



HAL
open science

Stabilité des systèmes complexes : Des agrégats aux gouttelettes

Jimmy Rangama

► **To cite this version:**

Jimmy Rangama. Stabilité des systèmes complexes : Des agrégats aux gouttelettes. Physique [physics]. Université de caen, 2022. tel-04411160

HAL Id: tel-04411160

<https://normandie-univ.hal.science/tel-04411160>

Submitted on 23 Jan 2024

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Normandie Université

HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES

Pour obtenir le diplôme d'Habilitation à Diriger des Recherches

Spécialité : Physique

Préparé au sein de l'Université de Caen Normandie

Stabilité des systèmes complexes: Des agrégats aux gouttelettes

**Présenté et soutenu par
Jimmy RANGAMA**

Le 25 mars 2022

Diplôme soutenu devant le jury composé de

Mr Alain DUBOIS	Professeur, Sorbonne Université (Paris)	Rapporteur
Mr Hervé JOUIN	Professeur, Université de Bordeaux (Bordeaux)	Rapporteur
Mr Medhi TARISIEN	Maitre de conférences, Université de Bordeaux (Bordeaux)	Rapporteur
Mme Emily LAMOUR	Professeure, Sorbonne Université (Paris)	Examinatrice
Mr Amine CASSIMI	Chercheur CEA, CIMAP (Caen)	Examinateur
Mr Jean-Yves CHESNEL	Professeur, Université de Caen Normandie (Caen)	Garant

Centre de recherche sur les ions, les matériaux et la photonique (Caen)



UNIVERSITÉ
CAEN
NORMANDIE





UNIVERSITÉ
CAEN
NORMANDIE

UNIVERSITE DE CAEN NORMANDIE

U.F.R Sciences
Ecole doctorale PSIME

Mémoire

Présenté par

Jimmy RANGAMA

Docteur de l'Université de Caen Normandie
Chercheur CNRS

En vue de l'obtention du diplôme

D'HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES

Stabilité des systèmes complexes : des agrégats aux gouttelettes

Soutenu le 25 Mars 2022

Membres du jury

Rapporteurs Alain DUBOIS

Hervé JOUIN

Medhi TARISIEN

Examineurs Emily LAMOUR

Amine CASSIMI

Garant Jean-Yves CHESNEL



Table des matières

Introduction générale	1
1 Agrégats métalliques	3
1.1 Introduction	3
1.2 Dispositif expérimental	4
1.3 Résultats et performances	7
1.4 Conclusion	13
2 Dynamique de gouttelettes chargées	15
2.1 Introduction	15
2.2 Techniques expérimentales	16
2.3 Résultats marquants	20
2.4 Conclusions	36
3 Les collisions ion / dimères	39
3.1 Introduction	39
3.2 Projectile et cible	41
3.3 Détection et Acquisition	45
3.4 Dimères de gaz rares : Décroissance coulombienne interatomique	51
3.5 Modélisation	67
3.6 Perspectives	75
Conclusion générale et perspectives	77
Bibliographie	84
CV détaillé et publications	93

Introduction générale

Bien que tout au long de cette période d'activité, j'ai abordé plusieurs sujets de recherche, dans ce manuscrit, j'ai choisi d'en présenter trois qui me tenaient particulièrement à cœur. Le premier concerne la production de faisceau d'agrégats métalliques sélectionnés en taille. Ce travail, essentiellement expérimental, était l'un des objectifs principaux de la thèse de Mr O. Kamalou (2006-2008) avec qui nous avons développé un spectromètre de temps de vol compact permettant la sélection en taille des agrégats métalliques produits par pulvérisation magnétron [1]. La sélection en taille a été validée par des mesures de spectres en temps de vol pour les agrégats de petites tailles et par dépôt et analyse AFM pour les agrégats de plus de 5000 atomes. Le deuxième sujet concerne l'étude de gouttelettes chargées et l'instabilité coulombienne au sein de ces systèmes. Ce travail comporte un volet expérimental, dont j'avais la charge, et un volet théorique assuré par E. Giglio. L'ensemble de cette étude a été mené dans le cadre d'une ANR JCJC et a permis d'obtenir des résultats expérimentaux et théoriques en excellent accord. Aujourd'hui, le laboratoire dispose d'un modèle très performant permettant de prédire les phénomènes d'instabilités au sein de ce type de système. Enfin, le troisième sujet qui sera abordé et qui correspond toujours à mon activité de recherche principale, concerne l'étude de petits agrégats (dimères, trimères) atomiques et moléculaires et de la dynamique de fragmentation de ces systèmes suite aux collisions avec des ions de basse énergie. J'ai participé à l'encadrement de deux thèses (W. Iskandar 2013-2015, V. Kumar 2017-2019) sur les sujets relatifs à cette thématique. Pour finir, je présenterai les conclusions principales de ces années de recherche et je donnerai quelques perspectives sur les années à venir.

Chapitre 1

Agrégats métalliques

1.1 Introduction

Au cours des trois dernières décennies, les agrégats ont été énormément étudiés, à la fois en recherche fondamentale et en recherche appliquée. Par exemple, les agrégats peuvent être utilisés comme blocs de construction pour fabriquer des systèmes nanostructurés. En recherche fondamentale, les agrégats offrent un excellent moyen de comprendre la transition et le changement de propriétés lorsqu'on passe des atomes au solide [2, 3]. Un aspect important de ces études concerne la stabilité des systèmes de taille finie ayant un excès de charge et une énergie interne élevée, ainsi que les différentes voies de fragmentation. Un autre aspect plus pratique est lié au dépôt d'agrégats sur un substrat dans le but d'obtenir une nanostructuration contrôlée d'une surface. De nombreuses expériences ont été réalisées dans ce contexte [4]. Par exemple, il a été observé que les propriétés d'un système agrégat/surface varient drastiquement avec la taille des agrégats. Le développement de faisceaux d'agrégats sélectionnés en taille est, par conséquent, devenu une nécessité. Le système de sélection en masse doit répondre à des critères spécifiques. Premièrement, le domaine de tailles doit être suffisamment large pour tester l'effet de la taille. Deuxièmement, la résolution en taille requise, qui dépend de la taille de l'agrégat, doit être suffisamment bonne pour des agrégats de faible masse. Étant donné que les agrégats qui contiennent plusieurs dizaines d'atomes montrent une variation rapide de leurs propriétés avec leur taille, une résolution en masse de 100 est requise. Pour les tailles plus grandes, une résolution de

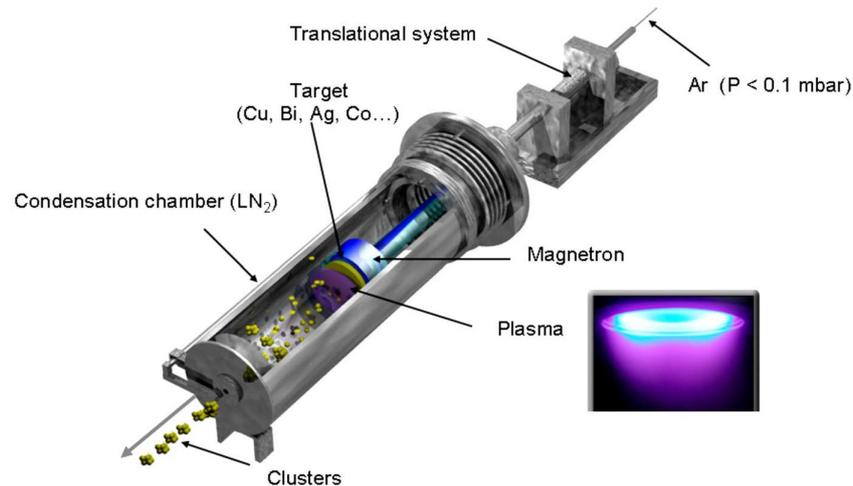


FIGURE 1.1 – Vue schématique de la source de pulvérisation magnétron

10 reste raisonnable pour la plupart des études. Dans notre dispositif [1], nous avons utilisé la technique de temps de vol basée sur le principe de Wiley-McLaren [5] pour faire notre sélection en taille.

1.2 Dispositif expérimental

1.2.1 La source d'agrégats métalliques

Parmi les différentes sources d'agrégats existantes, nous avons choisi la source de pulvérisation magnétron développée par Haberland *et al.* [6]. Cette source a la particularité d'être très versatile, c'est-à-dire qu'elle a la possibilité de produire des faisceaux d'agrégats de semi-conducteurs ou métalliques relativement intenses. Une vue schématique de la source de pulvérisation magnétron est présentée sur la figure 1.1. Une décharge de type magnétron se produit entre une cathode et une anode qui entraîne la pulvérisation de la cathode par le plasma créé par un courant électrique continu sous un flux d'argon. Un champ magnétique constant permet d'augmenter l'efficacité de la décharge (effet magnétron) et donc de la pulvérisation du matériau de la cathode d'un facteur 300 environ en comparaison à une décharge sans champ magnétique. Une grande partie des particules pulvérisées sont ionisées par le plasma avant d'entrer dans une chambre de condensation, permettant ainsi d'avoir une fraction de 20 à

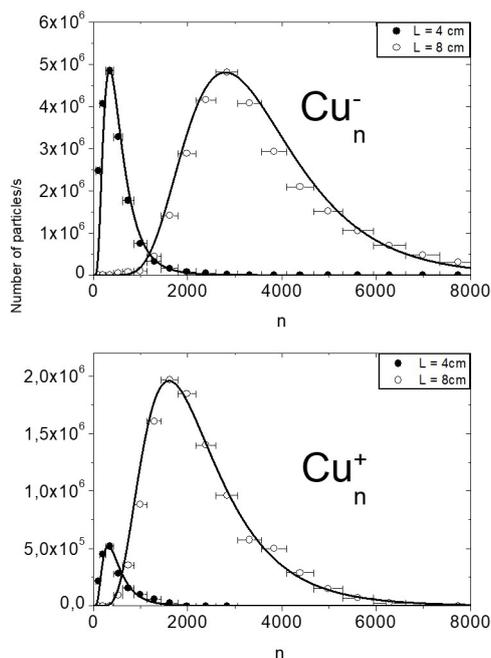


FIGURE 1.2 – Distribution de masses d'agrégats de Cuivre

50% d'agrégats simplement chargés dans le faisceau extrait. La chambre de condensation, refroidie par de l'azote liquide, permet une circulation d'hélium gazeux froid. Les particules pulvérisées traversent ce gaz tampon froid et sont refroidies par collision, permettant ainsi la formation d'agrégats par nucléation. Les agrégats sortent de cette zone de condensation par un iris dont le diamètre peut varier. La gamme de taille des agrégats dépend de la longueur de la zone de condensation, du flux de gaz et de la puissance de la décharge. Nous avons observé une forte dépendance de la distribution en taille en fonction de la longueur de la zone de condensation. La figure 1.2 représente une distribution, en masse, d'agrégats de cuivre simplement chargés, positivement (Cu^+_n) et négativement (Cu^-_n), produits pour différentes longueurs de la zone de condensation. La distribution en taille est large et suit une fonction log-normale [7,8]. Pour les deux états de charge, nous avons observé un déplacement de la distribution en taille vers les grandes tailles lorsque la longueur de la chambre de condensation augmente. Cette observation s'explique assez simplement car le temps passé et le nombre de collisions augmentent également dans ce cas. De plus, lorsqu'un nombre suffisamment grand d'agrégats est formé, les collisions agrégat/agrégats deviennent de plus en plus probable, favorisant la nucléation. De ces spectres, on a pu remarquer que le

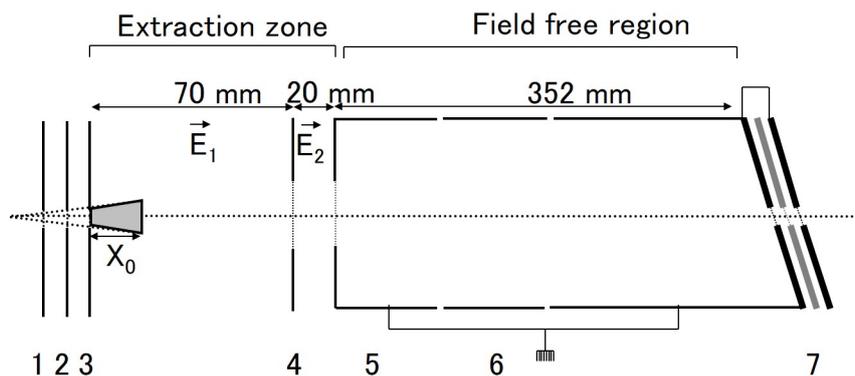


FIGURE 1.3 – Vue schématique du spectromètre de sélection en taille par temps de vol

nombre d'agrégats négatifs était cinq fois plus important que les agrégats positifs. Les autres paramètres, tels que la puissance de décharge ou le flux gazeux, jouent également un rôle sur l'intensité du faisceau d'agrégats. Néanmoins, pour des raisons de durée de vie de la cathode, nous avons préféré travailler avec de faibles puissances de décharge (<60W) et avec un flux de gaz correspondant aux limitations du système de pompage, afin d'obtenir une résolution en masse acceptable.

1.2.2 Un spectromètre de temps de vol compact

Parmi les différents systèmes de sélection en masse disponibles, nous avons choisi de développer un nouveau système de sélection par temps de vol basé sur le principe de Wiley-McLaren [5]. Ce système permet soit d'avoir des faisceaux de haute intensité mais en ayant une résolution en masse et en énergie relativement dégradée, soit d'avoir des faisceaux de faible intensité mais avec une très bonne résolution en masse et en énergie. De plus, cette méthode a la particularité de produire un faisceau sélectionné en taille pulsé, qui est bien adapté à la spectrométrie par temps de vol. L'intensité du faisceau pulsé dépend de la durée ΔT de l'impulsion et du taux de répétition T . Le système de temps de vol est disposé juste après la source d'agrégats et est schématisé sur la figure 1.3. Ce dispositif est constitué de deux zones de champs électriques pour l'extraction et la post-accélération et d'une zone de champ libre [1,9]. Les dimensions sont données sur la figure 1.3. Deux séries d'électrodes à l'entrée et à la sortie du dispositif sont utilisées pour former le paquet d'agrégats et sélectionner une taille donnée

d'agrégats. Une lentille électrostatique (type Einzel) installée au niveau de la zone de champ libre permet la focalisation du faisceau extrait. Cette lentille est utilisée pour focaliser le faisceau pulsé radialement au niveau de l'électrode 7 de manière à augmenter la transmission du système de sélection en masse. En changeant la valeur de la lentille, le diamètre du faisceau varie de 5 à 20 mm à une distance de 200 mm de la sortie du dispositif pour une énergie cinétique de 3 à 5 keV. La longueur totale du dispositif de temps de vol est de 500 mm pour un diamètre de 80 mm ce qui le rend particulièrement compact en comparaison à d'autres dispositifs équivalents. Enfin, pour séparer les agrégats chargés des particules neutres produites durant la décharge de manière continue, un déviateur quadripolaire à 90° [10] est installé juste après le dispositif de temps de vol. Les agrégats chargés sont détectés par un Even cup [11]. Dans ce cas, les agrégats positifs sont accélérés vers une plaque de conversion polarisée à -20 kV. Les électrons émis par la plaque sont guidés par un champ électrique vers un détecteur planaire silicon de type PIPS (Passivated Implanted Planar Silicon) [12].

1.3 Résultats et performances

1.3.1 Résolution et intensité

Nous avons produit des faisceaux d'agrégats de cuivre et de bismuth. Pour mesurer la résolution en masse de notre spectromètre de type Wiley-McLaren, l'électrode 7 était à la masse, c'est-à-dire qu'il n'y avait pas sélection d'une masse d'agrégats en particulier. Cette résolution en masse R_m pour des particules simplement chargées est définie selon la relation suivante :

$$R_m = \frac{m}{\Delta m} \quad (1.1)$$

où m est la masse de l'ion et Δm la largeur à mi-hauteur du pic correspondant à cette masse dans le spectre de temps de vol. Dans le cas d'agrégats A_n^+ , où n désigne le nombre d'atomes A dans l'agrégat, la résolution en masse sera exprimée de la manière

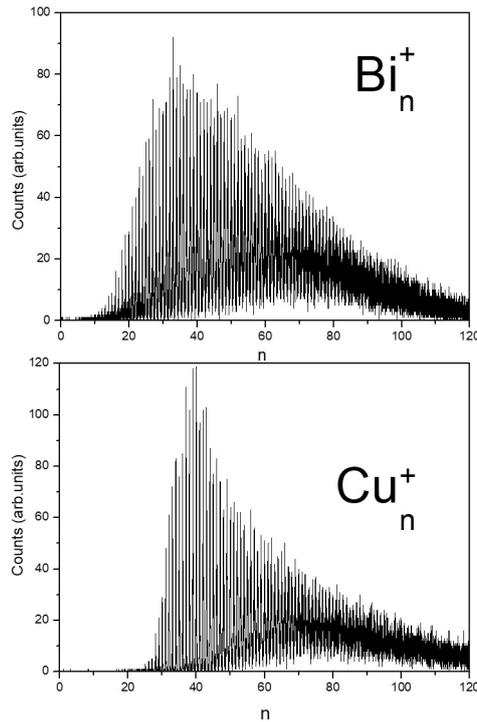


FIGURE 1.4 – Spectres de masse d'agrégats de bismuth (Bi_n^+) et de cuivre (Cu_n^+)

suivante :

$$R_m = \frac{n}{\Delta n} \quad (1.2)$$

Plus R_m est grand, plus le pouvoir séparateur de notre spectromètre sera efficace. Sur la figure 1.4, on voit clairement que, dans le domaine des petites masses, nous pouvons extraire et séparer des agrégats ayant jusqu'à environ 100 atomes du matériau (cathode) pulvérisé. Au delà de cette valeur, les pics correspondants aux différentes masses commencent à se superposer. Ces deux spectres ont été enregistrés dans les mêmes conditions de pression et de décharge. Le maximum d'intensité se situe autour de 40 atomes par agrégat et les deux distributions suivent la loi log-normale. Grâce à ces spectres nous avons déterminé la résolution en masse R_m du spectromètre représentée sur la figure 1.5. Cette mesure a été comparée à la simulation en prenant en compte des conditions les plus proches possibles de conditions réelles du faisceau (dispersion en énergie, positions et trajectoires initiales). Cette simulation, relativement

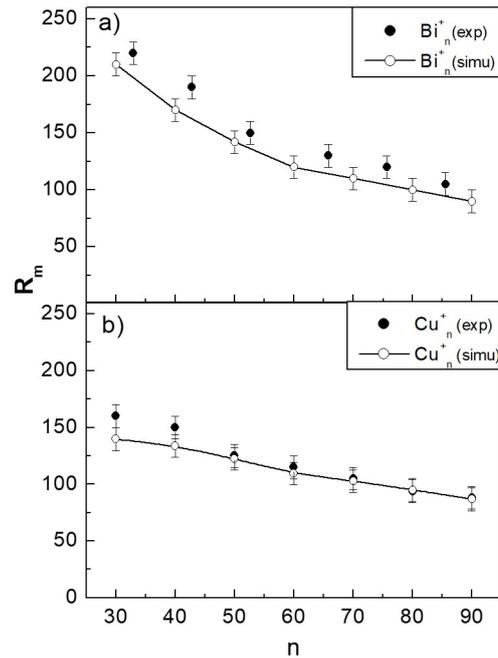


FIGURE 1.5 – Résolution en masse R_m du spectromètre de temps de vol en fonction du nombre d'atomes par agrégat de bismuth (Bi_n^+) et de cuivre (Cu_n^+)

basique, a permis de reproduire les spectres de masse par un tirage aléatoire des trajectoires (en respectant la géométrie initiale du faisceau) et une propagation dans le système électrostatique par la résolution de l'équation de Poisson (SIMION 3D [13]). Les résolutions obtenues par la simulation et par la mesure sont en très bon accord. Les désaccords existants viennent du fait que certains paramètres (pression, plasma, décharge) ne peuvent pas être pris en compte dans ce type de simulation. De manière générale, la résolution du spectromètre décroît avec l'augmentation de la taille des agrégats. En comparant le cas du bismuth et du cuivre, on a constaté que la résolution était meilleure dans le cas du bismuth. Cela s'explique par le fait que l'effet isotopique dégrade la résolution, et d'autant plus pour les agrégats de petites tailles. En effet, le bismuth n'a aucun isotope stable (parmi les 35 isotopes connus) et le ^{209}Bi constitue la quasi-totalité du bismuth naturel, alors que le cuivre possède deux isotopes stables ayant une abondance relative importante (70% de ^{63}Cu et 30% de ^{64}Cu). La sélection en taille pour fournir un faisceau pur ayant une taille donnée d'agrégats se fait par l'intermédiaire de l'électrode 7 (fig. 1.3). Cette électrode est polarisée par une tension pulsée synchronisée avec l'extraction des agrégats. Il suffit ensuite de retarder cette

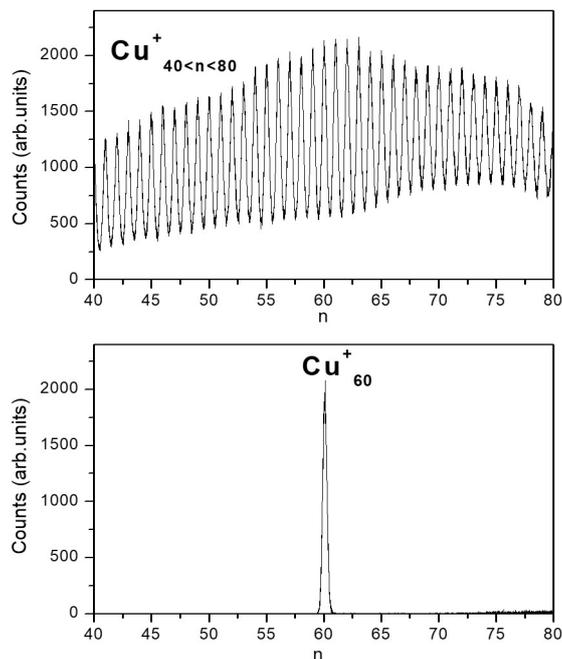


FIGURE 1.6 – (a) Spectre de masse d'agrégats de Cu_n^+ avec $40 \leq n \leq 80$.
 (b) Spectre d'agrégats de Cu_{60}^+ sélectionnés à l'aide de l'électrode 7.

impulsion pour sélectionner la taille souhaitée. La figure 1.6 montre un exemple de sélection d'une taille d'agrégats (Cu_{60}^+) parmi toutes les tailles initialement produites. L'intensité du faisceau mesurée dans ce cas est de 1 pA, ce qui correspond à une densité de l'ordre de 6×10^4 particules/cm³.

1.3.2 Dépôt et mobilité

L'objectif initial de ce développement était de produire des faisceaux d'agrégats sélectionnés en taille suffisamment intenses pour permettre de faire des collisions de type "faisceaux croisés" avec des ions multichargés et d'en comprendre la stabilité en fonction de la taille des agrégats dans un temps d'expérimentation raisonnable. Étant donné les faibles intensités obtenues, rendant ainsi cet objectif difficilement atteignable, nous avons réalisé des expériences de dépôts d'agrégats sélectionnés en taille sur des substrats de graphite (HOPG). La source d'agrégats de type magnétron peut produire des agrégats constitués de plusieurs milliers d'atomes. Nous avons pu détecter des agrégats ayant jusqu'à 12000 atomes (le rendement de conversion de notre détecteur Even cup décroît rapidement au-delà de cette taille). Le spectromètre nous

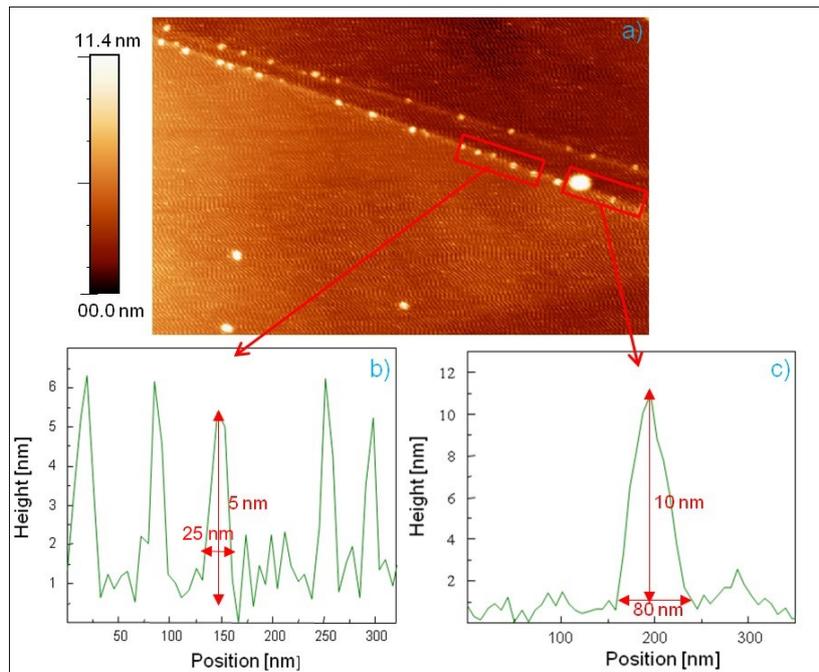


FIGURE 1.7 – a) Image AFM obtenue après dépôt d’agrégats de cuivre $\text{Cu}_{5800 \pm 1000}$ sur du HOPG vierge à une énergie de 0.5 ± 0.1 eV/atome. b) Profil AFM des agrégats sélectionnés en taille. c) Profil AFM d’un agrégat plus gros formé par phénomène de diffusion et d’agrégation sur la surface de HOPG

a permis de produire des faisceaux d’agrégats de taille relativement grande (Cu_n^+ , $n = 5800 \pm 1000$) à une énergie cinétique totale de 2.8 ± 0.15 keV (correspondant à 0.5 ± 0.1 eV/atome). Nous avons réalisé un dépôt sur une surface de HOPG vierge et une surface de HOPG irradiée par des ions Ar^{6+} à une énergie cinétique totale de 60 keV, extraits d’une source ECR (installation ARIBE du GANIL), avec une fluence de 8×10^{12} ions/cm². Le dépôt d’agrégats sur les deux échantillons a été effectué avec une fluence de 8×10^{10} agrégats/cm². Les échantillons ont été analysés par un microscope à force atomique (AFM) ayant une résolution verticale de 0.1 nm et une résolution latérale de 20 nm. Il ne s’agit pas ici de décrire en détail les interactions complexes entre les agrégats et les surfaces mais de montrer un résultat marquant obtenu avec des agrégats déposés sur une surface. La figure 1.7 a) montre une image AFM où des agrégats de $\text{Cu}_{5800 \pm 1000}$ se sont accumulés le long des marches. Ce phénomène peut s’expliquer par la mobilité des agrégats sur les terrasses de HOPG vierge. L’énergie de dépôt est suffisamment faible pour que les agrégats ne soient pas déformés lors de leur arrivée sur la surface ni implantés dans le matériau. Par conséquent, une fois arrivés

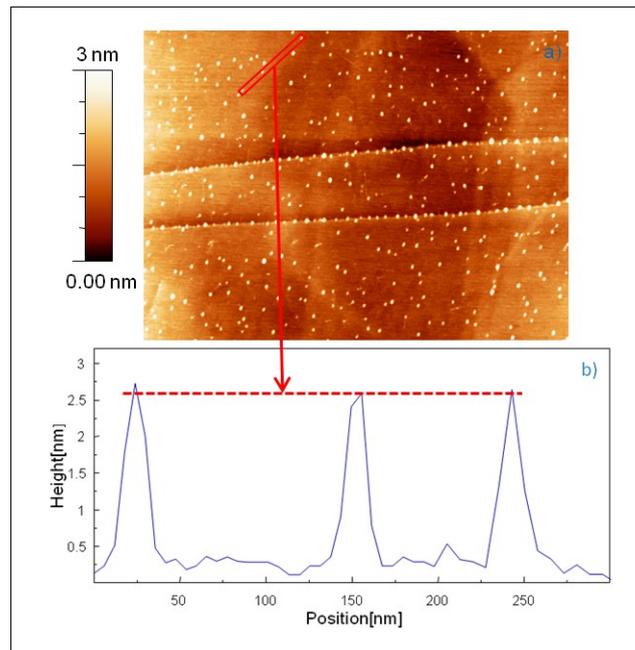


FIGURE 1.8 – a) Image AFM obtenue après dépôt d'agrégats de cuivre $\text{Cu}_{2900 \pm 500}$ à une énergie de 1 ± 0.2 eV/atome sur du HOPG pré-irradié par des ions Ar^{6+} à 60 keV. b) Profil AFM des agrégats déposés.

sur la terrasse, les agrégats peuvent se déplacer de leur position d'arrivée jusqu'à une irrégularité de la surface par trois mécanismes : le mouvement individuel des atomes de l'agrégat, le mouvement par évaporation-condensation et le mouvement collectif de l'agrégat. Les deux premiers donnent lieu à un coefficient de diffusion faible. Le mouvement collectif se fait par création de dislocations qui se propagent par déplacement collectif des atomes et donne lieu à un coefficient de diffusion plus grand. Les irrégularités principales d'une surface de HOPG sont les marches entre les terrasses. Ces marches correspondent à un décalage de feuillets plans entre deux terrasses. Les agrégats sont mobiles jusqu'à être piégés dans ces marches. Certains agrégats ont une hauteur de 5 nm (Fig. 1.7 b)) qui correspond au diamètre moyen des agrégats dans le faisceau. D'autres agrégats ont un diamètre plus grand qui pourrait s'expliquer par la coalescence de plusieurs agrégats (Fig 1.7 c)). La figure 1.8 représente une image AFM d'un échantillon de HOPG qui a été pré-irradié par des ions multichargés et sur lequel nous avons déposé des agrégats de $\text{Cu}_{2900 \pm 500}$. L'énergie cinétique totale étant la même que précédemment, l'énergie de dépôt est donc de 1 ± 0.2 eV/atome. La première observation est la répartition quasi uniforme des agrégats sur l'échantillon pré-irradié (même si on observe une accumulation dans les marches). Cette répartition

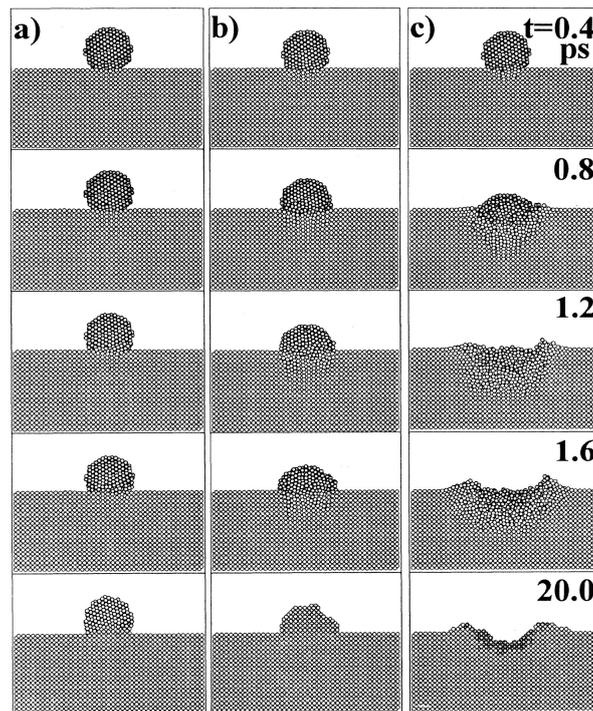


FIGURE 1.9 – Simulation du dépôt d’agrégats de molybdène sur une surface de molybdène à une énergie de a) 0.1 eV/atome b) 1 eV/atome c) 10 eV/atome [14].

correspond aux défauts créés par les ions Ar^{6+} (non visibles à l’AFM). Les agrégats déposés sont diffusés mais leur mobilité est réduite par la présence de défauts de surface. L’analyse des hauteurs des agrégats déposés donne une distribution centrée sur 2.7 nm. Sachant que le diamètre initial de ces agrégats est estimé à 3.96 ± 0.35 nm, on en déduit que les agrégats ont subi une déformation relative de 32% par rapport à leur taille initiale. Cette déformation peut s’expliquer par l’énergie d’impact comme déjà observé par d’autres auteurs [14, 15] et illustré sur la figure 1.9.

1.4 Conclusion

Ce travail, réalisé lors de l’encadrement de la thèse de O. Kamalou [9], a permis le développement d’un dispositif permettant la production de faisceau d’agrégats sélectionnés en taille par pulvérisation magnétron et à l’aide d’un spectromètre par temps de vol compact. La source permet de produire des agrégats dans un large domaine de tailles (de 2 à plusieurs milliers d’atomes par agrégat). Cette source est versatile et est

toujours utilisée pour des expériences de collisions avec des ions multichargés analysées par temps de vol sur le dispositif COLIMACON sur ARIBE. Grâce à ce dispositif nous avons montré la possibilité d'étudier les interactions complexes agrégats/surface en réalisant des dépôts sur des surface de HOPG ou de SiO₂ (non présentées dans ce manuscrit). Enfin, nous avons montré qu'en pré-irradiant une surface avec des ions de basse énergie (Ar⁶⁺ à 60 keV), la mobilité des agrégats sur la surface pouvait être réduite et permettait une répartition uniforme des agrégats sur la surface [9].

Chapitre 2

Dynamique de gouttelettes chargées

2.1 Introduction

L'objectif principal de ce travail est de décrire et de comprendre le processus complet de déformation d'une gouttelette chargée et de mettre en évidence l'influence des propriétés du liquide telles que la mobilité de charge, la tension de surface, la viscosité et la charge initiale sur la dynamique de déformation. Le cœur du projet est de photographier la déformation des gouttelettes chargées et de développer un modèle permettant de reproduire les formes observées et d'en comprendre l'évolution temporelle. Ce travail comporte donc un volet expérimental et un volet théorique. Dans la suite, je vais principalement décrire le volet expérimental, dont j'avais la responsabilité, la partie théorique étant prise en charge par E. Giglio [16]. Ce travail s'inscrit dans le cadre des instabilités coulombiennes qui ont été étudiées pour la première fois par Lord Rayleigh en 1882 [17]. Il a montré que lorsque la pression électrostatique d'une goutte sphérique chargée s'oppose exactement à la pression capillaire, la goutte se trouve dans un équilibre instable. Une décomposition en modes propres de la déformation infinitésimale de la surface montre alors que le moment surfacique quadripolaire devient instable. Lord Rayleigh suggère alors que la goutte émettra des jets fins de liquide, sans donner plus de précision. L'équipe de T. Leisner de l'université de Karlsruhe a été la première à prendre des images de déformation d'une gouttelette piégée dans un

piège de Paul [18, 19]. Ces images montrent clairement qu'une gouttelette se déforme en quelques microsecondes pour adopter une forme proche de celle d'un citron. A ce stade, une pointe se forme à chaque pôle à partir de laquelle un jet de matière chargée est émis. La gouttelette perd alors environ 20% de sa charge mais moins de 1% de sa masse. La pression due à la tension de surface l'emporte alors sur la pression électrostatique et la gouttelette retrouve sa forme sphérique initiale. Si de nombreux auteurs ont décrit et caractérisé l'instabilité de Rayleigh, aucune étude en dehors de celle du groupe de T. Leisner n'existe sur la déformation des gouttes en fonction des propriétés des liquides. Plusieurs questions apparaissent alors, notamment concernant les mécanismes qui mènent à l'apparition des jets ou encore les paramètres qui déterminent la quantité de charges émises par les jets. Du point de vue expérimental, pour des raisons techniques liées à l'injection, le chargement ou l'évaporation d'une gouttelette, il est difficile d'explorer toute une gamme de liquide, comme ceux ayant une très grande viscosité, très volatiles (à température ambiante) ou peu conducteurs. Par contre, sur le plan théorique, on peut faire varier ces paramètres (taille, viscosité, tension superficielle, conductivité, mobilité de charges) plus facilement à condition que le modèle soit validé en reproduisant les observations obtenues expérimentalement. D'autres observables comme l'allongement maximal de la goutte, le champ électrique à la surface, l'énergie dissipée par la viscosité et l'énergie perdue par les jets sont accessibles par la simulation. Pendant les expériences, les liquides utilisés étaient l'éthylène glycol, l'eau ainsi que des mélanges de ces liquides (variation de viscosité en fonction de la proportion du mélange).

2.2 Techniques expérimentales

Le travail expérimental va permettre de caractériser le chemin de déformation de liquides de différentes viscosités et conductivités. Il s'agit de réaliser des expériences avec des liquides et/ou des conditions différentes de celles réalisées par l'équipe de T. Leisner. En dehors de l'intérêt propre qui consiste à étudier l'explosion coulombienne de liquide en fonction de la viscosité et de la conductivité, ces données servent aussi de



FIGURE 2.1 – Injecteur piézoélectrique utilisé pour générer des gouttelettes de taille identique [20]. Sur 1000 gouttelettes produites, l’incertitude sur leur diamètre est inférieure à 1%. Cette reproductibilité est primordiale pour garantir la faisabilité de l’expérience

contraintes pour le modèle théorique qui devra reproduire les résultats expérimentaux. Afin d’étudier l’instabilité de gouttelettes chargées, chaque gouttelette est produite par un injecteur piézo-électrique, chargée par influence à l’aide d’une électrode et injectée dans un piège quadripolaire. La déformation de chaque gouttelette est observée par un dispositif d’imagerie microscopique ultra-rapide. L’ensemble est détaillé dans les paragraphes suivants.

2.2.1 Production et injection

La faisabilité de ces expériences repose sur la maîtrise parfaite de la taille, de la vitesse et de la charge électrique des gouttelettes lors de la production. Pour cela, le choix s’est porté sur un injecteur de type piézo-électrique (fig. 2.1).

Généralement, ce type d’injecteur est constitué d’un tube en verre, dans lequel se trouve le liquide étudié, entouré d’un cristal piézo-électrique piloté par une impulsion électrique d’amplitude et de durée variables. Cette impulsion électrique entraîne la déformation du cristal et par conséquent une variation de pression dans le tube en verre.

C’est cette variation de pression qui permettra à une gouttelette, d’un volume et

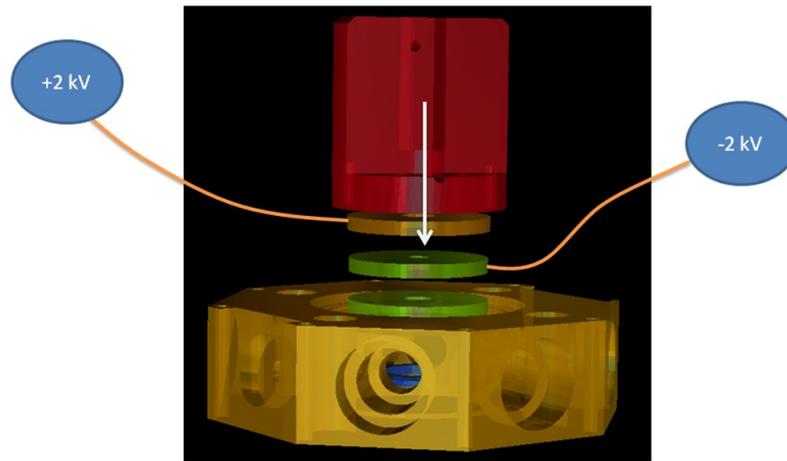


FIGURE 2.2 – Sur ce schéma, l'extrémité de l'injecteur (flèche blanche) est placée entre deux électrodes distantes de 4 mm. Ces électrodes sont polarisées de manière à avoir le champ maximal de chargement lors de la production d'une gouttelette qui sera ensuite piégée dans le piège de Paul (en jaune sur la figure).

d'une vitesse donnée, de se détacher du reste du liquide à la sortie du tube en verre. L'un des principaux avantages de l'injection par effet piézo-électrique est la possibilité d'ajuster les temps de montée et de descente de l'impulsion de pression afin d'éviter la production de gouttelettes satellites et donc de modifier dynamiquement le diamètre de la gouttelette éjectée. Grâce à cette méthode, il est possible de maîtriser non seulement la production mais aussi la reproductibilité de gouttelettes ayant un diamètre de quelques dizaines de μm avec une incertitude de l'ordre de $\pm 0.5\%$. Selon la viscosité du liquide étudié, les gouttelettes produites font entre 20 et 80 μm de diamètre.

Les gouttelettes ainsi produites sont chargées par influence d'un champ électrique (polarisation). L'injecteur piézo-électrique est positionné au milieu de deux anneaux conducteurs (fig. 2.2). On crée un champ électrique de l'ordre de 1 kV/mm entre ces deux anneaux. Lorsque le jet sort de l'injecteur, les charges vont se séparer à la surface du liquide. Quand la gouttelette se sépare du jet, elle possède un excès de charges. Les gouttelettes sont chargées positivement si on applique un potentiel positif sur l'anneau du haut et un potentiel négatif sur l'anneau du bas. Pour un diamètre de gouttelette constant, la charge est imposée par le champ électrique. Une fois produite et chargée, la gouttelette tombe dans un piège électrostatique quadripolaire (piège de Paul [21]) situé à environ 15 mm en dessous de l'injecteur pour y être immobilisée dans l'espace.

2.2.2 Piégeage et Imagerie par microscopie ultra-rapide

Le piège électrodynamique est basé sur le piège de Paul [21] qui consiste en deux électrodes annulaires (diamètre intérieur de 10 mm) séparées verticalement de 2 mm, encapsulées dans une chambre à la masse de forme octogonale à pression et température atmosphériques. Ce dispositif de lévitation électrodynamique a été utilisé et éprouvé lors des études sur des aérosols ou des poussières atmosphériques [22]. Pour immobiliser une gouttelette d'éthylène glycol de 52 μm de diamètre portant une charge d'environ 3.3 pC, une tension alternative de 2 kV d'amplitude et de fréquence de 200 Hz est appliquée aux électrodes annulaires. Le champ électrique quadripolaire résultant a une symétrie de révolution autour de l'axe vertical du piège. Dans les conditions normales de température (ambiante) et de pression (atmosphérique), la gouttelette piégée va s'évaporer. Bien que sa charge ne change pas, sa masse va diminuer. Grâce aux équations de Mathieu [23], nous pouvons déterminer les paramètres optimaux (amplitude et fréquence) pour stabiliser la gouttelette dans un champ quadripolaire. A l'aide d'un laser He-Ne qui illumine la gouttelette dans le piège et d'une ligne CCD qui mesure la position verticale de la gouttelette, nous avons asservi la variation de la fréquence et de l'amplitude de la tension appliquée pour maintenir la gouttelette dans une position stable pendant l'évaporation (fig. 2.3). La fréquence varie typiquement de 200 Hz à 1000 Hz. Enfin, un photomultiplicateur ou une photodiode connectée à un

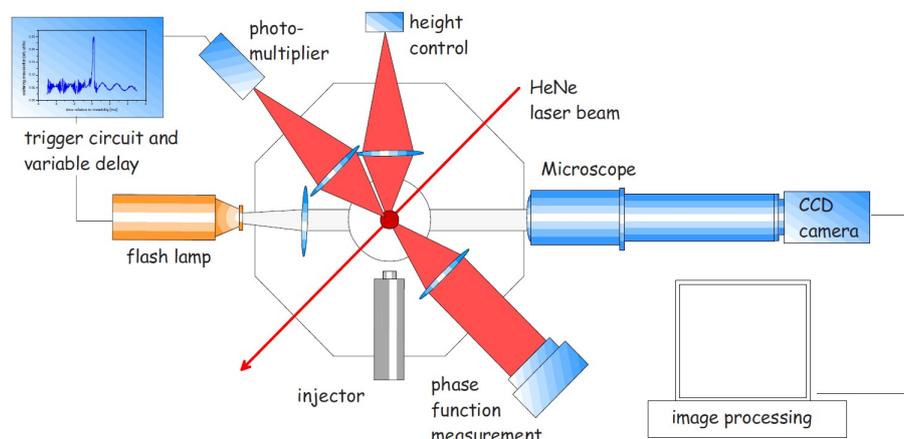


FIGURE 2.3 – Schéma du dispositif complet, en vue de dessus, permettant d'imager la dynamique de gouttelettes chargées

oscilloscope permet de mesurer la lumière diffusée par la gouttelette (fig. 2.4).

Les mouvements propres de la gouttelette influencent ce signal laser diffusé et permet de détecter les déformations de la gouttelette mais également l'instabilité lors de l'apparition des jets. Ce signal, mesuré par une photodiode (fig. 2.4) est utilisé pour déclencher la lampe flash et la caméra CCD (équipée d'un objectif de microscope), nous permettant ainsi de faire des photos des différentes étapes de la déformation.

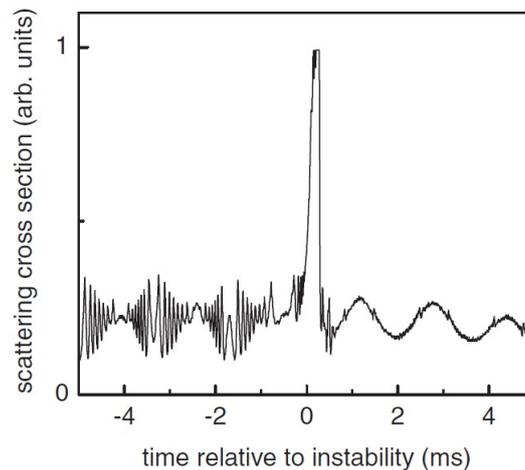


FIGURE 2.4 – Signal mesuré par la photo-diode lors de l'instabilité coulombienne d'une gouttelette chargée et piégée.

En fonction du seuil de déclenchement et/ou du délai ajustable de la caméra CCD, on peut choisir à quel moment de la déformation sera prise la photo. Comme il a été dit précédemment, la technique de production de gouttelettes est suffisamment maîtrisée pour rendre l'expérience reproductible. De cette manière, il est possible, de construire une séquence complète de déformation d'une gouttelette chargée à partir de photographies de gouttelettes différentes (mais de taille et de charge identiques).

2.3 Résultats marquants

En augmentant la charge électrique d'un système de taille finie, à un certain point, il devient instable. Sa stabilité peut être décrite comme la compétition entre deux forces, à savoir la force de Coulomb et la force de cohésion. L'instabilité de Coulomb a été d'abord décrite par Lord Rayleigh en 1882 dans le cas des gouttelettes conductrices. Il a montré que lorsque la gouttelette atteint une charge critique, elle devient instable le long de l'axe de symétrie de la déformation quadripolaire. Il a introduit la limite de

la stabilité à l'aide de la fissilité X , définie comme le rapport entre l'énergie coulombienne et deux fois l'énergie de surface ($E_C/2E_S$). En 2003, Duft et al. [19] ont observé la déformation de gouttelettes chargées d'éthylène glycol. L'apparition de deux jets de matière le long de l'axe de symétrie a été ainsi photographiée. Les photographies étant résolues en temps démontrent un processus ultrarapide (< 1 sec) de déformation. Plusieurs liquides ont été étudiés (glycérine, eau en surfusion). La comparaison des résultats montre une dynamique similaire, bien qu'elle diffère dans les détails. Ces différences montrent d'autant plus l'importance du rôle joué par les propriétés physiques du liquide pendant la déformation.

2.3.1 Déformation des gouttelettes

Comme il a été mentionné précédemment, notre dispositif expérimental permet de produire, charger et photographier l'instabilité coulombienne au sein d'une gouttelette. Grâce à la bonne reproductibilité de l'expérience, nous avons réussi à construire une séquence de toute l'instabilité à partir de plusieurs clichés de gouttelettes de différents liquides. La première séquence (figure 2.5) a été obtenue pour des gouttelettes d'éthylène glycol pure. Le rayon de la gouttelette est de $24 \mu\text{m}$ et elle porte une charge d'environ 3.3 pC au moment de l'instabilité coulombienne. Cela correspond à la limite de Rayleigh définie par $X = 1$. Après environ $200 \mu\text{s}$, la gouttelette est fortement déformée, le rapport d'aspect a/b de la forme ellipsoïde est supérieur à 2 (photo à $t = -22 \mu\text{s}$ sur la fig. 2.5). Cette valeur augmente encore jusqu'à 3.5. Deux pointes commencent alors à se former et de la matière est éjectée par l'intermédiaire de deux jets situés aux pôles de la gouttelette. La gouttelette perd environ $1/3$ de sa charge en $4 \mu\text{s}$ et ce, quasiment, sans perte de masse ($< 0.5\%$). Les petites gouttelettes émises ont un diamètre de l'ordre de 1 à $2 \mu\text{m}$. Avec la résolution expérimentale, il est impossible de déterminer avec précision l'angle des cônes formés aux extrémités de la gouttelette mais le demi-angle semble proche de 30° . Après l'émission de charges, la gouttelette se relaxe vers sa forme sphérique initiale en un temps environ deux fois plus court que la déformation initiale. Les formes prises par la gouttelette pendant cette relaxation sont complètement différentes de celles pendant la déformation initiale.

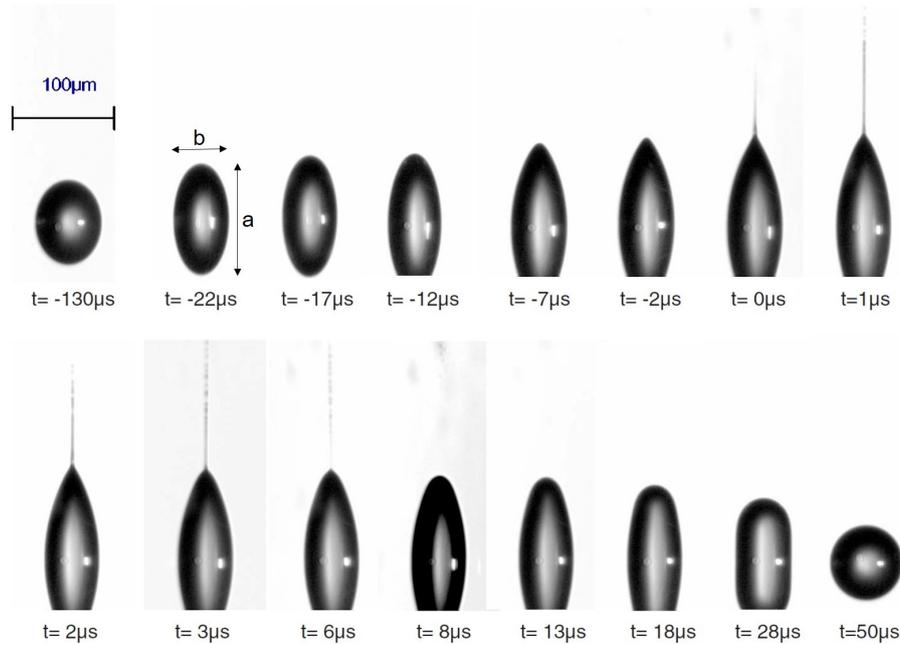


FIGURE 2.5 – Photos de l'évolution de la forme d'une gouttelette d'éthylène glycol d'un rayon de $24 \mu\text{m}$ pendant une instabilité coulombienne [16, 24]. L'émission de jets a été choisie comme origine du temps. Le deuxième jet n'est pas montré sur les photos.

Dans la figure 2.6, c'est la déformation d'une gouttelette d'eau pure de diamètre $35 \mu\text{m}$ qui a été photographiée. Le processus est quasiment deux fois plus rapide que pour la

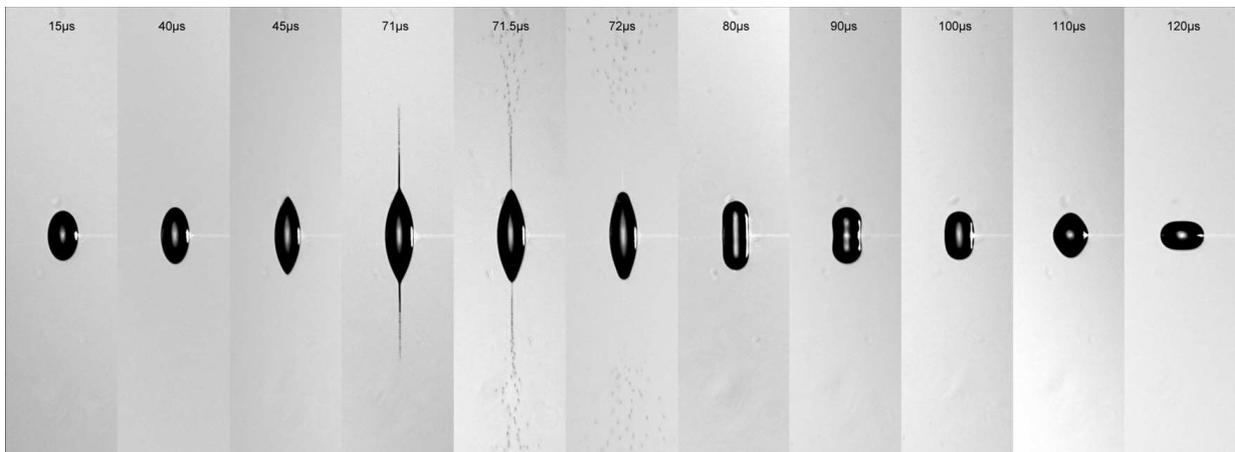


FIGURE 2.6 – Photos de l'évolution de la forme d'une gouttelette d'eau en surfusion (-5°C) de $35 \mu\text{m}$ pendant une instabilité coulombienne [16]. L'émission de jets a été choisie comme origine du temps.

gouttelette d'éthylène glycol. Néanmoins, il semblerait que le chemin de déformation soit assez universel, même si quelques différences apparaissent (essentiellement dans la relaxation) et pourraient être attribuées aux propriétés dynamiques du liquide.

Une série de photos a également été enregistrée pour le cas d'un mélange d'éthylène glycol (40%) et d'eau (60%) (voir figure 2.7). La viscosité de ce mélange est de

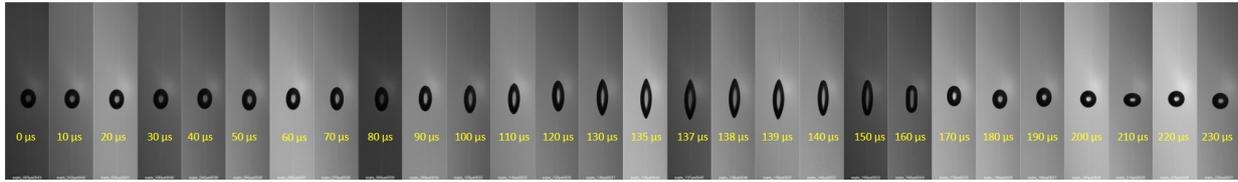


FIGURE 2.7 – Photos de l'évolution de la forme d'une gouttelette de mélange éthylène glycol (60%) + eau (40%). Juste avant la déformation, le diamètre de la gouttelette était de $52 \mu\text{m}$. Le pas de temps qui sépare chaque photo est de $10 \mu\text{s}$ excepté au moment de l'émission des jets.

l'ordre de 2.8 à 3 cP (ou mPa.s). Si $t=0 \mu\text{s}$ correspond au début de la déformation de la gouttelette, à $t=138 \mu\text{s}$, les pointes sont formées et on observe l'émission de matière sous forme de jets. A $t > 210 \mu\text{s}$, la gouttelette redevient sphérique. L'émission des jets pour ce liquide a lieu en $2 \mu\text{s}$ environ alors que pour l'éthylène glycol pur (viscosité de 16 cP) les jets sont émis en $6 \mu\text{s}$.

Pour comprendre l'effet de la viscosité et de la conductivité sur la dynamique de déformation, un premier modèle a été développé par E. Giglio [16] en 2008. N'ayant pas travaillé directement sur le modèle utilisé, je resterais bref sur sa description. Dans ce modèle, l'évolution temporelle de la forme de la gouttelette est donnée par l'équation du potentiel de vitesse. L'équation de Laplace pour le potentiel de vitesse est résolue en développant le potentiel en fonctions harmoniques. Le liquide est supposé non visqueux et incompressible avec un écoulement irrotationnel. Le liquide étant considéré comme un conducteur parfait, le potentiel coulombien V est constant sur toute la surface. La densité de charge surfacique σ est alors proportionnelle à la dérivée normale du potentiel électrique V à l'extérieur de la surface. Enfin, les formes prises par la gouttelette sont supposées de symétrie axiale et ϑ est défini comme l'angle polaire, dont l'origine coïncide avec le centre de la gouttelette. Avec ces hypothèses, la déformation de la gouttelette est décrite par l'évolution temporelle du vecteur de surface $\vec{s}(\vartheta, t)$. Le terme de viscosité a été négligé mais le terme d'inertie de l'équation de Navier-Stokes,

qui prend en compte les effets dynamiques, a été inclus. La constante de temps τ caractéristique de la déformation s'écrit de la façon suivante :

$$\tau = \sqrt{\frac{\rho R_0^3}{\gamma}} \quad (2.1)$$

avec R_0, ρ, γ étant respectivement le rayon initial, la densité initiale et la tension superficielle initiale de la gouttelette. La fissilité X est considérée comme un paramètre libre du modèle qui influence le chemin de déformation. La figure 2.8 illustre les images obtenues par la simulation avant ($X = 1$) et après ($X = 0.5$) l'émission de charges.

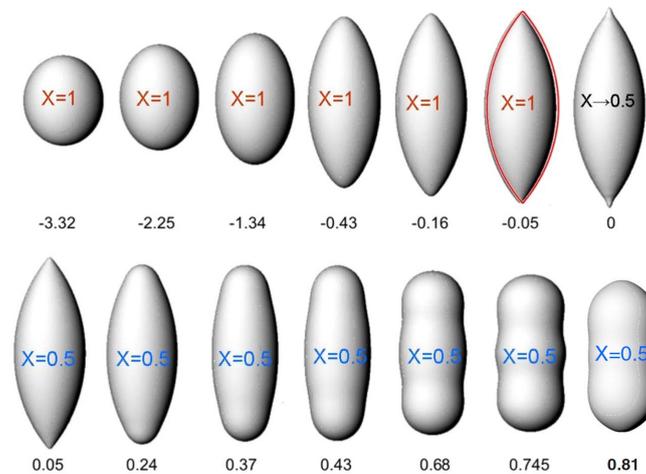


FIGURE 2.8 – Images de l'évolution de la forme d'une gouttelette obtenues par simulation en considérant le liquide comme étant un conducteur parfait, incompressible et irrotationnel [16]. La fissilité X est égale à 1 jusqu'à l'émission de charges.

Le point de départ est une sphéroïde d'excentricité $e = 0.2$ (une gouttelette quasiment sphérique).

Un premier constat est que, malgré sa simplicité, ce modèle est capable de reproduire avec une grande précision les formes prises lors d'une déformation temporellement non-linéaire d'une gouttelette chargée, en limite de stabilité. En particulier, pour $X = 1$, nous obtenons la même forme de gouttelette (prolate avec des pointes aux pôles) que celle observée pour l'éthylène glycol. Au moment où la gouttelette commence à former des jets par ses pointes ($t = 0$), nous réduisons la charge portée par la gouttelette d'environ 30% de la charge initiale en modifiant soudainement la fissilité à $X = 0.5$. Cela

nous permet de simuler l'émission de charges et de décrire la relaxation de la gouttelette sans stopper le calcul. Après l'émission, la gouttelette se relaxe et prend des formes similaires à celles observées expérimentalement (forme superœuf). Ce modèle présente néanmoins quelques faiblesses. L'excès d'énergie potentielle lors de l'émission de charge n'est pas dissipé par la viscosité (qui est négligée dans ce calcul). De plus, ce modèle n'est pas capable de décrire la relaxation jusqu'à la forme sphérique. Le fait de négliger la viscosité, sous-estime le temps de déformation par rapport aux expériences. En effet, si on considère une gouttelette d'éthylène glycol, l'échelle de temps caractéristique est $\tau = 29\mu\text{s}$, ce qui donne un temps de $2.25\tau = 65.1\mu\text{s}$ pour arriver à l'émission de charges alors que, expérimentalement, ce temps est deux fois plus long ($t = 130\mu\text{s}$). Pour de l'eau en surfusion, il faut $70\mu\text{s}$ alors que la simulation (pour $\tau = 23\mu\text{s}$) donne un temps de $2.25\tau = 53\mu\text{s}$. La différence moins grande s'explique par la faible viscosité de l'eau. Une analyse plus poussée a été réalisée pour comprendre le comportement des pointes. Pour cela, une fissilité locale $x(\vartheta)$ a été introduite et définie comme le rapport entre la pression coulombienne et la pression due à la tension superficielle :

$$x(\vartheta) = X \frac{\sigma(\vartheta)^2}{H(\vartheta)} \quad (2.2)$$

où $\sigma(\vartheta)$ et $H(\vartheta)$ sont respectivement la densité de charges et la courbure moyenne à un angle ϑ donné [16]. Afin de pouvoir rompre la surface, la pression coulombienne doit contrebalancer la contrainte due à la tension superficielle, c'est-à-dire :

$$x(\vartheta) > x_c \geq 1 \quad (2.3)$$

où la fissilité locale x_c doit être déterminée.

2.3.2 Chemin de déformation

Avant de faire appel à une méthode de modélisation complexe, une représentation relativement simpliste pour comparer les différents liquides étudiés a été utilisée. Les contours de toutes les différentes formes prises par la gouttelette ont pu être ajustés en

partant de l'expression mathématique d'une superellipsoïde de la forme :

$$\left| \frac{z}{a} \right|^n + \left| \frac{\sqrt{x^2 + y^2}}{b} \right|^n = 1 \quad (2.4)$$

Pour l'ajustement des formes, nous avons considéré le volume de la gouttelette constant pendant le phénomène (la gouttelette perd moins de 0.1% de sa masse par évaporation en quelques centaines de μs) et la quantité de matière émise lors de la production de jets représente moins 1% de sa masse. Deux paramètres indépendants sont donc ajustés : a/b et n . Dans l'expression 2.4, le rapport a/b donne l'élongation de la forme. Pour chaque forme prise par la gouttelette pendant le processus de déformation, nous avons trouvé un couple $(a/b, n)$ et reporté ces points sur un repère graphique en prenant le rapport a/b comme abscisse et n comme ordonnée. De cette manière, le chemin complet de déformation est relativement bien représenté sur un graphique à deux dimensions. De plus, il est possible de comparer des gouttelettes de liquides ayant des propriétés différentes sur un même graphique. Ce type d'ajustement n'est pas parfait et il y a une incertitude sur les formes très exotiques. Sur la figure 2.9, nous avons tracé les points correspondant au chemin de déformation de l'éthylène glycol et de l'eau obtenus à partir de l'ajustement sur les photos expérimentales. Nous avons observé un comportement général assez similaire dans les deux cas. L'instabilité commence par une augmentation du rapport a/b alors que n reste quasiment constant à environ $n = 2$. La déformation initiale est principalement une sphéroïde prolata. Ensuite n diminue, des pointes apparaissent aux pôles de la gouttelette. L'émission de charges apparaît de manière très soudaine pour $a/b \sim 3.2$ à 3.5 avec une valeur de n de 1.4 à 1.6 . Après l'émission de matière et de charges, le système se rétracte alors que n augmente rapidement vers une valeur bien supérieure à 2 , prenant la forme d'une capsule allongée. Enfin, la gouttelette revient à sa forme initiale. Ce chemin de retour peut être monotone ou oscillatoire selon les propriétés du liquide. En effet, les gouttelettes d'eau montrent un comportement doublement oscillatoire entre une sphéroïde oblate et prolata et entre des pôles aplatis et pointus. Pour l'éthylène glycol, les amplitudes de ce

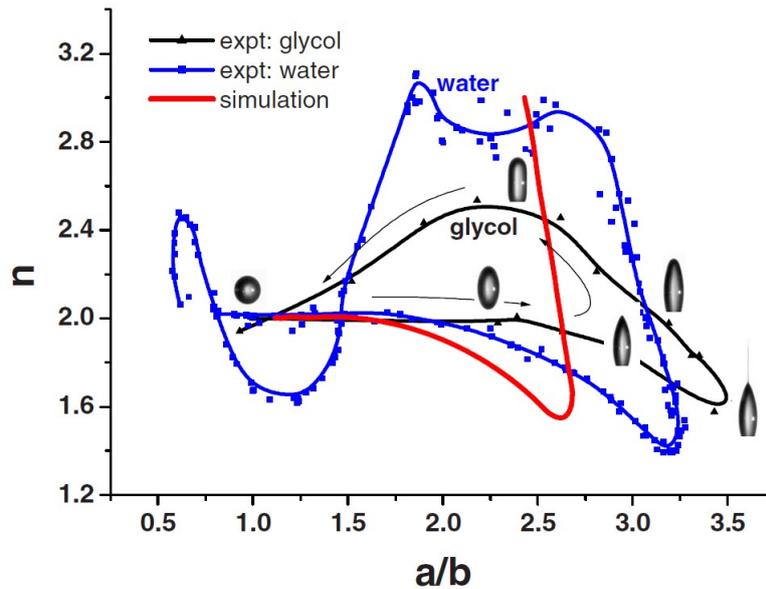


FIGURE 2.9 – Comparaison entre les photos, obtenues expérimentalement, de la déformation de gouttelettes d'éthylène glycol (triangles noirs) et d'eau en surfusion (carrés bleus) avec les chemins de déformations obtenus par simulation [16]. Le rapport a/b et l'exposant n correspondent à une forme ajustée par une sphéroïde.

mouvement sont beaucoup plus faibles que pour l'eau, étant donné que l'amortissement est beaucoup plus important du fait de la plus grande viscosité.

Suite à ces observations, plusieurs questions apparaissent. Par exemple, comment la viscosité d'un liquide modifie ce chemin et la dynamique de déformation? Ou encore, quel est l'effet des porteurs de charges sur la formation des pointes?

Un chemin de déformation simulée a été tracé sur la figure 2.9 et comparé aux données expérimentales. Ce chemin a été simulé pour un liquide ayant une très faible viscosité et une excellente conductivité (même propriétés que le mercure). Selon cette prédiction, les pointes se forment pour un rapport $a/b = 2.6$. Ce rapport est beaucoup plus faible que pour l'eau ($a/b = 3.2$) et l'éthylène glycol ($a/b = 3.5$). Comme la comparaison ne montre pas d'accord même dans le cas de gouttelettes d'eau (faible viscosité), nous supposons que la différence est due à la mobilité de charge finie (liquide polaire). Après l'émission de charges, la déformation est essentiellement due à la tension superficielle. Cette dernière tend à favoriser l'aplatissement des pointes avant de faire tendre la forme vers une sphère. En réalité, la pente de la courbe simulée après l'émission de charge est en bon accord avec les données expérimentales. Comme il a déjà

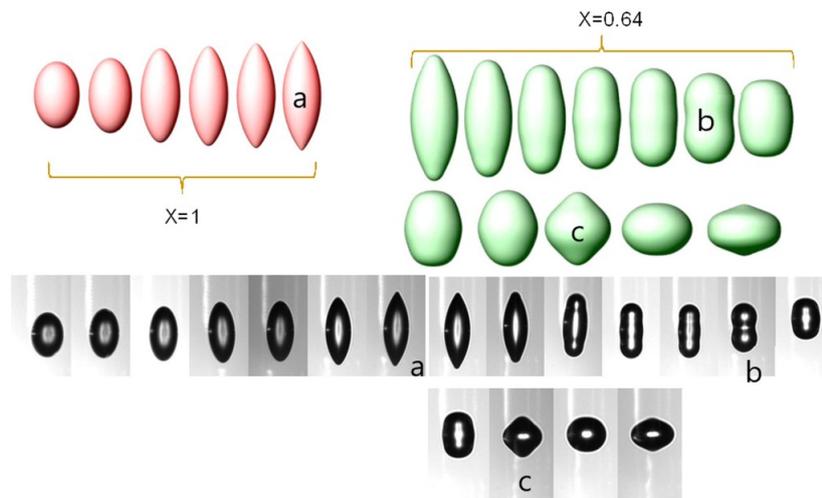


FIGURE 2.10 – Comparaison expérience-théorie du chemin de déformation d’une gouttelette d’eau pure chargée positivement [27]. (L’émission de charge est simulée en abaissant instantanément X à 0.64 au moment où les pointes apparaissent)

été mentionné, ce modèle ne peut pas décrire correctement le chemin de retour jusqu’à la forme d’équilibre et le calcul est stoppé dès que $n = 3.2$. La comparaison avec la courbe de l’éthylène glycol montre le rôle important de la viscosité et de la mobilité de charges.

2.3.3 Amélioration de la modélisation

Plusieurs simulations sur la déformation de gouttelette chargée de manière critique ont déjà été réalisées par différents auteurs. On peut citer par exemple les travaux de Betelù et al. [25] et de Gawande et al. [26], qui ont proposé une étude de la déformation d’une gouttelette visqueuse chargée parfaitement conductrice et suspendue dans l’air. En utilisant une méthode des éléments finis pour résoudre l’équation d’écoulement de Stokes, la gouttelette visqueuse atteint un rapport d’aspect de 3.86, i.e. très proche de la valeur de 3.85 observée expérimentalement. Néanmoins, l’approximation de l’écoulement de Stokes n’est pas adaptée à la déformation ultra-rapide de gouttelettes de faible viscosité, pour laquelle la force advective inertielle peut être supérieure à la force visqueuse. Le cas de gouttelettes de liquide non visqueux parfaitement conducteur a déjà été discuté [16].

Il a été conclu que la prise en compte des forces visqueuses ou d'une conductivité finie était nécessaire pour simuler précisément les différentes formes prises par la gouttelette et observées expérimentalement. Pour comprendre de manière plus détaillée l'influence de la viscosité et de la conductivité électrique sur la déformation de la gouttelette chargée, avec E. Giglio, nous avons proposé un modèle numérique basé sur l'approximation des écoulements à potentiel de vitesse de l'équation de Navier-Stokes. Ce modèle prend en compte la viscosité et les propriétés électriques du liquide [27]. En particulier, la mobilité des porteurs de charge en excès à l'interface est prise en compte et montre comment les propriétés du liquide influence la déformation de la gouttelette chargée de manière critique .

Dans l'exemple illustré sur la figure 2.10, les gouttelettes d'eau déminéralisée ont été positivement chargées. Les mesures dans [28] indiquent que les gouttelettes d'eau pure chargées positivement émettent, à température ambiante, environ 20% de la charge initiale. Nous avons simulé avec le code numérique, développé par E. Giglio et basé sur le modèle VCVPF (Viscous Correction for Viscous Potential Flow approximation), la déformation complète d'une gouttelette chargée de manière critique, y compris l'émission de charges et le retour à la goutte sphérique stable chargée sous-critique. Nous avons utilisé dans ces simulations une conductivité apparente de $\kappa_b = 5.5 \times 10^{-6} \text{S/m}$ et une mobilité de charge de $\lambda = 37 \times 10^{-8} \text{m}^2/(\text{Vs})$. Nous comparons sur la figure 2.10 les formes simulées aux formes photographiées expérimentalement. Les formes simulées rouges de la figure 2.10 sont des gouttelettes chargées de manière critique ($X = 1$). Cette succession de formes montre que la déformation est ultra-rapide ($< 100\mu\text{s}$) dès le début de l'instabilité. Une fois que les pointes ont été formées, nous avons supprimé 20% de la charge [28] et la fissilité diminue instantanément à $X = 0.64$. À ce moment-là, la gouttelette prend une forme de citron (forme a sur la figure 2.10) remarquablement similaire à celle observée et photographiée expérimentalement. Lorsque la gouttelette est sous-critique (formes vertes avec $X = 0.64$) les formes obtenues par la simulation et lors de l'expérience sont en excellent accord, en particulier, les formes b et c. Cet accord général valide notre approche pour étudier et décrire les gouttelettes de liquides à faible viscosité.

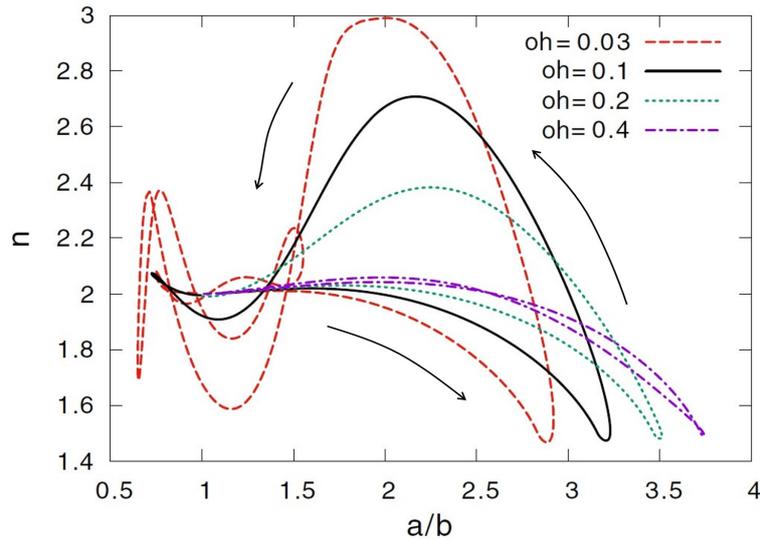


FIGURE 2.11 – Simulation des chemins de déformation pour une gouttelette chargée au seuil critique pour différentes valeurs de viscosité (nombre d’Ohnesorge Oh) [27]. Lors de l’apparition des pointes ($n=1.5$), la fissilité est réduite de $X = 1$ à $X = 0.64$.

Influence de la viscosité

Dans un premier temps, nous nous concentrons sur l’influence de la viscosité sans dimension Oh (nombre d’Ohnesorge [29]) sur la voie de déformation. Nous supposons ici que le fluide est parfaitement conducteur pour que Oh soit le seul paramètre libre contrôlant la trajectoire de déformation. Nous avons simulé pour différentes valeurs de Oh , allant de 0.001 à 0.8, la déformation de la gouttelette ayant une charge critique ($X = 1$). Les différents chemins obtenus sont tracés sur la figure 2.11.

Dans toutes les simulations, la forme initiale est un sphéroïde ($n = 2$, $a/b = 1.03$) quasi-sphérique. Dans un premier temps, nous observons que la voie de déformation générale est similaire quelque soit la viscosité : l’instabilité démarre avec une augmentation du rapport d’aspect a/b alors que n reste constant à la valeur $n \simeq 2$. Cela signifie que la déformation initiale reste principalement de forme sphéroïde prolate. Avec l’élongation continue de la gouttelette, n commence à diminuer et la gouttelette prend la forme d’un citron avec des pôles pointues. En regardant plus en détail, nous constatons qu’avec l’augmentation du nombre Oh et donc avec l’augmentation de la viscosité du liquide, la gouttelette adopte une forme de plus en plus allongée avant l’apparition des pointes aux pôles, généralement lorsque $n \sim 1.5$. Cela est dû au fait que les modes

d'oscillation sont beaucoup plus amortis par les forces visqueuses. En conséquence, plus Oh est grand, plus la formation des pointes est retardée pendant l'allongement des gouttelettes. Pour $Oh = 10^{-3}$, l'allongement maximal est caractérisé par le rapport $a/b = 2.66$, proche de la valeur de 2.65 trouvée pour les fluides non visqueux [16]. A l'autre extrémité, pour $Oh = 0.4$, le rapport a/b est de 3.72, proche de la valeur 3.86 observée dans [25,26] dans le cas de l'écoulement de Stokes correspondant à un grand $Oh \gg 1$.

Pour obtenir les chemins simulés de la figure 2.11, une fois les pointes formées ($n = 1.5$), 20% de la charge initiale est soudainement retirée et la fissilité diminue instantanément à $X = 0.64$. Au même moment, nous réduisons l'énergie cinétique ($E_c = (\rho v^2)/2$) du liquide de 80%. Cette réduction est arbitraire mais est justifiée ici pour permettre de simuler également des gouttes de très faible viscosité ($Oh = 10^{-3}$). Cela permet d'avoir un calcul numériquement stable du chemin de retour pour des gouttelettes de faible viscosité. Après l'émission de charge, la pression due à la tension superficielle domine la pression coulombienne en surface et les pôles se rétractent de manière à aplatir les extrémités. Ce phénomène s'observe par l'augmentation du paramètre n de 1.5 jusqu'à 3.0 pour former une capsule allongée. La valeur maximale de n pendant le chemin de retour dépend du nombre Oh . À cause des forces visqueuses à l'interface, l'énergie cinétique accumulée se dissipe et les gouttes reprennent enfin la forme sphérique, contrairement aux simulations faites avec le liquide non visqueux [16,30]. La déformation des gouttes visqueuses montre un comportement similaire à celle de l'oscillateur forcé amorti. Pour $Oh < 0.2$, la dynamique est sous-amortie et le retour à la la sphère passe par des formes aplaties comme indiqué par le rapport $a/b < 1$. Dans le graphique $(a/b, n)$, la gouttelette oscille avec amplitude décroissante, entre les formes prolates et oblates et avec des pôles pointus (diamants) et aplatis (capsule). On note que $Oh \simeq 0.2$ correspond à la valeur où les oscillations de la gouttelette sont considérablement amorties.

Pour $Oh > 0.2$, le mouvement est sur-amorti et la gouttelette revient lentement à la forme sphérique stable. Dans le cas particulier de $Oh \geq 0.4$, le chemin de retour est même caractérisé par $n \leq 2$, ce qui signifie que les pôles restent pointus pendant un

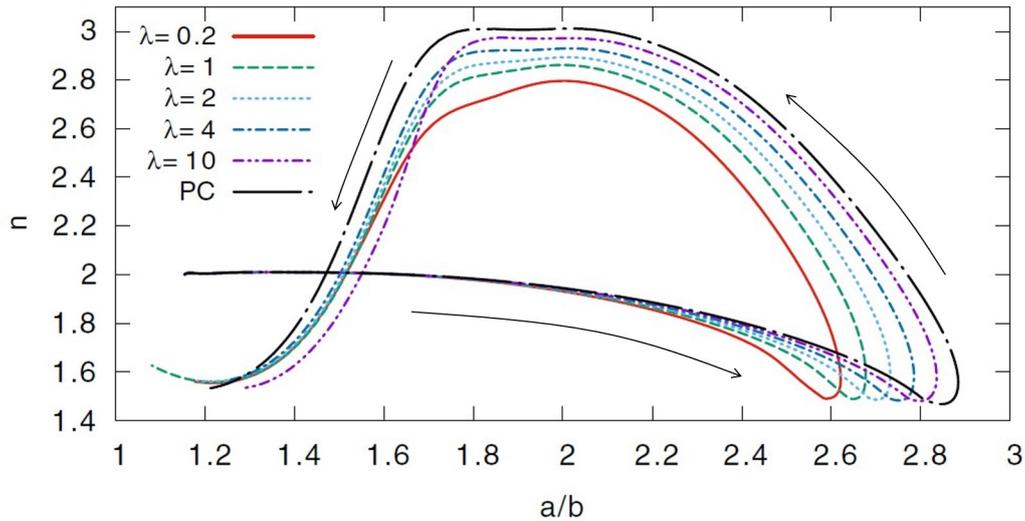


FIGURE 2.12 – Chemin de déformation d’une gouttelette avec $Oh = 0.023$ (typiquement pour une goutte d’eau de diamètre $50 \mu\text{m}$ à température ambiante) pour différentes mobilités des porteurs de charge sans dimension $\tilde{\lambda}$, allant de 0.1 à 10 et pour le conducteur parfait (PC) [27].

certain temps même après émission de charges. C’est un résultat surprenant et cette modélisation n’a pas vraiment de sens étant donné que les calculs VCVPF avec $Oh \geq 0.4$ devraient s’écarter considérablement des calculs Navier-Stokes, comme cela a été montré dans une étude des oscillations de surface d’une gouttelette [31].

Influence de la mobilité de charge

Dans un deuxième temps, nous nous concentrons sur l’influence de la mobilité des porteurs de charge en excès sur le chemin de déformation. On considère le cas particulier où la conductivité du bulk sans dimension $\tilde{\kappa} \ll 1$ est suffisamment petite pour que la dynamique de charge soit dominée par le courant de surface j_s et dépende principalement de la mobilité de charge sans dimension $\tilde{\lambda}$. Les simulations ont été réalisées avec $\tilde{\kappa} = 0.1$ et avec une viscosité sans dimension de $Oh = 0.023$, correspondant à une goutte de diamètre $52 \mu\text{m}$ d’eau désionisée à température ambiante.

Sur la figure 2.12, nous montrons que la première partie de la voie (correspondant à $X = 1$) dépend notamment de la mobilité de charge $\tilde{\lambda}$. Considérant que la mobilité de charge affecte principalement la correction de la pression coulombienne, son influence

sur le chemin de déformation est assez remarquable. On observe que lorsque la mobilité diminue, le rapport a/b de la gouttelette (pour $n \sim 1.5$) diminue de 2.85 à 2.6. En prenant $\tilde{\lambda} \gg 10$, on obtient un chemin de déformation identique à celle du conducteur parfait (PC). Lorsque $n = 1.5$, la charge est réduite de 20%. A partir de ce moment, la déformation est maintenant dominée par la pression superficielle car la pression coulombienne a significativement été réduite lors de l'émission de charges ($X = 0.64$). L'effet de la mobilité de charge sur la partie sous-critique de la déformation est négligeable et le chemin de retour est donc peu influencé. Les petites différences observées sont uniquement liées aux conditions initiales (rapports a/b différents). La raison pour laquelle les mobilités de charge plus petites $\tilde{\lambda}$ ont tendance à accélérer la formation de pointes s'explique par la compétition entre les charges qui sont entraînées par le fluide et les charges qui sont poussées par la composante tangente du champ électrique à la surface.

Pour les gouttes de faible viscosité $Oh < 0.03$, la vitesse à la surface peut être si grande que le flux entraîne une grande quantité de charge aux pôles. La grande concentration de charges aux pôles a tendance à accélérer la formation des pointes. Si la densité de charges accumulées aux extrémités dépasse la densité de charges à l'équilibre σ_{eq} (la charge d'équilibre correspond à la distribution de charge qui donne lieu à une équipotentielle à la surface), cela génère un champ électrique avec une composante tangente dirigée des pôles vers l'équateur de la gouttelette, agissant contre le flux d'entraînement. Plus la mobilité de charge est grande, plus le taux de relaxation de la charge de surface τ_s^{-1} est important et plus la distribution de charges est proche de la distribution de charges à l'équilibre σ_{eq} . C'est pourquoi la voie de déformation tend vers le conducteur parfait (PC) pour $\tilde{\lambda} \gg 1$. Au contraire, pour $\tilde{\lambda} \ll 1$, les charges de surface se déplacent principalement avec le fluide jusqu'aux extrémités, où elles s'accumulent. La mobilité de charge finie a donc un effet non négligeable sur la déformation de la gouttelette et doit être prise en compte en regardant le chemin de manière détaillée. Nous verrons dans la suite que la mobilité de charges nous permet d'observer les différences entre des gouttelettes d'eau pure chargées positivement et celles chargées négativement.

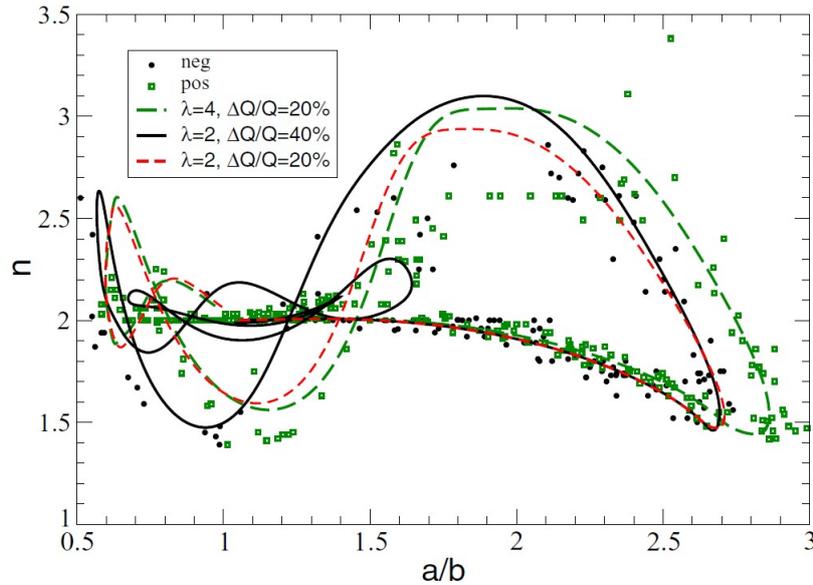


FIGURE 2.13 – Chemins de déformation pour des gouttelettes positive-ment (carrés verts) et négativement (ronds noirs) chargées de rayon estimé à $26 \mu\text{m}$ [27]. Les courbes pointillées ou en trait plein sont obtenues par simulation, les symboles sont les résultats expérimentaux pour des gouttelettes d’eau désionisée. Dans la légende, λ représente la mobilité de charge sans dimension et $\Delta Q/Q$ la quantité relative de charge émise.

Influence de la polarité de charge

En changeant le signe de l’anneau de polarisation de l’injecteur, des gouttelettes chargées négativement ou positivement peuvent être injectées et piégées. À partir des photos enregistrées, nous avons reconstruit, sur la figure 2.13, le chemin de déformation des gouttes chargées positivement (carrés verts) et négativement (cercles noirs). Étonnamment, les chemins diffèrent et les gouttelettes chargées positivement atteignent l’émission de charge (forme citron) pour un rapport plus grand ($a/b = 2.9$) que celles chargées négativement ($a/b = 2.7$). Étant donné que le rayon était de $26 \mu\text{m}$ dans les deux cas et que la viscosité et la densité ne devraient pas dépendre du signe de la charge, nous avons supposé que le comportement différent venait des différents porteurs de charge. En effet, les protons H^+ et les anions hydroxydes OH^- , en solution aqueuse, ont des coefficients de diffusion anormalement élevés, mais avec la mobilité des protons presque deux fois plus grande que celle des anions hydroxydes [32]. Nous avons simulé la voie de déformation à l’aide du modèle VCVPF, où la dynamique de charge à la surface est explicitement prise en compte [27]. Les gouttelettes

chargées positivement et négativement ne se distinguent que par la mobilité des porteurs de charge et dans les deux cas la mobilité de charge sans dimension domine la conductivité du bulk sans dimension ($\tilde{\lambda} \gg \tilde{\kappa}$). Le chemin de déformation devrait dépendre de $\tilde{\lambda}$, la conductivité apparente ayant simplement un effet négligeable sur la dynamique de déformation. Le chemin simulé est superposé aux données expérimentales (figure 2.13). Nous observons un accord remarquable entre le chemin simulé et le chemin obtenu expérimentalement. En analysant la première partie ($X = 1$) du chemin pour laquelle la mobilité de charge a une influence non négligeable, il apparaît clairement que les gouttelettes d'eau positives (carrés verts) suivent un chemin très distinct des gouttelettes d'eau négatives (cercles noirs). Le calcul VCVPF, avec $\tilde{\lambda} = 4$, suit plutôt le trajet des gouttelettes chargées positivement (carrés verts) avec un rapport a/b final d'environ 2.8 pour $n = 1.5$. Toutefois, la simulation avec $\tilde{\lambda} = 2$ semble en meilleur accord avec le chemin suivi par les gouttelettes négatives. La comparaison indique que la différence observée pour la partie $X = 1$ du chemin peut être expliquée par la différence de mobilité de charge de H^+ et OH^- dans l'eau. Après l'émission de charges, la voie sous-critique est dominée par la quantité de charges émises. En particulier, la pente du chemin après l'émission de charge dans le graphique (a/b, n) croît avec l'augmentation de la charge émise, étant donné que la grande différence entre la pression capillaire et la pression coulombienne accélère l'aplatissement des pôles. Dans le cas de gouttelettes chargées négativement, nous avons constaté que l'élimination de 40% de la charge initiale donne le meilleur «ajustement visuel» pour le chemin de retour. La suppression de seulement 20% de la charge (courbe pointillée rouge sur la fig. 2.13) décale le chemin de retour de 0.2 vers la droite sur l'axe a/b. L'ajustement sur les cercles noirs est moins satisfaisant. Dans le cas de gouttelettes chargées positivement (carrés verts,) le meilleur ajustement visuel a été obtenu pour une charge relative émise $\Delta Q/Q$ de 20% (courbe pointillée vert). Ces constatations sont corroborées par les observations rapportées par [28]. Ce dernier a trouvé que les gouttelettes d'eau pure chargées négativement à température ambiante et ayant un rayon de $62 \mu\text{m}$ émettent environ 40% de la charge initiale lors de l'émission de charges alors que les gouttelettes d'eau chargées positivement n'émettent que 20% de la charge initiale. Nous notons, cependant,

que la grande dispersion des carrés verts et des cercles noirs de la figure 2.13 ne nous permettent pas de distinguer de manière précise la différence entre 20% et 40% de la charge émise. Il semble donc que, la raison pour laquelle le rapport a/b des gouttelettes chargées positivement est plus grande que celles chargées négativement, soit due à la mobilité élevée des H^+ par rapport aux OH^- . Pour des gouttelettes de si faible viscosité ($Oh = 0.023$), l'entraînement des charges par la vitesse du fluide est en compétition avec le champ électrique. Il arrive que ce dernier soit moins efficace pour OH^- et ainsi beaucoup de charges s'accumulent aux pôles. La vitesse tangente des charges à la surface, définie comme la somme de la vitesse d'entraînement $\tilde{\mu}_\tau$ et de la vitesse $\tilde{\lambda}\tilde{E}$ liée au champ électrique, peut être tracée en fonction de la distance relative des pôles pour des conductivités $\tilde{\lambda}$ différentes [27]. On peut ainsi montrer que, à proximité des pôles, la vitesse des charges est plus grande pour des liquides de faible conductivité que pour les liquides de conductivité élevée. La densité de charges accumulées accélèrent la formation de pointes. Si au lieu de l'eau pure, nous utilisons de l'eau de mer avec une conductivité de l'ordre de 5 S/m et ainsi une conductivité du bulk sans dimension $\tilde{\chi} \simeq 10^4 \gg \tilde{\lambda}_\alpha$ pour des porteurs de charges α , la dynamique de charge sera dominée par le courant du bulk $\tilde{\chi}\tilde{E}_n$ et le liquide sera considéré comme étant un conducteur parfait. Dans ce cas, les gouttelettes chargées positivement et négativement devraient avoir le même chemin de déformation et émettre la même quantité de charge.

2.4 Conclusions

Pour conclure, ce travail sur la dynamique de gouttelettes chargées a permis de mettre en évidence quelques résultats remarquables. Sur le plan expérimental, nous avons chargé et piégé des gouttelettes d'eau pure dans un piège de Paul et avons enregistré des photographies ultra-rapides des différentes formes adoptées par les gouttelettes lors de l'instabilité coulombienne. Ces mesures ont été faites pour des gouttelettes chargées positivement et négativement à température ambiante. Nous avons observé que, juste avant l'émission de charges, les gouttelettes chargées négativement étaient plus allongées que celles chargées positivement. Sur le plan théorique, un code

numérique basé sur l'approche VCVPF a été développé et inclut des effets visqueux du milieu. La dynamique des fluides est couplée à la dynamique de charges de surface, de sorte que la pression coulombienne dépende également des propriétés électriques du liquide. Pour le cas particulier des gouttelettes d'eau pure, nous avons montré que le modèle VCVPF décrit avec précision toutes les étapes de la déformation de la gouttelette. Du début jusqu'à la fin de la déformation, en passant par l'émission instantanée de charges avec une perte d'énergie cinétique négligeable, le modèle permet d'obtenir exactement les mêmes formes exotiques observées expérimentalement. Cet excellent accord nous a permis d'aller plus loin dans la compréhension du phénomène. Le modèle prédit que plus la viscosité est grande plus la gouttelette s'allonge. Le rapport a/b se situe entre 2.66 pour les liquides non visqueux et 3.86 dans le cas limite d'un écoulement de Stokes. Nous avons constaté que si la mobilité de charge $\tilde{\lambda}$ domine la conductivité du bulk $\tilde{\chi}$ du liquide (de l'ordre de 1), la déformation des gouttelettes est sensible à la mobilité des porteurs de charge. Nous avons montré que pour $\tilde{\lambda} = 1$, la dynamique de charge est dominée par la vitesse du fluide à l'interface, qui entraîne les porteurs de charge aux pôles, accélérant la formation de pointes. Par contre, pour $\tilde{\lambda} = 4$, le champ électrique est suffisamment efficace pour éviter une accumulation rapide de charges aux pôles, retardant ainsi la formation des pointes. Enfin, grâce à ce modèle, nous avons montré que même si la mobilité du proton n'est que d'un facteur 2 plus élevée que celle de OH^- , des gouttelettes chargées positivement et négativement montrent un rapport d'aspect sensiblement différent lors de l'émission de charges. La faible mobilité de OH^- pourrait aussi expliquer pourquoi plus de charges (environ un facteur 2) sont émises pour les gouttelettes chargées négativement.

Chapitre 3

Les collisions ion / dimères

3.1 Introduction

Les cibles de dimères constituent l'état intermédiaire le plus simple entre la phase gazeuse et la matière condensée. Leurs études présentent un intérêt croissant lors des collisions entre des ions multichargés et des dimères atomiques car elles peuvent aider à identifier les différences entre les processus en jeu lorsque la cible est isolée et ceux survenant lorsque cette cible est environnée. En d'autres termes, les dimères ont ce potentiel tout à fait unique de fournir une transition entre un problème à quelques corps, avec un projectile et une simple cible atomique, et un problème à plusieurs corps où seules des quantités collectives peuvent être obtenues. Les aspects fondamentaux de l'excitation et de la relaxation électroniques menant à la réorganisation structurale et aux réactions chimiques deviennent accessibles. L'étude des collisions entre les dimères et les ions multichargés peut ainsi conduire à des découvertes cruciales pour la modélisation d'une grande variété de systèmes dans les domaines de l'astrophysique, la physique de l'atmosphère, l'endommagement radiatif ou même l'hadronthérapie. Les dimères de gaz rares sont liés par des liaisons de van der Waals issues de corrélations dans les polarisations fluctuantes des particules voisines. Comparées aux liaisons ioniques ou covalentes, les liaisons van der Waals sont beaucoup plus faibles et associées à de plus grandes distances intermoléculaires. Comme exemple extrême, on peut prendre le dimère He_2 , avec une longueur moyenne et une énergie moyenne de liaison de respectivement 98 u.a. et 95 neV [33]. A quoi devons-nous nous attendre pour de

tels systèmes faiblement liés, constitués de deux atomes presque indépendants, lorsqu'ils sont excités par la lumière ou par l'impact de particules chargées telles que les ions multichargés? Le but de ce chapitre est de présenter un bref aperçu des résultats que nous avons recueillis au cours de la dernière décennie dans les collisions entre les ions projectiles et des cibles de dimères.

Si les cibles dimères atomiques et moléculaires sont évidemment plus complexes que leurs monomères, ces cibles restent suffisamment simples pour permettre des mesures complètes de cinématique à l'aide de la technique dite de spectroscopie d'ions de recul [34,35]. Nous nous concentrerons sur les expériences utilisant cette technique, dont la plupart des données ont été obtenues en régime de basse vitesse (avec une perturbation du paramètre de Sommerfeld $\eta \gg 1$). Dans ce régime, le transfert d'électrons de la cible à l'ion projectile est de loin le processus primaire dominant menant à l'ionisation de la cible. D'autres expériences, axées sur l'endommagement radiatif, ont également été effectuées avec des énergies de projectile correspondant au maximum du pouvoir d'arrêt dans l'eau liquide. Comme on le verra, ces mesures récentes fournissent des informations clés sur la façon dont l'énergie de collision est déposée dans le système et comment ce dernier se relaxe et affecte éventuellement l'environnement voisin. Dans une première section, nous décrirons brièvement les principes de base de la technique expérimentale utilisée pour étudier les collisions entre les ions multichargés et les cibles de dimères. Une deuxième partie se concentrera sur les principaux résultats obtenus au cours de la dernière décennie avec des dimères de gaz rares. Nous discuterons des différences observées dans la dynamique de collision et la fragmentation ultérieure pour les cibles à liaison de van der Waals par rapport aux cibles à liaisons covalentes. En particulier, l'apparition de processus de relaxation résultant de la proximité d'un deuxième centre atomique sera mis en évidence. Dans la troisième section, des calculs effectués à l'aide d'un modèle classique de la barrière coulombienne de type Monte Carlo (MC-COBM) [36], développé pour des cibles de dimères atomiques, seront présentés et confrontés aux données expérimentales. Une courte et dernière section discutera des perspectives possibles dans le domaine des collisions ions-dimères.

3.2 Projectile et cible

3.2.1 Ions multichargés

Les ions projectiles utilisés dans ces travaux sont produits à l'aide d'une source ECR (Electron Cyclotron Resonance) installée sur la ligne de faisceau de l'Accélérateur pour la Recherche avec des Ions de Basse Energie (ARIBE). Cet accélérateur fait partie des accélérateurs d'ions disponibles au GANIL et permet d'obtenir des ions de basse énergie ($E \lesssim 20\text{keV}$ par unité de charge).

Source ECR : Principe

L'application d'un champ électromagnétique hyperfréquence (14 GHz) sur un gaz injecté dans l'enceinte permet d'ioniser ce gaz et de créer un plasma ionique. Les électrons créés après ionisation du gaz sont confinés par un champ magnétique et accélérés à l'aide du champ électromagnétique hyperfréquence. Ces électrons vont à leur tour arracher d'autres électrons du gaz injecté afin de produire des ions d'état de charge élevé. **Ces ions multichargés sont extraits de la chambre vers la ligne du faisceau à l'aide d'un champ électrique ajustable généré par une électrode d'extraction polarisée à une tension maximale de 20 kV.**

Accélération, sélection et transport

La source ECR est placée sur une plateforme haute tension dont le potentiel permet de donner une énergie spécifique aux ions. Une sélection de l'état de charge des ions extraits (rapport masse/charge des ions projectiles) est effectuée par le biais d'un dipôle magnétique situé à la sortie de la source. À la sortie du dipôle, les ions projectiles sont conduits jusqu'à la chambre de collision. Des multipôles électromagnétiques sont installés tout au long de la ligne de transport afin de bien guider et focaliser le faisceau. Des jeux de fentes dans le plan perpendiculaire au faisceau sont aussi installés après les multipôles dans le but de réduire l'intensité et la taille du faisceau si besoin. Des profi-leurs et des cages de Faraday sont utilisés pour permettre le diagnostic du faisceau et obtenir un profil optimal des ions incidents à l'entrée de la chambre de collision. Tout

au long de la ligne de faisceau, un vide de l'ordre de 10^{-9} mbar est assuré à l'aide de pompes cryogéniques et de pompes turbo moléculaires.

Zone d'interaction

À la fin de son parcours, le projectile passe à l'intérieur d'un tube cylindrique de 3 cm de diamètre et un collimateur de 0.6 mm séparant la ligne de transport et la chambre de collision. Ce trou de 0.6 mm permet de bien définir la zone de collision avec la cible, et comme nous le verrons dans la suite, d'obtenir une meilleure résolution sur les observables mesurées après interaction avec la cible. Selon la nature du projectile choisi pour l'expérience, un gaz spécifique est injecté dans la source (Xe, Ar ou O₂), un état de charge est sélectionné, et le réglage de la ligne est optimisé afin d'avoir un bon profil de faisceau à l'entrée de la chambre de collision. L'optimisation finale se fait ensuite à l'aide des détecteurs du dispositif COLTRIMS (**COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy**), en maximisant le nombre d'événements détectés correspondant à des processus d'échange de charge sur la cible gazeuse.

3.2.2 Jet supersonique

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

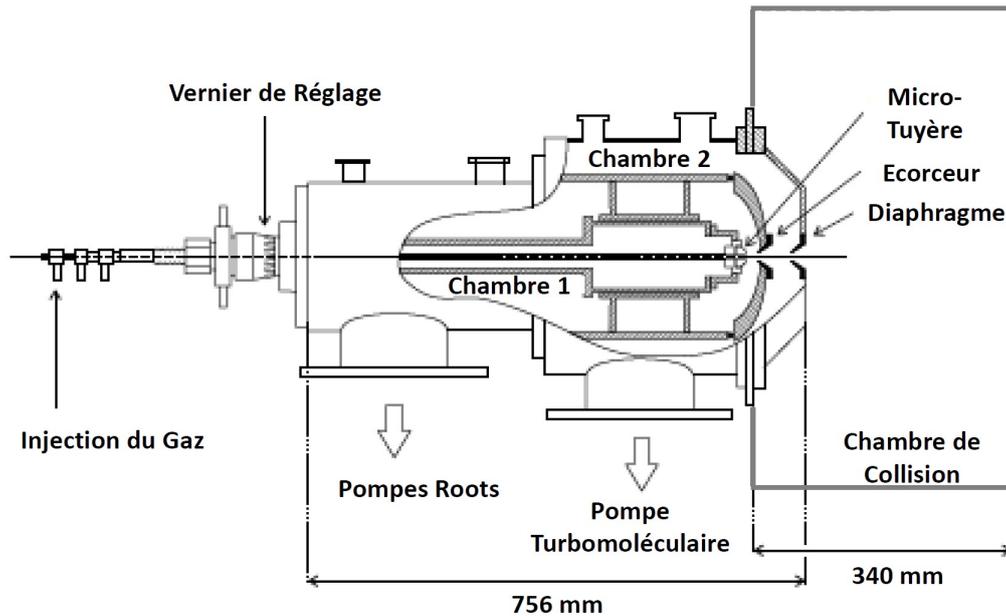


FIGURE 3.1 – Vue schématique du jet supersonique

Principe

La génération du jet supersonique est obtenue en appliquant des conditions particulières de pression à l'entrée et à la sortie d'une micro-tuyère. Le gaz cible est injecté avec une grande pression P_0 (typiquement une dizaine de bars) à l'entrée d'un tube cylindrique d'injection (fig. 3.1).

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

$$v_{\text{jet}} = \sqrt{\frac{5k_B T_0}{m_{\text{jet}}}} \quad (3.1)$$

où m_{jet} est la masse molaire de la molécule dans le jet. Après expansion, cette vitesse dépend de plusieurs paramètres telles que la nature du gaz, la pression d'injection P_0 , la température initiale T_0 du gaz et la pression dans la chambre 1 (après la micro-tuyère). La micro-tuyère utilisée dans l'expérience a un diamètre $d_t = 30\mu\text{m}$. Dans la

chambre 1 (fig. 3.1), après la micro-tuyère, il existe une zone appelée zone de silence dans laquelle le gaz est à très basse température (quelques K). En dehors de cette zone de silence, le gaz du jet commence à interagir avec le gaz résiduel et diffuse dans toutes les directions. Dans cette zone de silence, la distance typique, par rapport à l'axe de la tuyère, pour laquelle le gaz commence à perdre ses caractéristiques de jet supersonique, est :

$$y_1 = \frac{2}{3} d_t \sqrt{\frac{P_0}{P_1}} \quad (3.2)$$

où P_1 est la pression dans la chambre 1.

Extraction

Pour extraire le jet atomique froid de la zone de silence, un écorceur qui sépare la chambre 1 de la chambre 2 doit être placé à l'intérieur de la zone de silence, à une distance inférieure à y_1 . La distance entre la micro-tuyère et l'écorceur est ajustée par le biais d'un vernier de réglage (distance ajustée y_e entre 0 et 20 mm) afin d'optimiser les performances pour un gaz donné et une pression P_0 donnée. Un diaphragme est employé entre la chambre 2 et la chambre de collision pour collimater le jet. Cela permet d'avoir un jet bien défini dans la zone de collision et un recouvrement optimal avec le faisceau projectile. Après la zone de collision, le jet arrive dans une chambre appelée "beam dump". Le pompage de cette chambre permet d'évacuer le gaz et évite la dégradation du vide dans la zone de collision.

Production de dimères

Deux cibles gazeuses (néon et argon) ont été utilisées dans cette expérience. La formation des dimères, des trimères et d'agrégats plus gros, se fait au moment de l'expansion du gaz (juste après la micro-tuyère). La formation d'agrégats dépend essentiellement de :

- la nature du gaz,

- de la température et de la pression pression d'injection du gaz et
- du diamètre et de la forme de la micro-tuyère [37–40].

Pour la production optimale de dimères de Ne, nous avons utilisé une micro-tuyère de diamètre de $30\mu\text{m}$, une pression d'injection de 25 bars (à température ambiante) et une distance y_e de 6 mm. Pour la production optimale de dimères d'Ar, nous avons utilisé une micro-tuyère de diamètre de $30\mu\text{m}$, une pression d'injection de 2.5 bars (à température ambiante) et une distance y_e de 4 mm. Ces paramètres sont optimisés en tenant compte de deux choses. Premièrement, la pression du jet est mesurée à la fin de son parcours (P_{BD} dans la chambre "beam dump") en fonction de la distance y_e et pour une pression d'injection P_0 donnée, puis on choisit la valeur de y_e pour laquelle on obtient la pression P_{BD} la plus élevée, c'est-à-dire correspondant au jet le plus dense après le diaphragme. Deuxièmement, le jet est analysé dans la chambre "beam dump" à l'aide d'un sélecteur de masse quadripolaire (Quadripolar Mass Selector, QMS). Ce QMS permet d'ioniser le gaz à l'aide d'une source d'électrons. Les particules ionisées sont détectées par une cage de Faraday ou un channeltron. L'analyse en masse de ces ions permet d'avoir une comparaison quantitative entre le gaz atomique et les agrégats formés dans le jet (dimères, trimères ...). En faisant cette analyse pour différents couples (P_0, y_e) , il suffit de choisir le couple qui permet d'avoir la production optimale de dimères de gaz rare (meilleure densité du dimère par rapport aux atomes et aux agrégats plus gros). Généralement, la pression dans la chambre 1 est de l'ordre de 10^{-3} mbar, dans la chambre 2 de l'ordre de 10^{-5} mbar et celle de la chambre de collision de l'ordre de 5×10^{-8} mbar.

3.3 Détection et Acquisition

3.3.1 Spectrométrie d'ions de recul : COLTRIMS

Principe

Dans le spectromètre d'ions de recul utilisé au laboratoire, lorsqu'un ion projectile capture un ou plusieurs électrons de la cible (un dimère, par exemple), la cible ionisée

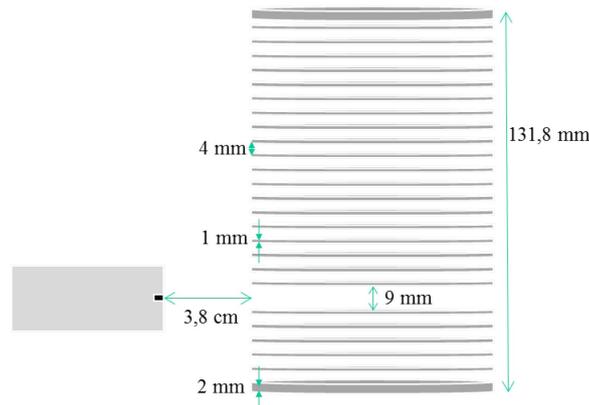


FIGURE 3.2 – Schéma d'agencement du spectromètre COLTRIMS

peut fragmenter. Les fragments chargés sont alors extraits de la zone de collision par un champ électrique et sont collectés sur un détecteur à localisation. Grâce aux mesures de la position du point d'impact des ions de recul sur le détecteur et de leur temps de vol entre la zone d'interaction et le détecteur, les trois composantes des vecteurs vitesse de chaque fragment peuvent être déterminées. Ce principe de base a été largement utilisé dans les années 90 dans les spectromètres construits dans les laboratoires tels que le CIMAP, Kansas State University, l'IKF de Francfort et le GSI de Darmstadt. Cette technique de spectrométrie permet à la fois une détection suivant les 4π stéradians d'angle solide des fragments issus de la collision et une meilleure résolution sur la quantité de mouvement. Contrairement au jet effusif, le jet supersonique permet d'avoir une cible froide (quelques K) avant toute interaction avec un projectile. La résolution sur la mesure de la quantité de mouvement transférée aux ions de recul dépend du rapport entre le diamètre du détecteur et celle de la zone de collision (en s'assurant que la résolution spatiale du détecteur reste faible devant la taille de la zone de collision).

Description technique

Le spectromètre COLTRIMS du CIMAP est constitué d'un ensemble d'électrodes espacées de 4 mm l'une par rapport à l'autre, comme le montre la figure 3.2, et connectées entre elles par des résistances de $2.75\text{M}\Omega$. À chaque extrémité du spectromètre, la dernière électrode correspond à une grille ayant une transmission de 90%, permettant d'assurer l'homogénéité du champ électrique. Le détecteur de fragments positifs (ions)

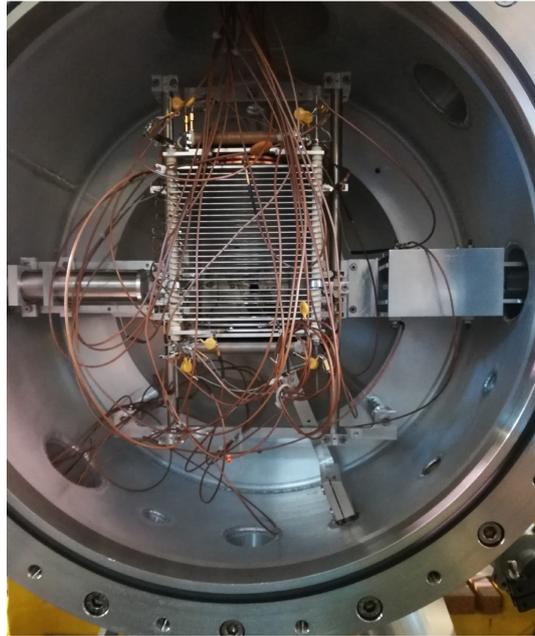


FIGURE 3.3 – Photographie du spectromètre COLTRIMS

est placé derrière la grille située en haut du spectromètre. De l'autre côté, un deuxième détecteur permet la détection de fragments négatifs (électrons ou anions). Le spectromètre a été conçu avec la particularité de pouvoir modifier les distances entre la zone de collision et les détecteurs en ajoutant ou retirant des électrodes. Cette particularité permet d'optimiser la focalisation en temps et en espace selon les systèmes collisionnels étudiés. Pour les expériences présentées ici, le détecteur des ions positifs a été placé à une distance de 97 mm du centre de la zone de collision. Durant l'expérience, un champ électrique de 22 V/cm a été employé pour permettre d'extraire 100% des ions d'énergie par charge inférieure à 8.8 qeV.

Cette énergie limite est ajustée pour notre système de collision afin de détecter tous les ions simplement, doublement ou triplement chargés produits après fragmentation du dimère de Ne ou d'Ar (l'énergie maximale transférée aux ions par fragmentation est inférieure à 8.8 qeV). Du fait de ce champ d'extraction relativement élevé, la résolution attendue sur l'énergie des électrons est très mauvaise, et le détecteur d'électrons (ou d'ions négatifs) n'a pas été utilisé durant ces expériences.

Pour un champ électrique permettant de détecter des fragments ayant une quantité de mouvement P_{\max} , la résolution dans le plan du détecteur de diamètre D pour un

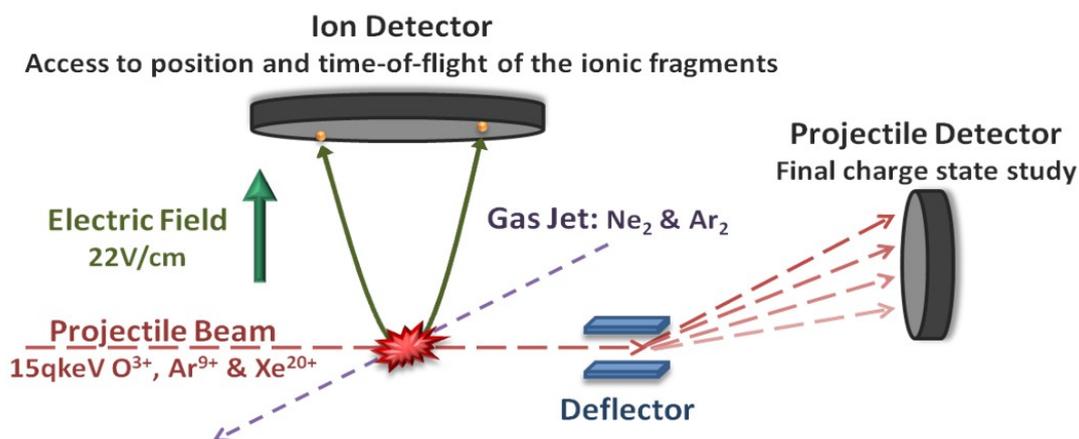


FIGURE 3.4 – Vue schématique du spectromètre COLTRIMS

volume cylindrique de collision de diamètre d est donnée par :

$$R = 2P_{\max} \times \frac{d}{D} \quad (3.3)$$

En résumé, la meilleure résolution sera obtenue avec un volume d'interaction le plus petit possible et un détecteur le plus grand possible.

3.3.2 Détection en temps de vol et en position

Les détecteurs utilisés dans ce dispositif expérimental sont sensibles en temps et en position et peuvent être utilisés pour collecter en coïncidence toutes les informations nécessaires sur le projectile et les fragments produits après collision (Fig. 3.4). Un détecteur est placé dans le plan transverse (x, y) pour détecter les ions projectiles qui ont capturé au moins un électron suite à la collision. Deux autres détecteurs sont placés dans le plan (y, z) du spectromètre, de part et d'autre du spectromètre comme décrit précédemment.

Ces détecteurs sont composés d'un assemblage de galettes à micro-canaux (MCP) et d'une anode à ligne à retard (DL) (Fig. 3.5). L'information temporelle (temps d'arrivée des particules sur le détecteur) est mesurée par les galettes MCP. L'information spatiale (la position dans le plan du détecteur de leur point d'impact) est obtenue par le biais de l'anode à ligne à retard. L'anode permettant l'analyse en charge du projectile est un carré de 70 mm de côté et celle permettant la détection des fragments chargés fait 100

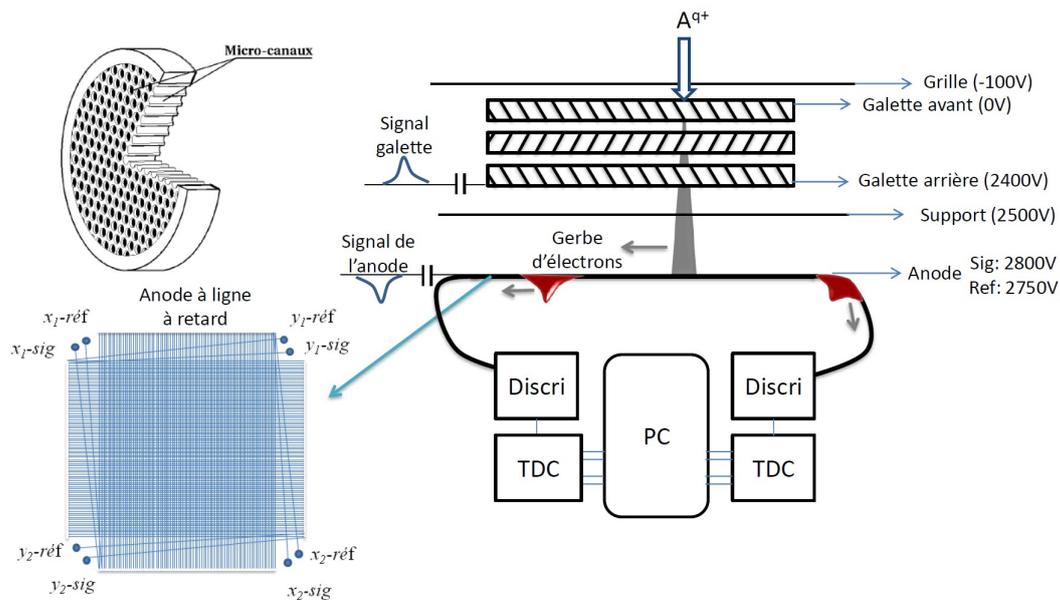


FIGURE 3.5 – Vue schématique du spectromètre COLTRIMS

mm de côté. Ces anodes sont constituées de deux bobinages comportant chacun deux fils en cuivre de même longueur et mis en parallèle sur un support métallique. Les deux fils bobinés selon la direction verticale ($x-ref$ et $x-sig$ de la fig.3.5) donnent accès à la position suivant la direction horizontale, et les deux fils bobinés selon la direction horizontale ($y-ref$ et $y-sig$ de la figure 3.5) donnent accès à la position suivant la direction verticale du plan du détecteur. Les électrons sortant de la face arrière des galettes sont attirés vers l'anode en polarisant ces fils avec une tension positive par rapport à celle de la galette arrière. L'utilisation en parallèle de deux fils notés *sig* et *ref* permet réduire le bruit électromagnétique et d'obtenir un signal le plus propre possible. Pour cela, les deux fils *sig* sont polarisés à une tension de 50 V de plus que celle des deux autres fils *ref*. La gerbe d'électrons arrivant de la galette va préférentiellement aller vers le fil qui est au potentiel le plus fort. Le bruit qui est présent sur les fils *sig* et *ref* va être ensuite éliminé en faisant la soustraction des signaux *ref-sig* pour ne conserver, à la fin, que le signal issu de la gerbe d'électrons. Chaque fil possédant deux extrémités de part et d'autre du détecteur, on a donc 8 signaux au total. Ces 8 signaux sont distribués deux à deux sur chacune des quatre extrémités du détecteur (Fig. 3.5). Chaque couple de signaux (*sig*, *ref*) va passer par un transformateur passif (TP104) qui opère la soustraction analogique des deux signaux (*ref-sig*). Après soustraction, les 4 signaux

obtenus vont permettre d'obtenir le temps de propagation mis par le signal généré par les électrons pour aller du point d'impact du nuage d'électrons vers les 4 extrémités des fils (T1X, T2X, T1Y, T2Y). On peut alors déterminer la position dans le plan du détecteur de l'ion détecté en utilisant les deux formules 3.4 et 3.5 :

$$x = \frac{V_{\text{axial}}}{2}(T1X - T2X) \quad (3.4)$$

$$y = \frac{V_{\text{axial}}}{2}(T1Y - T2Y) \quad (3.5)$$

avec

$$V_{\text{axial}} = \frac{L}{T1X + T2X} = \frac{L}{T1Y + T2Y} \quad (3.6)$$

Dans le repère que nous avons choisi pour décrire notre dispositif (Fig. 3.4), le détecteur projectile va permettre de générer des positions en x et y des ions détectés tandis que celui des fragments (ou ions de recul) donneront les positions suivant y et z . La vitesse V_{axial} correspond à la vitesse de propagation du signal sur les fils de l'anode où L est la longueur totale du fil et $T1X + T2X$ est le temps total mis par un électron pour passer d'une extrémité à l'autre du fil.

3.3.3 Électronique et acquisition

Avant novembre 2015, l'acquisition des données se faisait selon les systèmes VME (Versa Module Europa) et CAMAC (Computer-Aided Measurement And Control) par l'intermédiaire de modules TDC (Time-to-Digital Converter) et QDC (Charge-to-Digital Converter). Ce système a été entièrement remplacé par un système d'acquisition numérique basé sur la technologie FPGA (Field Programmable Gate Array) appelé FASTER (Fast Acquisition Système de recherche nucléaire)(figure 3.6). FASTER est un système d'acquisition numérique complet , développé au Laboratoire de Physique Corpusculaire de Caen (LPC Caen). Ce système d'acquisition numérique a la particularité d'être reprogrammable / reconfigurable et modulaire aussi bien pour la physique nucléaire que pour des expériences interdisciplinaires utilisant un ou plusieurs canaux de mesure. Notre système dispose de 20 canaux sachant que nous avons besoin de

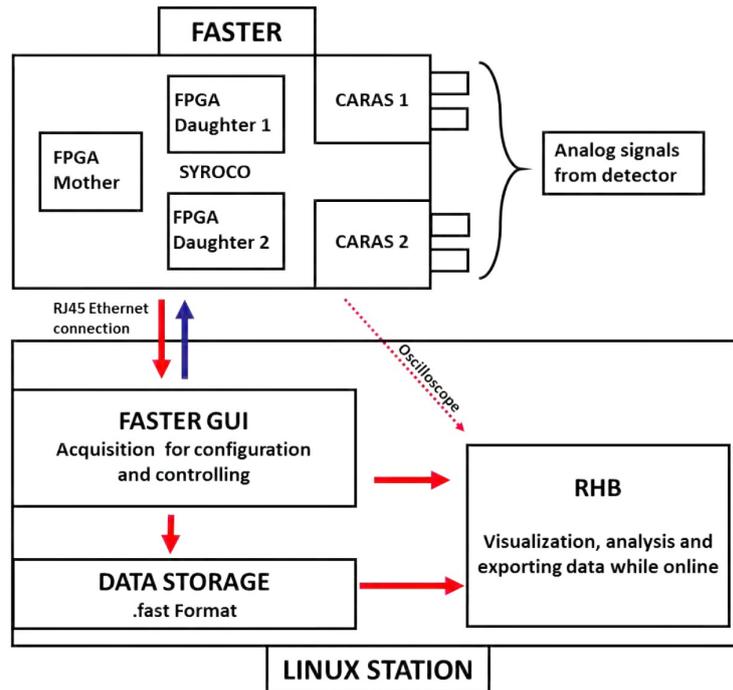


FIGURE 3.6 – Diagramme du système d'acquisition FASTER

15 canaux au maximum pour 3 détecteurs. Ce système enregistre les informations en temps réel, les traite puis les trie, les regroupe et permet de les visualiser en ligne. La visualisation en ligne s'effectue à l'aide du programme RHB (ROOT Histogram Builder) également développé au LPC. Il est basé sur le logiciel ROOT (Logiciel d'analyse de données) développé par le CERN (Conseil Européen pour la Recherche Nucléaire).

3.4 Dimères de gaz rares : Décroissance coulombienne interatomique

Les dimères de gaz rares sont d'un intérêt particulier car ils permettent d'étudier un système diatomique dont les atomes sont quasi-indépendants mais qui, néanmoins, sont faiblement liés. En particulier, des expériences de photoionisation [41, 42] ont confirmé les prédictions de Cederbaum *et al.* [43]. En effet, de nouveaux processus de relaxation tels que la décroissance coulombienne interatomique (ICD, Interatomic Coulombic Decay) peuvent se manifester du fait de la présence d'un atome voisin.

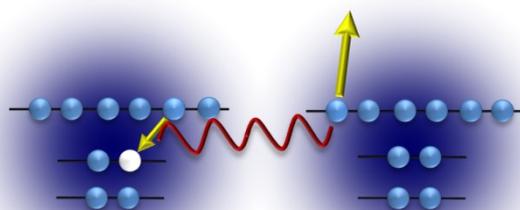


FIGURE 3.7 – Principe du processus ICD pour un dimère de néon : le remplissage d'une lacune en couche interne de l'un des sites du dimère conduit à l'émission d'un électron de l'autre site via l'échange d'un photon virtuel

L'ICD a lieu lorsque l'énergie d'excitation d'un atome n'est pas suffisante pour se relaxer par décroissance Auger mais assez grande pour entraîner l'ionisation de l'atome voisin. Malgré la grande distance entre les deux atomes, ce dernier processus peut se produire par l'échange d'un photon virtuel (Figure 3.7).

La probabilité de multiionisation directe par photon est très faible et la production d'ions moléculaires de charge plus élevée nécessite l'existence de processus de relaxation au travers de la corrélation électron-électron telle que l'émission Auger ou l'ICD.

En revanche, dans des collisions impliquant des ions multichargés relativement lents, le champ coulombien est tellement intense qu'il peut conduire à plusieurs processus d'ionisation avec une probabilité élevée et produire des cibles fortement ionisées avec un degré d'excitation limité [44]. Un dimère peut alors être ionisé en retirant des électrons soit de l'un des atomes, soit des deux. Il est donc nécessaire de comprendre à la fois la dynamique de la capture électronique et celle de la dissociation éventuelle. Quand un des atomes du dimère est fortement ionisé, quel type de réarrangement de charge peut être attendu avec l'atome voisin? Est-ce qu'une mobilité faible ou limitée entre les deux sites atomiques permet d'étudier comment les électrons sont capturés par un ion projectile multichargé? Et pour les faibles degrés d'ionisation, est-ce que l'ion moléculaire se relaxe par les mêmes nouveaux processus que ceux observés en photoionisation? Des expériences récentes menées sur l'accélérateur ARIBE ont permis de répondre à ces questions.

TABLE 3.1 – Voies de fragmentation et leur rapports de branchement respectifs obtenus lors de la collision $\text{Ar}^{9+} + \text{Ar}_2$

Réaction	Voie de Fragmentation	Rapport de branchement br
$(\text{Ar}_2)^{2+} \rightarrow \text{Ar}^+ + \text{Ar}^+$	$(1; 1)_F$	0.42
$(\text{Ar}_2)^{3+} \rightarrow \text{Ar}^{2+} + \text{Ar}^+$	$(2; 1)_F$	0.30
$(\text{Ar}_2)^{4+} \rightarrow \text{Ar}^{3+} + \text{Ar}^+$	$(3; 1)_F$	0.19
$(\text{Ar}_2)^{4+} \rightarrow \text{Ar}^{2+} + \text{Ar}^{2+}$	$(2; 2)_F$	0.09

3.4.1 La faible mobilité électronique dans les dimères

Les premiers résultats expérimentaux ont été obtenus pour des collisions entre des ions projectiles Ar^{9+} de faible énergie (152 keV) et des dimères cibles Ar_2 [45]. La longueur de la liaison du dimère Ar_2 (7.2 u.a.) est significativement plus grande que les liaisons covalentes (2.35 u.a. pour N_2). Dans cette expérience, jusqu'à 4 électrons peuvent être retirés de la cible par transfert de charge, conduisant à la voie de fragmentation $(q_1; q_2)_F$, où q_1 et q_2 sont les charges des fragments d'argon (l'indice F correspond à la fragmentation) et les rapports de branchements respectifs br donnés dans le tableau 3.1.

Le résultat le plus remarquable en ce qui concerne les rapports de branchements est la préférence pour la voie de fragmentation asymétrique $(3; 1)_F$ par rapport à la voie symétrique plus favorable sur le plan énergétique $(2; 2)_F$ après la quadruple capture d'électrons. Ce résultat est à l'opposé de ce qui a été observé lors de la fragmentation de molécules diatomiques covalentes, pour lesquelles la distribution symétrique de charges est de loin dominante [46, 47]. Une telle inversion de priorité dans le partage des charges pour un système diatomique homonucléaire est caractéristique des dimères de van der Waals : dans le cas des molécules covalentes, un réarrangement rapide des charges à la suite de la collision favorise les voies de fragmentation symétriques, mais dans le cas des dimères de gaz rares, les voies de fragmentation reflètent toujours le processus primaire de collision qui peut favoriser la capture d'électrons à partir l'un des deux sites. Ces résultats ont donc été une indication forte pour, d'une part, la présence de processus de capture asymétrique et, d'autre part, d'une faible mobilité électronique au sein du dimère résultant.

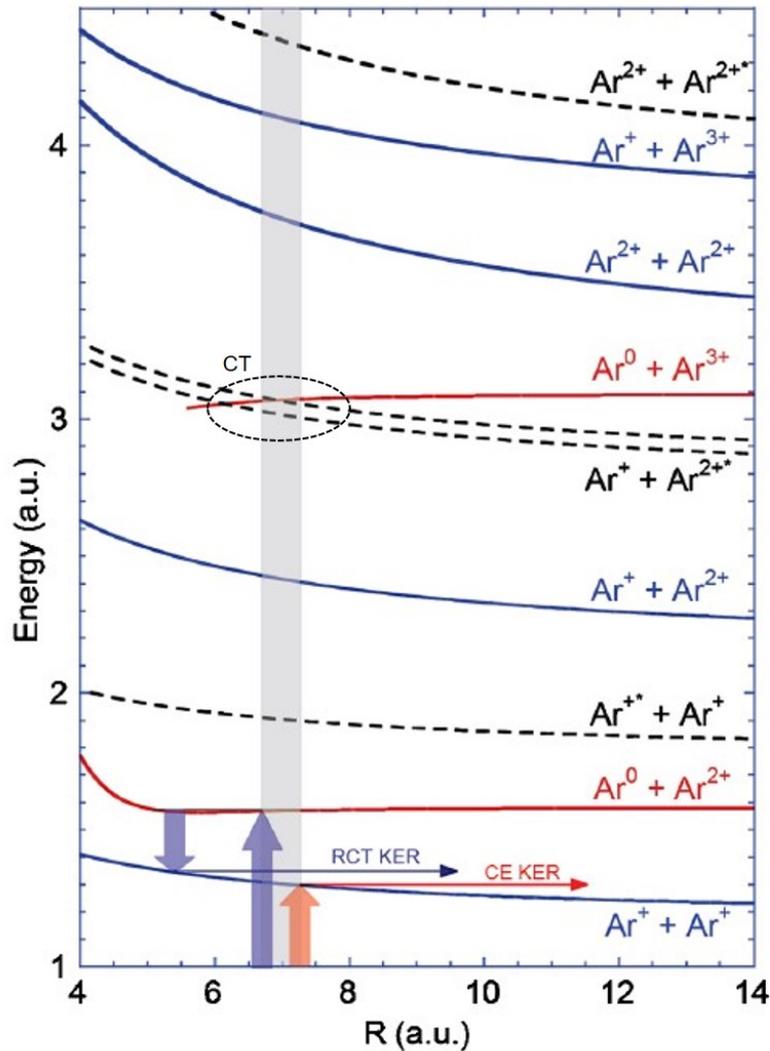


FIGURE 3.8 – Courbes d'énergie potentielle calculées pour différentes voies de fragmentation de $(Ar_2)^{2+}$ et de $(Ar_2)^{3+}$ obtenues par limites asymptotiques coulombiennes et énergies de polarisation. Les courbes en trait plein (pointillées) correspondent aux voies avec les fragments dans leur état fondamental (état excité). Les flèches rouges et bleues représentent les processus d'explosion coulombienne (CE) et de transfert de charge radiative (RCT), respectivement. La bande grise donne la position de la zone de Franck-Condon [45].

La faible mobilité électronique entre les deux sites du dimère est corrélée à la forme et à la position des courbes d'énergie potentielle (PEC) des dimères ionisés. La figure 3.8 représente l'énergie potentielle du dimère ionisé en fonction de la distance internucléaire R pour différents états moléculaires qui peuvent être peuplés par multicapture électronique.

Dans ce qui suit, les processus de capture primaires sont notés $(q_1; q_2)_C$, q_1 et q_2 étant le nombre d'électrons retirés de chaque site (l'indice C correspond à la capture).

Pour q_1 et $q_2 > 0$, la répulsion coulombienne donne lieu instantanément la fragmentation vers la voie $(q_1; q_2)_F$. Dans le cas des voies de capture les plus asymétriques $(3; 0)_C$ (PEC $\text{Ar}^{3+} + \text{Ar}^0$) et $(4; 0)_C$ (PEC $\text{Ar}^{4+} + \text{Ar}^0$), seuls les croisements de courbes situés proche de la distance internucléaire à l'équilibre (7.2 u.a.) peuvent conduire au transfert de charge (CT) entre les deux sites, et donc à des voies de fragmentation plus "symétriques" $(2; 1)_F$ et $(3; 1)_F$, respectivement. Excepté pour ce genre de réarrangement, la voie de fragmentation reflète bien le processus de capture initial. Enfin, concernant la voie asymétrique $(\text{Ar}^{2+} + \text{Ar}^0)$ peuplée par une double capture sur un site, celle-ci ne montre pas de croisement avec une autre PEC. La seule voie possible pour la désexcitation vers l'état fondamental dissociatif du dication (PEC $\text{Ar}^+ + \text{Ar}^+$), et donc à la voie de fragmentation $(1; 1)_F$, se fait par le processus de transfert de charge radiative (RCT, Radiative Charge Transfer). Comme observé sur la figure 3.8, ce processus relativement lent, impliquant l'émission de photons, devrait avoir lieu à une distance internucléaire plus courte que la distance d'équilibre (la région Franck – Condon en gris). Cela donne une libération d'énergie cinétique (Kinetic Energy Release : KER) plus grande pour la voie de dissociation $(1; 1)_F$ que pour la double capture sur les deux sites qui, elle, entraîne une explosion coulombienne directe (Figure 3.9).

Grâce à l'absence de croisement, les informations sur le processus initial de la collision sont conservées et les contributions de la double capture sur un site et sur deux sites peuvent être déduites du spectre de KER obtenu expérimentalement, comme illustré à la figure 3.9. Ces mêmes caractéristiques, c'est-à-dire la prédominance des voies asymétriques dans le cas de la capture à multiplicité élevée et la relaxation par RCT pour la double capture sur un site, ont été observées pour tous les systèmes de collision à basse énergie impliquant des dimères de gaz rares étudiés jusqu'à présent [48,49]. Cela semble indiquer que la faible mobilité des électrons pourrait être une propriété générique des cibles de dimères de gaz rares ionisés. L'intérêt principal de cette propriété spécifique est que le processus de collision principal n'est pas "effacé" par un réarrangement électronique, les sections efficaces associées à toutes les multiplicités de capture possibles sur les deux sites atomiques deviennent alors accessibles,

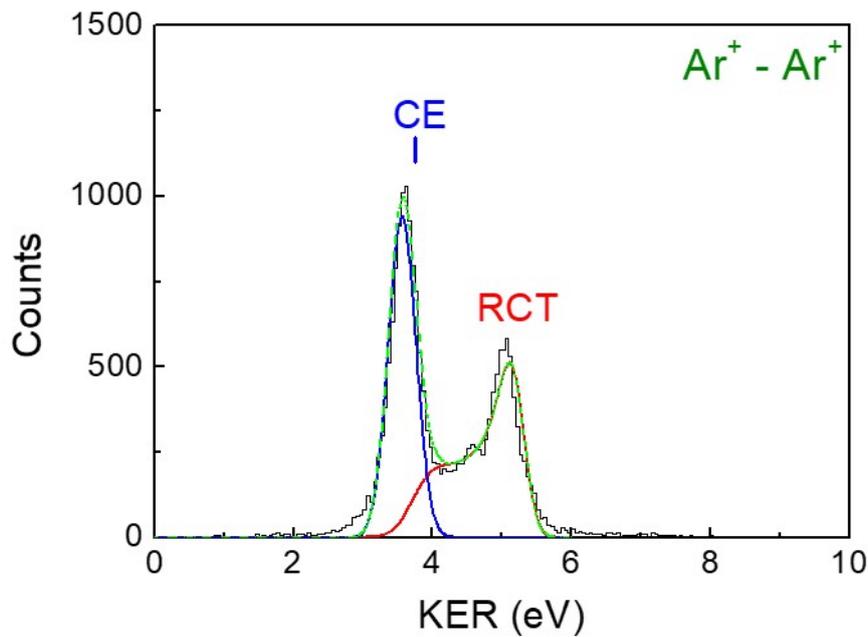


FIGURE 3.9 – Distributions de l'énergie cinétique de recul (KER) pour la fragmentation $\text{Ar}^+ + \text{Ar}^+$. Les courbes CE et RCT sont des distributions théoriques [45].

apportant de nouvelles informations sur la dynamique d'une collision avec une cible ayant deux sites.

3.4.2 Processus primaires de collision

Comme indiqué dans le paragraphe précédent, à faible énergie, les sections efficaces de capture relatives des processus de collision primaires peuvent être extraites grâce à la faible mobilité des électrons dans le dimère ionisé. Si les voies de fragmentation et les spectres de KER, qui sont fournis directement par l'expérience, reflètent principalement la multiplicité de la capture primaire sur chaque site, certaines corrections restent à faire. La correction principale est simplement due au fait que la technique expérimentale est inadaptée aux voies de dissociation comprenant un atome neutre. Pour une capture sur 1 site de q électrons $(q;0)_C$, les états transitoires non dissociatifs seront peuplés. Ceux-ci finiront par se retrouver dans la voie de dissociation la plus proche $(q-1;1)_F$ par RCT ou CT. Cependant, des états dissociatifs peuvent être également peuplés, conduisant à une fragmentation directe $(q;0)_F$, avec un atome neutre.

De tels événements ne sont pas enregistrés lors l'expérience et, comme discuté plus en détail dans [36], obtenir une bonne estimation de leur probabilité n'est pas trivial. Dans [48, 49], les sections efficaces relatives ont été estimées en considérant que les états dissociatifs et non dissociatifs ont été peuplés de manière équivalente. Les sections efficaces résultantes étaient en bon accord avec le modèle MC-COBM (Monte Carlo - modèle classique de la barrière coulombienne) présenté ci-après dans la section 3.5. Dans une étude ultérieure, deux scénarios ont été examinés et comparés : l'un avec une population égale d'états dissociatifs et d'états non-dissociatifs, l'autre avec seulement des états non-dissociatifs. Ces deux scénarios conduisent à des résultats assez similaires et ont montré un accord raisonnable avec le modèle [36]. Sous réserve que les corrections décrites ci-dessus puissent être prises en compte avec une précision acceptable, la faible mobilité électronique au sein des ions dimères permet un accès indirect aux sections efficaces relatives d'échange de charge à des fins de comparaison avec la théorie. Néanmoins, la sensibilité à des fragments neutres reste la principale faiblesse de notre technique expérimentale. Des développements théoriques et expérimentaux seront donc nécessaires si l'on veut améliorer la précision sur les sections efficaces relatives pour le processus d'échange de charge primaire.

Une autre manifestation de la faible mobilité des électrons au sein des dimères a été observée lors de l'étude de la corrélation entre l'angle de diffusion du projectile et l'orientation de l'ion dimère se fragmentant. Les informations sur l'angle de diffusion du projectile peuvent être particulièrement utiles ici, car à basse énergie, cet angle est fortement lié au paramètre d'impact associé au processus de collision.

Une étude récente, réalisée avec des projectiles Ar^{9+} à basse énergie (135 keV) et du dimère Ar_2 , a montré une forte corrélation indiquant que le projectile est préférentiellement diffusé dans la même direction que le fragment portant la charge la plus élevée [48]. De telles corrélations ont été observées en mesurant en coïncidence les angles dans le plan azimuthal du fragment le plus chargé, $\varphi_{\text{Ar}^{3+}}$, et du projectile diffusé, φ_{proj} , comme illustré sur la figure 3.10.

Ce résultat est encore une fois tout à fait contraire à ce qui avait été précédemment observé pour des collisions à très basse énergie avec des molécules covalentes de

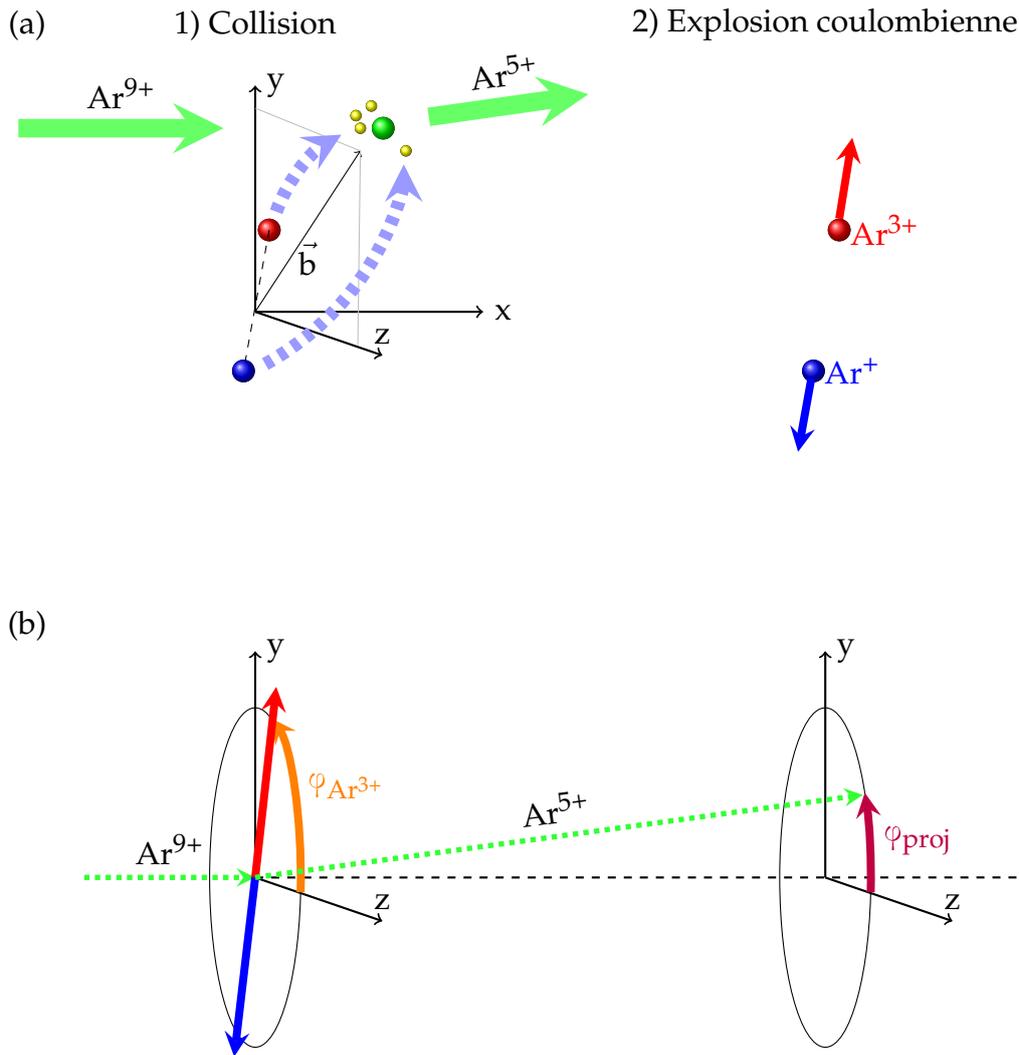


FIGURE 3.10 – a) Schéma du processus de capture multi électronique lors de la collision entre un ion Ar^{9+} avec un dimère Ar_2 donnant lieu à la voie de fragmentation asymétrique $\text{Ar}^{3+} + \text{Ar}^+$. b) Représentation de l'angle de diffusion φ_{proj} et de l'angle d'émission du fragment le plus chargé $\varphi_{\text{Ar}^{3+}}$ dans le plan transverse du faisceau.

N_2 [50]. Un projectile chargé génère un champ électrique fortement localisé, de sorte que, lors de la capture électronique, l'ionisation de l'atome le plus proche devrait être favorisée (fig. 3.10). Avec des molécules covalentes, une redistribution rapide de la charge intramoléculaire peut se produire et la répulsion coulombienne entre la cible ionisée et l'ion projectile peuvent conduire à une charge plus faible sur le site le plus proche du projectile, comme observé dans [50]. En revanche, la faible mobilité des électrons au sein des dimères devrait empêcher ce réarrangement de charge, de sorte que la corrélation entre l'angle de diffusion du projectile et la direction du fragment le plus chargé soit conservée. La figure 3.11 montre les distributions angulaires ($\varphi_{\text{proj}} - \varphi_{\text{Ar}^{A+}}$)

entre les projectiles diffusés et les fragments, dans le plan transversal à l'axe du faisceau de projectiles, obtenues par Iskandar *et al.* [49]. Pour les canaux de fragmentation asymétriques ($\text{Ar}^{2+} + \text{Ar}^+$) et ($\text{Ar}^{3+} + \text{Ar}^+$), notés $(2; 1)_F$ et $(3; 1)_F$ respectivement, et résultant de la triple capture (TC) et de la quadruple capture (QC), le fragment le plus chargé Ar^{A+} sert de référence, avec un angle défini à 0° . Pour la double capture (DC), les voies de capture à 1 site et à 2 sites (notées respectivement $(2; 0)_C$ et $(1; 1)_C$) ont été analysées indépendamment. Cependant, comme la DC sur 1 site donne lieu à la fragmentation symétrique ($\text{Ar}^+ + \text{Ar}^+$), la mémoire du site ionisé lors du processus primaire de collision est perdue, conduisant à une distribution angulaire symétrique. Les corrélations angulaires expérimentales ont été comparées aux calculs effectués à l'aide du modèle classique MC-COBM dont la description sera donnée dans la section 3.5. En raison de la limitation de la résolution expérimentale sur l'angle de diffusion du projectile, les calculs ont également été convolués avec la fonction de réponse instrumentale.

Le très bon accord entre les calculs et les données expérimentales présentées sur la figure 3.11 démontre que ce modèle donne une image réaliste du processus de multicapture électronique avec des cibles structurées tels que les dimères de gaz rares.

Comme le modèle fournit un accès direct au paramètre d'impact \vec{b} dans le repère de la molécule, les cartes 2D des probabilités $p(\vec{b})$ associées à chaque processus ont été reproduites, confirmant que la capture à partir d'un site proche du projectile est fortement favorisée [49]. Un exemple est donné à la figure 3.12 pour une DC à 1 site.

Des collisions à des énergies intermédiaires (150 keV / u) ont également été étudiées entre des projectiles d' He^{2+} et des dimères He_2 [51]. Dans ce régime énergétique où la vitesse du projectile est comparable à la vitesse classique des électrons actifs de la cible, l'échange de charge n'est plus le processus dominant et l'excitation ainsi que l'ionisation commencent à entrer en compétition. En mesurant la charge du projectile diffusé pour la fragmentation de la cible en deux fragments He^+ , deux voies finales ont pu être identifiées :

- DC, avec deux électrons transférés de la cible au projectile, et

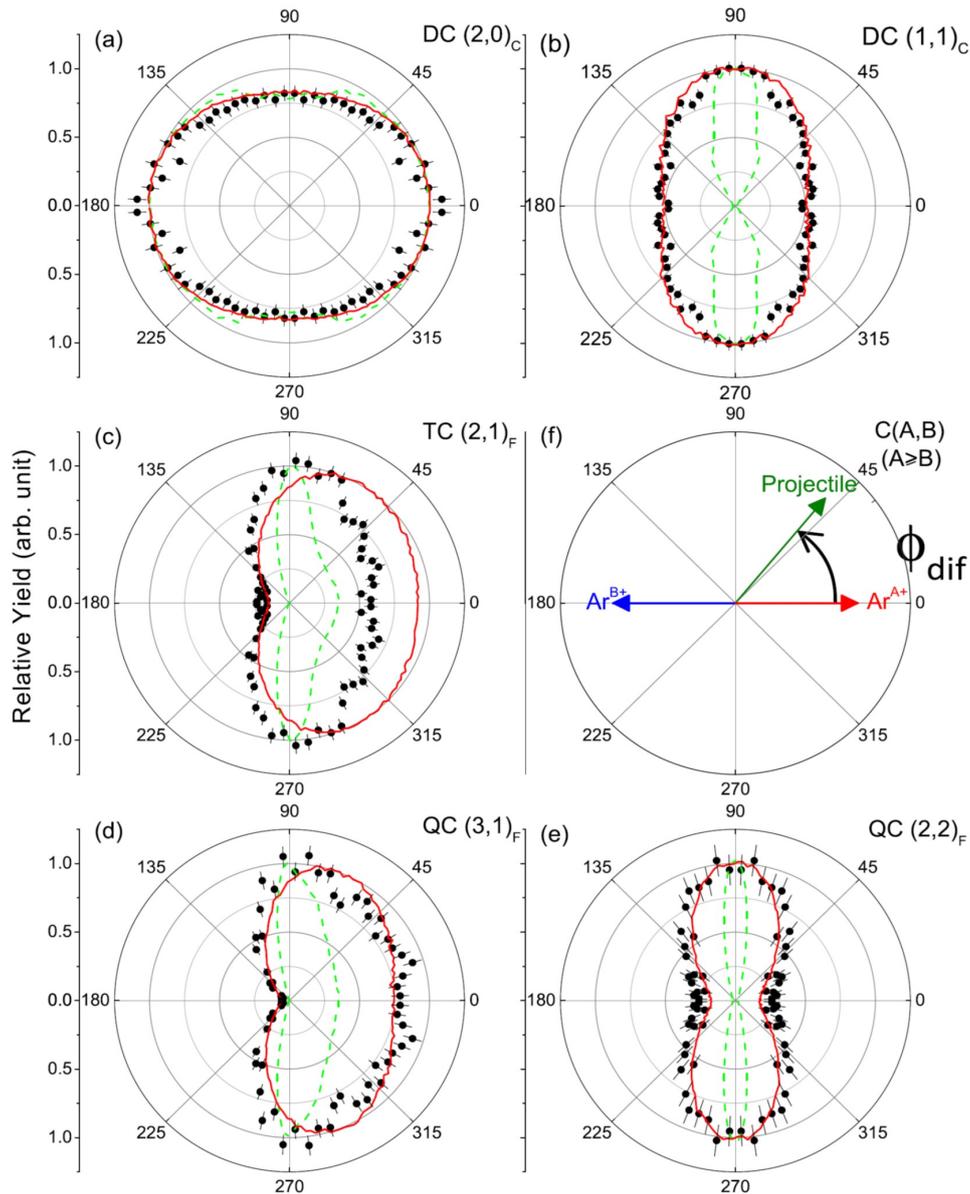


FIGURE 3.11 – Corrélations angulaires projectile/fragment pour (a) et (b) la double capture (DC), (c) la triple capture (TC) et (d) et (e) la quadruple capture (QC) et leur voies de fragmentation associées. Les données expérimentales (points noirs) sont comparées aux calculs effectués à l’aide d’un modèle classique MC-COBM avec (courbe rouge) et sans (courbe pointillée verte) convolution avec la fonction de réponse instrumentale [49].

— TI (transfert ionisation), avec le transfert d’un électron et l’émission d’un électron dans le continuum.

L’expérience a été réalisée à l’aide d’un dispositif similaire à notre dispositif COLTRIMS et permettant la détection des électrons et la mesure de leur énergie. Les distributions de KER des fragments associées aux voies DC et TI sont illustrées sur la

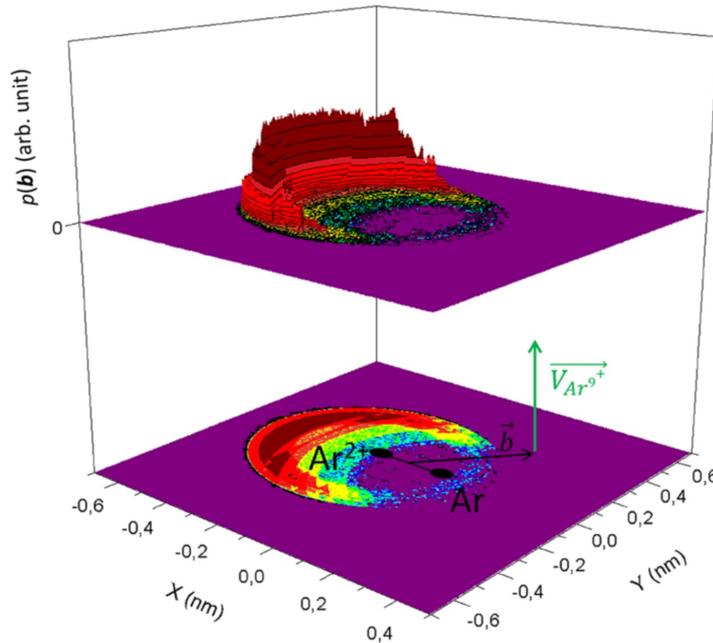


FIGURE 3.12 – Cartographie de la probabilité $p(\vec{b})$ obtenu pour la voie de capture sur 1 site $(2;0)_C$. Le dimère est aligné selon l'axe X et son centre de masse est aux coordonnées $(0;0)$. La vitesse du projectile est transverse au plan (X,Y) . L'échelle de couleur donne la probabilité $p(\vec{b})$ pour la voie de capture résultant du retrait de 2 électrons d'un seul site lors de la collision $Ar^{9+} + Ar_2$. Cette probabilité est largement augmentée dans le cas des paramètres d'impact proches du site Ar^{2+} .

figure 3.13(a).

Pour la voie TI, trois pics ont pu être observés et attribués à trois processus différents illustrés dans les figures 3.13(b) à 3.13(d). La première structure dans la zone des faibles énergies (de 1 eV à 5 eV) correspond à un processus en 2 étapes, avec une seule capture (SC) d'un site et une seule ionisation (SI) de l'autre site. Un tel processus déclenche la dissociation directe de l'ion dimère se produisant à des distances internucléaires allant approximativement de $R = 5$ u.a. à 30 u.a.. Ces distances sont grandes comparées aux paramètres d'impact conduisant à SC et SI et nous pouvons maintenant parler d'un processus séquentiel en deux étapes, contrastant avec le processus à deux sites discuté précédemment pour des dimères plus petits tels que Ar_2 . Les pics 2 et 3, à des KER plus grands, peuvent être attribués à des dissociations de l'ion dimère se produisant à de plus petites distances internucléaires. Le pic 2 est attribué au processus RCT : une capture unique et une ionisation unique depuis le même site du dimère peuplent les états liés transitoires $(He^{2+} - He)$, dont les courbes d'énergie potentielle calculées montrent

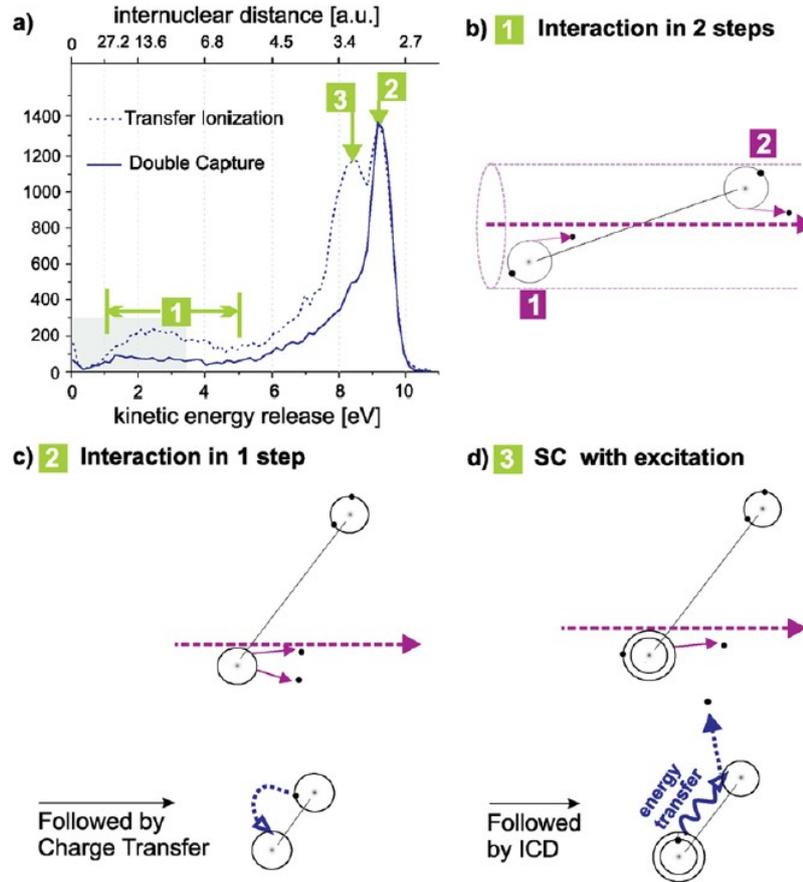


FIGURE 3.13 – (a) Distribution du KER après la fragmentation de He₂ en He⁺ + He⁺ pour les voies DC et TI. (b) et (c) sont les séquences schématisées donnant lieu aux différents pics de (a) [51] (voir texte).

un minimum située à environ 3 u.a. [51]. Ces états se désintègrent donc naturellement vers la voie de fragmentation (1+; 1+)_F par le processus de RCT à des distances internucléaires proches de 3 u.a., donnant les KER du pic 2 à environ 9 eV. Ils ne sont associés à aucune structure dans le spectre électronique, l'ionisation n'étant causée que par le processus primaire de collision.

De même, pour la voie DC, le pic 1 de la figure 3.13(a) peut alors simplement être attribué à un processus en deux étapes avec une seule capture simple sur chaque site. Le pic 2 résulte également de la population d'états (He²⁺ – He) via un processus TI avec un seul site du dimère. Comme le processus ICD conduit à l'émission d'un électron dans le continuum, sa contribution disparaît du spectre KER de la voie DC de la figure 3.13(a).

Les distributions angulaires $F(\cos\theta)$ de l'axe de fragmentation du dimère par rapport à l'axe du faisceau projectile ont été très utiles pour confirmer cette interprétation des

spectres KER. Elles ont été calculées en intégrant tous les paramètres d'impact possibles et les distances internucléaires R :

$$F(\cos\vartheta) = \int_0^\infty \int_0^\infty \int_{-\infty}^\infty P_1(b_a) \cdot P_2(b_b) \cdot P(R) dx dy dR \quad (3.7)$$

où $P_1(b_a)$ et $P_2(b_b)$ sont les probabilités de processus élémentaires pour les étapes 1 et 2, et $P(R)$ la probabilité de la distance internucléaire R obtenue à partir de la distribution du KER. L'excellent accord entre les données expérimentales et la théorie permet de valider les distributions de $P(b)$ utilisées dans le calcul pour chaque processus élémentaire. Cet accord a également montré que le fait de considérer ce processus en deux étapes avec les cibles de dimères d'hélium comme deux collisions indépendantes est une bonne approximation. Ces travaux nous ont permis d'appréhender, de manière détaillée, les processus primaires de collision dans le cas des dimères d'argon et de néon.

3.4.3 Emission accrue d'électrons de basse énergie des dimères

Il a été démontré que les électrons à basse énergie (de l'ordre de 10 eV) peuvent induire des ruptures de double brin d'ADN [52–55] de manière très efficace et ces ruptures peuvent avoir un impact significatif sur le taux de survie cellulaire. Dans les collisions ion/atome, il est bien établi que la distribution de l'énergie des électrons émis est un spectre continu, résultant principalement des collisions distantes avec de petits transferts d'énergie, qui peut être décrite en première approximation par une exponentielle décroissante [56]. Cependant, comme l'a montré l'étude des collisions He^{2+} sur des dimères d'hélium, le processus ICD peut conduire à une augmentation significative de la production d'électrons à basse énergie [51] : lorsqu'un atome cible excité se trouve à proximité d'un atome voisin, le processus ICD devient possible lors de la relaxation du système et aboutit à l'ionisation de ce dernier, avec émission d'un électron

de basse énergie. Il a donc été suggéré que le processus pouvait être un processus pertinent dans les dommages aux tissus biologiques causés par rayonnement. Juste après cette première preuve de la présence du processus de l'ICD dans les collisions avec des cibles He_2 , il a été démontré que le processus ICD suite aux collisions $\text{He}^+ + \text{Ne}_2$ à 650 keV entraîne une augmentation de production d'électrons d'un facteur 14 dans la plage ($0 \text{ eV} < E_e < 2 \text{ eV}$) où E_e est l'énergie cinétique des électrons émis [57]. Cela a motivé une étude plus large de la contribution de l'ICD dans les collisions entre des ions et des dimères de gaz rares Ne_2 et Ar_2 . De nouvelles expériences ont ensuite été réalisées avec un microscope à réaction, couvrant une large gamme de perturbation en utilisant des projectiles ioniques aux énergies proches du pouvoir d'arrêt maximal dans l'eau (He^+ à 0.125 MeV/u, He^+ à 0.1625 MeV/u et He^{2+} à 0.150 MeV / u) jusqu'à des ions très chargés (S^{14+} à 11.37 MeV/u) [58]. Les spectres d'énergie des électrons obtenus pour toutes les voies de fragmentation sont illustrés sur la figure 3.14.

Ils peuvent être décomposés en deux parties : une partie à basse énergie, provenant de l'ICD et une partie s'étalant sur toute la gamme d'énergie, en raison de l'ionisation directe. Les contributions relatives des électrons issus de l'ICD et des électrons émis dans le continuum par ionisation directe ont été extraits en ajustant les spectres avec une fonction gaussienne et une exponentielle décroissante, respectivement. Comme on peut le voir clairement sur la figure 3.14, l'ICD est responsable d'une augmentation du rendement en électrons de faible énergie pour une large gamme de collisions ions/dimères. Cette étude a permis de démontrer que dans les collisions d'ions rapides avec une cible faiblement liée, l'ICD est omniprésent et peut être un contributeur majeur à l'émission d'électrons de basse énergie.

L'ICD est généralement déclenché soit par la création d'une lacune interne, soit par un processus multiple impliquant à la fois une ionisation et une excitation de la cible. Un tel processus n'est pas prévu dans les collisions à faible énergie ($\eta \gg 1$) avec des ions multichargés, où le processus de collision dominant est la capture des électrons de valence. L'investigation expérimentale des collisions à faible énergie avec des cibles dimères Ne_2 avec les projectiles O^{3+} à 2.81 keV/u, Ar^{9+} à 3.37 keV/u et Xe^{20+} à 2.28 keV/u ont prouvé le contraire [48]. Dans ces expériences, les contributions directes

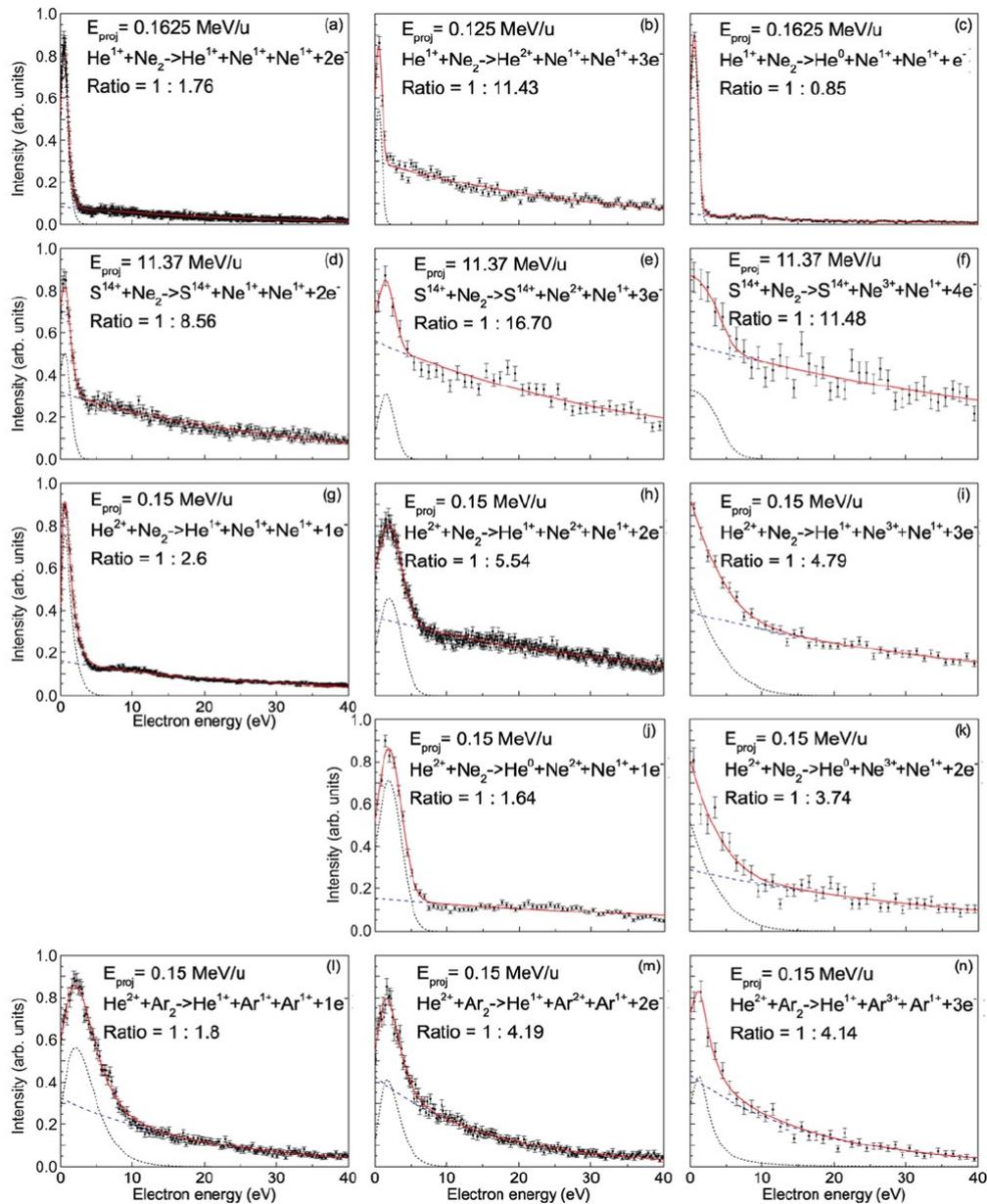


FIGURE 3.14 – Distributions d'énergie des électrons produits dans les voies de fragmentation observées [58]. Le rapport entre les électrons ICD et les électrons du continuum a été extrait en intégrant la surface de deux fonctions d'ajustement des pics (en petits pointillés noirs) et de la distribution continue d'une exponentielle décroissante (long tirets bleus) pour le domaine d'énergie d'électron observé. La courbe en rouge correspond à la somme des courbes bleue et noire.

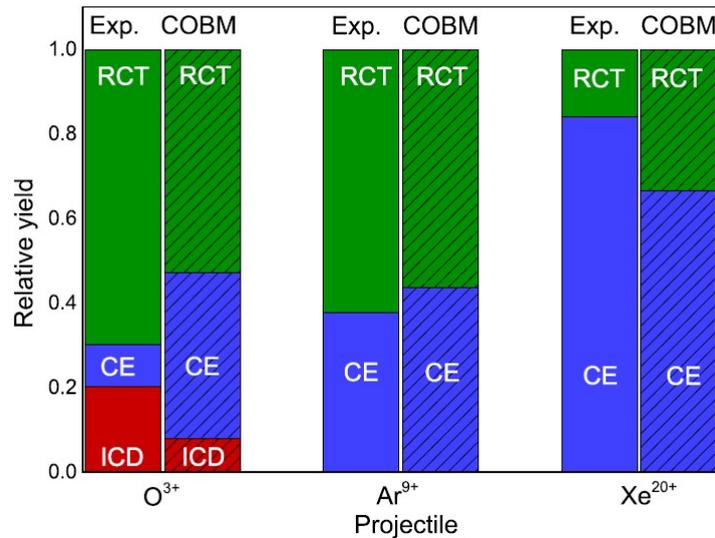


FIGURE 3.15 – Contributions relatives théoriques et expérimentales des processus CE, RCT et ICD pour la voie de fragmentation $\text{Ne}^+ + \text{Ne}^+$ [49]. Les incertitudes, non représentées ici, sont estimées à environ 5%.

de CE, RCT et ICD à partir de la voie de fragmentation $(1;1)_F$ ont été extraites grâce aux spectres KER et à l'analyse en charge du projectile diffusé. Les rendements relatifs obtenus pour les trois processus différents sont montrés et comparés au modèle MC-COBM sur la figure 3.15.

Pour les projectiles à faible état de charge O^{3+} , le processus ICD représente environ 20% des événements menant à la voie de fragmentation $(1;1)_F$ ce qui est loin d'être négligeable. De plus, nous avons également constaté que la contribution de l'ICD produisait environ 10 fois plus d'électrons Auger après la double capture [48]. La voie de décroissance ICD est attribuée ici à une simple capture électronique d'un électron 2s. La présence de capture en couche interne pour les projectiles O^{3+} ainsi que les contributions relatives en CE et RCT pour les deux autres systèmes de collision sont assez bien reproduites par les calculs du modèle. Notons cependant que les rendements relatifs calculés des trois processus dans le cas du projectile O^{3+} ne sont pas en bon accord avec les données expérimentales. Ce désaccord montre les limites du calcul MC-COBM pour des projectiles ayant des états de charge faibles, où l'approximation hydrogénoïde devient trop rudimentaire pour fournir des probabilités de capture précises. Néanmoins, avec les projectiles O^{3+} le modèle prédit une contribution significative de la capture en couche interne dont le mécanisme de relaxation principal devrait correspondre à

l'ICD. Les calculs effectués pour les projectiles O^{q+} avec $q = 2$ à 5 ont également montré que la contribution de la capture en couche interne, et donc le rendement relatif en électrons produits par ICD, dépendait fortement de la charge, avec seulement $\sim 1\%$ pour $q = 5$, $\sim 3\%$ pour $q = 4$, $\sim 8\%$ pour $q = 3$ et $\sim 30\%$ pour $q = 2$. Cette dépendance ne peut pas s'expliquer par la probabilité de transférer un électron $2s$ au projectile qui augmenterait avec l'état de charge du projectile. L'explication découle simplement du fait que, pour des états de charges de projectile plus élevés, la capture en couche interne est systématiquement suivie de la capture d'électrons supplémentaires et aboutit dans plusieurs voies de capture qui ne contribuent pas au processus ICD [48].

Ce travail a montré que la capture en couche interne suivie par le processus ICD peut également être significative lors de collisions lentes avec des projectiles faiblement chargés. C'est une source d'électrons de basse énergie inattendue et nouvelle dans les collisions à faible vitesse qui domine largement l'émission d'électrons Auger dans le cas de collisions $O^{3+} + Ne_2$. Cette analyse a confirmé que l'ICD doit être reconnu comme étant un mécanisme de relaxation "universel" pouvant jouer un rôle important dans toute collision impliquant des atomes en interaction faible avec un environnement chimique.

3.5 Modélisation

Dans la section 3.4, nous avons montré que, lors d'une collision rapide entre des ions He^{2+} et des cibles He_2 , la collision pouvait conduire à une interaction unique avec un site du dimère ou à un processus en 2 étapes impliquant des interactions séquentielles avec les deux atomes d'He. Dans ce dernier cas, des calculs effectués en considérant le dimère comme deux cibles atomiques indépendantes ont montré un bon accord avec les sections efficaces différentielles dans la distribution angulaire obtenue expérimentalement. Cette approximation était tout à fait naturelle pour ce système collisionnel où la distance internucléaire entre les deux sites atomiques est grande par rapport aux paramètres d'impact conduisant à l'ionisation ou à l'échange de charge, et donc

aussi en comparaison avec l'extension de la fonction d'onde électronique. Pour les collisions de faible énergie entre des ions hautement chargés et des dimères telles que Ar_2 et Ne_2 , la situation est assez différente :

- les paramètres d'impact conduisant à l'échange de charges (de l'ordre de 10 u.a.) sont comparables à la distance internucléaire,
- la collision ne peut plus être considérée comme un processus en 2 étapes.

D'autre part, un traitement quantique complet de la collision entre un ion multichargé et un dimère est impossible en pratique, et des méthodes d'approximation doivent être utilisées. Pour le processus d'échange de charge avec des cibles atomiques, plusieurs approches classiques ont été successivement développées [59, 60]. Pour des énergies de collisions faibles, le modèle classique de la barrière coulombienne (COBM) [61–63] a été progressivement établi dans les années 80. Ce modèle est basé sur l'hypothèse que les électrons peuvent transiter de la cible au projectile à des distances internucléaires données pour lesquelles la hauteur de la barrière de potentiel entre les deux noyaux devient inférieure à l'énergie de liaison des électrons (décalage Stark). Dans sa version la plus avancée de Niehaus, le modèle s'est avéré efficace pour prédire les sections efficaces d'échange de charges [63, 64] ainsi que les processus post-collisionnels [65, 66] pour les collisions atomiques avec des ions multichargés de basse énergie (vitesses des projectiles v_p de 0.01 u.a. à 1 u.a.).

Pour les cibles moléculaires, un modèle COBM à trois centres basé sur les travaux antérieurs de Barany et al. [62] a été récemment développé par Ichimura et Ohya-Yamaguchi [67]. Appliqué à des cibles moléculaires N_2 , le modèle était en accord avec les données expérimentales de [50], avec une préférence pour la dissociation en fragments chargés quasi-également [68]. Avec des cibles de dimères de gaz rares, ce modèle pourrait reproduire qualitativement l'asymétrie de charges dans la distribution des paires de fragments lors de l'ajout d'un paramètre spécifique d'écrantage [69].

Une approche assez similaire a été utilisée, peu après, par Iskandar et al., [36] avec le MC-COBM (Modèle Monte-Carlo classique de la barrière coulombienne). Dans ce modèle à trois centres, la cible de dimère est considérée comme deux cibles atomiques quasi-indépendantes fixées dans l'espace : le projectile peut interagir avec les deux

cibles en même temps, mais des interactions directes entre les deux sites atomiques sont négligées. Le modèle MC-COBM comporte d'autres ingrédients additionnels. Comme proposé par Niehaus pour les cibles atomiques [63], ce modèle comprend deux étapes distinctes :

1. la voie d'entrée, où les électrons de la cible sont partagés avec le projectile,
2. la voie de sortie, où ils finissent capturés par le projectile ou repris par la cible.

Afin de faciliter à la fois le traitement théorique et la comparaison avec les données expérimentales, les simulations Monte Carlo (MC) remplacent le calcul analytique. Ces développements permettent de prédire la production finale de paires d'ions, de donner accès à la multiplicité de capture sur chaque site en fonction du paramètre d'impact b dans le référentiel de la molécule et fournissent la quantité de mouvement transverse d'échange entre le projectile et chaque centre du dimère tout le long du chemin d'interaction. Comme on le voit dans les parties précédentes, les calculs effectués à l'aide de ce modèle sont en accord avec les données expérimentales obtenues dans les collisions de basse énergie entre les ions multichargés et les cibles de dimères [36, 48, 49]. Une brève description du modèle et des tests complémentaires sont donnés ci-après.

3.5.1 Rappel du modèle COBM : cibles atomiques

Une vue schématique de l'interaction entre un projectile A^{q+} et une cible atomique B est montré sur la figure 3.16. Dans la voie d'entrée, alors que le projectile s'approche de la cible, la barrière de potentiel diminue et les électrons de la cible deviennent partagés avec le projectile à des rayons internucléaires spécifiques R_i^{in} .

Pour un électron numéroté i (à partir de l'électron le moins lié à l'électron le plus lié), ce rayon dépend de son énergie de liaison I_i^B et des charges effectives $q_i^{A_{\text{in}}}$ du projectile et $q_i^{B_{\text{in}}}$ de la cible :

$$R_i^{\text{in}} = \frac{i + \sqrt{q_i^{A_{\text{in}}} q_i^{B_{\text{in}}}}}{I_i^B} \quad (3.8)$$

Dans le modèle COBM proposé par Niehaus, les électrons partagés sont transférés à des états moléculaires où ils ne contribuent pas à l'écrantage de la charge entre le

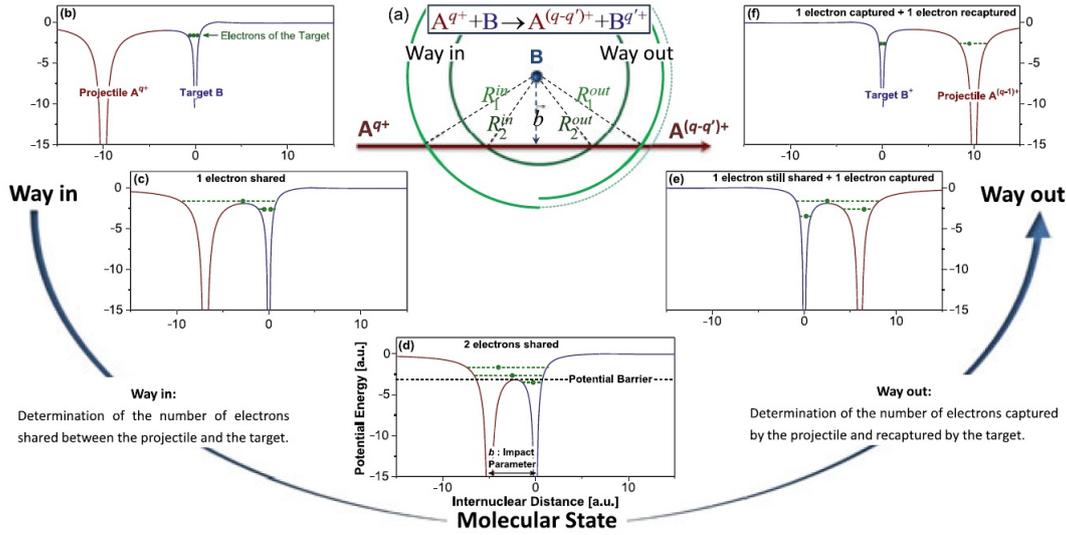


FIGURE 3.16 – (a) Vue schématique de l’interaction entre un projectile A^{q+} et une cible atomique B avec N_B électrons partagés dans la voie d’entrée ($N_B = 2$ dans cet exemple). (b-f) Illustrations des différentes étapes menant au partage des électrons tout au long de l’interaction jusqu’à la capture d’un électron dans la voie de sortie [36]

projectile et la cible. Dans la voie d’entrée, on utilise donc un projectile de charge effective constante $q_i^{A_{in}} = q$ tandis que la charge effective de la cible $q_i^{B_{in}}$ augmente d’une unité à chaque fois qu’un électron est partagé. Le nombre total N_B d’électrons partagés dépend du paramètre d’impact b , où la condition $b < R_{N_B}^{in}$ doit être remplie.

Dans la voie de sortie, au fur et à mesure que le projectile s’éloigne de la cible, la hauteur de la barrière coulombienne augmente avec la séparation internucléaire entre le projectile et la cible. Lorsque la barrière coulombienne atteint l’énergie de liaison d’un électron partagé i , à la distance R_i^{out} , cet électron est alors soit capturé par le projectile, soit recapturé par la cible. R_i^{out} est donné par :

$$R_i^{out} = R_i^{in} \frac{(\sqrt{q_i^{A_{out}}} + \sqrt{q_i^{B_{out}}})^2}{(\sqrt{q_i^{A_{in}}} + \sqrt{q_i^{B_{in}}})^2} \quad (3.9)$$

où $q_i^{A_{out}} = q - c_i$ et $q_i^{B_{out}} = i + c_i$ sont les charges effectives du projectile et de la cible dans la voie de sortie, avec c_i le nombre d’électrons précédemment capturés par le projectile. Les probabilités P_i d’être capturé par le projectile et $(1 - P_i)$ d’être recapturé par la cible sont supposées ne dépendre que de la multiplicité des états quantiques disponibles sur

chaque site. La valeur approximative de P_i est donnée par :

$$P_i = \frac{n_i^2}{m_i^2 + n_i^2} \quad (3.10)$$

où n_i et m_i sont des nombres quantiques principaux effectifs estimés dans le cadre du modèle de Bohr. Les détails de leur calcul peuvent être trouvés dans [36, 63]. Dans le descriptif donné par Niehaus, le modèle fournit des sections transverses pour chaque série d'événements conduisant à une multiplicité de capture donnée, en intégrant sur les paramètres d'impact avec les probabilités de capture associées [63].

3.5.2 Un modèle classique pour les dimères

Dans le modèle MC-COBM, la même approche que pour une cible atomique simple peut être utilisée, en considérant la collision avec les deux centres du dimère comme deux collisions distinctes avec deux atomes. Cette approximation est justifiée par la faible mobilité des électrons au sein du dimère qui a été discutée précédemment dans la section 3.4.1. Le seul effet indirect d'un site sur un autre est due au changement de la charge effective du projectile pendant la collision, étant donné que ce changement peut être causé par des électrons capturés à la fois sur les deux sites atomiques. Cette influence indirecte ainsi que les degrés de liberté supplémentaires dus à la géométrie d'une cible diatomique sont les principales motivations pour utiliser une simulation de type Monte-Carlo (MC). La simulation MC permet d'échantillonner aléatoirement toutes les orientations possibles du dimère dans l'espace 3D, et tous les paramètres d'impact possibles pouvant conduire à un échange de charge (voir [36] pour plus de détails). La distance internucléaire entre les deux sites est simplement fixée à sa valeur moyenne. Le modèle COBM est ensuite appliqué comme décrit dans la partie précédente, avec deux cibles notées B et C. Pour chaque vecteur de paramètre d'impact donné \mathbf{b} dans l'espace 3D et chaque orientation du dimère fournie par la simulation MC, la séquence d'intersections de la trajectoire du projectile avec les sphères de rayon

$R_i^{B_{in}}$ et $R_i^{C_{in}}$ centrées sur les sites B et C, est calculée, conduisant au nombre maximum d'électrons N_B et N_C potentiellement partagés dans la voie d'entrée. $R_i^{B_{in}}$ et $R_i^{C_{in}}$ sont calculés en utilisant l'équation 3.8, en remplaçant l'indice i par le nombre d'électrons i_C et i_B qui sont partagés par chaque centre atomique. De même, concernant la voie de sortie de chaque centre atomique, la séquence d'intersections avec des sphères de rayon $R_i^{B_{out}}$ et $R_i^{C_{out}}$ est calculée en utilisant l'équation 3.9. La charge effective de chaque site reste la même comme pour le cas atomique. Pour la cible B(C) :

$$q_{i_{B(C)}}^{B(C)_{in}} = i_{B(C)} \quad \text{et} \quad q_{i_{B(C)}}^{B(C)_{out}} = i_{B(C)} + c_{i_{B(C)}} \quad (3.11)$$

Au contraire, la charge effective du projectile devient :

$$q_{i_{B(C)}}^A = q - c_{i_B} - c_{i_C} \quad (3.12)$$

à la fois pour la voie d'entrée et la voie de sortie, où c_{i_B} et c_{i_C} sont le nombre d'électrons précédemment capturés des sites B et C. En raison des différentes orientations possibles du dimère, la molécularisation et la capture des électrons de B et C peuvent se produire dans un ordre différent. Ceci implique que l'évaluation des rayons de croisement et la détermination de capture ou de recapture des électrons doit se faire de manière séquentielle à chaque étape i_B , i_C , c_{i_B} et c_{i_C} , pendant que le projectile progresse le long de sa trajectoire. À la fin de la collision, nous gardons une trace du nombre d'électrons capturés à partir de chaque centre du dimère. Les nombres i_B et i_C des électrons capturés sont enregistrés, donnant accès à leur couche atomique initiale [49] ainsi qu'aux coordonnées initiales du projectile et des sites B et C pour l'étude de la dépendance des paramètres d'impact [48].

L'utilisation des simulations MC montre un autre avantage : comme les distances entre le projectile et les deux sites atomiques de la cible ainsi que leurs charges effectives sont connues pour chaque étape, on peut intégrer la quantité de mouvement d'échange entre le projectile et le dimère, due à la répulsion coulombienne tout au long de la

trajectoire, comme détaillé dans [36]. La composante transverse de la quantité de mouvement d'échange est directement liée à l'angle de diffusion du projectile, et dans l'approximation classique actuelle, elle est fortement corrélée au paramètre d'impact. Cela fournit des points de comparaison supplémentaires avec les expériences et un aperçu plus approfondi du processus de collision.

3.5.3 Comparaison avec les résultats expérimentaux

Les sections efficaces de capture d'électrons prédites par le modèle MC-COBM ont été comparées aux données expérimentales obtenues avec les projectiles O^{3+} , Ar^{9+} et Xe^{20+} (à des vitesses allant de 0.3 u.a. à 0.4 u.a.) entrant en collision sur les cibles dimères Ne_2 et Ar_2 . Pour ces systèmes collisionnels, les rendements relatifs des différentes voies de capture, correspondant à un nombre donné d'électrons capturés sur chaque site, ont été trouvés en bon accord avec la quasi-totalité des données, montrant des écarts restés inférieurs à 10 % du rendement total [36, 49]. Des écarts significatifs n'ont été observés que pour les collisions avec des projectiles faiblement chargés O^{3+} , où l'approximation hydrogénoïde du modèle ne convient plus car les effets moléculaires deviennent importants (petits paramètres d'impact) [49].

Comme le montre la partie 3.4.2, les corrélations entre l'orientation du dimère et la direction du projectile diffusé, qui ont été calculées pour le système $Ar^{9+} + Ar_2$, ont également montré un excellent accord pour toutes les voies de capture. Grâce au modèle MC-COBM, nous avons un accès direct à une image réaliste des paramètres d'impact, dans le référentiel de la molécule, conduisant aux différentes voies de capture [48].

Une autre étude a récemment été consacrée à la comparaison des sections efficaces différentielles (DCS) en impulsion transverse transférée prédites par le modèle MC-COBM avec celles obtenues expérimentalement pour les ions projectiles Ar^{9+} et Xe^{20+} entrant en collision avec des cibles de Ne_2 et de Ar_2 [36]. Comme l'angle de diffusion du projectile est très sensible aux charges effectives des partenaires de la collision, plusieurs scénarios utilisant différents paramètres d'écrantage de charge S ont été utilisés. Par souci de simplicité, seul l'écrantage de la cible a été étudié. Les charges effectives

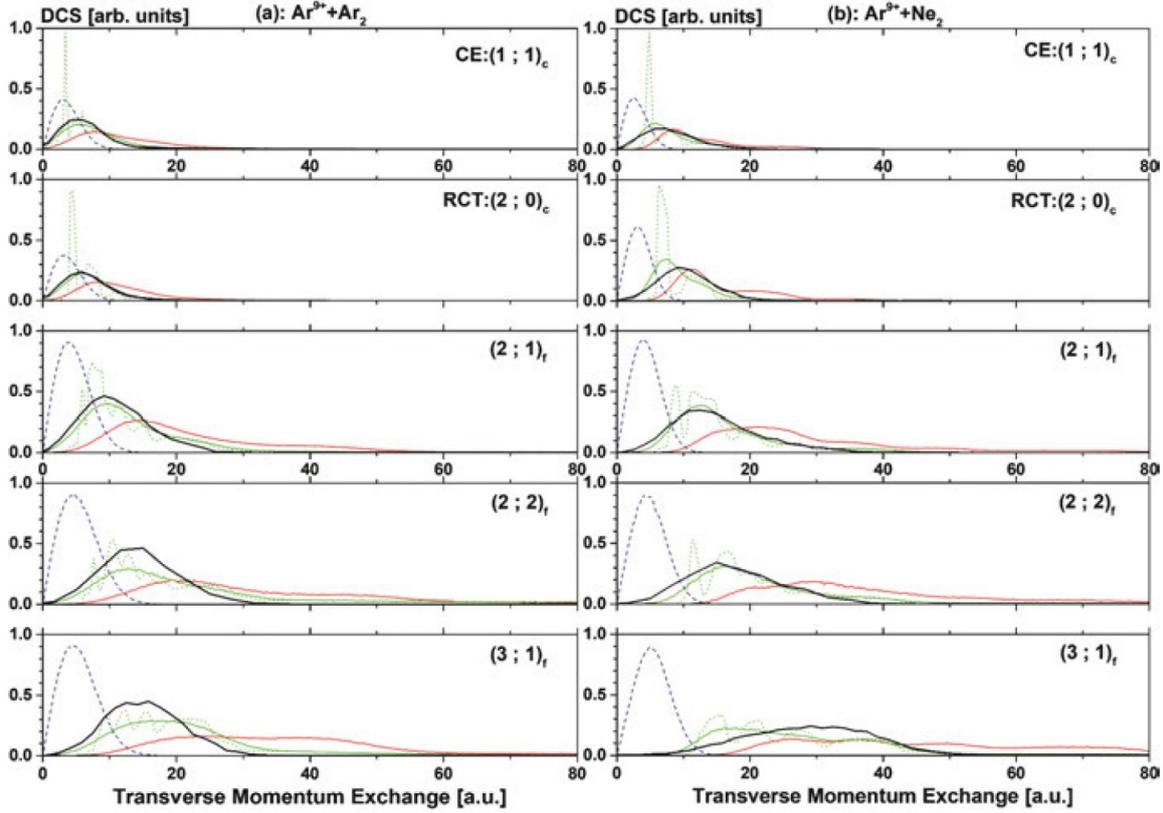


FIGURE 3.17 – Sections efficaces différentielles (DCS) en impulsion transverse transférée obtenue expérimentalement (trait noir épais) et en utilisant le modèle MC-COBM pour les projectiles Ar^{9+} en collision avec les dimères d'Ar (a) et de Ne (b) [36]. Les distributions MC-COBM, préalablement normalisées aux données expérimentales, sont données pour trois paramètres de d'écrantage de charge différents : $S = 1$ (ligne pointillée bleue), $S = 1/2$ (ligne verte) et $S = 0$ (ligne rouge). Pour $S = 1/2$, la distribution avant convolution avec la fonction de réponse de l'appareil est également indiquée par une ligne verte en pointillés [36].

des sites B(C) deviennent respectivement

$$q_{i_{B(C)}}^{B(C)_{in}} = i_{B(C)} \times (1 - S) \quad \text{et} \quad q_{i_{B(C)}}^{B(C)_{out}} = i_{B(C)} \times (1 - S) + c_{i_{B(C)}} \quad (3.13)$$

Dans le scénario correspondant à la description initiale de Niehaus avec $S = 0$, les électrons partagés sont considérés comme restant sur les orbitales externes et ne participent pas à l'écrantage. Des calculs ont également été effectués en supposant un écrantage total des électrons ($S = 1$), et pour un cas intermédiaire avec $S = 1/2$. Les DCS obtenues pour $S = 1/2$ sont en excellent accord avec toutes les données expérimentales.

Un exemple est donné à la figure 3.17 pour les collisions utilisant des projectiles Ar^{9+} .

Malgré sa simplicité, le modèle MC-COBM s'est avéré très efficace pour la prédiction des sections efficaces de capture relatives. Même pour les sections efficaces différentielles, dont les calculs sont généralement difficiles, le modèle est en excellent accord avec l'expérience lors de l'utilisation de l'écrantage de charge de la cible. Ce dernier point indique que les électrons partagés ne sont pas uniquement spectateurs de la collision comme on le suppose dans le modèle de Niehaus.

3.6 Perspectives

Avec quelques campagnes expérimentales réalisées en quelques années seulement, notre compréhension des collisions ions/dimères a considérablement augmenté. La faible mobilité électronique entre les deux sites de la cible, caractéristique des dimères à liaison de type van der Waals, s'est avérée responsable de comportements contrastant fortement avec les comportements habituels de la relaxation des ions moléculaires liés de manière covalente. En particulier, il implique très peu de réarrangement de la répartition des charges dans le dimère après la collision, ce qui donne un accès presque direct aux processus primaires de collision. Comme indiqué dans [36, 51], les dimères sont donc de bons candidats pour comparer les modèles de collision développés pour des cibles structurées et étudier l'effet d'un atome voisin sur le processus de collision primaire. De tels systèmes faiblement liés se sont également avérés être des modèles idéaux pour étudier l'effet de l'environnement sur la façon dont l'énergie déposée par l'impact des ions se dissipe. Dans le cas des énergies de collision faible et intermédiaire, il a été montré que des processus de relaxation assez inattendus tels que le transfert de charge radiative (RCT) et la décroissance coulombienne interatomique (ICD) jouaient un rôle majeur. En effet, la production accrue d'électrons de faible énergie grâce au processus ICD, généralement négligée dans la modélisation des interactions ion-matière au niveau microscopique, pourrait avoir une influence significative sur les taux de survie des cellules après exposition aux rayonnements ionisants.

La technique COLTRIMS semble être particulièrement bien adaptée aux études expérimentales des collisions sur des dimères. Permettant la détection de plusieurs fragments ioniques d'une cible et surtout à l'identification des dimères, sa limitation en multiplicité de fragments n'est due qu'aux sections efficaces des processus d'intérêt et à l'efficacité absolue des détecteurs. Les développements récents des galettes à microcanaux à haut rendement devraient ouvrir la voie à l'étude des collisions avec des cibles plus complexes, conduisant à l'émission de 3, 4 ou plus de fragments chargés. Les expériences de photoionisation impliquant des dimères de petites molécules covalentes [70,71] et de petits agrégats de gaz rares [72] ont déjà été réalisés. Cependant l'étude des collisions ioniques avec de telles cibles ne fait que commencer. Dans une expérience pionnière avec des cibles $(\text{N}_2)_2$, les voies de fragmentation à trois corps d'ions moléculaires $(\text{N}_2)_2^{(3,4)+}$ ont été utilisées pour évaluer le rôle d'un voisin dans la dynamique de fragmentation des dimères constitués de deux molécules covalentes [73]. Ces études constituent des étapes supplémentaires sur le lien entre le problème à quelques corps et l'interaction des ions avec la matière complexe. De petits agrégats, et plus particulièrement des dimères de molécules covalentes, sont également un sujet d'intérêt en soi : les dimères moléculaires diatomiques peuvent avoir différentes géométries telles que les structures dites T, X, H et S (voir [74] et les références associées) selon la position relative et l'orientation des deux molécules constituant le dimère. L'explosion coulombienne d'une cible complexe suite à sa multi-ionisation par un ion multichargé, peut servir de sonde directe fournissant des mesures de distances interatomiques ou intermoléculaires et de l'orientation relative des molécules. De telles informations compléteront sûrement nos connaissances dans un avenir proche et fourniront des tests rigoureux de calculs *ab-initio* de surfaces d'énergie potentielle en chimie quantique [74]. L'étude d'agrégats moléculaires plus gros est un autre défi qui pourrait aussi un jour devenir à portée de main. De nouveaux processus, trop lents pour être observés dans la fragmentation rapide d'une molécule libre, pourraient alors se révéler lors de la relaxation de molécules piégées dans une matrice. Si la réalisation de telles expériences reste extrêmement difficile, son issue nous rapprocherait encore plus d'une compréhension complète des interactions entre les ions et la matière.

Conclusion générale et perspectives

Conclusion générale

Durant ces 15 dernières années passées au CIMAP, mon activité principale de recherche était centrée sur la stabilité des systèmes complexes, allant des petits systèmes complexes, tels que les dimères de gaz rare, à des systèmes de taille micrométrique, telles que les micro-gouttelettes. Je me suis attaché à perturber cette stabilité, soit grâce à des interactions avec des ions multichargés, soit en chargeant les systèmes par influence électrostatique. Dans les deux cas, l'instabilité qui en résulte permet d'étudier et de comparer les différents mécanismes de fragmentation de ces systèmes. Ces mesures nous ont permis de mettre en place des modèles permettant d'aller vers une meilleure compréhension des processus de dynamique ou de mobilité de charges au sein de ces systèmes. Dans le cas des gouttelettes chargées, nous avons réussi à construire un modèle prenant en compte aussi bien la mobilité de charges que les effets visqueux du milieu. Ce modèle permet de décrire parfaitement les formes photographiées expérimentalement, et ce, du début de la déformation jusqu'à ce que la gouttelette reprenne sa forme sphérique. Ainsi nous avons pu comprendre comment la mobilité des porteurs de charge affecte la dynamique de formation des pointes. Concernant les dimères de gaz rare, notre dispositif expérimental est très bien adapté à la compréhension des processus primaires de collision ainsi que des processus de relaxation suite à ces collisions. Au fur et à mesure des années, nous avons augmenté la complexité des cibles gazeuses étudiées. Nous avons commencé par les dimères atomiques. Ces premiers systèmes modèles nous ont permis de comprendre comment un système aussi faiblement lié et où la mobilité des électrons est très faible, pouvait se fragmenter. Nous avons pu, ainsi, comparer l'importance relative des différents processus de relaxation (ICD, RCT). Le passage aux dimères moléculaires homogènes était presque évident pour comprendre l'effet de l'environnement sur la fragmentation de ces systèmes et d'en déduire leur géométrie. Aujourd'hui, nous en sommes arrivés aux dimères moléculaires hétérogènes qui nous permettent d'approfondir nos connaissances sur la distance intermoléculaire, la géométrie et la stabilité de ces systèmes tout en les confrontant à des modèles de chimie quantique.

Perspectives

Suite à nos récents résultats sur les dimères moléculaires diatomiques, une approche similaire basée sur notre dispositif COLTRIMS sera appliquée pour la détermination de la conformation géométrique et l'étude de la dynamique de relaxation dans les agrégats moléculaires d'hydrocarbures. Les dimères de méthane $(\text{CH}_4)_2$ seront notre premier système modèle car il a été largement étudié théoriquement [75,76]. Il est souvent utilisé comme référence pour tester la capacité des modèles théoriques à reproduire l'interaction dispersive dans les complexes hydrocarbonés de van der Waals. Notre mesure de la structure du dimère (longueur de liaison intermoléculaire et orientation relative des deux molécules) donnera, espérons-le, de nouvelles contraintes à ces modèles. Nos précédentes études, qui ont donné des résultats très importants dans le cas des dimères de gaz rare, seront étendues aux systèmes plus grands et plus complexes. Il s'agira de se concentrer sur le transfert d'électrons et sur la dynamique de la fragmentation. Plusieurs de ces études ont déjà été réalisées à haute (MeV/u) ou à moyenne (keV/u) énergie. A ces vitesses, le temps d'interaction est très court et la collision peut être considérée comme une impulsion. Par conséquent, le système moléculaire est considéré comme « gelé » dans l'espace et les transitions électroniques comme verticales (de type Franck-Condon), où l'approximation de Born-Oppenheimer est supposée toujours vraie. Je souhaite me focaliser sur l'interaction avec des ions multichargés de très basses vitesses (quelques eV par charge), de manière à ce que le temps d'interaction soit grand et que les électrons de la cible puissent subir le champ électrique entrant et sortant du projectile. Les collisions n'auront plus un caractère adiabatique et elles seront quasi similaires à des « réactions chimiques ». Les états finaux résultants sont supposés être très différents de ceux obtenus à plus grande vitesse. Grâce au spectromètre COLTRIMS et aux détecteurs sensibles en position, il me sera possible de déterminer de manière complète la dynamique de fragmentation en mesurant la vitesse et la position de chaque fragment ionique et des éventuels électrons émis suite à la collision. Trois types de systèmes modèles seront utilisés comme cibles. Le premier cor-

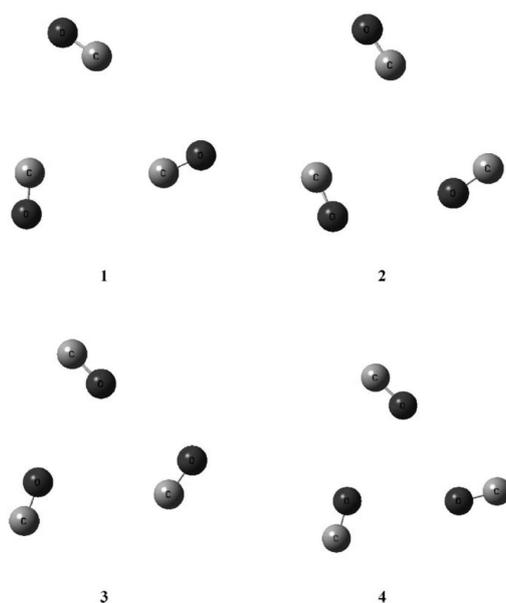


FIGURE 3.18 – 4 configurations optimisées du trimère de CO. Ce sont les structures planaires du trimère de monoxyde de carbone les plus favorables énergétiquement [77].

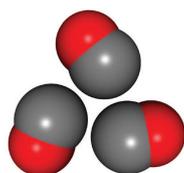


FIGURE 3.19 – Configuration du trimère de CO (liaison carbonée) avec une distance intermoléculaire de 4.42 Å. Cette distance a été obtenue expérimentalement [78].

respond aux dimères de petites molécules ($(\text{N}_2)_2$, $(\text{CO})_2$, $(\text{H}_2\text{O})_2$) dans le but de comprendre l'influence de l'environnement le plus simple sur les processus déclenchés par la collision. Les sections efficaces de double capture électronique seront mesurées ainsi que la probabilité des différents processus (ICD et CE) entrant en jeu. Ces mesures seront, par la suite, étendues aux trimères moléculaires, notamment pour en déterminer leur structure. Par exemple, des configurations du trimère de monoxyde de carbone ont été obtenues à partir d'un calcul *ab initio* [77] du programme GAUSSIAN 98, dans le cadre de la théorie des perturbations du second ordre de Moller-Plesset dans une base 6-311+G(d) (voir figure 3.18). Récemment, des mesures de spectres d'absorption ($2143\text{-}2145\text{ cm}^{-1}$) du trimère de CO et d'autres calculs de type DFT (Density Functional Theory) [78] ont confirmé la configuration planaire. Ces mesures suggèrent plutôt une liaison entre les atomes de carbone comme le montre la figure 3.19. Une autre ques-

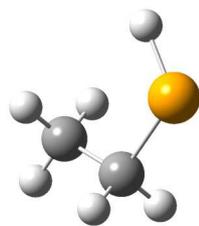


FIGURE 3.20 – Molécule d'éthanesélénol

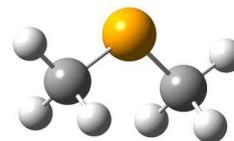


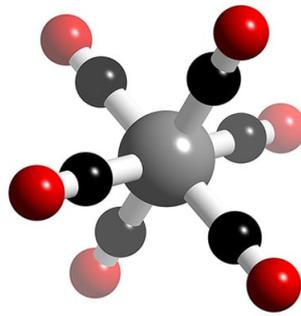
FIGURE 3.21 – Molécule de diméthylsélénide

tion à laquelle j'espère contribuer est l'influence d'un élément lourd sur la dynamique de fragmentation. Le rôle de ces éléments est supposé améliorer l'efficacité de dépôt d'énergie en hadronthérapie. Aujourd'hui, des nanoparticules constituées d'éléments lourds sont injectées dans les cellules dans le but d'étudier leur contribution, après irradiation, à la mort de la cellule. Notre objectif est de comprendre, à une échelle encore plus petite, le rôle de ces éléments lourds lors de la fragmentation moléculaire induite par des ions.

Par conséquent, le deuxième système modèle correspond aux molécules d'éthanol (C_2H_5OH) et de diméthyléther (CH_3OCH_3), d'éthanesélénol (CH_3SeCH_3) (fig. 3.20) et de diméthylsélénide (C_2H_6Se) (fig. 3.21). Les deux premières molécules, d'une part, et les deux dernières molécules, d'autre part, sont des isomères et ont donc la même formule chimique brute. La comparaison entre les molécules contenant de l'oxygène et celles contenant du sélénium donneront des informations concernant l'influence d'un élément lourd sur les voies de fragmentation après capture.

Dans le tableau périodique, le sélénium est dans la même colonne que l'oxygène mais possède 26 électrons de plus. L'énergie d'ionisation du diméthylsélénide (C_2H_6Se) a été mesurée à 8.4 eV (NIST) alors que celle du diméthyléther (CH_3OCH_3) est de l'ordre de 10 eV. Ces différences laissent supposer un comportement différent lors de la fragmentation après collision avec un ion. Grâce à notre dispositif COLTRIMS, il sera possible de faire des mesures de temps de vol et des positions d'impact des fragments sur le détecteur et ainsi d'avoir accès aux KER de ces molécules lors de la fragmentation.

Enfin, le dernier système modèle sera constitué de molécules de métallocène du

FIGURE 3.22 – Molécule de métallocène $W(CO)_6$

type WF_6 ou $W(CO)_6$ (fig. 3.22). L'étude de la fragmentation moléculaire n'est pas limitée à la physique fondamentale. Elle a aussi des applications dans l'industrie. En microélectronique, pour fabriquer des matériaux avec différentes propriétés, une des techniques les plus utilisées est le FIB-CVD (Focused Ion Beam-assisted Chemical Vapor Deposition). Des molécules de gaz d'un précurseur chimique sont adsorbées sur une surface et ensuite elles sont décomposées par les ions fournis par le FIB (procédé de cracking). Différents paramètres tels que la nature du précurseur, la température d'évaporation de ce dernier, l'intensité du faisceau FIB ou l'injection du gaz mènent à différents modes de croissance à la surface. L'influence de paramètres tels que la charge, la nature ou l'énergie des ions projectiles devraient jouer également un rôle lors de la fragmentation du précurseur. Je souhaite déterminer le rendement des différentes voies de fragmentation en fonction de la charge et de l'énergie du projectile. Ces informations seront primordiales car elles pourraient, par exemple, permettre d'atteindre des tailles de structures bien plus faibles que celle obtenues, à l'heure actuelle, par FIB. Pour ces trois systèmes modèles, plus de deux fragments pourront être produits et devront être détectés dans une échelle de temps très court (quelque ns). Un détecteur type hexanode, en cours de développement, devrait répondre à ces exigences et nous permettre de réaliser ces mesures.

Bibliographie

- [1] Omar Kamalou, Jimmy Rangama, Jean-Marc Ramillon, Patrick Guinement, and Bernd A. Huber. *Rev. Sci. Instrum.*, 79(6) :063301, jun 2008.
- [2] Walt A. de Heer. *Rev. Mod. Phys.*, 65(3) :611–676, jul 1993.
- [3] Hellmut Haberland. *Clusters of atoms and molecules : theory, experiment, and clusters of atoms*. Springer-Verlag, Berlin New York, 1994.
- [4] S J Carroll, P Weibel, B von Issendorff, L Kuipers, and R E Palmer. *J. Phys. : Condens. Matter*, 8(41) :L617–L624, oct 1996.
- [5] W. C. Wiley and I. H. McLaren. *Rev. Sci. Instrum.*, 26(12) :1150–1157, dec 1955.
- [6] Hellmut Haberland, Martin Karrais, Martin Mall, and Yonca Thurner. *Journal of Vacuum Science and Technology A : Vacuum, Surfaces, and Films*, 10(5) :3266–3271, sep 1992.
- [7] C. Xirouchaki and R. E. Palmer. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 362(1814) :117–124, nov 2003.
- [8] C. G. Granqvist and R. A. Buhrman. *J. Appl. Phys.*, 47(5) :2200–2219, may 1976.
- [9] Omar Kamalou. *Faisceau d'agrégats chargés sélectionnés en taille : Réalisation et premières expériences*. PhD thesis, 2007.
- [10] H. D. Zeman. *Rev. Sci. Instrum.*, 48(8) :1079–1085, aug 1977.
- [11] D. Bahat, O. Cheshnovsky, U. Even, N. Lavie, and Y. Magen. *J. Phys. Chem.*, 91(10) :2460–2462, may 1987.
- [12] Michael Oetliker. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 337(1) :145–148, dec 1993.
- [13] David A Dahl. *Int. J. Mass Spectrom.*, 200(1-3) :3–25, dec 2000.

-
- [14] Hellmut Haberland, Zinetulla Insepov, and Michael Moseler. *Phys. Rev. B*, 51(16) :11061–11067, apr 1995.
- [15] R Neuendorf, R.E Palmer, and R Smith. *Chem. Phys. Lett.*, 333(3-4) :304–307, jan 2001.
- [16] E. Giglio, B. Gervais, J. Rangama, B. Manil, B. A. Huber, D. Duft, R. Müller, T. Leisner, and C. Guet. *Physical Review E*, 77(3), mar 2008.
- [17] Lord Rayleigh. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 14(87) :184–186, sep 1882.
- [18] D. Duft, H. Lebius, B. A. Huber, C. Guet, and T. Leisner. *Phys. Rev. Lett.*, 89(8), aug 2002.
- [19] Denis Duft, Tobias Achtzehn, Rene Müller, Bernd A. Huber, and Thomas Leisner. *Nature*, 421(6919) :128–128, jan 2003.
- [20] GeSiM – Gesellschaft für Silizium-Mikrosysteme mbHc/o Rossendorfer Technologiezentrum Bautzner Landstrasse 45D-01454 Radeberg Germany.
- [21] Wolfgang Paul and Helmut Steinwedel. *Zeitschrift für Naturforschung A*, 8(7) :448–450, jul 1953.
- [22] Timothy L. Ward and E. James Davis. *J. Aerosol Sci.*, 21(7) :875–887, jan 1990.
- [23] Raymond E. March. *J Mass Spectrom*, 32 :351–369, 1997.
- [24] T. Achtzehn, R. Müller, D. Duft, and T. Leisner. *Eur. Phys. J. D*, 34(1-3) :311–313, jul 2005.
- [25] S. I. Betelú, M. A. Fontelos, U. Kindelán, and O. Vantzós. *Phys. Fluids*, 18(5) :051706, may 2006.
- [26] Neha Gawande, Y. S. Mayya, and Rochish Thaokar. *Physical Review Fluids*, 2(11), nov 2017.
- [27] E. Giglio, J. Rangama, S. Guillous, and T. Le Cornu. *Physical Review E*, 101(1), jan 2020.
- [28] R. Müller. *Stabilität und zerfallsdynamik hochgeladener flüssigkeitströpfchen*. PhD thesis, Technischen Universität Ilmenau, 2010.

- [29] Wolfgang V. Ohnesorge. *ZAMM - Journal of Applied Mathematics and Mechanics / Zeitschrift für Angewandte Mathematik und Mechanik*, 16(6) :355–358, 1936.
- [30] J. C. Burton and P. Taborek. *Phys. Rev. Lett.*, 106(14), apr 2011.
- [31] J.C. Padrino, T. Funada, and D.D. Joseph. *Int. J. Multiphase Flow*, 34(1) :61–75, jan 2008.
- [32] Peter Atkins, Julio Depaula, James Keeler, and Julio de Paula. *Atkins' Physical Chemistry*. Oxford University Press, 2018.
- [33] R. E. Grisenti, W. Schöllkopf, J. P. Toennies, G. C. Hegerfeldt, T. Köhler, and M. Stoll. *Phys. Rev. Lett.*, 85(11) :2284–2287, sep 2000.
- [34] J Ullrich, R Moshhammer, A Dorn, R Dörner, L Ph H Schmidt, and H Schmidt-Böcking. *Rep. Prog. Phys.*, 66(9) :1463–1545, aug 2003.
- [35] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer, and H. Schmidt-Böcking. *Phys. Rep.*, 330(2-3) :95–192, jun 2000.
- [36] W. Iskandar, X. Fléchar, J. Matsumoto, A. Leredde, S. Guillous, D. Hennecart, J. Rangama, A. Méry, B. Gervais, H. Shiromaru, and A. Cassimi. *Phys. Rev. A*, 98(1), jul 2018.
- [37] O. F. Hagena and W. Obert. *The Journal of Chemical Physics*, 56(5) :1793–1802, mar 1972.
- [38] O. F. Hagena. *Zeitschrift für Physik D Atoms, Molecules and Clusters*, 4(3) :291–299, sep 1987.
- [39] J. T. McDaniels. The effect of nozzle geometry on cluster formation in molecular beam sources. In *AIP Conference Proceedings*. AIP, 2003.
- [40] J. Wörmer, V. Guzielski, J. Stapelfeldt, and T. Möller. *Chem. Phys. Lett.*, 159(4) :321–326, jul 1989.
- [41] T. Jahnke, A. Czasch, M. S. Schöffler, S. Schössler, A. Knapp, M. Kász, J. Titze, C. Wimmer, K. Kreidi, R. E. Grisenti, A. Staudte, O. Jagutzki, U. Hergenhahn, H. Schmidt-Böcking, and R. Dörner. *Phys. Rev. Lett.*, 93(16), oct 2004.
- [42] Y. Morishita, X.-J. Liu, N. Saito, T. Lischke, M. Kato, G. Prümper, M. Oura, H. Yamaoka, Y. Tamenori, I. H. Suzuki, and K. Ueda. *Phys. Rev. Lett.*, 96(24), jun 2006.

- [43] L. S. Cederbaum, J. Zobeley, and F. Tarantelli. *Phys. Rev. Lett.*, 79(24) :4778–4781, dec 1997.
- [44] B. Walch, C. L. Cocke, R. Voelpel, and E. Salzborn. *Phys. Rev. Lett.*, 72(10) :1439–1442, mar 1994.
- [45] J. Matsumoto, A. Leredde, X. Flechard, K. Hayakawa, H. Shiromaru, J. Rangama, C. L. Zhou, S. Guillous, D. Hennecart, T. Muranaka, A. Mery, B. Gervais, and A. Cassimi. *Phys. Rev. Lett.*, 105(26), dec 2010.
- [46] K. Wohrer, G. Sampoll, R. L. Watson, M. Chabot, O. Heber, and V. Horvat. *Phys. Rev. A*, 46(7) :3929–3934, oct 1992.
- [47] I. Ben-Itzhak, S. G. Ginther, and K. D. Carnes. *Phys. Rev. A*, 47(4) :2827–2837, apr 1993.
- [48] W. Iskandar, J. Matsumoto, A. Leredde, X. Fléchar, B. Gervais, S. Guillous, D. Hennecart, A. Méry, J. Rangama, C. L. Zhou, H. Shiromaru, and A. Cassimi. *Phys. Rev. Lett.*, 113(14), oct 2014.
- [49] W. Iskandar, J. Matsumoto, A. Leredde, X. Fléchar, B. Gervais, S. Guillous, D. Hennecart, A. Méry, J. Rangama, C. L. Zhou, H. Shiromaru, and A. Cassimi. *Phys. Rev. Lett.*, 114(3), jan 2015.
- [50] M. Ehrich, U. Werner, H. O. Lutz, T. Kaneyasu, K. Ishii, K. Okuno, and U. Saalmann. *Phys. Rev. A*, 65(3), feb 2002.
- [51] J. Titze, M. S. Schöffler, H.-K. Kim, F. Trinter, M. Waitz, J. Voigtsberger, N. Neumann, B. Ulrich, K. Kreidi, R. Wallauer, M. Odenweller, T. Havermeier, S. Schössler, M. Meckel, L. Foucar, T. Jahnke, A. Czasch, L. Ph. H. Schmidt, O. Jagutzki, R. E. Grisenti, H. Schmidt-Böcking, H. J. Lüdde, and R. Dörner. *Phys. Rev. Lett.*, 106(3), jan 2011.
- [52] Boudaïffa B., Cloutier P., Hunting D., Huels M.A., and Sanche L. *Science*, 287(5458) :1658–1660, mar 2000.
- [53] G. Hanel, B. Gstir, S. Denifl, P. Scheier, M. Probst, B. Farizon, M. Farizon, E. Illenberger, and T. D. Märk. *Phys. Rev. Lett.*, 90(18), may 2003.

- [54] L. Sanche. *The European Physical Journal D*, 35(2) :367–390, aug 2005.
- [55] Frédéric Martin, Paul D. Burrow, Zhongli Cai, Pierre Cloutier, Darel Hunting, and Léon Sanche. *Phys. Rev. Lett.*, 93(6), aug 2004.
- [56] M.E. Rudd, L.H. Toburen, and N. Stolterfoht. *At. Data Nucl. Data Tables*, 23(5) :405–442, may 1979.
- [57] H.-K. Kim, J. Titze, M. Schoffler, F. Trinter, M. Waitz, J. Voigtsberger, H. Sann, M. Meckel, C. Stuck, U. Lenz, M. Odenweller, N. Neumann, S. Schossler, K. Ullmann-Pfleger, B. Ulrich, R. C. Fraga, N. Petridis, D. Metz, A. Jung, R. Grisenti, A. Czasch, O. Jagutzki, L. Schmidt, T. Jahnke, H. Schmidt-Bocking, and R. Dorner. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 108(29) :11821–11824, jul 2011.
- [58] H.-K. Kim, H. Gassert, M. S. Schöffler, J. N. Titze, M. Waitz, J. Voigtsberger, F. Trinter, J. Becht, A. Kalinin, N. Neumann, C. Zhou, L. Ph. H. Schmidt, O. Jagutzki, A. Czasch, H. Merabet, H. Schmidt-Böcking, T. Jahnke, A. Cassimi, and R. Dörner. *Phys. Rev. A*, 88(4), oct 2013.
- [59] N. Bohr and J. Lindhard. *K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd.*, 7(28) :28, 1954.
- [60] H. Knudsen, H. K. Haugen, and P. Hvelplund. *Phys. Rev. A*, 23(2) :597–610, feb 1981.
- [61] Hiroshi Ryufuku, Ken Sasaki, and Tsutomu Watanabe. *Phys. Rev. A*, 21(3) :745–750, mar 1980.
- [62] A. Bárány, G. Astner, H. Cederquist, H. Danared, S. Huldt, P. Hvelplund, A. Johnson, H. Knudsen, L. Liljeby, and K.-G. Rensfelt. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, 9(4) :397–399, jul 1985.
- [63] A Niehaus. *J. Phys. B : At. Mol. Phys.*, 19(18) :2925–2937, sep 1986.
- [64] A Niehaus. *Phys. Rep.*, 186(4) :149–214, feb 1990.
- [65] A. Niehaus. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, 31(1-2) :359–366, apr 1988.
- [66] L Guillemot, P Roncin, M N Gaboriaud, H Laurent, and M Barat. *J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys.*, 23(23) :4293–4312, dec 1990.

- [67] Tomoko Ohyama-Yamaguchi and Atsushi Ichimura. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, 235(1-4) :382–386, jul 2005.
- [68] Tomoko Ohyama-Yamaguchi and Atsushi Ichimura. *J. Phys. Conf. Ser.*, 163 :012047, apr 2009.
- [69] Tomoko Ohyama-Yamaguchi and Atsushi Ichimura. *Phys. Scr.*, T156 :014043, sep 2013.
- [70] T. Jahnke, H. Sann, T. Havermeier, K. Kreidi, C. Stuck, M. Meckel, M. Schöffler, N. Neumann, R. Wallauer, S. Voss, A. Czasch, O. Jagutzki, A. Malakzadeh, F. Afaneh, Th. Weber, H. Schmidt-Böcking, and R. Dörner. *Nat. Phys.*, 6(2) :139–142, jan 2010.
- [71] Xiaoyan Ding, M. Haertelt, S. Schlauderer, M. S. Schuurman, A. Yu. Naumov, D. M. Villeneuve, A. R. W. McKellar, P. B. Corkum, and A. Staudte. *Phys. Rev. Lett.*, 118(15), apr 2017.
- [72] B. Ulrich, A. Vredenburg, A. Malakzadeh, L. Ph. H. Schmidt, T. Havermeier, M. Meckel, K. Cole, M. Smolarski, Z. Chang, T. Jahnke, and R. Dörner. *J. Phys. Chem. A*, 115(25) :6936–6941, jun 2011.
- [73] A. Méry, A. N. Agnihotri, J. Douady, X. Fléchar, B. Gervais, S. Guillous, W. Iskandar, E. Jacquet, J. Matsumoto, J. Rangama, F. Ropars, C. P. Safvan, H. Shiromaru, D. Zanuttini, and A. Cassimi. *Phys. Rev. Lett.*, 118(23), jun 2017.
- [74] L. Gomez, B. Bussery-Honvault, T. Cauchy, M. Bartolomei, D. Cappelletti, and F. Pirani. *Chem. Phys. Lett.*, 445(4-6) :99–107, sep 2007.
- [75] Víctor Duarte Alaniz, Tomás Rocha-Rinza, and Gabriel Cuevas. *J. Comput. Chem.*, 36(6) :361–375, dec 2014.
- [76] Arvin Huang-Te Li and Sheng D. Chao. *Journal of Molecular Structure : THEOCHEM*, 897(1-3) :90–94, mar 2009.
- [77] Thomas A. Ford. *Spectrochim. Acta, Part A*, 64(5) :1151–1155, aug 2006.
- [78] Mojtaba Rezaei, S. Sheybani-Deloui, N. Moazzen-Ahmadi, K. H. Michaelian, and A. R. W. McKellar. *The Journal of Chemical Physics*, 138(7) :071102, feb 2013.

CV détaillé et publications

Jimmy RANGAMA – CV détaillé
Habilitation à diriger des recherches

Curriculum vitae

Jimmy RANGAMA – CV détaillé
Habilitation à diriger des recherches

Jimmy RANGAMA

CRCN CNRS au CIMAP
Bd H. Becquerel BP 51 33
14070 CAEN CEDEX 5
France
Tél:+33(0) 2 31 45 44 22
mél : rangama@ganil.fr

Détails personnels :

Age : 44 ans
Nationalité : Française
Pacsé, 1 enfant

Expériences professionnelles :

Depuis 2011 : Chargé de Recherche (classe 1) CNRS au CIMAP
2005-2010 : Chargé de Recherche (classe 2) CNRS au CIMAP
2004-2005 : Post-doctorant au CIMAP
2003-2004 : ATER à l'Université de Caen/Basse-Normandie
2002-2003 : Post-doctorant à l'Institut de Physique et d'Astronomie d'Aarhus (Danemark)
1999-2002 : Doctorant à l'Université de Caen/Basse-Normandie

Diplômes :

2002: Doctorat de physique de l'Université Caen/Basse-Normandie
1999: DEA de Physique de l'Université de Bordeaux I
1998: Maitrise de Physique de l'Université du Littoral Côte d'Opale (Dunkerque)
1994: Baccalauréat C

Responsabilités :

Depuis 2020 : Adjoint à la direction du CIMAP
Depuis 2017 : Responsable de la plateforme d'accueil des recherches interdisciplinaires du CIMAP auprès des faisceaux d'ions du GANIL.
Depuis 2014 : Coordonnateur pour le CIMAP de l'ANR Fit-FISIC portée l'INSP (E. Lamour).
2006-2007: Coordonnateur de la ligne « Moyenne Énergie » du GANIL.
2005-2009: Responsable du développement du Faisceau d'Agrégats Sélectionnés en Taille d'ARIBE.
2005-2010: Responsable de la partie expérimentale du projet DynaMiC sur l'étude des gouttelettes chargées (projet financé par l'ANR JCJC jusqu'en 2010).

Compétences:

Spectroscopie de masse de systèmes moléculaires complexes (C60, acides aminés agrégats), Spectroscopie d'ions de recul fragmentations de molécules et d'agrégats en phase gazeuse, de gouttelettes chargés, Spectroscopie d'électrons.

Encadrement, animation et management de la recherche

Jimmy RANGAMA – CV détaillé
Habilitation à diriger des recherches

Stagiaires :

- 2008 : F. Maurand, stage Licence 3 Mécanique Physique Matériaux – « Dépôts d'agrégats triés en masse sur une surface de α -SiO₂ ».
- 2011 : B. Hary, stage DUT Mesures Physiques – « Conception et simulation d'un dispositif de détection pour le projet PIBALE ».
- 2012 : M. Diallo, stage de Master 2 Recherche de l'Université de Caen/Basse Normandie – « Émission d'électrons secondaires après collision d'agrégats sur une surface métallique ».
- 2014 : M. Mauran, stage de Master 2 Recherche de l'Université de Caen/Basse Normandie – « Fragmentation de systèmes moléculaires complexes suite à l'interaction avec des ions monochargés ».
- 2016 : B. Fina, stage de Master 2 Recherche de l'Université de Caen/Basse Normandie – « Fragmentation de dimères moléculaires suite à la capture multiélectronique lors de collisions à basse énergie avec des ions multichargés ».
- 2016 : V. Clouet, stage DUT Mesures Physiques – « Automatisation du déplacement d'un spectromètre à électrons à l'aide d'un moteur pas-à-pas ».

Doctorants :

- 2004-2007 : O. Kamalou, « Faisceau d'agrégats chargés sélectionnés en taille : réalisation et premières expériences ».
M. Kamalou a développé une ligne d'agrégats métalliques sélectionnés en taille et a obtenu les premiers résultats publiés dans un article de Rev. Sci. Instr. Il est actuellement ingénieur de recherche CNRS au GANIL.
- 2012-2015 : W. Iskandar, « Processus d'échange de charge dans les collisions ion/atome et ion/dimère à basse énergie. »
M. Iskandar a fait sa thèse en utilisant le dispositif COLTRIMS sur l'installation ARIBE. Il a obtenu sa thèse avec les félicitations du jury en novembre 2015. Deux articles dans le journal Physical Review Letter ont été publiés au cours de sa thèse et deux autres articles sont en cours de rédaction. Il est actuellement en recherche d'un contrat postdoctoral au Lawrence Berkeley National Laboratory, Californie, Etats-Unis.
- 2013-2016 : L. Schwob, « Les ions multichargés: des outils pour sonder les effets de la solvatation sur la fragmentation de biomolécules »
M. Schwob a effectué principalement sa thèse sur le dispositif PIBALE. En parallèle, plusieurs expériences ont été menées à l'Institut Lumière Matière de Lyon en juin 2015 (collaboration P. Dugourd) et sur le synchrotron BESSY II à Berlin, en octobre 2015 (en collaboration avec T. Schlathölter) sur des molécules de collagène et l'effet de l'hydroxylation de cette molécule. Il est actuellement en contrat postdoctoral à Deutsches Elektronen-Synchrotron DESY – Hambourg, Allemagne
- 2016-2019 : V. Kumar, « Collisions d'ions multichargés de basse énergie avec des molécules et agrégats de diazote (N₂) et de monoxyde de carbone (CO) ». J'ai codirigé avec Mr A. Cassimi, Mr V. Kumar dans le cadre de son travail de thèse.

Postdoctorant :

- Nov 2013 – nov 2015 : A. N. Agnihotri, dans le cadre du projet franco-indien CEFIPRA, pour l'étude des « collisions entre des ions lents multichargés et des molécules »

Responsabilités diverses et activités de direction d'équipe

Plateforme d'accueil CIRIL

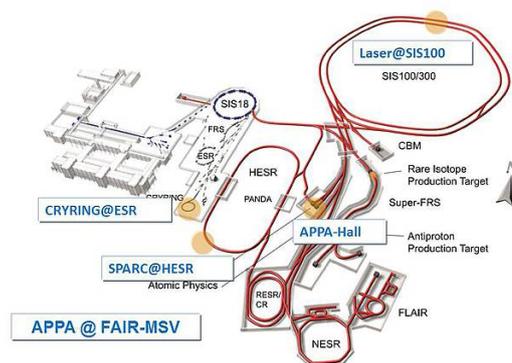
Depuis novembre 2017, je suis le responsable du groupe CIRIL en charge de l'accueil des expériences de recherches interdisciplinaires auprès des faisceaux du GANIL. Les missions qui incombent à cette responsabilité sont principalement d'organiser et de coordonner l'activité d'accueil avec les contraintes liées aux projets du laboratoire. Le laboratoire a en charge 4 lignes de faisceaux réparties dans 3 aires expérimentales. Avec l'aide d'un IR1 pour la coordination technique, je coordonne les activités de 3 binômes « 1 coordinateur des faisceaux + 1 responsable de l'aire expérimentale » (1 binôme par salle). L'équipe est donc composée 3 coordinateurs des faisceaux (1 MCF, 1 chercheure CEA et 1 IR CNRS) et de 2 responsables des aires (1 IE CNRS et 1 T CNRS). Mon rôle est de suivre le budget du groupe et de proposer les décisions concernant les investissements (CPER, France Hadron) sur les lignes, d'organiser le travail quotidien des différents intervenants suivant les plannings de faisceaux. Je dois également assurer un rôle d'intermédiaire entre les différents interlocuteurs (partenaires extérieurs, physiciens, GANIL, Région), produire des statistiques et autres indicateurs à partir des données fournies par les 3 coordinateurs faisceaux, communiquer efficacement avec le support technique du laboratoire pour planifier les travaux et interventions. En tant que responsable du CIRIL, je dois organiser, en amont, les réunions du comité iPAC (interdisciplinary Program Advisory Committee) pour la sélection des propositions d'expériences.

Depuis 2015, un budget provenant du CPER E2S2, en partenariat avec le GANIL, nous a permis de mettre en œuvre un programme de rénovation (mécanique, vide, information, contrôle/commande, sécurité) des lignes des faisceaux dont le CIMAP à la charge. En 2018, un quart de ce budget (~100 k€) était dédié à la rénovation du contrôle/commande des 4 lignes de faisceaux.

Membre de la collaboration SPARC

Depuis octobre 2013, avec M. Trassinelli (INSP), nous sommes les représentants français au sein du Stored Particles Atomic physics Research Collaboration (SPARC). En tant que membres du bureau, nous sommes responsables de l'évaluation des Technical Design Reports (TDR) soumis par des équipes de chercheurs pour le développement de dispositifs dédiés à l'installation FAIR (Facility for Antiproton and Ion Research in Europe GmbH).

Facilities at FAIR to be used by SPARC



Installation FAIR située à proximité de GSI, Darmstadt, Allemagne

Chaque année un (ou deux) workshop(s) permet(tent) de réunir les différents membres du bureau afin de discuter des nouveaux développements, du budget et de l'apport de chacun des partenaires.

Jimmy RANGAMA – CV détaillé
Habilitation à diriger des recherches

Adjoint à la Direction du CIMAP

Depuis le 1^{er} juillet 2020, je fais partie de l'équipe de direction du CIMAP en tant qu'adjoint. La diversité des statuts, des thématiques et de l'historique de chaque équipe du laboratoire rend la gestion du laboratoire complexe, mais nous souhaitons œuvrer en priorité pour assurer la cohésion de l'unité autour du projet du laboratoire. Nous pensons important d'améliorer la communication, tant en interne qu'en externe, pour favoriser l'esprit de laboratoire.

La direction du laboratoire à 3 missions principales :

- Obtenir et gérer les moyens financiers et humains auprès des tutelles
- Défendre et représenter le laboratoire vis-à-vis de l'extérieur
- Organiser la vie commune et la vie scientifique en interne pour une meilleure adéquation des compétences, des effectifs avec le projet scientifique de l'unité.

Organisation de colloques et conférences

Jimmy RANGAMA – CV détaillé
Habilitation à diriger des recherches

22nd International Symposium on Ion Atom Collisions (22/07/2011 au 25/07/2011, Caen)

Cette conférence a réuni une centaine de participants sur la thématique des collision ion-atome comprenant l'excitation, l'ionisation et le transfert de charge, ainsi que les interactions des ions avec les surfaces, les molécules et les agrégats.

1st Radiation damage of biomolecular systems : Nano-scale insights into Ion Beam Cancer Therapy (Nano-IBCT 2011, 02/10/2011 au 06/10/2011, Caen)

Les thèmes abordés étaient la propagation des ions dans la matière, les dommages directs et la production d'électrons secondaires, l'attaque électronique de l'ADN et des protéines, les centres d'hadronthérapie et les lois d'échelles en radiothérapie.

Molecular Physics Workshop (06/07/2015 au 10/07/2015, Caen)

Cette conférence a été organisée en collaboration avec le groupe de physique moléculaire de l'institut de physique de l'Open University. Les thèmes principaux étaient les collisions ion/molécules, les processus induits par des électrons de basse énergie, les grandes molécules et nanoparticules, les synchrotrons et la spectroscopie laser et l'astrophysique moléculaire.

7th International Workshop on Electrostatic Storage Device (19/06/2017 au 22/06/2017, Lyon)

Cette conférence était consacrée aux récents développements et aux progrès des anneaux électrostatiques et des instruments de piégeage ainsi que des expériences utilisant ces dispositifs. Les progrès récents dans les dispositifs de stockage électrostatiques pour faisceaux d'ions donnent accès à de nouvelles expériences pour la recherche sur les grandes et les petites molécules mais également sur les agrégats atomiques.

14th Stored Particles Atomic Physics Research Collaboration (11/09/2017 au 14/09/2017, Caen)

J'étais le responsable scientifique du 14eme colloque SPARC (*Stored Particles Atomic Physics Research Collaboration*) qui à la maison d'hôtes du GANIL, à Caen. Ce colloque a été organisé par le laboratoire CIMAP. Il y avait 106 participants, dont 52 orateurs et 9 pays différents étaient représentés. Le colloque SPARC réunit, depuis 2002, les experts et personnalités scientifiques concernés par la future installation FAIR (Facility for Antiproton and Ion Research) en construction actuellement près de l'accélérateur GSI à Darmstadt (Allemagne). Jusqu'en septembre 2016, treize éditions de ce colloque ont eu lieu dans onze pays différents (Pologne en 2016, Grèce en 2015, Allemagne en 2014 et en 2013, Autriche en 2012, Russie en 2011, Chine en 2010). Ce colloque, qui regroupe une centaine de scientifiques dont l'expertise est non seulement reconnue en Europe mais également dans le monde, permet, chaque année, de faire un état des lieux des nouvelles avancées technologiques en physique atomique et plus particulièrement des nouveaux dispositifs et des nouvelles expériences gravitant autour de l'installation FAIR. Il favorise non seulement des échanges annuels et réguliers entre chercheurs de grande renommée mais il permet également d'amorcer des collaborations nécessaires à l'efficacité et au succès du projet FAIR. Bien qu'axées sur la recherche fondamentale, les dernières éditions s'orientent vers l'interdisciplinarité. Ce colloque a été organisé avec beaucoup de succès pour la première fois par le CIMAP à Caen, a représenté une occasion unique de montrer la richesse scientifique et technologique du laboratoire. Depuis sa création, les membres du bureau de la collaboration SPARC, dont le CIMAP fait partie, n'a cessé d'encourager la participation des étudiants et des jeunes chercheurs. L'accessibilité et la gratuité de cet évènement offrent aux doctorants et postdoctorants la possibilité de discuter avec des experts de ces thématiques, leur permettant ainsi de préparer leur future carrière et de participer à la construction de l'avenir de la physique auprès des grands instruments scientifiques. Pour cette édition, le nombre de participants a augmenté en comparaison à l'édition précédente et ce nombre est un nouveau record en comparaison à toutes les éditions précédentes. Cela démontre une communauté très active et dynamique.

Environ 40 posters ont été présentés ce qui a favorisé de nombreuses discussions entre les différents chercheurs et doctorants. Les participants ont tenu à féliciter les organisateurs pour le déroulement du colloque.

Jimmy RANGAMA – CV détaillé
Habilitation à diriger des recherches

Transfert technologique, relations industrielles et valorisation

Implications dans les contrats et projets de recherche :

ANR PIBALE (2009-2013)

En parallèle à mon activité de recherche principale, je suis impliqué (35% d'implication) dans le développement instrumental de l'**ANR PIBALE (2009-2013)**. En particulier, je suis responsable du développement d'une source d'ions monochargés intense (>100 microampères) et du transport des ions jusqu'à la zone d'interaction avec les biomolécules. Je suis également chargé de la simulation et du développement du spectromètre de temps de vol de type réflectron qui permettra d'analyser les fragments issus de la collision. La phase simulation étant terminée, le montage et les premiers tests ont débutés depuis janvier 2014.

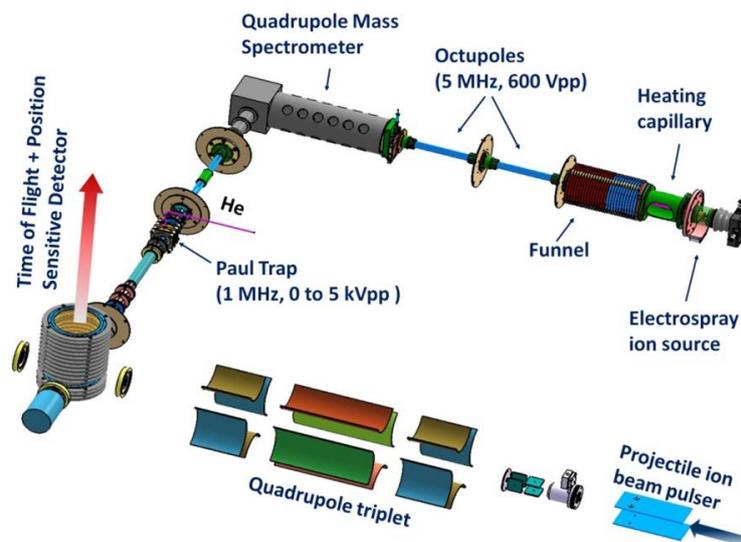


Figure 1 : Schéma 3D du dispositif PIBALE

Grâce à nouveau dispositif expérimental, un faisceau d'ions biomoléculaires est créé à l'aide d'une source d'ionisation de type Electrospray. Ce faisceau est focalisé à l'aide d'un système d'électrodes (ion funnel) polarisées avec une tension RF avant d'être sélectionné en masse par un filtre de masse quadripolaire (Quadrupole Mass Filter ou QMS). Afin d'augmenter la densité du faisceau avant la zone de collision, les ions triés en masse sont accumulés et regroupés dans un piège de Paul 3D en utilisant un gaz tampon (He) froid. Ce faisceau cible entre en collision avec un faisceau d'ions projectiles produit par la source ECR MONO1000. Le faisceau projectile est mis en forme par un triplet de quadripôle dans le but de maximiser son recouvrement le faisceau cible. Comme il a déjà été mentionné, les fragments chargés créés lors de la collision sont alors analysés par un spectromètre de temps de vol vertical et détectés par un détecteur sensible en position. Nous pouvons ainsi avoir accès à la dynamique de la fragmentation de systèmes moléculaires complexes isolés et environnés. Quelques difficultés techniques, liées au fait que ce projet représente un réel défi expérimental (expérience de type faisceaux croisés) et responsables du retard dans l'obtention des premiers résultats selon le planning prévu, sont en train d'être résolues¹.

¹ Schwob et al., Rev. Sci. Instr. (2018), Vol. 89 Issue 10

ANR PELIICAEN (2013-2015)

D'autre part, je suis responsable (28% d'implication) de la tâche « imagerie par électrons secondaires » au sein du nouveau projet **ANR PELIICAEN** (Plateforme pour l'Étude de L'Implantation Ionique Contrôlée et Analysée à l'Échelle Nanométrique) porté par S. GUILLOUS, ingénieur CEA. Le projet PELIICAEN (2013-2015) vise à développer une plateforme expérimentale novatrice permettant l'élaboration, la modification et l'analyse en ligne de nanostructures et de dopages contrôlés. L'implantation ionique localisée est primordiale pour la recherche et le développement en nanosciences et nanotechnologies. Elle assiste les domaines de la microélectronique, la nanophotonique, la spintronique et l'élaboration de nanomatériaux en modifiant précisément les propriétés électriques, optiques, magnétiques et chimiques de la matière à l'échelle nanométrique. Nous proposons une solution originale, en assemblant des moyens techniques connus reposant sur les technologies FIB et sources ECRIS, pour générer des faisceaux d'ions focalisés avec un plus grand large choix d'ions et de profondeur d'implantation.

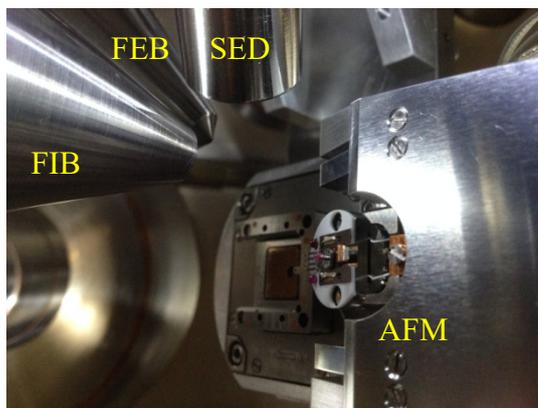
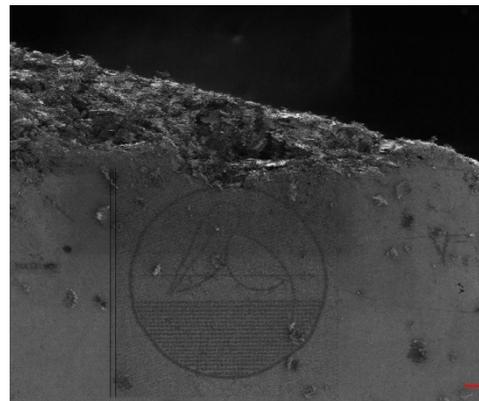


Photo du dispositif actuel PELIICAEN sur laquelle on peut voir l'intérieur de la chambre ultravide (10^{-10} mbar), un FIB (Focus Ion Beam), un FEB (Focus Electron Beam) et un SED (Secondary Electron Detector) qui pointent vers un échantillon ainsi qu'un AFM (Atomic Force Microscopy) pour l'analyse in-situ.



Première image FIB du logo PELIICAEN obtenu par le dispositif

Un tel outil ouvrira de nouveaux champs de recherche dans le domaine des nanosciences et nanotechnologies du fait des possibilités de modification de propriétés des matériaux à une échelle submicronique dans les 3 dimensions.

ANR LabCom CiCLOP (2018)

Le CIMAP a développé un outil unique (PELIICAEN), permettant l'utilisation de faisceaux d'ions submicroniques (<200 nm) mono et multi-chargés et des moyens de caractérisation topographique au microscope électronique à balayage et au microscope à force atomique. Ces faisceaux d'ions focalisés peuvent être utilisés à la fois pour modifier les propriétés physiques, structurelles et chimiques de la matière, de la surface extrême à quelques centaines de nanomètres de profondeur, mais aussi comme sonde locale pour des analyses chimiques et structurelles. Par l'utilisation simultanée de ces moyens, il est possible de contrôler et d'analyser finement les évolutions des matériaux et leurs propriétés. Ce projet est le fruit d'une coopération entre le CIRIL, d'autres équipes du CIMAP (AMA, MADIR, MIL, SIMUL et CIRIL), et la société française Orsay Physics, l'un des leaders mondiaux pour le développement et la commercialisation d'unités FIB / FEB et imagerie d'émission secondaire. Le projet de laboratoire commun "CiCLOP", en partenariat entre le CIMAP et l'entreprise Orsay Physics, leader dans la technologie de faisceaux d'électrons et d'ions focalisés, est soutenu par le programme "LabCom - Laboratoires communs Consolidation organismes de recherche publics - PME / ETI" 2018 de l'ANR.

Jimmy RANGAMA – CV détaillé
Habilitation à diriger des recherches

Ce contrat ANR renforcera la collaboration existante entre le CIMAP et Orsay Physics, qui apporte ses 30 ans d'expérience et de leadership dans le domaine de l'optique de particules chargées, plus particulièrement sur les colonnes à faisceaux d'ions focalisés (FIB), le microscope électronique à balayage (SEM), et les équipements associés tels que les systèmes d'injection de gaz (GIS) ou les détecteurs d'électrons secondaires (SED).

ANR SIISU (2013-2015)

De même, je suis responsable (28% d'implication) de la tâche « Irradiation de matériaux à basse énergie pour des ions multichargés » de l'**ANR international SIISU** (Single Ion Induced Surface nanostructures, 2013-2015) porté par B. Ban D'État, CR1 CNRS. Dans ce projet, il s'agit d'étudier la modification de matériaux (SrTiO_3 , CaF_2 , TiO_2 , Mica) à l'aide d'ions rapides fournis par l'installation IRRSUD du GANIL et d'ions lents multichargés disponibles sur l'installation ARIBE.

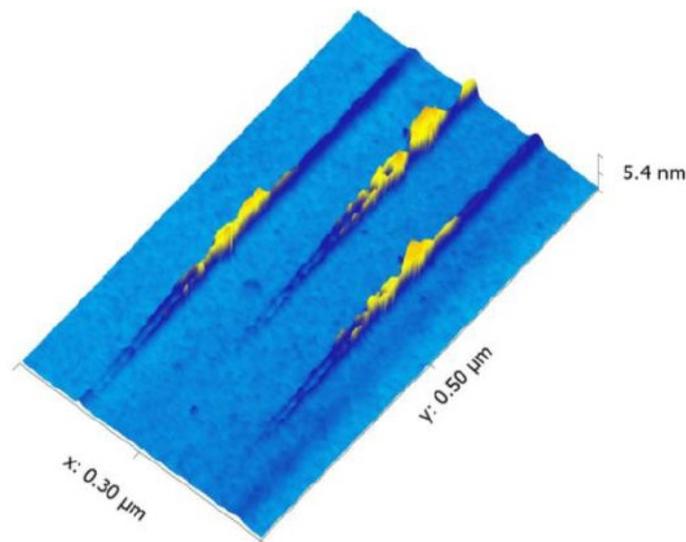


Figure 2 : Image AFM de traces formées sur une surface de mica après irradiation par des ions $^{129}\text{Xe}^{23+}$ à un angle rasant de 0.9° . Le projectile entre dans la surface de mica en bas à gauche en créant une rainure, dont les parois sont visibles comme une « double trace ». Lorsque l'ion projectile est entré suffisamment profondément dans les couches atomiques, la double trace se combine alors pour former une simple trace.

L'analyse de l'effet des ions sur les matériaux sera réalisée à l'aide de différentes techniques de microscopies : Microscopie à force atomique (AFM), Microscopie électronique (TEM) et Microscopie à effet tunnel (STM). Le but propre de ce projet est de relier les différentes études éparpillées sur l'interaction ion-surface afin d'obtenir une meilleure compréhension des processus. Il est prévu de comparer les effets cinétiques et potentiels sur les différents matériaux et sur la modification topologique des formes « hillocks » produits. En d'autres termes, il s'agit d'étudier les nanostructures surfaciques induites par irradiations, le comportement des matériaux sous dépôt d'énergie intense et ainsi de mieux comprendre l'effet des perturbations du réseau électronique par des ions de différentes énergies².

Dans le futur, cette étude pourra être élargie à d'autres matériaux tels que des semi-conducteurs.

Contrat CEFIPRA (2011-2014)

Ce contrat a été obtenu en répondant à un appel à projet du Centre Franco-Indien pour la Promotion de la Recherche Avancée (CEFIPRA). Il avait pour intitulé « Collisions entre les ions lents multichargés et molécules ». Ce projet avait pour but d'apporter un soutien financier afin de favoriser la

² Gruber et al. J. of Phys.: Cond. Mat.; (2018), Vol. **30** Issue 28

Jimmy RANGAMA – CV détaillé
Habilitation à diriger des recherches

collaboration étroite entre une équipe indienne (IUAC, New Delhi, Inde) et une équipe française (CIMAP, Caen, France), et ce, dans le but d'un transfert efficace de connaissances, de compétences et de savoir-faire entre les deux équipes. Ce contrat nous a permis d'avoir un postdoc indien (A. Agnihotri, 2015).

Il s'agissait d'étudier l'interaction d'ions multichargés très lents avec des atomes et des molécules, à l'aide de techniques combinées d'imagerie et de spectrométrie par temps de vol. Les travaux antérieurs ont été essentiellement réalisés à haute (MeV/u) ou moyenne (keV/u) énergie de collision. La disponibilité relativement récente d'ions lents multichargés (quelques eV) auprès des deux laboratoires de cette collaboration ouvre de nouvelles possibilités. La faible vitesse de collision; de par l'adaptation des nuages électroniques de la cible et du projectile, conduit à des transitions non Franck-Condon et à une fragmentation différente de celle induite par impact d'ions rapides.

Grâce à ces échanges, des progrès considérables ont été réalisés durant ce projet.

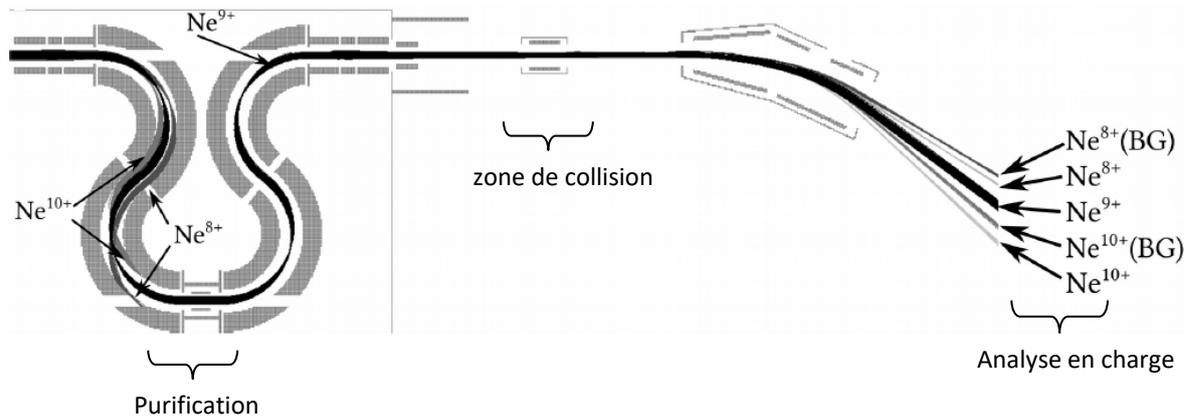
Un système de décélération des ions a été fabriqué et assemblé à l'IUAC et des systèmes de pulsations haute tension ont été développés. Au CIMAP, un dispositif de décélération a été testé avec succès pour produire des ions ayant une énergie de l'ordre de quelques eV. Pendant la même période, 2 propositions d'expériences ont été soumises et présentées avec succès pour obtenir du temps de faisceau sur l'installation ARIBE. Lors de ma visite à New Delhi, en octobre 2012, nous avons testé grâce au programme de simulation SIMION 3D, la résolution en énergie d'un spectromètre de temps de vol en fonction de la durée et du retard de l'extraction par rapport à la collision. Enfin, pendant la venue des collègues indiens lors d'un temps de faisceau programmé en avril 2015, nous avons étudié des collisions entre des ions He^{2+} sur des molécules de diazote et d'eau à l'aide du dispositif COLTRIMS. Les données obtenues ont été analysées et ont permis la rédaction de 2 articles dans le journal *Physical Review*^{3, 4}.

³ A. Méry et al. *Phys. Rev. Lett.* **118**, 233402 (2017)

⁴ A. Méry et al., *Phys. Rev. A*, submitted

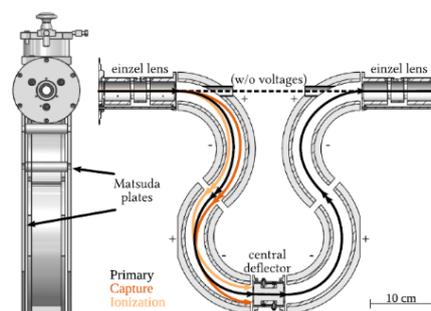
ANR Fit-FISIC (2014-2016)

Le principal objectif de l'ANR Fit-FISIC (coordonnateur : E. Lamour, Professeur, Université Pierre et Marie Curie, Institut des NanoSciences de Paris) est de construire une expérience unique de faisceaux croisés ion/ion (haute énergie/basse énergie) permettant de mesurer des sections efficaces absolues des processus électroniques entrant en jeu dans un régime de collision qui n'a, jusqu'à présent, jamais été étudié. Ce régime appelé régime de vitesse intermédiaire correspond au maximum du pouvoir d'arrêt des ions.



Simulation de trajectoire des ions de la ligne basse énergie du projet Fit-FISIC. L'ensemble est constitué d'un analyseur électrostatique de type oméga Ω pour la purification du faisceau initial, d'une zone de collision permettant de séparer les vrais événements de ceux du gaz résiduel (BG) et d'un analyseur électrostatique pour l'analyse en charge des ions après collision.

La collaboration issue de cette ANR internationale, faisant intervenir deux laboratoires français (INSP et CIMAP) et deux partenaires allemands (Jena University et GSI) est particulièrement adaptée à ce projet ambitieux, nécessitant des compétences spécifiques. Dans ce projet, porté par l'INSP et où j'étais le coordinateur caennais, le CIMAP a pris en charge le développement de la partie basse énergie (purification du faisceau, chambre de collision et analyse en charge après collision). Pour la préparation du faisceau d'ion de basse énergie, un système électrostatique simple et compact de purification d'état de charges a été simulé, construit et testé. Sa large acceptation permet d'obtenir une transmission de 100% de l'état de charge primaire pour un faisceau de basse énergie ($< 30\text{qkeV}$) et d'émission inférieure à 60 pi.mm.mrad .

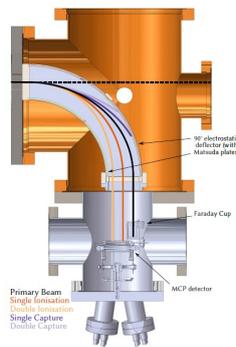


Les tests ont été réalisés sur l'installation ARIBE du GANIL et la résolution en charge est de 10.5. Grâce au profil non gaussien des faisceaux et à une procédure de décorrélation, il est possible de séparer des états de charges plus élevés que ceux obtenus expérimentalement. Les performances atteintes

Jimmy RANGAMA – CV détaillé
Habilitation à diriger des recherches

satisfont pleinement les exigences requises pour les expériences du projet Fit-FISIC pour des faisceaux d'ions Ar¹⁸⁺. Les résultats obtenus ont été publiés dans le journal Review of Scientific Instruments⁵.

La chambre de collision a déjà été construite et a été testée sur la ligne SIMPA de l'INSP en juillet 2020. Les tests devraient se poursuivre en avril-mai 2021 sur l'installation ARIBE. Le système de détection, développé au CIMAP, est constitué d'un empilement de deux galettes à microcanaux et d'une anode à lignes à retard, combiné à une cage de Faraday, et permettra de différencier les différents états de charge produits après la collision.



Chambre de détection d'ions de basse énergie

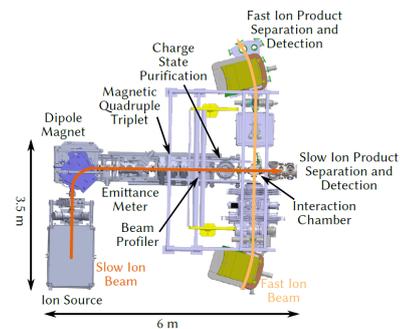


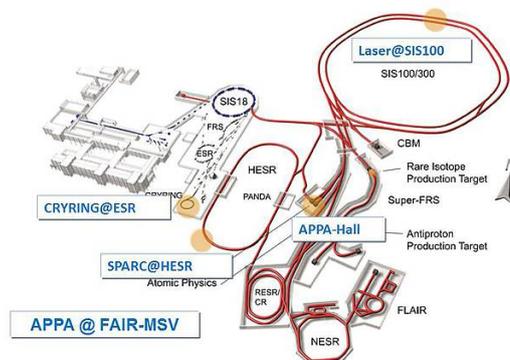
Schéma d'implantation du dispositif FISIC sur CRYRING (GSI, Darmstadt)

En 2022, la première campagne d'expériences est prévue sur l'installation CRYRING (GSI, Darmstadt, Allemagne) avec l'ensemble du dispositif du projet Fit-FISIC (source d'ion, système de purification, chambre d'interaction et chambre de détection) jusqu'à la disponibilité du faisceau SPIRAL2 dans la salle S3 Du GANIL.

Membre de la collaboration SPARC

Depuis octobre 2013, avec M. Trassinelli (INSP), nous sommes les représentants français au sein de la Stored Particles Atomic physics Research Collaboration (SPARC). En tant que membres du bureau, nous sommes responsables de l'évaluation des Technical Design Reports (TDR) soumis par des équipes de chercheurs pour le développement de dispositifs dédiés à l'installation FAIR (Facility for Antiproton and Ion Research in Europe GmbH).

Facilities at FAIR to be used by SPARC



Installation FAIR située à proximité de GSI, Darmstadt, Allemagne

⁵ Schury et al., Rev. Sci. Instr. Vol. 90 Issue 8 Aug (2019).

Jimmy RANGAMA – CV détaillé
Habilitation à diriger des recherches

Chaque année un (ou deux) workshop(s) permet(tent) de réunir les différents membres du bureau afin de discuter des nouveaux développements, du budget et de l'apport de chacun des partenaires.

Projet EU HORIZON 2020 RADIATE

(Research And Development with Ion Beams – Advancing Technology in Europe)

Le projet RADIATE est un projet réunissant diverses infrastructures européennes complémentaires fournissant du temps de faisceaux pour promouvoir la recherche et les applications autour des faisceaux d'ions. Les partenaires du projet souhaitent mettre en commun leurs activités de recherche pour réaliser des avancées et développer des réseaux/matériels aussi bien que des logiciels, que ce soit pour les sources d'ions et faisceaux, les détecteurs et l'électronique et du traitement de logiciels et de données. En outre, le projet RADIATE fournit un accès facilité, flexible et efficient aux installations des partenaires pour les chercheurs issus du monde académique ou industriels. Ce sera ainsi plus de 15 800 heures d'accès transnationaux qui seront délivrées. Enfin, le projet souhaite former les chercheurs de demain en faisceaux d'ions et accroître le nombre d'utilisateur, par des programmes de bourses, de stages de courte durée pour les jeunes chercheurs, des écoles d'été. Dans ce projet je suis le responsable de l'accès transnational auprès des faisceaux du GANIL.

EQUIPEX+ NEWGAIN

Le projet NEWGAIN a pour objet le développement d'un nouvel injecteur, composé d'une source d'ions (type ECR supra $A/Q = 1/7$) et d'un RFQ, pour l'accélérateur LINAG de SPIRAL2. Il va permettre au GANIL de proposer les plus fortes intensités de faisceaux d'ions isotopiques au monde (du proton à l'uranium), ouvrant ainsi des formidables opportunités pour les études de la structure nucléaire, la recherche des éléments super lourds et la découverte de nouveaux éléments et radio-isotopes. Il permet également d'élargir l'utilisation des faisceaux de SPIRAL2 aux recherches interdisciplinaires ainsi qu'aux applications. Je suis membre du comité scientifique et représentant du CIMAP

EQUIPEX+ e-DIAMANT

Les centres NV du diamant sont caractérisés par un atome d'azote en position de substitution dans le cristal et associé à une lacune. Ces défauts permettent de préparer et manipuler de façon cohérente les spins électroniques dans le matériau à température ambiante avec une lecture optique directe. Le couplage entre le spin et un champ magnétique externe modifiant l'état de spin, le centre NV se comporte comme un défaut atomique, permettant d'atteindre une sensibilité de quelques nano Tesla et une résolution nanométrique. Le projet e-DIAMANT va mettre à profit le savoir-faire et les expertises complémentaires des partenaires pour mettre au point un ensemble d'outils afin d'obtenir du diamant avec un niveau contrôlé de défauts et avec un design optimisé et miniaturisé. Ces objets permettront le développement de capteurs quantiques aux fonctionnalités originales. Dans ce projet, je serais un des experts en détecteurs ultra-sensibles (galettes micro-canaux, détecteurs à localisation)

Collaborations nationales et internationales

Pr Haruo Shiromaru, Tokyo Metropolitan University, Japon

Pr Bela Sulik, ATOMKI, Hongrie

Pr C.P. Safvan, IUAC, Inde

Pr Wania Wolff, Universidade Federal do Rio de Janeiro, Brésil

Dr Serge Martin, Institut Lumière Matière de Lyon, France

Pr Emily Lamour, Institut des Nanosciences de Paris, France

Publication de faits marquants

- « Mise en évidence de la décroissance coulombienne interatomique dans les collisions ions-dimères » pour l'Institut de physique du CNRS (<http://www.cnrs.fr/inp/spip.php?article3591>)
- « Cartographie d'une collision ion-molécule et identification d'une nouvelle source d'électrons de basse énergie »
(http://iramis.cea.fr/Phocea/Vie_des_labos/Ast/ast.php?t=fait_marquant&id_ast=2473).

Expertise

En aout 2014, j'ai été choisi comme rapporteur étranger de M. Preeti Manjari Mishra du Indian Institute of Space Science and Technology pour l'évaluation de son manuscrit de thèse de doctorat qui avait pour titre : « Role of collective excitation in high energy interaction with polycyclic aromatic hydrocarbons ».

Responsabilité diverse :

Adjoint à la direction du CIMAP (depuis juillet 2020)

Responsable de la plateforme d'accueil des recherches interdisciplinaires (CIRIL) (depuis nov. 2017)

Responsable du « TransNational Access » du réseau européen RADIATE (depuis jan. 2019)

Responsable du site web et correspondant HAL du groupe Atomes, Molécules et Agrégats.

Publications et productions scientifiques (2000-2020)

– **Articles publiés dans des revues internationales avec comité de lecture :**

2020

1. *Influence of the viscosity and charge mobility on the shape deformation of critically charged droplets.*

Giglio, E.; **Rangama, J.**; Guillous, S.; Le Cornu, T.
Phys. Rev. E. Vol. **101** Issue 1Jan (2020). DOI: 10.1103/PhysRevE.101.013105

2019

2. *An electrostatic in-line charge-state purification system for multicharged ions in the kiloelectronvolt energy range. [Academic Journal]Open access icon*

Schury, Daniel; Kumar, Ajit; Méry, Alain; Chesnel, Jean-Yves; Lévy, Anna; Macé, Stéphane; Prigent, Christophe; Ramillon, Jean-Marc; **Rangama, Jimmy**; Rousseau, Patrick; Steydli, Sébastien; Trassinelli, Martino; Vernhet, Dominique; Lamour, Emily
Rev. Sci. Instr. Vol. **90** Issue 8 Aug (2019). DOI: 10.1063/1.5093407

3. *Anion and cation emission from water molecules after collisions with 6.6-keV $^{16}\text{O}^+$ ions*

Z. Juhász, B. Sulik, E. Lattouf, E. Bene, B. A. Huber, P. Herczku, S. T. S. Kovács, A. Méry, J.-C. Pouilly, **J. Rangama**, J. A. Tanis, V. Vizcaino, and J.-Y. Chesnel
Phys. Rev. A **100**, 032713 – Published 27 September 2019

2018

4. *Irradiation of isolated collagen mimetic peptides by x rays and carbon ions at the Bragg-peak energy*

M. Lalande, M. Abdelmouleh, M. Ryszka, V. Vizcaino, **J. Rangama**, A. Méry, F. Durantel, T. Schlathölter, and J.-C. Pouilly
Phys. Rev. A **98**, 062701 – Published 3 December 2018

5. *Coulomb over-the-barrier Monte Carlo simulation to probe ion-dimer collision dynamics*

W. Iskandar, X. Fléchar, J. Matsumoto, A. Leredde, S. Guillous, D. Hennecart, **J. Rangama**, A. Méry, B. Gervais, H. Shiromaru, and A. Cassimi
Phys. Rev. A **98**, 012701 – Published 2 July 2018

6. *Shrimp by-product hydrolysate induces intestinal myotropic activity in European seabass (*Dicentrarchus labrax*)*

Leduc, A.; Hervy, M.; **Rangama, J.**; Delepee, R.; Fournier, V.; Henry, J.
Aquaculture. Dec 1, 2018, Vol. **497**, p380. DOI: 10.1016/j.aquaculture.2018.08.009

7. *A tandem mass spectrometer for crossed-beam irradiation of mass-selected molecular systems by keV atomic ions.*

Schwob, Lucas; Lalande, Mathieu; Chesnel, Jean-Yves; Domaracka, Alicja; Huber, Bernd A.; Maclot, Sylvain; Pouilly, Jean-Christophe; **Rangama, Jimmy**; Rousseau, Patrick; Vizcaino, Violaine; Adoui, Lamri; Méry, Alain

Rev. Sci. Instr. 2018, Vol. **89** Issue 10, DOI: 10.1063/1.5023182

8. *High resolution AFM studies of irradiated mica—following the traces of swift heavy ions under grazing incidence.*

Elisabeth Gruber; Lorenz Bergen; Pierre Salou; Elie Lattouf; Clara Grygiel; Yuyu Wang; Abdenacer Benyagoub; Delphine Levavasseur; **Jimmy Rangama**; Henning Lebius; Brigitte Ban-d'Etat; Marika Schleberger; Friedrich Aumayr
J. of Phys.: Cond. Mat.; (2018), Vol. **30** Issue 28, DOI: 10.1088/1361-648X/aac7f7

9. *Crustacean cardioactive peptides: Expression, localization, structure, and a possible involvement in regulation of egg-laying in the cuttlefish Sepia officinalis.*

Endress, Maxime; Zatylny-Gaudin, Céline; Corre, Erwan; Le Corguillé, Gildas; Benoist, Louis; Leprince, Jérôme; Lefranc, Benjamin; Bernay, Benoît; Leduc, Alexandre; **Rangama, Jimmy**; Lafont, Anne-Gaëlle; Bondon, Arnaud; Henry, Joël
General & Comparative Endocrinology. (2018), Vol. **260**, p67-79. DOI: 10.1016/j.ygcen.2017.12.009

2017

10. *Role of a Neighbor Ion in the Fragmentation Dynamics of Covalent Molecules.*

A. Méry, A. N. Agnihotri, J. Douady, X. Fléchar, B. Gervais, S. Guillous, W. Iskandar, E. Jacquet, J. Matsumoto, **J. Rangama**, F. Ropars, C. P. Safvan, H. Shiromaru, D. Zanuttini, and A. Cassimi
Phys. Rev. Lett. **118**, 233402 (2017)

11. *Radical-driven processes within a peptidic sequence of type I collagen upon single-photon ionization in the gas phase*

L. Schwob, M. Lalande, D. Egorov, **J. Rangama**, R. Hoekstra, V. Vizcaino, T. Schlathelter and J.-C. Pouilly
Phys. Chem. Chem. Phys., (2017) **19**, 22895–22904

2016

12. *A new setup for localized implantation and live-characterization of keV energy multiply charged ions at the nanoscale*

Guillous, S., Bourin, C., D'Etat, B. Ban, Benyagoub, A., Cassimi, A., Feierstein, C., Gardés, E., Giglio, E., Girard, S., Grygiel, C., Houel, A., Lebius, H., Méry, A., Monnet, I., Ramillon, J.-M., **Rangama, J.**, Ropars, F., Verzeroli, E., Viteau, M., Delobbe, A.

13. *Swift heavy ion irradiation of CaF₂ – from grooves to hillocks in a single ion track*

E. Gruber, P. Salou, L. Bergen, M. El Kharrazi, E. Lattouf, C. Grygel, Y. Wang, A. Benyagoub, D. Levavasseur, **J. Rangama**, H. Lebius, B. Ban-d'Etat, M. Schleberger and F. Aumayr
J. Phys. :Condens. Matter **28** (2016) 405001

2015

14. Anion emission from water molecules colliding with positive ions: Identification of binary and many-body processes

J.-Y. Chesnel, Z. Juhász, E. Lattouf, J. A. Tanis, B. A. Huber, E. Bene, S. T. S. Kovács, P. Herczku, A. Méry, J.-C. Pouilly, **J. Rangama**, and B. Sulik
Phys. Rev. A **91**, 060701(R) – Published 29 June 2015

15. Interatomic coulombic decay as a new source of low energy electrons in slow ion-dimer collisions

W. Iskandar, J. Matsumoto, A. Leredde, X. Fléchar, B. Gervais, S. Guillous, D. Hennecart, A. Méry, **J. Rangama**, C. L. Zhou, H. Shiromaru, and A. Cassimi
Phys. Rev. Lett. **114**, 033201 (2015)

2014

16. Atomic site-sensitive processes in low energy ion-dimer collisions

W. Iskandar, J. Matsumoto, A. Leredde, X. Fléchar, B. Gervais, S. Guillous, D. Hennecart, A. Méry, **J. Rangama**, C. L. Zhou, H. Shiromaru, and A. Cassimi
Phys. Rev. Lett. **113**, 143201 (2014)

17. Formation of anions and cations via a binary-encounter process in $\text{OH}^+ + \text{Ar}$ collisions: The role of dissociative excitation and statistical aspects

E. Lattouf, Z. Juhász, J.-Y. Chesnel, S. T. S. Kovács, E. Bene, P. Herczku, B. A. Huber, A. Méry, J.-C. Pouilly, **J. Rangama**, and B. Sulik
Phys. Rev. A **89**, 062721 (2014)

18. Stability of multiply-charged biomolecular clusters formed upon interaction with low-energy highly charged ions

V. Vizcaino, J.-C. Pouilly, J.-Y. Chesnel, A. Domaracka, S. Maclot, A. Méry, **J. Rangama**, P. Rousseau, L. Adoui, B.A. Huber
Int. J. of Mass Spec. **365-366**, 181-186 (2014)

2013

19. Formation of negative hydrogen ions in 7-keV $\text{OH}^+ + \text{Ar}$ and $\text{OH}^+ + \text{acetone}$ collisions: A general process for H-bearing molecular species

Zoltán Juhász, Béla Sulik, **Jimmy Rangama**, Erika Bene, Burcu Sorgunlu-Frankland, François Frémont, and Jean-Yves Chesnel
Phys. Rev. A **87**, 032718 – Published 29 March 2013

20. Transmission of slow highly charged ions through glass capillaries: Role of the capillary shape

C. L. Zhou, M. Simon, T. Ikeda, S. Guillous, W. Iskandar, A. Méry, **J. Rangama**, H. Lebius, A. Benyagoub, C. Grygiel, A. Müller, M. Döbeli, J. A. Tanis, and A. Cassimi
Phys. Rev. A **88**, 050901(R) – Published 27 November 2013

21. Ions colliding with clusters of fullerenes-Decay pathways and covalent bond formations

Seitz, F, Zettergren, H, Rousseau, P, Wang, Y, Chen, T, Gatchell, M, Alexander, JD, Stockett, MH, **Rangama, J**, Chesnel, JY, Capron, M, Pouilly, JC, Domaracka, A, Mery, A, Maclot, S, Vizcaino, V, Schmidt, HT, Adoui, L, Alcami, M, Tielens, AGGM, Martin, F, Huber, BA, Cederquist, H
J. Chem. Phys. **139**, 034309 (2013)

22. Formations of Dumbbell C-118 and C-119 inside Clusters of C-60 Molecules by Collision with alpha Particles

Zettergren, H, Rousseau, P, Wang, Y, Seitz, F, Chen, T, Gatchell, M, Alexander, JD, Stockett, MH, **Rangama, J**, Chesnel, JY, Capron, M, Pouilly, JC, Domaracka, A, Mery, A, Maclot, S, Schmidt, HT, Adoui, L, Alcami, M, Tielens, AGGM, Martin, F, Huber, BA, Cederquist, H
Phys. Rev. Lett. **110**, 185501 (2013)

23. Nanosolvation by acetonitrile and 18-crown-6 ether induce strongly different effects on the electron-capture induced dissociation of aromatic tripeptide cations in the gas phase

Maclot, S, **Rangama, J**, Nielsen, SB, Pouilly, JC
Int. J. Mass Spec. **337**, 1-11 (2013)

2012

24. Ionisation and fragmentation of tetraphenyl iron (III) porphyrin chloride induced by slow multiply charged ion impact A Multicoincidence Study of Fragmentation Dynamics in Collision of gamma-Aminobutyric Acid with Low-Energy Ions

Capron, M, Diaz-Tendero, S, Maclot, S, Domaracka, A, Lattouf, E, Lawicki, A, Maisonnay, R, Chesnel, JY, Mery, A, Pouilly, JC, **Rangama, J**, Adoui, L, Martin, F, Alcami, M, Rousseau, P, Huber, BA
Chemistry – A Eur. J. **18** (2012) 9321

25. Low-energy ions interacting with anthracene molecules and clusters

Rousseau, P, Lawicki, A, Holm, AIS, Capron, M, Maisonnay, R, Maclot, S, Lattouf, E, Johansson, HAB, Seitz, F, Mery, A, **Rangama, J**, Zettergren, H, Rosen, S, Schmidt, HT, Chesnel, JY, Domaracka, A, Manil, B, Adoui, L, Cederquist, H, Huber, BA
Nucl. Instr. And Methods B **279** (2012) 140

2011

26. Polycyclic aromatic hydrocarbon-isomer fragmentation pathways: Case study for pyrene and fluoranthene molecules and clusters

Seitz, F, Holm, AIS, Zettergren, H, Johansson, HAB, Rosen, S, Schmidt, HT, Lawicki, A, **Rangama, J**, Rousseau, P, Capron, M, Maisonnay, R, Domaracka, A, Adoui, L, Mery, A, Manil, B, Huber, BA, Cederquist, H
J. Chem. Phys. **135** (2011) 064302

27. Multiple-ionization and dissociation dynamics of a rare gas dimer induced by highly charged ion impact

Matsumoto, J., Leredde, A., Flechard, X., Hayakawa, K., Shiromaru, H., **Rangama, J.**, Zhou, C. L., Guillous, S., Hennecart, D., Muranaka, T., Mery, A., Gervais, B., Cassimi, A.
Phys. Scr. **T144** (2011) 014016

28. Ion-Induced Fragmentation of Amino Acids: Effect of the Environment

Maclot, S, Capron, M, Maisonnny, R, Lawicki, A, Mery, A, **Rangama, J**, Chesnel, JY, Bari, S, Hoekstra, R, Schlatholter, T, Manil, B, Adoui, L, Rousseau, P, Huber, BA
Chem. Phys. Chem. **12** (2011) 930

2010

29. Ionisation and fragmentation of tetraphenyl iron (III) porphyrin chloride induced by slow multiply charged ion impact

J. Matsumoto, A. Leredde, X. Flechard, K. Hayakawa, H. Shiromaru, **J. Rangama**, C. L. Zhou, S. Guillous, D. Hennecart, T. Muranaka, A. Mery, B. Gervais, and A. Cassimi
Phys. Rev. Lett. **105**, 263202 (2010)

30. Ions Colliding with Cold Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Clusters

A. I. S. Holm, H. Zettergren, H. A. B. Johansson, F. Seitz, S. Rosén, H. T. Schmidt, A. Ławicki, **J. Rangama**, P. Rousseau, M. Capron, R. Maisonnny, L. Adoui, A. Méry, B. Manil, B. A. Huber, and H. Cederquist
Phys. Rev. Lett. **105**, 213401 (2010)

2009

31. Ionisation and fragmentation of tetraphenyl iron (III) porphyrin chloride induced by slow multiply charged ion impact

Bernigaud V., Manil B., Maunoury L., **Rangama J.**, Huber B.A.
Eur. Phys. J. D 51 (2009) 125-30

32. Near Infrared Photoabsorption by C60 dianions in a storage ring.

Kadhane U., Andersen J.U., Bonderup E., Concina B., Hvelplund P., Kirketerp M.B.S, Liu B., Nielsen S.B., Panja S., **Rangama J.**, Stochkel K., Tomita S., Zettergren H., Hansen K., Sunden A.E.K., Canton S.E, Echt O., Forster J.S.
J. Chem. Phys. 131 (2009) 014301

33. Electron-Capture-Induced Dissociation of Microsolvated Di- and Tri-Peptide Monocations : Elucidation of Fragmentation Channels from Measurements of Negative Ions.

Zettergren H., Adoui L., Bernigaud V., Cederquist H., Haag N., Holm A.I.S., Huber B.A., Hvelplund P., Johansson H., Kadhane U., Larsen M.K., Liu B., Manil B., Nielsen S.B., Panja S., **Rangama J.**, Reinhed P., Schmidt H.T., Stochkel K.
Chem. Phys. Chem. 10 (2009) 1619-23.

34. On the hydrogen loss from protonated nucleobases after electronic excitation or collisional electron capture

Wyer J.A., Cederquist H., Haag N., Huber B.A., Hvelplund P., Johansson H.A.B., Maisonnny R., Nielsen S.B., **Rangama J.**, Rousseau P., Schmidt H.T.
Eur. J. Mass Spectrom. 15 (2009) 681-8

2008

35. Production of pulsed, mass-selected beams of metal and semiconductor clusters.

Kamalou O, **Rangama J**, Ramillon JM, Guinement P, Huber BA.
Rev. Sci. Instrum. 2008 Jun;79(6):063301.

36. Shape deformations of surface-charged microdroplets.

Giglio E, Gervais B, **Rangama J**, Manil B, Huber BA, Duft D, Müller R, Leisner T, Guet C.
Phys Rev E Stat Nonlin Soft Matter Phys. 2008 Mar;77(3 Pt 2):036319.

37. Fragmentation of alpha- and beta-alanine molecules by ions at Bragg-peak energies.

Bari S, Sobocinski P, Postma J, Alvarado F, Hoekstra R, Bernigaud V, Manil B, **Rangama J**, Huber B, Schlathölter T.
J Chem Phys. 2008 Feb 21;128(7):074306.

2007

38. Electron capture-induced dissociation of AK dipeptide dications: Influence of ion velocity, crown-ether complexation and collision gas.

Bernigaud V; Cederquist H; Haag N; Holm AIS; Huber BA; Hvelplund P; Kadhane U; Larsen MK; Manil B; Nielsen SB; Panja S; Ptasinska S; **Rangama J**; Reinhed P; Schmidt HT; Streletskii AV; Stochkel K; Worm ES; Zettergren H
Int. J. Mass Spec. 276 (2-3):77-81 2008

39. Stabilities of multiply charged dimers and clusters of fullerenes.

Zettergren H, Schmidt HT, Reinhed P, Cederquist H, Jensen J, Hvelplund P, Tomita S, Manil B, **Rangama J**, Huber BA.
J Chem Phys. 2007 Jun 14;126(22):224303.

40. Even-odd effects in the ionization cross sections of [C-60](2) and [C60C70] dimmers.

Zettergren H; Schmidt HT; Reinhed P; Cederquist H; Jensen J; Hvelplund P; Tomita S; Manil B; **Rangama J**; Huber BA
Phys. Rev. A 75 (5): 2007

2006

41. Ion-induced biomolecular radiation damage: from isolated nucleobases to nucleobase clusters.

Schlathölder T, Alvarado F, Bari S, Lecointre A, Hoekstra R, Bernigaud V, Manil B, **Rangama J**, Huber B.
Chemphyschem. 2006 Nov 13;7(11):2339-45.

42. Formation and stability of charged amino acid clusters and the role of chirality.

Concina B, Hvelplund P, Nielsen AB, Nielsen SB, **Rangama J**, Liu B, Tomita S.
J Am Soc Mass Spectrom. 2006 Feb;17(2):275-9.

43. Fragmentation and ionization of C-70 and C-60 by slow ions of intermediate charge.

Zettergren H; Reinhed P; Stochkel K; Schmidt HT; Cederquist H; Jensen J; Tomita S; Nielsen SB; Hvelplund P; Manil B; **Rangama J**; Huber BA
Eur. Phys. J. D 38 (2):299-306 2006

44. Lifetimes of C60(2-) and C70(2-) dianions in a storage ring.

Tomita S, Andersen JU, Cederquist H, Concina B, Echt O, Forster JS, Hansen K, Huber BA, Hvelplund P, Jensen J, Liu B, Manil B, Maunoury L, Brøndsted Nielsen S, **Rangama J**, Schmidt HT, Zettergren H.
J Chem Phys. 2006 Jan 14;124(2):024310.

45. Fullerene collisions and clusters of fullerenes.

Kamalou O; Manil B; Lebius H; **Rangama J**; Huber BA; Hvelplund P; Tomita S; Jensen J; Schmidt H; Zettergren H; Cederquist H
Int. J. Mass Spec. 252 (2):117-125 2006

2005

46. Dynamic Jahn-Teller effects in isolated C-60(-) studied by near-infrared spectroscopy in a storage ring

Tomita S, Andersen JU, Bonderup E, Hvelplund P, Liu B, Nielsen SB, Pedersen UV, **Rangama J**, Hansen K, Echt O
Phys. Rev. Lett. 94, 053002 (2005).

47. Ion beams of carbon clusters and multiply charged fullerenes produced with electron cyclotron resonance ion sources

Maunoury L, Manil B, **Rangama J**, Lebius H, Huber BA, Pacquet JY, Leroy R, Pedersen UV, Hvelplund P, Jensen J, Tomita S, Zettergren H, Schmidt HT, Cederquist H, Gustavo F

Rev. Sci. Instrum. 2005 May;76(5): 053304.

2004

48. Photodissociation of protonated amino acids and peptides in an ion storage ring. Determination of Arrhenius parameters in the high-temperature limit.

J.U. Andersen, H. Cederquist, J.S. Forster, B.A. Huber, P. Hvelplund, J. Jensen, B. Liu, B. Manil, L. Manoury, S.B. Nielsen, U.V. Pedersen, **J. Rangama**, H.T. Schmidt, S. Tomita, and H. Zettergren.

Phys. Chem. Chem. Phys., **6**,10 (2004), 2676-2681.

49. Stability and fragmentation of multiply charged C_{60} and C_{70} – a comparison.

Jensen J., Cederquist H., Huber B. A., Hvelplund P., Manil B., Brøndsted Nielsen S., Schmidt H. T., Tomita S., **Rangama J.**, and Zettergren H.

Phys. Rev. A 69, 5B (2004) 053203.

50. Photophysics of protoporphyrine and heme ions in vacuo: triplet-state lifetimes and quantum yields.

M. R. Calvo, J.U. Andersen, J.S. Forster, P. Hvelplund, S.B. Nielsen, **J. Rangama**, and S. Tomita.

J. Chem. Phys., **120**, 11 (2004) 5067-5072.

2003

51. Identification and characterization of the dielectronic process in the formation of two K-shell vacancies in atomic Li by fast electron impact.

J. Rangama, D. Hennecart, N. Stolterfoht, J. A. Tanis, B. Sulik, F. Frémont, X. Husson and J.-Y. Chesnel.

Phys. Rev. A **68**, 040701 (2003).

52. Electron Attachment to “Naked” and Microsolvated Nucleotide Anions: Detection of Long-Lived Dianions.

B. Liu, S. Tomita, **J. Rangama**, P. Hvelplund, and S.B. Nielsen.

Chem. Phys. Chem. **4**,1341-1344 (2003)

53. Impact parameter dependence of electron capture in slow $O^{5+} + He$ collisions.

P. Sobocinski, **J. Rangama**, J.-Y. Chesnel, G. Allio, D. Hennecart, G. Laurent, L. Adoui, A. Cassimi, S. Dubois, O. James, D. Martin, A. Spicq, J.-H. Bremer, A. Dubois and F. Frémont.

J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **36**, 7 (2003) 1283-1295.

2002

54. Evidence for highly energetic fragments following electron capture in $O^{5+} + H_2$ collisions at low impact velocities.

P. Sobocinski, **J. Rangama**, G. Laurent, L. Adoui, A. Cassimi, J.-Y. Chesnel, A. Dubois, D. Hennecart, X. Husson and F. Frémont.
J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **35**, 5 (2002) 1353-1367.

55. Electron capture in collisions of slow highly charged ions with an atom and a molecule: processes and fragmentation dynamics.

F. Frémont, G. Laurent, **J. Rangama**, P. Sobocinski, M. Tarisien, L. Adoui, A. Cassimi, J.-Y. Chesnel, X. Fléchart, D. Hennecart and X. Husson.
Int. J. Mol. Sci **3**, 115-131 (2002).

2001

56. Inner-shell electron capture mechanisms in slow $He^{2+} + CO$ and $O^{7+} + CO$ collisions.

P. Sobocinski, **J. Rangama**, J.-Y. Chesnel, M. Tarisien, L. Adoui, A. Cassimi, X. Husson and F. Frémont
J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **34**, 11 (2001) L367-L375.

57. Evidence for interference effects in electron emission from H_2 colliding with 60 MeV/u Kr^{34+} ions.

N. Stolterfoht, B. Sulik, V. Hoffmann, B. Skogvall, J.-Y. Chesnel, **J. Rangama**, F. Frémont, D. Hennecart, A. Cassimi, X. Husson, A. L. Landers, J. A. Tanis, M. Galassi and R. D. Rivarola.
Phys. Rev. Lett. **87**, 023201 (2001).

2000

58. One- and two-K-shell vacancy production in atomic Li by 95-MeV/u Ar^{18+} projectiles.

J. A. Tanis, J.-Y. Chesnel, F. Fremont, D. Hennecart, X. Husson, D. Lecler, A. Cassimi, J. P. Grandin, **J. Rangama**, B. Skogvall, B. Sulik, J.-H. Bremer, N. Stolterfoht.
Phys. Rev. A **62**, 032715 (2000).

59. Plasmon dispersion effects for surface plasmon mediated proton neutralization at Mg surfaces.

H. Jouin, F. A. Gutierrez, C. Harel, S. Jequier, **J. Rangama**.
Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 164/**165**, 595 (2000).

– Articles publiés dans des actes de conférences internationales avec comité de lecture :

1. *Fragmentation Dynamics Of Complex Molecules And Their Clusters*

Maclot, S, Capron, M, Maisonnny, R, Lawicki, A, Chesnel, JY, Domaracka, A, Mery, A, Pouilly, JC, **Rangama, J**, Holm, AIS, Johansson, HAB, Seitz, F, Rosen, S, Schmidt, H, Zettergren, H, Rousseau, P, Cederquist, H, Huber, BA, Adoui, L
APPLICATION OF ACCELERATORS IN RESEARCH AND INDUSTRY, AIP Conference Proceedings, 22nd International Conference on the Application of Accelerators in Research and Industry (CAARI) **1525** (2013) 11

2. *Ionization and fragmentation of cold clusters of PAH molecules: collisions with keV ions*

Holm, AIS, Zettergren, H, Johansson, HAB, Seitz, F, Rosen, S, Schmidt, HT, Lawicki, A, **Rangama, J**, Rousseau, P, Capron, M, Maisonnny, R, Adoui, L, Mery, A, Chesnel, JY, Manil, B, Huber, BA, Cederquist, H
27th International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC) **388** (2012) 102060

3. *Production of H- fragments in collisions of OH+ ions with atoms and molecules*

Juhasz, Z, Frankland, BS, Fremont, F, **Rangama, J**, Chesnel, JY, Sulik, B
27th International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC) **388** (2012) 102051

4. *ARIBE: a low energy ion beam facility in Caen.*

Bernigaud V., Kamalou O., Lawicki A., Capron M., Maisonnny R., Manil B., Maunoury L., **Rangama J.**, Rousseau P., Chesnel J.-Y. et al
Publ. Astron. Obs. Belgrade 84 (2008)

5. *Isomeric effects in ion-induced fragmentation of alpha- and beta-alanine.*

Sobocinski P; Bari S; Postma J; Alvarado F; Hoekstra R; Manil B; **Rangama J**; Bernigaud V; Huber BA; Schlatholter T
RADIATION DAMAGE IN BIOMOLECULAR SYSTEMS 10112006-12006 2008 Annual Meeting of the COST P9 Action on Radiation Damage in Biomolecular Systems (JUL 19-22, 2007)

6. *Fragmentation of isolated and nanosolvated biomolecular systems.*

Huber BA; Adoui L; Bernigaud V; Manil B; Maunoury L; **Rangama J**; Rousseau P; Haag N; Johansson H; Schmidt HT; Cederquist H; Nielsen SB; Liu B; Zettergren H; Hvelplund P; Alvarado F; Bari S; Hoekstra R; Postma J; Schlatholter T
5th International Conference on Radiation Damage in Biomolecular Systems (JUN 13-15, 2008, Debrecen, HUNGARY)

7. *Multiple ionization and fragmentation of fullerene dimers by highly charged ion impact.*

Zettergren H; Schmidt HT; Reinhed P; Haag N; Fisher D; Berenyi Z; Cederquist H; Jensen J; Hvelplund P; Tomita S; Manil B; **Rangama J**; Huber BA
25th International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (JUL 25-31, 2007, Freiburg, GERMANY)

8. *Lifetimes of C-60(2-) and C-70(2-) dianions in a storage ring.*

Tomita S; Andersen JU; Concina B; Hvelplund P; Cederquist H; Jensen J; Schmidt HT; Zettergren H; Echt O; Forster JS; Hansen K; Huber BA; Manil B; Maunoury L; **Rangama J**
24th International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (JUL 20-26, 2005, Rosario, ARGENTINA) published in 2006

9. *Clusters and clusters of clusters in collisions.*

Manil B; Bernigaud V; Boduch P; Cassimi A; Kamalou O; Lenoir J; Maunoury L; **Rangama J**; Huber BA; Jensen J; Schmidt HT; Zettergren H; Cederquist H; Tomita S; Hvelplund P; Alvarado F; Bari S; Lecointre A; Schlatholter T
24th International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (JUL 20-26, 2005, Rosario, ARGENTINA) published in 2006

10. *Analogies between photons and fast-ions impact in the production of hollow lithium.*

J.-Y. Chesnel, J. A. Tanis, B. Sulik, **J. Rangama**, F. Frémont, J.-H. Bremer, A. Cassimi, D. Hennecart, V. Hoffmann, X. Husson, A. L. Landers and N. Stolterfoht.
XX1 ICPEAC, Santa Fe, New Mexico. Rinton press (2002).

11. *Fragmentation of H_2^{2+} ions following impact of slow Xe^{23+} and O^{5+} with H_2 projectiles charge and velocity dependence*

P. Sobocinski, **J. Rangama**, J.-Y. Chesnel, M. Tarsien, L. Adoui, A. Cassimi, X. Husson and F. Frémont.
AIP Conf. Proc. 576, (2000). 16th Conference on the Application of Accelerators in Research and Industry (invited paper), (Denton, Texas, November 2000).