1.6749 \cdot 10^{-2} - \dots$
4	$2p^3 3p^1$	$^5P_1^+$	57.776	$1.4208 \cdot 10^{-3}$
		$^5P_2^+$		$1.0180 \cdot 10^{-3}$
		$^5P_3^+$		$4.3159 \cdot 10^{-4}$
5	$2p^3 4p^1$	$^5P_1^+$	66.359	$3.3471 \cdot 10^{-4}$
		$^5P_2^+$		$5.7170 \cdot 10^{-4}$
		$^5P_3^+$		$7.9798 \cdot 10^{-4}$

Commentaires sur les transitions à partir du niveau $^5S_2^-$

Ici encore, notons la présence d'une série de Rydberg très intense. Les transitions correspondent également à l'excitation d'un électron en sous couches 2p vers des orbitales nd : transition 2-3.



Notons également la contribution significative de la série provenant de l'excitation d'un électron 2s vers une orbitale np dont les premiers termes sont les raies numérotées 4 (3p) et 5 (4p):



Annexe A3 : Comparatif des trente premiers niveaux dans O^{3+}

n°	Type MCDF et NIST	E mcdmf (eV)	E (NYST eV)	type (Nahar)	E(Nahar)	E(opa)
1	$2s^2 2p^1$ ($^2P_{1/2}^-$)	76,131	77,35	$2s^2 2p^1$	77,1664	77,1664
2	$2s^2 2p^1$ ($^2P_{3/2}^-$)	0.046	0,0478			
3	$2s^1 2p^2$ ($^4P_{1/2}^+$)	8.455	8,8574	$2s^1 2p^2$	8,7448	8,7448
4	$2s^1 2p^2$ ($^4P_{3/2}^+$)	8.471	8,8735			
5	$2s^1 2p^2$ ($^4P_{5/2}^+$)	8.492	8,8965			
6	$2s^1 2p^2$ ($^2D_{5/2}^+$)	16.407	15,7380	$2s^1 2p^2$	15,8712	15,776
7	$2s^1 2p^2$ ($^2D_{3/2}^+$)	16.408	15,7398			
8	$2s^1 2p^2$ ($^2S_{1/2}^+$)	21.221	20,3788	$2s^1 2p^2$	20,944	20,604
9	$2s^1 2p^2$ ($^2P_{1/2}^+$)	23.512	22,3767	$2s^1 2p^2$	22,7528	22,576
10	$2s^1 2p^2$ ($^2P_{3/2}^+$)	23.541	22,4069			
11	$2p^3$ ($^4S_{3/2}^-$)	28.873	28,7071	$2p^3$	29,036	28,709
12	$2p^3$ ($^2D_{5/2}^-$)	32.751	31,6353	$2p^3$	32,0144	31,688
13	$2p^3$ ($^2D_{3/2}^-$)	32.756	31,6389			
14	$2p^3$ ($^2P_{1/2}^-$)	37.296	35,8333	$2p^3$	36,7064	36,0536
15	$2p^3$ ($^2P_{3/2}^-$)	37.297	35,8343			
16	$2s^2 3s^1$ ($^2S_{1/2}^+$)	43.415	44,3385	$2s^2 3s^1$	44,1048	44,2
17	$2s^2 3p^1$ ($^2P_{1/2}^-$)	47.467	48,3738	$2s^2 3p^1$	48,1304	48,212
18	$2s^2 3p^1$ ($^2P_{3/2}^-$)	47.478	48,3846			
19	$2s^2 3d^1$ ($^2D_{3/2}^+$)	51.226	52,0155	$2s^2 3s^1$	51,7616	51,8568
20	$2s^2 3d^1$ ($^2D_{5/2}^+$)	51.228	52,0176			
21	$2s^1 2p^1 3s^1$ ($^4P_{1/2}^-$)	53.539	54,4010	$2s^1 2p^1 3s^1$	54,2232	54,264
22	$2s^1 2p^1 3s^1$ ($^4P_{3/2}^-$)	53.555	54,4270			
23	$2s^1 2p^1 3s^1$ ($^4P_{5/2}^-$)	53.586	54,4577			
24	$2s^1 2p^1 3s^1$ ($^2P_{1/2}^-$)	55.534	56,1408	$2s^1 2p^1 3s^1$	56,0184	56,0592
25	$2s^1 2p^1 3s^1$ ($^2P_{3/2}^-$)	55.566	56,1737			
26	$2s^1 2p^1 3p^1$ ($^2P_{1/2}^+$)	57.152	57,9290	$2s^1 2p^1 3p^1$	57,7456	57,732
27	$2s^1 2p^1 3p^1$ ($^2P_{3/2}^+$)	57.166	57,9434			
28	$2s^1 2p^1 3p^1$ ($^4D_{1/2}^+$)	57.242	58,0664	$2s^1 2p^1 3p^1$	57,8952	57,8952
29	$2s^1 2p^1 3p^1$ ($^4D_{3/2}^+$)	57.251	58,0760			
30	$2s^1 2p^1 3p^1$ ($^4D_{5/2}^+$)	57.267	58,0928			

Annexe A4 : Sections efficaces MCDF de photoexcitation dans O^{3+}

Identification des transitions MCDF issues des niveaux 2P

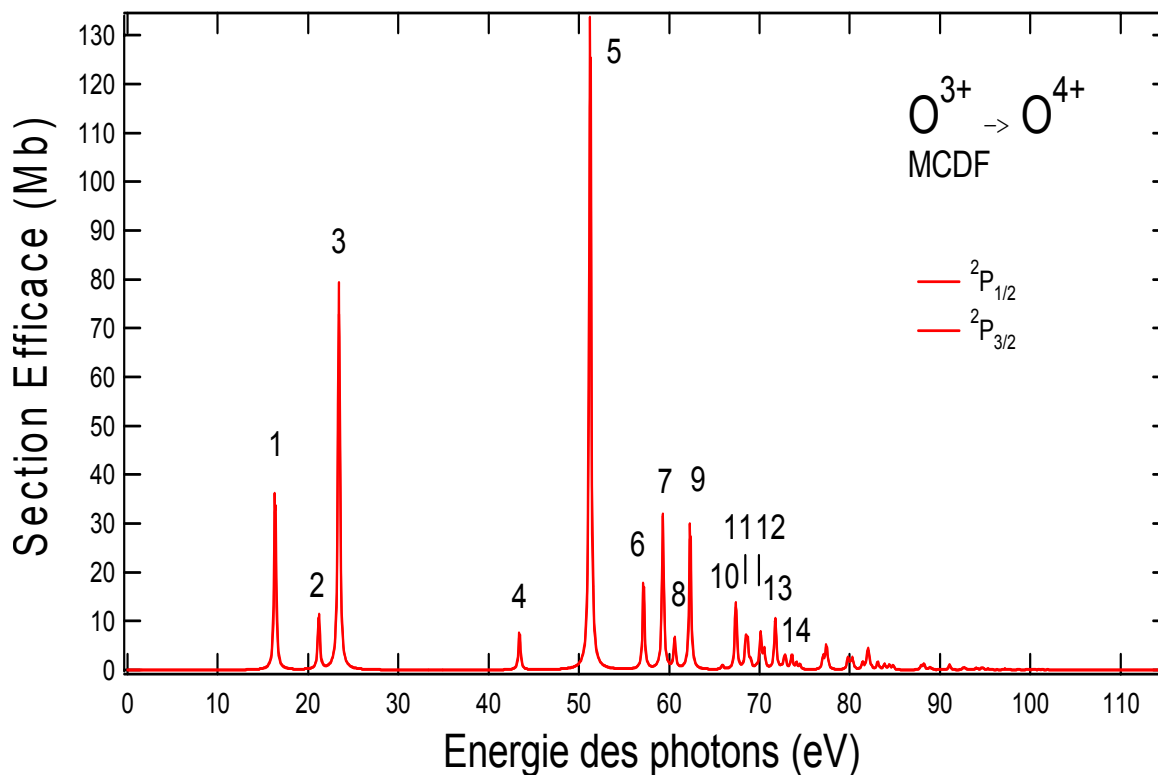


Figure A-4-1 « Section efficace de photoexcitation de 0 à 115 eV dans l'ion O^{3+} »

La figure A-5-1 présente la variation de la section efficace de photoexcitation à partir des niveaux du terme 2P pour une énergie de photons comprise entre 0 et 115 eV. Les spectres bruts ont été convolués par un profil de Lorentz de largeur 0.25 eV. Ceci dans le but de simuler une bande passante expérimentale moyenne.

Seules les résonances les plus intenses du spectre MCDF de la Figure A-4-1 (numérotées de 1 à 14) dont l'énergie d'excitation est inférieure aux seuils d'ionisations à partir des niveaux $^2P_{1/2}$ et $^2P_{3/2}$ seront traitées ici.

Tableau A-4-1 « Principales Transitions MCDF à Partir du $^2P_{1/2^-}$ et $^2P_{3/2^-}$ »

n°	Configuration	Niveau (LSJ π)	Energie (eV)	Force d'oscillateur (u.a.) $\times 10^{-2}$
1	$2s^1 2p^2$	$^2D_{3/2^+} - ^2D_{5/2^+}$	16.368 – 16.320	1.886 – 1.682
2	$2s^1 2p^2$	$^2S_{1/2^+}$	21.215 – 21.169	5.934 – 5.516
3	$2s^1 2p^2$	$^2P_{1/2^+}$	23.379 – 23.454	1.362 – 0.697
4	$2s^2 3s^1$	$^2S_{1/2^+}$	43.438 – 43.392	0.394 – 0.392
5	$2s^2 3d^1$	$^2D_{3/2^+} - ^2D_{5/2^+}$	51.265 – 51.219	6.901 – 0.691
6	$2s^1 2p^1 3p^1$	$^2P_{1/2^+} - ^2P_{3/2^+}$	57.171 – 57.139	0.610 – 0.755
7	$2s^1 2p^1 3p^1$	$^2D_{3/2^+} - ^2D_{5/2^+}$	59.307 – 59.292	1.619 – 1.467
8	$2s^1 2p^1 3p^1$	$^2S_{1/2^+}$	60.625 – 60.578	0.327 – 0.333
9	$2s^2 4d^1$	$^2D_{3/2^+} - ^2D_{5/2^+}$	62.335 – 62.289	1.536 – 1.382
10	$2s^2 5d^1$	$^2D_{3/2^+} - ^2D_{5/2^+}$	67.406 – 67.360	0.708 – 0.637
11	$2s^2 6d^1$	$^2D_{3/2^+} - ^2D_{5/2^+}$	68.503 – 68.461	0.280 – 0.257
12	$2s^2 7d^1$	$^2D_{3/2^+} - ^2D_{5/2^+}$	70.149 – 70.104	0.382 – 0.333
13	$2s^2 8d^1$	$^2D_{3/2^+} - ^2D_{5/2^+}$	71.766 – 71.730	0.543 – 0.440
14	$2s^2 9d^1$	$^2D_{3/2^+} - ^2D_{5/2^+}$	72.865 – 72.819	0.125 – 0.112
	$2s^2 10d^1$	$^2D_{3/2^+} - ^2D_{5/2^+}$	73.594 – 73.548	0.089 – 0.080
	$2s^2 11d^1$

Il ressort des calculs MCDF que le spectre de photoexcitation à partir des niveaux $^2P_{1/2^-}$ et $^2P_{3/2^-}$ en-dessous de 76.36 eV, est largement dominé par la présence d'une série de Rydberg qui correspond aux raies 5,9-14. Cette série provient de l'excitation d'un électron en sous-couche 2p à partir de la configuration fondamentale $1s^2 2s^2 2p^1$ d' O^{3+} vers des orbitales nd avec $n > 2$. Les forces d'oscillateurs de cette série de Rydberg ne semblent pas décroissantes de façon régulière avec n surtout pour les résonances 12 et 13.

Identification des transitions MCDF issues des niveaux 4P

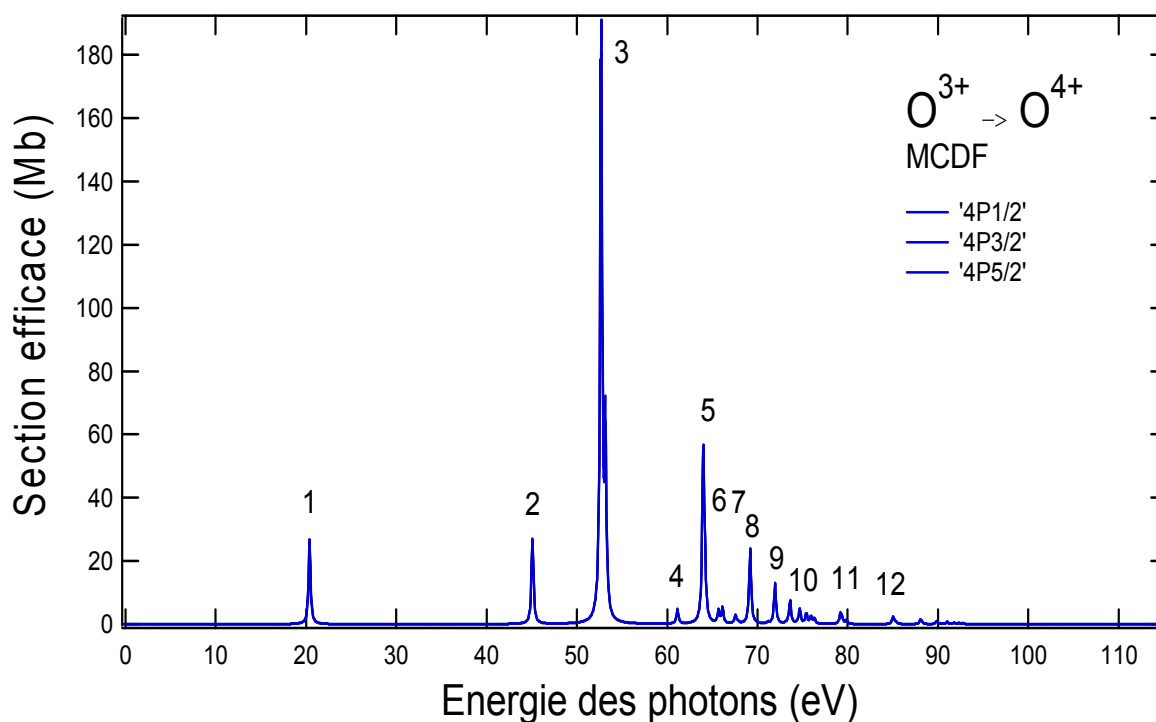


Figure A-4-2 « Variation de la section efficace de photoexcitation à partir du 4P calculée par MCDF »

La Figure A-4-2 présente le résultat de notre calcul MCDF concernant la variation de section efficace de photoexcitation à partir des 3 niveaux $J=1/2, 3/2, 5/2$ du terme 4P . La gamme d'énergie de photons considérée est la même que pour le terme 2P , c'est à dire de 0 à 115 eV. Ici encore, le spectre de la Figure A-4-2 simule une largeur à mi-hauteur constante pour les résonances de 0.25 meV. Les 12 résonances les plus intenses du spectre MCDF seront identifiées dans le tableau A-4-2.

Tableau A-4-2 « Principales transitions MCDF à Partir du $4P_{1/2}^+$ »

n°	Configuration	Niveau (LSJ π)	Energie (eV)	Force d'oscillateur (u.a.) $\times 10^{-2}$
1	$2s^0 2p^3$	$4S_{3/2}^-$	20.407	1.384
2	$2s^1 2p^1 3s^1$	$4P_{3/2}^-$	45.089	1.206
3	$2s^1 2p^1 3d^1$	$4D_{3/2,1/2}^-$	52.689 / 52.685	5.148/4.981
4	$2s^1 2p^1 4s^1$	$4P_{3/2}^-$	61.114	0.202
5	$2s^1 2p^1 4d^1$	$4D_{3/2,1/2}^-$	63.997 / 63.994	1.546 / 1.409
6	$2s^0 2p^2 3p^1$	$4D_{3/2,1/2}^-$	65.696 / 65.686	0.108 / 0.104
7	$2s^0 2p^2 3p^1$	$4S_{3/2}^-$	67.576	0.132
8	$2s^1 2p^1 5d^1$	$4D_{3/2,1/2}^-$	69.183 / 69.182	0.639,0.520
9	$2s^1 2p^1 6d^1$	$4D_{3/2,1/2}^-$	71.947 / 71.947	0.357,0.277
10	$2s^1 2p^1 nd^1$ (n=7-11)	$4D_{3/2,1/2}^-$	73.617 à 76.282	0.163 à 0.061
11	$2s^0 2p^2 4p^1$	$4D_{3/2,1/2}^-$	79.175 / 79.166	0.085 / 0.078
12	$2s^0 2p^2 5p^1$	$4D_{3/2,1/2}^-$	~85.026	$< 10^{-4}$

Tableau A-5-3 « Principales transitions MCDF à Partir du $4P_{3/2}^+$ »

n°	Configuration	Niveau (LSJ π)	Energie (eV)	Force d'oscillateur (u.a.) $\times 10^{-2}$
1	$2s^0 2p^3$	$4S_{3/2}^-$	20.391	1.382
2	$2s^1 2p^1 3s^1$	$4P_{5/2,1/2,3/2}^-$	45.103 / 45.057 / 45.073	0.652 / 0.603 / 0.192
3	$2s^1 2p^1 3d^1$	$4D_{5/2,3/2,1/2}^-$	52.679 / 52.673 / 52.670	6.413/3.076/0.464
4	$2s^1 2p^1 4s^1$	$4P_{5/2,1/2,3/2}^-$	61.116 / 61.111 / 6.113	0.110/0.101/0.032
5	$2s^1 2p^1 4d^1$	$4P_{1/2,5/2,3/2}^-$	64.154 / 64.132 / 64.146	0.362/ 0.188 / 0.177
6	$2s^0 2p^2 3p^1$	$4D_{5/2,3/2}^-$	65.6977 / 65.675	0.135 / 0.063
7	$2s^0 2p^2 3p^1$	$4S_{3/2}^-$	67.560	0.135
8	$2s^1 2p^1 5d^1$	$4D_{5/2,3/2,1/2}^-$	69.140 / 69.167 / 69.242	0.804 / 0.237 / 0.145
9	$2s^1 2p^1 6d^1$	$4D_{5/2,3/2}^-$	71.932 / 71.931	0.364 / 0.102
10	$2s^1 2p^1 nd^1$ (n=7-11)	$4D_{5/2,3/2,1/2}^-$	73.585 à 76.282	0.178 à 0.030
11	$2s^0 2p^2 4p^1$	$4D_{5/2,3/2}^-$	79.174 / 79.159	0.103 / 0.045
12	$2s^0 2p^2 5p^1$	$4D_{5/2,3/2,1/2}^-$	~85.0	$< 10^{-4}$

Tableau A-4-4 « Principales Transitions MCDF à Partir du $4P_{5/2^+}$ »

n°	Configuration	Niveau (LSJ π)	Energie (eV)	Force d'oscillateur (u.a) $\times 10^{-2}$
1	$2s^0 2p^3$	$4S_{3/2^-}$	20.370	1.378
2	$2s^1 2p^1 3s^1$	$4P_{5/2,3/2^-}$	45.082 / 45.052	1.014 / 0.435
3	$2s^1 2p^1 3d^1$	$4D_{7/2,5/2,3/2^-}$	52.666 / 52.658 / 52.673	7.875 / 1.626 / 0.170
4	$2s^1 2p^1 4s^1$	$4P_{5/2,3/2^-}$	61.114 / 61.113	0.171/0.072
5	$2s^1 2p^1 4d^1$	$4P_{5/2,3/2^-}$	64.111 / 64.125	0.700/ 0.171
6	$2s^0 2p^2 3p^1$	$4D_{7/2,5/2^-}$	65.6977 / 65.675	0.166 / 0.033
7	$2s^0 2p^2 3p^1$	$4S_{3/2^-}$	67.539	0.140
8	$2s^1 2p^1 5d^1$	$4D_{7/2,5/2,3/2^-}$	69.140 / 69.167 / 69.242	0.804 / 0.237 / 0.145
9	$2s^1 2p^1 6d^1$	$4D_{7/2^-}; 4P_{5/2,3/2^-}$	71.932 / 71.951 / 71.960	0.391 / 0.193 / 0.055
10	$2s^1 2p^1 nd^1$ (n=7-11)	$4D_{7/2,5/2,3/2^-}$	73.591 à -	0.218 à -
11	$2s^0 2p^2 4p^1$	$4D_{7/2^-}$	79.174	0.121
12	$2s^0 2p^2 5p^1$	$4D_{7/2,5/2^-}$	~85.0	<math>-< 10^{-4}</math>

Le spectre présente une très belle série de Rydberg (Raie 3,5-11). Cette série correspond à l'excitation d'un électron en sous-couche 2p à partir des niveaux du terme $4P$ vers des orbitales nd : $1s^2 2s^1 2p^2 + h\nu \rightarrow 1s^2 2s^1 2p^1 nd^1$.

Annexe A5 : Principales publications

- [A5.1] Bizau J.-M. et al. (2001) *Phys. Rev. Lett.* **87**, 273002-1
- [A5.2] Bizau J.-M. et al. (2003) *NIMB* **205**, 290-296
- [A5.3] Champeaux J.-P. et al. (2003) *Astr. J. Supp. Ser.* **148-2**
- [A5.4] Mosnier J.-P. (2003) *Phys. Rev. A*

Bibliographie

Chapitre 1 :

- [1.1] Lucatorto T.B. et al. (1976) *Phys. Rev. Lett.* **37**, 428
- [1.2] Lucatorto T.B. et al. (1981) *Phys. Rev. Lett.* **47**, 1124
- [1.3] Walmsley D.G. et al. (1992) *Materials Sciences and Engineering B***13**, 15
- [1.4] Iglesias C. et al. (1990) *Astr. Phys. J.* **360**, 221
- [1.5] Kauffman R.L. et al. (1994) *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2320
- [1.6] Wark J.S. et al. (1994) *Phys. Rev. Lett.* **72**, 1826
- [1.7] West J.B. et al. (1987) *Z. Phys. D* **5**, 265
- [1.8] Kojima T.M. et al. (1997) *20^{ème} ICPEAC*
- [1.9] Kjeldsen H et al. (1999b) *Astrophys. J.* **524**, L143
- [1.10] Covington A.M. et al. (2001) *Phys. Rev. Lett.* **87**, 243002
- [1.11] Bizau J.-M. et al. (2000) *Phys. Rev. Lett.* **84**, 435
- [1.12] West J.B. et al. (2001), *Phys. Rev. A at press.*

Chapitre 2 :

- [2.1] Mehlman-Ballofet G. et al. (1969) *Astrophys. J.* **157**, 945
 - [2.2] Carillon A. et al. (1970) *Phys. Rev. Lett.* **25**, 140
 - [2.3] Carroll P.K. et al. (1986) *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1581
 - [2.4] Blancard C. et al. (1999) « *Revue Chocs* », **22**, 75
 - [2.5] Carroll P.K. et al. (1977) *Phys. Rev. Lett.* **38**, 1068
 - [2.6] Bizau J.M et al. (1991) *Phys. Rev. Lett.* **67**, 576
 - [2.7] Moussalami A. et al. (1996) *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4496
 - [2.8] Gotwald A. et al. (1999) *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2068
 - [2.9] West J.B. (2001) *J. Phys. B* **34**, R45R91
 - [2.10] Lyon et al. (1986) *J. Phys. B* **19**, 4137
 - [2.11] Peart B. et al. (1987) *J. Phys. B : At. Mol. Phys.* **6**,146
 - [2.12] Koizumi T. et al. (1996) *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **79**, 289
 - [2.13] Kjeldsen H et al. (1999b) *Astrophys. J.* **524**, L143
 - [2.14] Covington A.M. et al. (2001) *Phys. Rev. Lett.* **87**, 243002
 - [2.15] Bizau J.-M. et al. (2000) *Phys. Rev. Lett.* **84**, 435
 - [2.16] Howells et al. (1994) Kluwer Academic Publishers 315
 - [2.17] Larsen P.K. et al. (1982) *Nucl. Instr. Method.* **195**, 245
 - [2.18] Proceeding of the 1st International Conference on Ion Source, Saclay, France (1969)
-

- [2.19] Electron Cyclotron Resonance and ECR plasma (1996) *Institute of Physics*
- [2.20] Wollnik H. « Optics of charged particles » (1987) *Academic Press*
- [2.21] Wolf B. « Ion Sources » (1995) *CRC Press* p333
- [2.22] Nismexanov A.N. « Vapor Pressure of the Chemical Elements » *Elsevier Press* p439

Chapitre 3 :

- [3.1] Codling et al. (1966) *Phys. Rev. Lett.* **12** 106
- [3.2] Carroll P.K. et al. (1977) *Phys. Rev. Lett.* **38** 1068
- [3.3] Kjeldsen H. et al. (1999) *Astrophys. J.* **524** L143
- [3.4] Kjeldsen H. et al. (2000) *Phys. Rev. A* **62**, 020702 (R)
- [3.5] Kjeldsen H. et al. (2000) *At. Mol. Opt. Phys.* **34**, L353
- [3.6] Champeaux J.-P. et al. (2003) *Astrophys. J. Suppl. Ser.* **148**, 2
- [3.7] West J.B. et al. (2001), *Phys. Rev. A* at press.
- [3.8] Lyon I.C. et al. (1987) *J. Phys. B.* **20**, 1471
- [3.9] Kjeldsen H. et al. (1999) *J. Phys. B* **62**, 020702 (R)
- [3.10] Peart B. et al. (1987) *J. Phys. B.* **20**, 5403
- [3.11] Andersen P. et al. (2001) *J. Phys. B.* **34**, 2009
- [3.12] Bizau et al. (2001) *Phys. Rev. Lett.* **87**, 273002
- [3.13] Rasmussen M.S. (1999) “photoionisation of K^+ Using Synchrotron Radiation”,
Master Thesis, Institute of Physics and Astronomy of the Aarhus University, Denmark
- [3.14] Kjeldsen H. (1999) “Cross Section for Photoionisation of Positive Atomic Ions”,
Master Thesis, Institute of Physics and Astronomy of the Aarhus University,
Denmark
- [3.15] Abramowitz M., *Handbook of Mathematical Function* p885
- [3.16] Bethe H.A. et al. (1957) *in: Handbuck der Physik (Springer-Verlag)* **35** 390

Chapitre 4 :

- [4.1] Burke V.M. et al. (1989) *Mon. R. Astron. Soc.* **236**, 353
 - [4.2] Cunto W. et al (1993) *A&A* **275**, L5
 - [4.3] Burke P.G. et al.(1975) *J. Phys. B. : Atm. Molec. Phys.* **8**, 2629
 - [4.4] Nahar S.N. et al. (1994) *Phys. Rev. A* **49**, 1816
 - [4.5] Nahar S.N. (1998) *Phys. Rev. A* **58**, 3766
 - [4.6] Covington A.M. et al. (2001) *Phys. Rev. Lett.* **87**,243002
 - [4.7] Kjeldsen H. et al.(2002) *Astrophys. J. Suppl. Series* **138**, 219.
 - [4.8] Bruneau J. (1984) *J. Phys. B* **17** 3009
 - [4.9] Luo M. (1989) *J.Phys B* **22** 389 - 406
-

-
- [4.10] NIST :Tables of Spectra of Hydrogen, Carbon, Nitrogen, and Oxygen Atoms and Ions
C.E. Moore, edited by J.W. Gallagher CRC Handbook of Chemistry and Physics,
Edition 76 (CRC Press, Boca Raton, FL), 336 pp. (1993)
- [4.11] Fano U. et al. (1968) *Rev. Mod. Phys.* **40** 441
- [4.12] Froese-Fisher C. (1977) « *the Hartree-Fock method for atom* », Wiley
- [4.13] Landau L. et al. (1972) « *Théorie quantique relativiste* », Mir Moscou
- [4.14] Cohen-Tannoudji C. et al. « *Mécanique quantique* » tome **2** p1208
- [4.15] Grant I.P. (1970) *Advanced Physics* **19** 82 p755
- [4.16] Grant I.P. et al. (1976) *J. Phys. B* **9** 761
- [4.17] Bruneau J. (1983) *J. Phys. B* **16** 4135
- [4.18] Rose S.J. et al. (1978) *J. Phys. B* **9** L307
- [4.19] Grant I.P. et al. (1980) *Adv. Phys.* **19** 747
- [4.20] Cowan *Theorie of atomic spectra* , **sec-7-5** p184.
- [4.21] Hartree D.R. (1957) « *The calculation of Atomic Structures* » John Wiley, New York
- [4.22] Burke P. G. et al. (1975) *J. Phys. B* **8** 2620
- [4.23] Cohen-Tannoudji C. et al. « *Mécanique quantique* » tome **2** p1013
- [4.24] Henry R.J.W. et al. (1967) *Phys. Rev.* **153** p51
- [4.25] Wigner E.P. et al. (1947) *Phys. Rev.* **74** 1763
- [4.26] Fano U. (1961) *Phys. Rev. Lett.* **124** 1866
- [4.27] Zeippen et al. (1977) *Mon. Not. R. Astr. Soc.* **181** 527-540
- [4.28] Verner et al. (1993) *Atom. Nucl. Phys.* **55** 233

Chapitre 5 :

- [5.1] Cowan R.D. (1981) *The Theory of Atomic Structure and Spectra*
(Berkeley; CA: University of California Press)
- [5.2] O'Sullivan G. et al. (1999) *J. Phys. B* **32** 1893
- [5.3] Eckardt B. (1988) *Phys. Rep.* **163**, 205
- [5.4] Bauche J. et al. (1978) *J. Opt. Soc. Am.* **68** 1136
- [5.5] Bauche-Arnoult C. et al. (1979) *Phys. Rev. A* **20** 2424
- [5.6] Bauche-Arnoult C. et al. (1982) *Phys. Rev. A* **25** 2641
- [5.7] Bauche-Arnoult C. et al. (1984) *Phys. Rev. A* **31** 2248
- [5.8] Bauche J. et al. (1988) *Adv. In Atm. and Mol. Phys.* **23** 131
- [5.9] Ankudinov A.L. et al. (1996) *Comp. Phys. Commun.* **98** 359
- [5.10] Pindzola M.S. et al. (1986) « *in Atomic Processes in Electron-ion and ion-ion collision* »
NATO Advanced Study Institute, Serie B : Physics vol. **45**, New York
- [5.11] Sugar J. et al. (1972) *Phys. Rev. B* **5** 1785
- [5.12] Bar-Shalom A. et al. (1999) *Phys. Rev. E* **59** 3512
- [5.13] Froese-Fischer C. (1972) *comput. Phys. Commun.* **4** 107
- [5.14] Richter M. et al. (1989) *Phys. Rev. A* **40** 12 7007
- [5.15] Bizau J.-M. et al. (2000) *Phys. Rev. Lett.* **84** 435
-

Chapitre 2 : Caractéristiques du montage expérimental

Sommaire

2.1 Introduction à l'expérience.....	2-7
2.2 Production du rayonnement synchrotron	2-10
2.2.1 Principe du rayonnement synchrotron.....	2-10
2.2.2 Emission dans les éléments d'insertion : onduleur et wiggler.....	2-11
2.2.3 La ligne de lumière SU6.....	2-14
2.2.4 Caractéristiques des photons en sortie de monochromateur.....	2-16
2.3 Production des ions.....	2-20
2.3.1 La source d'ions à Résonance Cyclotronique Electronique (RCE).....	2-20
2.3.2 Production des ions oxygène	2-24
2.3.3 Production des ions Samarium	2-25
2.3.4 Extraction des ions de la source RCE et focalisation	2-28
2.3.5 Sélection des ions : Filtre de Wien	2-28
2.3.6 Caractéristiques des ions produits	2-29
2.3.7 Transport des ions jusqu'à la zone d'interaction.....	2-33
2.4 Zone d'interaction	2-34
2.5 Analyseur de charge	2-35
2.6 Détection des photoions.....	2-37
2.7 Conclusions sur le montage expérimental.....	2-38

Chapitre 3 : Méthode expérimentale

Sommaire

3.1 Introduction aux mesures de sections efficaces	3-39
3.2 Expression de la section efficace expérimentale	3-39
3.3 Mesures de la section efficace relative de photoionisation dans l'He⁺	3-43
3.3.1 Enregistrement du spectre brut et correction du bruit de fond	3-43
3.3.2 Calibration de l'énergie des photons	3-45
3.3.3 Prise en compte des variations du flux de photons.....	3-46
3.3.4 Mesure des variations du flux d'ions.....	3-49
3.3.5 Récapitulatif des corrections du spectre d'He ⁺	3-50
3.4 Normalisation des spectres et incertitudes de mesure.....	3-51
3.4.1 Généralités sur les mesures de sections efficaces absolues.....	3-51
3.4.2 Paramètres associés à la mesure de σ	3-52
3.4.3 Mesure et calibration du taux de comptage des photoions.....	3-53
3.4.4 Mesure de la vitesse des ions $\langle v \rangle$	3-54
3.4.5 Mesure du flux d'ions incidents I.....	3-55
3.4.6 Mesure du flux de photons	3-55
3.4.7 Mesure de la transmission de l'analyseur.....	3-55
3.4.8 Mesure du facteur de forme.....	3-55
3.5 Résultats finaux sur l'hélium	3-59
3.6 Bilan sur la mesure absolue de sections efficaces	3-61

Chapitre 4 : Photoionisation des ions oxygène

Sommaire

4.1 Introduction	4-63
4.2 Résultats sur l'ion O²⁺	4-64
4.2.1 Description du spectre expérimental	4-65
4.2.2 Présentation des résultats MCDF	4-67
4.2.3 Présentation des résultats Matrice-R et Opacity Project	4-79
4.2.4 Construction des spectres théoriques.....	4-85
4.2.5 Interprétation et discussions	4-90
4.3 Résultats sur l'ion O³⁺	4-100
4.3.1 Présentation des résultats expérimentaux.....	4-100
4.3.2 Présentation des résultats MCDF	4-103
4.3.3 Présentation et description des résultats Matrice-R.....	4-111
4.3.4 Construction des spectres théoriques MCDF et Matrice-R.....	4-113
4.3.5 Interprétation et discussion.....	4-115
4.4 Résultats sur l'ion O⁴⁺	4-122
4.4.1 Présentation des résultats expérimentaux.....	4-122
4.4.2 Résultats MCDF sur O ⁴⁺	4-124
4.4.3 Résultats Matrice-R.....	4-127
4.4.4 Pourcentage d'ions métastables.....	4-129
4.4.5 Interprétation du spectre expérimental sur la base des résultats MCDF	4-130
4.4.6 Comparaisons des Spectres Exp./MCDF/Matrice-R.....	4-133
4.5 Conclusions sur les ions oxygène.....	4-135

Chapitre 5 : Etude de la série isonucléaire du samarium

Sommaire

5.1 Présentation des résultats expérimentaux pour l'ion Sm^{2+}	5-138
5.2 Interprétation des spectres expérimentaux pour l'ion Sm^{2+}	5-139
5.2.1 Etude de l'ionisation simple : $\text{Sm}^{2+} \rightarrow \text{Sm}^{3+}$	5-139
5.2.2 Etude de l'ionisation double : $\text{Sm}^{2+} \rightarrow \text{Sm}^{4+}$	5-143
5.2.3 Conclusions sur le spectre expérimental de Sm^{2+}	5-153
5.3 Etude de la série isonucléaire du Samarium de Sm^{2+} à Sm^{4+}	5-154
5.3.1 Interprétation des structures expérimentales	5-155
5.3.2 Etude des processus de photoionisation dans Sm^{3+}	5-156
5.3.3 Etude des processus de photoionisation dans Sm^{4+}	5-161
5.4 Analyse basée sur une approche U.T.A	5-163
5.4.1 Principe du Modèle U.T.A	5-163
5.4.2 Validation de notre code U.T.A	5-166
5.4.3 Présentation des résultats du code U.T.A	5-167
5.4.4 Discussion sur la série isonucléaire du samarium	5-168
5.5 Conclusions sur le Samarium	5-172

Bibliographie

Chapitre 1 : Préambule

Chapitre 6 : Conclusions et perspectives

Table des Matières
