



Fragmentation d'agrégats de carbone neutres formés par collision atomique à haute vitesse

Guillaume Martinet

► To cite this version:

Guillaume Martinet. Fragmentation d'agrégats de carbone neutres formés par collision atomique à haute vitesse. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université Paris Sud - Paris XI, 2004. Français. NNT: . tel-00008105

HAL Id: tel-00008105

<https://theses.hal.science/tel-00008105>

Submitted on 17 Jan 2005

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.

UNIVERSITE PARIS XI UFR SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THESE

Présentée

Pour obtenir

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

Par

Guillaume MARTINET

Sujet : Fragmentation d'agrégats de carbone neutres
formés par collision atomique à haute vitesse

Soutenue le 24 Mai 2004 devant la Commission
d'examen

M. Philippe Bréchignac - Président

M. Florent Calvo - Rapporteur

M. Amine Cassimi - Rapporteur

M. Daniel Gardès

M. Marin Chabot

Remerciements

Tout d’abord, je tiens à remercier messieurs Florent Calvo et Amine Cassimi pour avoir accepté d’être les rapporteurs de ce travail. Je suis également reconnaissant envers monsieur Philippe Bréchnignac qui a accepté de présider le jury de soutenance de thèse.

J’exprime ici toute ma gratitude envers Daniel Gardès qui m’a permis de concrétiser mon attirance pour la physique expérimentale en m’ayant ouvert les portes de l’Institut de Physique Nucléaire d’Orsay et de son accélérateur Tandem.

Cette thèse ne serait ce qu’elle est sans l’aide précieuse de Marin Chabot et de Karine Wohrer que je remercie particulièrement pour m’avoir donné l’opportunité de travailler au sein de leur équipe. Ils ont su faire preuve de patience lorsque je faisais fausse route et leurs recommandations ont souvent été très judicieuses. Je remercie également le professeur Paul-Antoine Hervieux de l’université de Strasbourg ainsi que Sergio Díaz-Tendero Victoria, Fernando Martin et Manuel Alcamí de l’université autonome de Madrid pour notre collaboration fructueuse. Ils nous ont fourni les outils nécessaires à l’interprétation de nos mesures.

Pour m’avoir donné la possibilité de participer aux expériences $AZ4\Pi$ je remercie Bernard Borderie ainsi que Marie-France Rivet.

Toutes ces expériences n’auraient pu être réalisées sans le concours d’Emmanuel Raully et Jean Lebris pour la partie électronique, Laurence Lavergne, Valérie Le Ven et Rollande Bzyl pour la fabrication des détecteurs ainsi que Xavier Grave, Jean-François Clavelin et Gérard Lalu pour l’acquisition. Je les remercie donc pour tout ce qu’ils ont fait. Je remercie également toute l’équipe de l’accélérateur Tandem d’Orsay qui m’a accueilli chaleureusement lors de mon premier contact avec le laboratoire et pendant les différentes expériences auxquelles j’ai pu participer.

Je ne saurais oublier tout ceux qui ont contribué de près ou de loin aux différents travaux auxquels j’ai pris part tant pour leur aide que pour la bonne humeur qu’ils ont apporté.

Enfin, je remercie toute ma famille et particulièrement mes parents qui m’ont toujours soutenu et donné la possibilité de mener à terme ce que j’ai entrepris. Je leur dédie donc ce mémoire ainsi qu’à Valérie, que je remercie de tout mon coeur pour m’avoir supporté avec patience pendant ces trois dernières années et qui a su m’apporter un soutien sans faille.

Table des matières

Introduction	3
I Théorie : structure et fragmentation des agrégats de carbone C_n, $n = \{1, \dots, 9\}$	7
Introduction	9
1 Structure des agrégats de carbone C_n	11
1.1 Méthodes <i>ab initio</i>	11
1.1.1 Équation de Schrödinger	11
1.1.2 Méthode Hartree-Fock	13
1.1.3 Méthode Post-Hartree-Fock : Coupled Cluster	15
1.2 Théorie de la fonctionnelle de la densité	17
1.2.1 Expression de l'énergie comme fonction de la densité électronique	17
1.2.2 Méthode de Kohn-Sham	17
1.3 Résultats obtenus avec les méthodes CCSD(T) et DFT	19
1.3.1 Base des fonctions d'onde utilisées	19
1.3.2 Résultats	20
2 Dynamique de fragmentation	23
2.1 Modèle de Weisskopf séquentiel	24
2.1.1 Évaporation d'un monomère	25
2.1.2 Évaporation d'un dimère	26
2.1.3 Évaporation d'un trimère et de fragments plus gros	27
2.1.4 Modèle séquentiel de fragmentation	28
2.2 Calcul Metropolis	29
2.2.1 Principe de la méthode	30
2.2.2 Origines des poids intervenant dans la méthode	31
2.2.3 Metropolis pass – fonctionnement de l'algorithme	32
2.3 Résultats	33
2.3.1 Diagramme de fragmentation pour le C_5	33
2.3.2 Diagramme de fragmentation pour le C_7	35
2.3.3 Diagramme de fragmentation pour le C_9	37
3 Calcul des processus doubles de capture-ionisation par le modèle à atome et électron indépendants et la théorie de capture CDW	39
3.1 Théorie formelle des collisions en terme de paramètre d'impact	39

3.2	Approximation des ondes distordues—"Continuum Distorted Wave" . .	41
3.2.1	Présentation du formalisme CDW en terme de moment transféré	42
3.2.2	Résultats pour la capture dans la collision $C^+ \rightarrow He$	42
3.2.3	Modèle à atomes et électrons indépendants	45
II	Dispositif expérimental et principe de détection	49
	Introduction	51
1	Description du dispositif expérimental	53
1.1	Description de la production des agrégats de carbone au Tandem . .	53
1.1.1	Principe de fonctionnement de l'accélérateur	53
1.1.2	Production et injection des agrégats C_n^- à la source	56
1.1.3	Effet du terminal sur l'énergie interne des agrégats	62
1.2	Le détecteur AGAT.	63
1.2.1	Principe de fonctionnement du détecteur AGAT	63
1.2.2	La cible	64
1.2.3	Le déflecteur	68
1.2.4	Positionnement des détecteurs	68
1.3	Electronique et acquisition	69
1.3.1	La chaîne de normalisation et de réglages	70
1.3.2	La chaîne numérique	71
1.4	Montage pour des temps d'observation courts (≈ 50 ns)	76
2	Identification des partitions de fragmentation par analyse en forme des signaux	79
2.1	Rappel sur le fonctionnement des détecteurs Silicium	79
2.1.1	Le semi-conducteur	80
2.1.2	Rappel sur la jonction P-N	81
2.1.3	Création de charges	82
2.1.4	Collection des charges	84
2.2	Détection des agrégats C_n ($n=1, \dots, 10$) avec les détecteurs silicium . .	86
2.2.1	Signaux de courant mesurés issus d'agrégats C_n	86
2.2.2	Signaux de courant mesurés issus d'agrégats totalement frag- mentés nC	89
2.2.3	Empilements d'agrégats : algèbre des signaux.	90
2.3	Outils d'analyse des signaux	92
2.3.1	Représentation fréquentielle des signaux	92
2.3.2	Notions de bases sur les filtres	96
2.3.3	Application d'un filtre linéaire aux signaux d'agrégats	99
2.4	Identification de la forme des signaux	101
2.4.1	Résolution de la fragmentation au 1er ordre.	101
2.4.2	Étude des moments d'ordre 1, 2 et 3 des signaux	103
2.4.3	Comparaison de forme : χ^2	107
2.5	conclusion	112

III	Analyse et discussion des résultats	113
	Introduction	115
1	Sections efficaces de capture pour le système $C_n^+ \rightarrow He$.	117
1.1	Sections efficaces de production d'agrégats neutres	117
1.2	Sections efficaces de capture corrigées des processus doubles	117
2	Résultats expérimentaux sur les rapports de branchement	121
2.1	Rapports de branchement de la capture non-dissociative	121
2.2	Rapports de branchement des partitions de fragmentation	122
2.2.1	C_3	122
2.2.2	C_4	122
2.2.3	C_5	123
2.2.4	C_6	124
2.2.5	C_7	125
2.2.6	C_8	126
2.2.7	C_9	127
2.2.8	C_{10}	127
3	Analyse des résultats en terme d'énergie déposée à l'aide du modèle <i>MMMC</i>	129
3.1	Analyse en nombre de fragments et extraction des distributions d'énergie	129
3.1.1	Validation du modèle <i>MMMC</i> par la théorie de Weisskopf . .	129
3.1.2	Analyse des résultats en nombre de fragments : mesure de l'énergie interne moyenne	132
3.2	Évolution de l'énergie déposée avec la taille de l'agrégat	136
4	Effet de la variation de la cible et des conditions de production des agrégats	139
4.1	Effet de la cible	139
4.2	Effet de la source	141
5	Test des prédictions du calcul <i>MMMC</i> sur les rapports de branche- ment des voies de fragmentation.	143
5.1	Analyse du C_5	143
5.2	Analyse du C_7	144
5.3	Analyse du C_9	147
5.4	Conclusion sur la théorie <i>MMMC</i>	149
	Conclusion	151
	Conclusion	155
	Bibliographie	157

Introduction

Connus depuis plus d'un siècle (W. Huggins en 1881 [1]), les *agrégats de carbone* sont actuellement au centre de nombreux travaux tant théoriques qu'expérimentaux. Cet engouement pour ces particules vient du fait qu'ils ont été observés dans de nombreux milieux comme dans les flammes, les plasmas, les atmosphères stellaires ainsi que les milieux interstellaires où l'on trouve un grand nombre d'espèces polyatomiques. La découverte des fullérènes (C_{60} et C_{70}) par Smalley et al. [2] dans les années quatre vingt a amplifié les recherches sur les agrégats de carbone tant en ce qui concerne l'aspect structurel que dynamique (réponse à une perturbation externe).

Du point de vue de leur *structure*, de nombreux calculs ont été réalisés tant pour les agrégats neutres que pour les monochargés positifs et négatifs ayant un nombre de constituants allant de 2 à 60 environ. Au niveau expérimental, des mesures de mobilité ionique par chromatographie en phase gazeuse ont permis de déterminer les géométries d'espèces chargées (von Helden et al. [3], [4], Hunter et al. [5]) pour les agrégats composés de 3 à 70 atomes environ. Quant aux espèces neutres, leurs structures ont été essentiellement étudiées par spectroscopie laser haute résolution (Saykally et al. [6]) ainsi que par absorption infrarouge en phase gazeuse ou en matrice cryogénique de gaz rares (Van Zee et al. [7]).

En ce qui concerne leurs *états excités*, nous distinguerons les études sur l'excitation ionique des noyaux de celles sur l'excitation électronique. Les premières concernent les modes de vibration de la structure de l'agrégat. Ceux-ci ont été prédits par de nombreux travaux théoriques et mesurés par le biais d'expériences utilisant des méthodes de spectroscopie infrarouge par absorption en matrice de néon comme celles réalisées par Freivogel et al. [8]. Concernant les états électroniques excités, les travaux disponibles sont moins nombreux car ils nécessitent des calculs un peu plus sophistiqués. Les prédictions des premiers états excités effectuées par Kolbuszewski pour les agrégats C_3 , C_5 et C_7 [9] illustrent bien ce point. Les travaux effectués par Forney et al. [10] sur des agrégats en matrice de néon ont permis d'obtenir des mesures de ces états faiblement excités. Que ce soit pour les états excités ioniques ou électroniques, la majorité de ces travaux n'aborde que les excitations à basse énergie. Le cas des états fortement excités est beaucoup moins documenté, surtout d'un point de vue théorique. Des travaux expérimentaux récents comme ceux réalisés par Campbell et al. [11] s'attachent à l'étude des fortes excitations des états électroniques pour le C_{60} à l'aide d'un laser femtoseconde.

Au-delà des chaînes de carbone, la *fragmentation* des agrégats provenant d'une forte énergie d'excitation interne comme dans nos expériences est une problématique impliquant une vaste communauté. Les études réalisées concernent aussi bien les agrégats métalliques, de Van der Waals ou covalents. Parmi les premiers travaux sur la fragmentation des agrégats alcalins, citons ceux réalisés par Bréchnignac et al. [12] et poursuivis par de nombreuses équipes (Barat et al. [13], Heinebradt et al. [14], Weidele et al. [15]). Quant aux agrégats de Van der Waals, les recherches sont orientées principalement sur les agrégats de gaz rares (hydrogène par Echt et al. [16], Farizon et al. [17], hélium par Haberland et al. [18]) ou moléculaires (O_2 par Matt et

al. [19], NH_3 par Bobbert et al. [20]). Sur la fragmentation des agrégats covalents, les agrégats de carbone constituent le principal système étudié (C_{60} Lebrun et al. [21], Martin et al. [22], Bordenave-Montesquieu et al. [23]). Citons aussi des travaux sur les molécules (CO par Adoui et al. [24], CO_2 par Siegmann et al. [25], $(CO_2)_n^+$ par Engelking et al. [26])

Si le point commun entre ces études est la fragmentation comme voie de sortie, la sonde pour exciter l'agrégat est elle aussi très variée. Citons la sonde électronique (Dünser et al. [27]), la sonde photonique sur une large gamme d'énergie en simple ou multiple absorption (Ganteför et al. [28], Geusic et al. [29]) et les collisions atomiques de basse (Barat et al. [30], Bréchnignac et al. [12]) et hautes vitesses (Wohrer et al. [31], Farizon et al. [17]). Malgré les différences entre les types d'agrégats étudiés et les sondes utilisées, une des questions communes à cette communauté est la recherche d' *outils théoriques de physique statistique* valides et universels pour décrire les systèmes finis. D'un point de vue expérimental, cette recherche nécessite la mesure du plus grand nombre d'observables dans les voies de fragmentation (partition, énergie interne, moment orbitaux et transverses des fragments et des électrons, photons). Pour notre part, notre configuration expérimentale (collision de haute vitesse en cinématique inverse) nous permet d'accéder pour la première fois à la mesure de toutes les partitions de fragmentation d'un système atomique de taille aussi importante (jusqu'à 10 atomes). Du point de vu de la sonde, notre domaine de vitesse permet d'accéder à des états très excités de l'agrégat. Pour les agrégats de carbone, Whorer et al. [32] ont observé ces états dans les systèmes $C_{n \leq 5}^+ \rightarrow He$ aux vitesses intermédiaires (2.6 ua) pour lesquelles le pouvoir d'arrêt électronique est maximal. Dans nos expériences, l'identification de la charge permet d'étudier les processus d'échange de charge, d'ionisation et d'excitation et la fragmentation associée. Pour le cas particulier de l'étude des processus de capture électronique et de fragmentation, nous avons développé une méthode novatrice et originale afin de mesurer les partitions de fragmentation. L'objet de ce travail est de présenter les résultats que nous avons obtenus avec cette méthode.

Cette présentation s'organise comme suit :

Le premier chapitre présentera les outils théoriques nécessaires à l'interprétation de nos résultats expérimentaux. Nous aborderons dans un premier temps les calculs théoriques de structure permettant d'obtenir les seuils de dissociation ainsi que les potentiels d'ionisation pour les agrégats $C_{n \leq 9}$. Ces résultats seront nécessaires aux modèles statistiques de *Weisskopf* et *Microcanonical Metropolis Monte Carlo* décrivant la fragmentation des agrégats de carbone que nous présenterons.

Dans une deuxième partie, nous décrirons le dispositif expérimental regroupant l'accélérateur Tandem fournissant les faisceaux d'agrégats chargés et le détecteur *AGAT*. Ceci nous permettra d'expliquer l'état des agrégats avant la chambre de collision. Nous détaillerons ensuite la nouvelle méthode de détection qui permet l'identification de toutes les partitions de fragmentation des agrégats que nous étudierons.

La présentation des résultats se fera dans la troisième partie. Nous y discuterons des sections efficaces de capture ainsi que des rapports de branchement mesurés pour la fragmentation. Nous analyserons ces résultats en terme d'énergie moyenne déposée lors de la collision par les états de capture à l'aide des modèles statistiques présentés dans la première partie.

Première partie

Théorie : structure et fragmentation
des agrégats de carbone C_n ,
 $n = \{1, \dots, 9\}$

Introduction

Depuis une quinzaine d'années, de nombreux calculs de structure sur les agrégats de carbone ont été réalisés. Ceux-ci dépendent fortement du système étudié et notamment du nombre de charges et de constituants de l'agrégat. Les structures des agrégats neutres et monochargés ont fait l'objet d'un grand nombre d'étude théoriques ([33], [34], [35], [36] et [37]) en utilisant différentes méthodes de calcul dont nous citerons en exemple des méthodes *ab initio* utilisant des théories *Hartree-Fock* (*HF*) et *post-Hartree-Fock*, des méthodes d'analyse multiconfigurationnelle ou encore de dynamique moléculaire. En ce qui concerne les doublement chargés, très peu de références existent dans la littérature.

Afin d'obtenir une étude complète des agrégats de carbone, nous avons établi une collaboration avec l'équipe de F. Martín du département de chimie de l'université autonome de Madrid. Ils ont effectué des calculs de structure pour les agrégats C_n^{q+} ($1 \leq n \leq 8$ et $0 \leq q \leq 2$) en utilisant deux théories différentes : *Coupled Cluster* (*CC*) et *Theorie de la fonctionnelle de la densité* (*DFT*). Ces derniers ont ainsi obtenu les propriétés de structure de ces agrégats. Ces résultats ont ensuite été utilisés pour étudier la fragmentation de ces particules.

Nous présenterons tout d'abord les théories utilisées pour l'étude de la structure de ces agrégats en abordant les théories *Hartree-Fock* [38], *Coupled Cluster* [39] et *DFT* [40] ainsi que les résultats obtenus avec chacune d'entre elles. Résultant d'une perturbation externe, la fragmentation des agrégats peut nous apporter un grand nombre d'informations concernant leur structure ainsi que leur énergie interne. C'est dans ce sens que nous présenterons deux modèles de fragmentation développés pour les agrégats de carbone par P.A. Hervieux de l'université de Metz et l'équipe de madrid. Le premier est un modèle séquentiel d'évaporation issu de la théorie de Weisskopf [41] alors que le deuxième, appelé *calcul Metropolis Monte Carlo* [42], est un modèle statistique explorant l'espace des configurations possibles. Nous tenterons ensuite d'expliquer succinctement les différences notables existant entre les deux modèles de fragmentation. La fragmentation des agrégats étant la conséquence de leur collision avec une cible atomique, nous présenterons dans une dernière partie le formalisme des collisions atomiques et particulièrement celui de la théorie *Continuum Distorted Wave* (*CDW*) introduite par Cheshire en 1954 [43], qui nous a permis d'obtenir une estimation des corrections à apporter aux mesures des sections efficaces de capture.

Chapitre 1

Structure des agrégats de carbone C_n

1.1 Méthodes *ab initio*

1.1.1 Équation de Schrödinger

Les méthodes *ab initio* classiques se proposent de résoudre le plus exactement possible l'équation de Schrödinger non-relativiste et indépendante du temps :

$$\hat{H}|\Psi\rangle = E|\Psi\rangle \quad (1.1)$$

Dans le cadre de la mécanique quantique, un système constitué de M atomes et de N électrons est décrit par l'hamiltonien dont l'expression est :

$$H = - \sum_{i=1}^N \frac{1}{2} \nabla_i^2 - \sum_{A=1}^M \frac{1}{2M_A} \nabla_A^2 - \sum_{i=1}^N \sum_{A=1}^M \frac{Z_A}{r_{iA}} + \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N \frac{1}{r_{ij}} + \sum_{A=1}^M \sum_{B>A}^M \frac{Z_A Z_B}{R_{AB}} \quad (1.2)$$

où $\nabla = \frac{\partial}{\partial x} \vec{i} + \frac{\partial}{\partial y} \vec{j} + \frac{\partial}{\partial z} \vec{k}$ sont les dérivées suivant les coordonnées indicées i pour les électrons et indicées A pour les noyaux. M_A et Z_A sont respectivement la masse et le numéro atomique du noyau A , r_{iA} , r_{ij} et r_{AB} sont les distances électron-noyau, électron-électron et noyau-noyau. Cependant, l'équation (1.1) n'est pas soluble sous sa forme exacte. Il est nécessaire de faire des approximations afin de la résoudre.

Approximation de Born-Oppenheimer

L'*approximation de Born-Oppenheimer* est la première simplification utilisée et consiste à considérer les noyaux comme ayant une masse infiniment plus lourde que celle des électrons. Ainsi, les électrons se déplacent autour des noyaux que l'on considère figés ce qui permet de séparer l'hamiltonien (1.2) en un hamiltonien électronique et nucléaire :

$$\begin{aligned} H_{elec} &= - \sum_{i=1}^N \frac{1}{2} \nabla_i^2 - \sum_{i=1}^N \sum_{A=1}^M \frac{Z_A}{r_{iA}} + \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N \frac{1}{r_{ij}} \\ H_{nuc} &= - \sum_{A=1}^M \frac{1}{2M_A} \nabla_A^2 + \sum_{A=1}^M \sum_{B>A}^M \frac{Z_A Z_B}{R_{AB}} \end{aligned} \quad (1.3)$$

On décompose l'équation (1.1) en une équation électronique (1.4) et une équation nucléaire (1.5) que l'on traite indépendamment :

$$H_{elec}|\Psi_{elec}\rangle = E_{elec}|\Psi_{elec}\rangle \quad (1.4)$$

$$H_{nucl}|\Psi_{nucl}\rangle = E_{nucl}|\Psi_{nucl}\rangle \quad (1.5)$$

Ainsi, la fonction d'onde électronique dépend explicitement des coordonnées spatiales des électrons, paramétrées par les coordonnées spatiales des noyaux :

$$|\Psi_{elec}\rangle = |\Psi_{elec}(r_i; R_A)\rangle \quad (1.6)$$

L'énergie totale du système, sans considérer le mouvement des noyaux, est donnée par :

$$E_{totale} = E_{elec} + \sum_{A=1}^M \sum_{B>A}^M \frac{Z_A Z_B}{R_{AB}} \quad (1.7)$$

Principe d'exclusion de Pauli

La fonction d'onde multiélectronique solution de l'équation de Schrödinger doit satisfaire le *principe d'exclusion de Pauli*. Celui-ci indique que deux fermions peuvent se trouver dans le même état à condition qu'elles aient un spin différent. Ceci implique que la fonction d'onde multiélectronique doit être antisymétrique :

$$|\Psi(\mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_i, \dots, \mathbf{x}_j, \dots, \mathbf{x}_N)\rangle = -|\Psi(\mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_j, \dots, \mathbf{x}_i, \dots, \mathbf{x}_N)\rangle \quad (1.8)$$

Propriété de la fonction d'onde moléculaire

Pour décrire la fonction d'onde moléculaire, on définit un ensemble complet d'orbitales moléculaires $\{\psi_{i=1,2,\dots,K}\}$. Cet ensemble permet de définir la fonction d'onde spatiale d'un électron comme une fonction des coordonnées de position $\vec{r}(x, y, z)$ de cet électron. Son état est alors entièrement défini si l'on introduit une base complète de deux fonctions orthonormales $\alpha(\omega)$ et $\beta(\omega)$ correspondant respectivement aux composantes de l'opérateur S_z associées aux valeurs de spin 1/2 et -1/2. Ainsi, une fonction d'onde de spin-orbite $\chi(\mathbf{x})$ est une fonction décrivant simultanément la partie spatiale ainsi que le spin de l'électron. À partir de l'ensemble complet des K orbitales spatiales, on obtient une base complète de 2K spin-orbitales définies par :

$$\left. \begin{aligned} \chi_{2i-1}(\mathbf{x}) &= \psi_i(\vec{r})\alpha(\omega) \\ \chi_{2i}(\mathbf{x}) &= \psi_i(\vec{r})\beta(\omega) \end{aligned} \right\} i = 1, 2, \dots, k \quad (1.9)$$

Si les fonctions d'onde orbitales spatiales forment un ensemble orthonormal, l'ensemble des fonctions d'onde spin-orbite le seront aussi, ce qui entraîne $\langle \chi_i | \chi_j \rangle = \delta_{ij}$. Le principe d'antisymétrie est respecté si la fonction est écrite sous forme d'une combinaison linéaire de déterminants de Slater. Pour un système à N électrons, on obtient :

$$\begin{aligned} |\Psi(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \dots, \mathbf{x}_N)\rangle &= (N!)^{-1/2} \begin{vmatrix} \chi_1(\mathbf{x}_1) & \cdots & \chi_i(\mathbf{x}_1) & \cdots & \chi_N(\mathbf{x}_1) \\ \chi_1(\mathbf{x}_2) & \cdots & \chi_i(\mathbf{x}_2) & \cdots & \chi_N(\mathbf{x}_2) \\ \vdots & \ddots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \chi_1(\mathbf{x}_N) & \cdots & \chi_i(\mathbf{x}_N) & \cdots & \chi_N(\mathbf{x}_N) \end{vmatrix} \\ &= |\chi_1 \chi_2 \cdots \chi_N\rangle \end{aligned} \quad (1.10)$$

où $(N!)^{1/2}$ est un facteur de normalisation. Une telle fonction d'onde nous assure ici de respecter la condition d'antisymétrie de la relation (1.8).

1.1.2 Méthode Hartree-Fock

La première approximation de la méthode Hartree-Fock est de définir la fonction d'onde comme un seul déterminant de Slater. L'hamiltonien H appliqué à une fonction d'onde approchée $|\Psi_0\rangle$ permet d'estimer l'énergie associée :

$$E_0 = \frac{\langle \Psi_0 | H | \Psi_0 \rangle}{\langle \Psi_0 | \Psi_0 \rangle} \quad (1.11)$$

En utilisant le principe variationnel, on minimise l'énergie moyenne exprimée par (1.11) en faisant varier la fonction d'onde $\Psi \rightarrow \Psi + \delta\Psi$. Ce qui signifie que l'on choisit une fonction Ψ telle que $\delta E[\Psi] = 0$. En appliquant le principe variationnel à un déterminant de Slater défini sur un ensemble de spin-orbitales et en utilisant la relation d'orthonormalité, on obtient les équations aux valeurs propres de Hartree-Fock sous la forme :

$$f(1)|\chi_i(1)\rangle = \epsilon_i|\chi_i(1)\rangle \quad (1.12)$$

où f est un opérateur effectif mono-électronique pour l'électron i appelé opérateur de Fock et s'exprime :

$$\begin{aligned} f(1) &= h(1) + \nu^{HF}(1) \\ &= -\frac{1}{2}\nabla_1^2 - \sum_{A=1}^M \frac{Z_A}{r_{1A}} + \sum_{k \neq i} J_k(1) - K_k(1) \end{aligned} \quad (1.13)$$

avec $\nu^{HF} = \sum_{k \neq i} J_k(1) - K_k(1)$ est la somme des potentiels coulombiens et d'échange électron-électron. La méthode Hartree-Fock repose donc sur une approximation forte : on contourne la complexité du problème multi-électronique par un problème mono-électronique en traitant la répulsion électron-électron par un potentiel moyen. Une approximation supplémentaire couramment utilisée consiste à former les orbitales moléculaires à partir d'une Combinaison Linéaire d'Orbitales Atomiques (CLOA) centrées sur les atomes de la molécule :

$$\psi_i(\vec{r}) = \sum_{\mu=1}^K C_{\mu i} \phi_{\mu}(\vec{r}) \quad (1.14)$$

où les $C_{\mu i}$ sont les coefficients de la combinaison linéaire. On effectue alors la minimisation de l'énergie en faisant varier les coefficients $C_{\mu i}$ de manière à obtenir $\frac{\delta E}{\delta C_{\mu i}} = 0$. Pour résoudre l'équation Hartree-Fock (1.12), il est important de distinguer deux cas :

système à couches fermées : les électrons sont appariés sur des orbitales doublement occupées (cas de C_n) et l'on résout le problème avec les équations de Roothaan-Hall [44]. Cette méthode est communément appelée en anglais *Restricted Hartree-Fock* (RHF).

système à couches ouvertes : les électrons ne sont pas appariés (cas de C_n^+) et on utilise les équations de Pople et Nesbet [45], plus connues sous le nom de *Unrestricted Hartree-Fock* (UHF).

Système à couches fermées : équations de Roothaan-Hall

Dans un tel système, les électrons se regroupent sur des orbitales doublement occupées. Ainsi, la partie spatiale de la fonction d'onde spin-orbite d'un électron de spin α est la même que celui de spin β . En remplaçant dans l'équation HF (1.12) la fonction d'onde par celle obtenue avec l'approximation CLOA (1.14), on obtient :

$$f(1) \sum_{\nu} C_{\nu i} \phi_{\nu}(1) = \epsilon_i \sum_{\nu} C_{\nu i} \phi_{\nu}(1) \quad (1.15)$$

En définissant la matrice de recouvrement $\mathbf{S}$ par $S_{\mu\nu} = \langle \phi_{\mu} | \phi_{\nu} \rangle$, la matrice de Fock $\mathbf{F}$ par $F_{\mu\nu} = \langle \phi_{\mu} | f | \phi_{\nu} \rangle$ et en multipliant l'équation (1.15) par ϕ_{μ}^* puis en l'intégrant, on obtient :

$$\mathbf{F}\mathbf{C} = \mathbf{S}\mathbf{C}\epsilon \quad (1.16)$$

où $\mathbf{C}$ est la matrice carré $K \times K$ des coefficients de combinaison linéaire des *CLOA* :

$$\mathbf{C} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & \cdots & C_{1K} \\ C_{21} & C_{22} & \cdots & C_{2K} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ C_{K1} & C_{K2} & \cdots & C_{KK} \end{pmatrix}$$

et ϵ la matrice diagonale des énergies orbitales ϵ_i :

$$\epsilon = \begin{pmatrix} \epsilon_1 & & & \\ & \epsilon_2 & & 0 \\ & & \ddots & \\ 0 & & & \epsilon_K \end{pmatrix}$$

L'équation matricielle (1.16) est non-linéaire par rapport aux coefficients des orbitales moléculaires $C_{\mu i}$ (voir [46]) à cause de la matrice de Fock $\mathbf{F}$ qui en dépend. Pour résoudre cette équation, il est nécessaire de procéder de manière itérative en injectant un jeu de paramètres initial provenant des caractéristiques de la molécule et du choix de la base des orbitales atomiques $\{\phi_{\mu}\}$. On obtient alors une première matrice de coefficients $\mathbf{C}$ qui est réutilisée puis recalculée. On réitère ce processus jusqu'à ce que le critère d'auto-convergence sur la matrice de Fock $\mathbf{F}$ soit atteint.

Système à couche ouverte : équations de Pople-Nesbet

Dans ce type de système, les électrons ne sont pas appariés. On se retrouve avec un excès d'électrons de spin α par rapport à ceux de spin β ou inversement. La partie spatiale des orbitales de spin-orbite est alors différente pour un spin α et pour un spin β . Il n'y a pas de restriction sur la partie spatiale et on utilise un traitement UHF. On construit un ensemble de fonctions d'onde de spin-orbite définies par :

$$\chi_i(\mathbf{x}) = \begin{cases} \psi_i^{\alpha} \alpha(\omega) \\ \psi_i^{\beta} \beta(\omega) \end{cases} \quad (1.17)$$

On définit ensuite l'ensemble des orbitales moléculaires par :

$$\psi_j^\alpha = \sum_{\mu=1}^K C_{\mu j}^\alpha \phi_\mu \text{ et } \psi_j^\beta = \sum_{\mu=1}^K C_{\mu j}^\beta \phi_\mu \quad (1.18)$$

En effectuant les mêmes opérations que dans le cas des équations de Roothaan-Hall (1.16), on obtient les équations de Pople-Nesbet :

$$\begin{aligned} \mathbf{F}^\alpha \mathbf{C}^\alpha &= \mathbf{S} \mathbf{C}^\alpha \boldsymbol{\epsilon}^\alpha \\ \mathbf{F}^\beta \mathbf{C}^\beta &= \mathbf{S} \mathbf{C}^\beta \boldsymbol{\epsilon}^\beta \end{aligned} \quad (1.19)$$

La résolution de ce système d'équations matricielles se fait de façon identique que dans le cas des équations de Roothaan-Hall mis à part que les deux équations doivent être traitées simultanément pour les deux ensembles d'orbitales car $\mathbf{F}^\alpha$ et $\mathbf{F}^\beta$ dépendent aussi bien de $\mathbf{C}^\alpha$ que de $\mathbf{C}^\beta$.

Cependant, contrairement aux fonctions d'ondes $|\Psi\rangle$ calculées par les équations de Roothaan-Hall, les fonctions d'onde obtenues ici ne sont pas fonctions propres de l'opérateur S^2 . Ceci entraîne ce qu'on appelle *une contamination de spin* qui est plus ou moins importante selon la multiplicité des états électroniques. Les états de faible multiplicité contribuent très peu à cette contamination, contrairement aux états de forte multiplicité.

On retiendra surtout qu'il est important que la contamination de spin demeure relativement faible lors des calculs UHF si l'on souhaite que les résultats obtenus aient une signification physique et décrivent correctement le système.

1.1.3 Méthode Post-Hartree-Fock : Coupled Cluster

Les méthodes utilisées dans la théorie Hartree-Fock ne tiennent pas compte des corrélations électroniques. Autrement dit, l'influence du mouvement d'un électron sur celui des autres n'est pas pris en compte, bien que chaque électron tend à minimiser l'énergie de répulsion existant avec ses voisins. Le but des théories dites *Post-Hartree-Fock* est d'obtenir cette énergie de corrélation afin d'inclure ces effets. On la définit par :

$$E_{corr} = \epsilon_0 - E_0 \quad (1.20)$$

où ϵ_0 est l'énergie exacte du système et E_0 l'énergie HF obtenue avec une base d'orbitale complète. L'énergie absolue calculée n'est pas un paramètre suffisant pour la discussion des configurations trouvées pour une molécule. Il faut aussi tenir compte de l'énergie de corrélation. On dit qu'une méthode est *Size-Consistent* si l'énergie de corrélation croît linéairement avec la taille du système. Ainsi, l'énergie de corrélation calculée des fragments séparés est extensive. Une méthode donnant une description correcte de l'énergie de corrélation E_{corr} et respectant le principe *Size-Consistent* est la méthode *Coupled-Cluster* (CC) [39].

Dans cette méthode, on utilise la fonction d'onde obtenue au niveau HF donnée par l'équation (1.10). En notant par les indices $a, b, c, \dots$ les orbitales occupées et $r, s, t, \dots$ les orbitales virtuelles (vacantes), on construit de nouvelles fonctions d'ondes qui traduisent le passage d'un électron d'un état occupé vers un état virtuel. En

se basant sur la deuxième quantification de la mécanique quantique, on utilise les opérateurs de création $a^\dagger$ et d'annihilation a pour construire les orbitales traduisant le passage d'un électron d'une orbitale occupée vers une orbitale virtuelle (excitation électronique). On obtient ainsi pour une simple excitation de l'état a vers r :

$$a_r^\dagger a_a |\Psi_0\rangle = |\Psi_a^r\rangle \quad (1.21)$$

On peut ainsi définir les opérateurs de simple, double, triple, ... excitation :

$$\begin{aligned} T_1 |\Psi_0\rangle &= \sum_{a,r} c_a^r a_r^\dagger a_a |\Psi_0\rangle = \sum_{a,r} c_a^r |\Psi_a^r\rangle \\ T_2 |\Psi_0\rangle &= \sum_{\substack{a < b \\ r < s}} c_{ab}^{rs} |\Psi_{ab}^{rs}\rangle \\ T_3 |\Psi_0\rangle &= \sum_{\substack{a < b < c \\ r < s < t}} c_{abc}^{rst} |\Psi_{abc}^{rst}\rangle \\ &\dots \end{aligned} \quad (1.22)$$

Dans le cadre de l'approximation de *Coupled Cluster (CC)*, la fonction d'onde s'écrit sous la forme :

$$|\Phi_{CC}\rangle = \exp(T) |\Psi_0\rangle \quad (1.23)$$

où l'opérateur T contient les excitations prises en compte dans la théorie CC, et s'écrit :

$$T = T_1 + T_2 + \dots + T_N \quad (1.24)$$

Par définition, le développement de l'exponentielle s'écrit :

$$\exp(T) = 1 + T + \frac{1}{2}T^2 + \dots = \sum_k \frac{1}{k!} T^k \quad (1.25)$$

Dans le formalisme *CC* on utilise généralement la simple et la double excitation, ce qui permet d'obtenir une énergie de corrélation satisfaisante. La fonction d'onde obtenue s'écrit alors :

$$|\Phi_{CCSD}\rangle = \exp(T_1 + T_2) |\Psi_0\rangle \quad (1.26)$$

et l'équation de Schrödinger devient :

$$H e^T |\Psi_0\rangle = E e^T |\Psi_0\rangle \quad (1.27)$$

En multipliant par $\langle \Psi_0 |$ et en utilisant le développement de l'exponentielle, limité à la double excitation, on obtient :

$$\langle \Psi_0 | H (1 + T_1 + T_2 + \frac{1}{2}T_1^2 + T_1 T_2 + \frac{1}{2}T_2^2) | \Psi_0 \rangle = E_{CC} \langle \Psi_0 | e^T | \Psi_0 \rangle \quad (1.28)$$

En ne conservant que les termes de simple et double excitation et en appliquant le théorème de Brillouin ($\sum_{a,r} c_a^r \langle \Psi_0 | H | \Psi_a^r \rangle = 0$), l'équation (1.28) devient :

$$E_{CC} = E_0 + \sum_{\substack{a < b \\ r < s}} (c_{ab}^{rs} + c_a^r c_b^s + c_a^s c_b^r) \langle \Psi_0 | H | \Psi_{ab}^{rs} \rangle \quad (1.29)$$

En procédant de manière similaire pour les états excités, on obtient le système d'équations Coupled-Cluster :

$$\begin{aligned} c_a^r E_{CC} &= \langle \Psi_a^r | H | \Psi_0 \rangle \\ c_{ab}^{rs} E_{CC} &= \langle \Psi_{ab}^{rs} | H | \Psi_0 \rangle \end{aligned} \quad (1.30)$$

Puis on résout le système afin d'obtenir l'énergie de corrélation $E_{corr} = E_{CC} - E_0$.

1.2 Théorie de la fonctionnelle de la densité

Dans le cadre de la théorie *Coupled Cluster*, on introduit les corrélations électroniques en étendant la fonction d'onde sur une base de fonctions formées à partir de déterminants de Slater à N électrons et générées au moyen d'excitations. La fonctionnelle de la densité permet de calculer l'énergie d'un système en incluant les corrélations électroniques par une autre méthode développée par Hohenberg [47] que nous allons expliquer maintenant.

1.2.1 Expression de l'énergie comme fonction de la densité électronique

Dans la théorie DFT, il est possible de calculer une observable d'un état stationnaire fondamental non-dégénéré à partir de sa densité électronique (théorème de Hohenberg-Kohn [47]). Cette observable peut s'exprimer comme une fonction de la densité électronique de cet état fondamental. Si E_0 est l'énergie électronique de l'état fondamental et ρ_0 sa densité électronique, on a alors $E_0 = E_0[\rho_0]$. Pour un système à N électrons, on décrit le système par sa densité électronique à un corps $\rho(r)$ dont la condition de normalisation s'écrit :

$$\int \rho(r) dr = N \quad (1.31)$$

L'énergie électronique (1.3) se met sous la forme de la somme de l'énergie cinétique électronique T , de l'attraction noyau-électron V_{Ne} et de la répulsion électron-électron V_{ee} :

$$\begin{aligned} E_0[\rho] &= T[\rho] + V_{Ne}[\rho] + V_{ee}[\rho] \\ &= \int \rho(\mathbf{r}) v_n(\mathbf{r}) d\mathbf{r} + F_{HK}[\rho] \end{aligned} \quad (1.32)$$

où $F_{HK}[\rho] = T[\rho] + V_{ee}[\rho]$ est la fonctionnelle de Hohenberg-Kohn et $v_n(\mathbf{r})$ le potentiel entre noyaux et électrons.

1.2.2 Méthode de Kohn-Sham

On ne peut résoudre de manière exacte l'équation (1.32) car on ne connaît pas la fonctionnelle exacte. Si c'était le cas, on pourrait calculer facilement $F_{HK}[\rho]$. Pour calculer l'énergie à partir de la densité électronique, Kohn et Sham [48] proposent

de remplacer le système réel par un système de référence à N électrons n'interagissant pas entre eux et soumis à un potentiel externe effectif $v_s(\mathbf{r})$. Dans ce cas, l'Hamiltonien du système s'écrit :

$$H_s = \sum_{i=1}^N -\frac{1}{2}\nabla^2(i) + \sum_{i=1}^N v_s(i)$$

On introduit une fonction d'onde sous forme d'un déterminant de Slater (1.10) dont les orbitales moléculaires sont obtenues en résolvant les équations :

$$\left[-\frac{1}{2}\nabla^2 + v_s(r)\right] \chi_i = \epsilon_i \chi_i \quad ; \quad \langle \chi_i | \chi_j \rangle = \delta_{ij} \quad (1.33)$$

On obtient alors la densité électronique ainsi que l'énergie cinétique :

$$\rho(r) = \sum_{i=1}^{N_{occ}} |\chi_i(r)|^2 \quad ; \quad T_s[\rho] = \sum_{i=1}^{N_{occ}} \langle \chi_i | -\frac{1}{2}\nabla^2 | \chi_i \rangle \quad (1.34)$$

L'énergie totale du système devient :

$$E[\rho] = T[\rho] + \int \rho(r) v_n(r) dr + V_{ee}[\rho] \quad (1.35)$$

En introduisant l'énergie de répulsion coulombienne $J[\rho] = \frac{1}{2} \iint \frac{\rho(r_1)\rho(r_2)}{|r_1 - r_2|} dr_1 dr_2$, puis $T_c[\rho] = T[\rho] - T_s[\rho]$ la différence entre l'énergie réelle du système et celle du système de référence, et enfin l'énergie d'échange de corrélation de la partie électronique $W_{XC} = V_{ee}[\rho] - J[\rho]$, l'expression de l'énergie donnée en (1.35) devient :

$$E[\rho] = T_s[\rho] + V_{Ne}[\rho] + J[\rho] + T_c[\rho] + W_{XC}[\rho] \quad (1.36)$$

En appliquant le principe variationnel et en regroupant les énergies de corrélation en un terme dit *échange-corrélation* $E_{XC}[\rho] = T_c[\rho] + W_{XC}[\rho]$ on obtient :

$$\frac{\delta E[\rho]}{\delta \rho(r)} = \frac{\delta T_s[\rho]}{\delta \rho(r)} + v_n(r) + \int \frac{\rho(r_2)}{|r_1 - r_2|} dr_2 + \frac{\delta E_{XC}[\rho]}{\delta \rho(r)} = \mu \quad (1.37)$$

où μ est le coefficient indéterminé de *Lagrange* correspondant au potentiel chimique. On peut simplifier cette équation en utilisant un potentiel effectif :

$$\frac{\delta T_s[\rho]}{\delta \rho(r)} + v_{eff} = \mu \quad (1.38)$$

Dans ce travail, on se sert d'une fonctionnelle hybride, appelée *B3LYP* (provenant de Lee, Yang et Parr [49], de Becke [50] et Perdew et collaborateurs [51]), afin d'obtenir l'énergie de corrélation E_{XC} dans l'équation (1.37). Une estimation initiale des orbitales atomiques $\chi_i(r)$ est faite, ce qui permet de calculer la densité électronique $\rho(r) = \sum_{i=1}^{N_{occ}} |\chi_i(r)|^2$. On calcule le potentiel effectif v_{eff} puis on résout l'équation (1.33) en remplaçant $v_s(r)$ par v_{eff} . On continue le processus jusqu'à ce qu'il converge. Pour les agrégats de carbone, certains problèmes de convergence peuvent apparaître. Ceci a été étudié par Bauernschmitt et Ahlrichs [40]. Les résultats obtenus par cette méthode tiennent compte de ces problèmes de convergence.

1.3 Résultats obtenus avec les méthodes CCSD(T) et DFT

1.3.1 Base des fonctions d'onde utilisées

Afin d'obtenir une expression analytique des fonctions d'onde utilisées pour effectuer les calculs d'intégrale, S. Tendero, F. Martin et M. Alcamí [46] se sont servis d'un jeu de gaussiennes provenant de la théorie *G2* et du programme Gaussian98 [52] en utilisant des orbitales de Slater (*STO*). Ce type d'orbitales donne de bons résultats pour les calculs atomiques. Cependant, leur manipulation devient plus complexe lorsqu'on les utilise pour effectuer des calculs sur des systèmes à plusieurs centres. Une manière de contourner cette difficulté est d'exprimer les orbitales moléculaires comme des combinaisons linéaires de fonctions gaussiennes, ce qui donne :

$$\phi_i = \sum_n C_{in} g_n \quad (1.39)$$

où g_n correspond à une fonction gaussienne primitive. Par exemple, les gaussiennes de type $1s$ ou $2p_x$ s'écriront :

$$\begin{aligned} g_{1s}(\alpha \mathbf{r}) &= \left(\frac{8\alpha^3}{\pi^3} \right)^{1/4} e^{-\alpha r^2} \\ g_{2p_x}(\alpha \mathbf{r}) &= \left(\frac{128\alpha^5}{\pi^3} \right)^{1/4} x e^{-\alpha r^2} \end{aligned} \quad (1.40)$$

Le nombre de gaussiennes utilisées permet d'affiner l'expression de la fonction d'onde. Pour commencer, on se sert d'une base minimale. Elle est limitée à l'utilisation d'une base de gaussiennes primitives correspondant aux fonctions d'onde associées aux couches internes et de valences occupées dans l'état fondamental. Cette base n'est pas suffisante pour décrire correctement la molécule car il n'est pas possible de distinguer un atome isolé ou lié à la molécule. Pour remédier à cette indétermination, on introduit les bases *Double- ζ* si l'on modifie toutes les fonctions de la base minimale ou *Split Valence* si la modification porte uniquement sur les orbitales de valence. Cela consiste à dédoubler la base minimale avec des fonctions contraintes (l'une avec un exposant élevé et l'autre avec un faible exposant) afin de permettre l'expansion ou la contraction du nuage électronique. Pour augmenter encore la flexibilité, on peut séparer la base minimale en trois fonctions contraintes (triple- ζ) ou plus si nécessaire. La plus utilisée est la base triple-zeta *6-311G*. Chaque orbitale interne est représentée sur une base de 6 gaussiennes primitives, et chaque orbitale de valence est représentée par 3 fonctions contraintes dont la première est formée de 3 gaussiennes primitives, la deuxième et la troisième par une seule. Cette base permet d'améliorer les résultats de manière significative par rapport à ceux obtenus en utilisant une base base double- ζ . Enfin, pour introduire les effets moléculaires comme la délocalisation des électrons, on introduit des fonctions de polarisation et des fonctions diffuses. Les fonctions de polarisation permettent d'inclure les effets de champ subis par un atome provenant des atomes voisins, en mélangeant des orbitales atomiques de moment orbitales différents (L) mais ayant la même composante suivant l'axe Oz (L_z). Quant aux

fonctions diffuses, elles sont utilisées pour décrire les électrons peu liés (agrégats alcalins par exemple) ou éloignés des noyaux. Tous les calculs présentés dans le paragraphe suivant sont obtenus en utilisant pour chaque atome de carbone une base $6-311+G(3df)$, ce qui correspond à la base triple- ζ , modifiée par des fonctions de polarisation de type $3df$ et des fonctions diffuses de type sp .

1.3.2 Résultats

Nous présentons ici les résultats obtenus pour les agrégats neutres. Ils ont été obtenus en optimisant la géométrie par le calcul DFT puis en l'utilisant pour le calcul CCSD(T) [46]. Pour les cas du C_2 et du C_4 certains problèmes de stabilité ont été rencontrés mais surmontés par une transformation $RHF \rightarrow UHF$ (voir [53]). Ceci a permis le calcul de l'énergie totale, la correction en énergie du point zéro (ZPE) due à la vibration et enfin les énergies de liaison. Ici, nous avons présenté les isomères les plus stables, c'est-à-dire ceux ayant l'énergie totale la plus basse.

Plusieurs remarques peuvent être faites. Tout d'abord, pour les agrégats ayant un nombre impair d'atomes, la forme linéaire est la plus stable. Ceci est tout à fait cohérent avec les calculs effectués antérieurement par d'autres équipes [33] [34] [36], [54] [55]. Ensuite, pour les agrégats pairs, la détermination de la structure la plus stable est loin d'être aisée. En effet, il y a systématiquement une contradiction entre les prédictions des théories DFT et CCSD(T). La première prévoit la structure linéaire comme ayant la plus basse énergie de liaison alors que l'autre prévoit la structure cyclique. Cette indétermination est au coeur des débats depuis quelques années et de nombreux travaux obtiennent la même contradiction entre les deux théories pour le C_4 et le C_6 [35] [36] [54] [56]. Les discussions sur le sujet sont toujours d'actualité. Il est donc prématuré de conclure sur ce sujet.

Énergies totale et de liaison pour les agrégats de carbone neutres C_n

espèce	Système		Énergies DFT/B3LYP		Énergies CCSD(T)	
	géométrie		E+ZPE	B	E+ZPE	B
C	Atome (1D)		-37.77207	-	-37.72589	-
C	Atome (3P)		-37.85744	-	-37.77917	-
C_2	$L(D_{\infty h})$	$^1\Sigma_g^+$	-75.90147	5.08	-75.77837	5.99
C_2	$L(D_{\infty h})$	$^3\Pi_u$	-75.93848	6.08	-75.75791	5.43
C_3	$L(D_{\infty h})$	$^1\Sigma_g^+$	-114.07539	7.60	-113.82422	7.26
C_3	$L(D_{\infty h})$	$^3\Pi_u$	-113.99874	5.52	-113.74810	5.19
C_3	$C(C_{2v})$	1A_g	-114.02963	6.36	-113.78543	6.20
C_3	$C(D_{3h})$	3A_1	-114.04519	6.78	-113.79267	6.40
C_4	$L(D_{\infty h})$	$^1\Sigma_g^+$	-152.10010	4.55	-151.76200	4.32
C_4	$L(D_{\infty h})$	$^3\Sigma_g^-$	-152.12857	5.33	-151.73920	3.70
C_4	$C(D_{2h})$	1A_g	-152.10407	4.66	-151.78067	4.82
C_4	$C(D_{2h})$	$^3B_{3u}$	-152.11652	3.84	-151.74738	3.92
C_5	$L(D_{\infty h})$	$^1\Sigma_g^+$	-190.24820	6.38	-189.81595	5.81
C_5	$L(D_{\infty h})$	$^1\Pi_g$	-190.16465	4.10	-189.73064	3.49
C_5	$C(C_s)$	$^1A'$	-190.04707	0.90	-189.64652	1.20
C_5	$C(C_2)$	3B	-190.12166	3.44	-189.70491	2.79
C_6	$L(D_{\infty h})$	$^1\Sigma_g^+$	-228.28915	3.77	-227.77243	3.37
C_6	$L(D_{\infty h})$	$^3\Sigma_g^-$	-228.31048	4.35	-227.77657	3.49
C_6	$C(D_{3h})$	$^1A'_1$	-228.29685	3.98	-227.79560	4.00
C_6	$C(C_{2v})$	3B_2	-228.25391	2.81	-227.70536	1.55
C_7	$L(D_{\infty h})$	$^1\Sigma_g^+$	-266.42000	5.88	-265.80739	5.51
C_7	$L(D_{\infty h})$	$^1\Pi_u$	-266.36529	4.39	-265.73061	3.42
C_7	$C(C_{2v})$	1A_1	-266.33790	3.64	-265.78847	5.00
C_7	$C(C_{2v})$	3B_2	-266.37022	4.52	-265.76765	4.43
C_8	$L(D_{\infty h})$	$^1\Sigma_g^+$	-304.47154	4.03	-303.80799	4.57
C_8	$L(D_{\infty h})$	$^3\Sigma_g^-$	-304.48876	4.49	-303.80774	4.56
C_8	$C(C_{4h})$	1A_g	-304.45964	3.70	-303.82401	5.00
C_8	$C(D_{4h})$	$^3A_{2g}$	-304.45146	3.48	-303.80000	4.35
C_9	$L(D_{\infty h})$	$^1\Sigma_g^+$	-342.59250	5.87	-341.84056	6.00
C_9	$L(D_{\infty h})$	$^3\Pi_u$	-342.57871	5.50	-341.79365	4.73
C_9	$C(C_{2v})$	1A_1	-342.55936	4.97	-341.81573	5.33
C_9	$C(C_{2v})$	3B_2	-342.54189	4.49	-341.80598	5.07

Tab. 1.1: Présentation des principaux résultats issus des théories DFT(B3LYP) et CCSD(T). E+ZPE est l'énergie absolue corrigée par l'énergie de vibration au point zéro exprimée en unité atomique. B est la première énergie de liaison exprimée en eV en utilisant les géométries les plus stables.

Chapitre 2

Dynamique de fragmentation

Lorsqu'un agrégat possède une énergie interne, les principes physiques fondamentaux lui imposent de se placer dans la configuration la plus stable en dissipant une partie ou la totalité de cette énergie stockée. Pour y parvenir, il peut émettre des photons (Kreisle et al. [57]), des électrons (effet Auger ou émission thermoionique, Campbell et al. [11]) ou la répartir sur les modes de vibration de sa structure par un couplage électron-phonon. Ces trois mécanismes peuvent entrer en compétition selon la nature de l'agrégat et de l'excitation.

Dans le cas de collisions à haute vitesse d'un agrégat avec un atome, l'énergie est déposée en un temps très bref ($\sim 10^{-15}$ s pour une vitesse de 2.6 *ua*). L'énergie est déposée sur les états électroniques et se dissipe en se répartissant entre le processus d'émission de photons et celui de couplage avec les états vibrationnels des centres ioniques (électron-phonon).

L'émission de photon est alors statistique et dépend de la densité d'états accessibles par désexcitation selon la règle d'or de Fermi. Si un électron se désexcite vers une couche interne libre, le photon émis peut avoir une énergie suffisante pour ioniser un électron externe. On obtient alors l'émission d'un électron Auger. La densité des états vibrationnels étant importante et les temps caractéristiques pour le couplage électron-phonon étant courts ($10^{-13} - 10^{-12}$ s), l'émission de photons peut être négligée comme voie de désexcitation de l'agrégat. On se trouve alors après la collision dans une situation où l'agrégat voit son énergie interne répartie entre ses états vibrationnels (degrés de libertés de vibration et rotation).

Ce couplage peut se produire dans le sens inverse. Ainsi, on peut exciter à nouveau un électron. Si l'énergie interne stockée est du même ordre de grandeur que l'énergie de ionisation, on peut avoir l'émission d'un électron par effet thermoionique. Mais ce phénomène dépend fortement de l'écart entre le potentiel d'ionisation et la première énergie de dissociation de l'agrégat (Ganteför et al [58]). Dans le cas des agrégats de carbone, l'écart entre ces énergies ($IP = 11.6$ eV et $Ed \sim 4 - 7$ eV [37] [46] [59]) est suffisamment important pour négliger ce processus. On considère que la fragmentation est alors la voie prédominante de désexcitation si elle dépasse le seuil de dissociation de l'agrégat.

On assiste ensuite à la thermalisation de l'agrégat, ce qui nous amène à traiter la fragmentation avec une vision statistique. Dans cet esprit, S. Tendero et P.A. Hervieux [à paraître] ont conçu deux codes de calculs pour traiter la réaction. Le

premier que nous allons présenter, est une version séquentielle du modèle de *Weisskopf*, qui permet d’obtenir les rapports de branchement (proportion d’une voie de fragmentation par rapport aux autres voies possibles) à un temps donné après la collision. Le deuxième est basé sur un code de calcul *Metropolis Monte Carlo* traitant la fragmentation en suivant l’entropie du système. Ceci permet de prendre en compte un plus grand nombre de paramètres mais on considère alors le système à un temps infini après la collision.

2.1 Modèle de Weisskopf séquentiel

Le modèle de Weisskopf provient de l’étude de la matière nucléaire [41] et prévoit, en fonction de l’énergie du système étudié, sa probabilité de se séparer en deux (fragmentation). C’est la maille élémentaire pour effectuer un calcul séquentiel. En effet, la probabilité d’émettre un fragment nous donne le taux de dissociation en fonction des densités d’états avant et après la fission. Dans ce cas, on parle aussi d’évaporation car on regarde le taux d’émission d’un fragment depuis l’agrégat parent possédant une énergie interne (énergie thermique initiale et énergie d’excitation).

Cette adaptation séquentielle a déjà fait ses preuves pour l’étude d’agrégats métalliques (Hervieux et collaborateurs [60]). Pour appliquer ce modèle, on pose l’hypothèse que la désexcitation de l’agrégat se fait de manière séquentielle. On calcule la constante d’évaporation après chaque fission ce qui nous mène à résoudre un système d’équations différentielles dépendant du temps. La solution obtenue pour un temps fixé nous fournit les rapports de branchement entre les différentes voies de fragmentation en fonction d’une énergie interne de départ. Dans notre cas, quatre approximations sont faites :

1. l’énergie déposée ne dépend pas du paramètre d’impact ;
2. la densité d’énergie des niveaux vibrationnels est calculée dans l’approximation harmonique ;
3. on utilise un modèle statistique pour l’étude d’un système n’ayant pas toujours un grand nombre d’états ;
4. les effets rotationnels de l’énergie cinétique sont négligés.

Les calculs qui vont suivre ont été adaptés par S. Tenders et P.A. Hervieux [à paraître] depuis le modèle utilisé pour les agrégats de sodium [60] et permettent d’obtenir le taux d’évaporation de fragments de différentes tailles depuis un agrégat constitué de N atomes à un temps fixé après l’apport d’énergie. L’inconvénient de ce modèle est que la nature des isomères apparaissant dans le chemin de fragmentation doit être préalablement définie. Du fait du nombre d’isomères apparaissant dès le C_4 , les calculs n’ont pas encore été effectués pour des agrégats de taille supérieure à $N = 7$.

Quelle que soit la taille du fragment émis, on utilise la règle de *Fermi* qui donne la vitesse de transition par unité de temps depuis un état initial i vers un état final f par la relation en fonction de l’énergie interne E_N^* de l’agrégat de taille N :

$$\frac{N_{if}}{dt} = \frac{2\pi}{\hbar} |M_{if}|^2 \rho_f(E_N^*) \quad (2.1)$$

où $\rho_f(E_N^*)$ est la densité de niveaux de l'état final f et M_{if} l'élément de la matrice de transition correspondant. On s'attachera essentiellement à exprimer ces deux termes selon le cas considéré. La densité d'états vibrationnels s'exprime en fonction de l'énergie interne de l'agrégat dans l'approximation harmonique par la relation :

$$\rho_{int}^v(E) = \frac{E^{s-1}}{\Gamma(s) \prod_{i=1}^s h\nu_i} \quad (2.2)$$

où s est le nombre de degrés de liberté, $\Gamma(s)$ la fonction *gamma* et ν_i la fréquence de vibration du mode i dans l'approximation harmonique. Afin de tenir compte de la multiplicité de spin et du moment orbital du fragment, on introduit la densité d'énergie électronique de l'espèce i :

$$\rho_i^e = (2S_i + 1)(2L_i + 1) \quad (2.3)$$

Enfin, on tient compte de l'énergie cinétique du fragment émis et la densité d'états qui y est associée s'exprime :

$$\rho_i^t(e) \equiv \int \frac{d^3r d^3p}{(2\pi\hbar)^3} \delta\left(e - \frac{p^2}{2\mu_i}\right) = \frac{\Omega 4\pi\mu_i p}{(2\pi\hbar)^3} de \quad (2.4)$$

où μ_i est la masse réduite du fragment, p son impulsion et Ω le volume de normalisation. En utilisant les densités d'états exprimées par (2.2), (2.3) et (2.4), on exprime la densité totale d'énergie du fragment i :

$$\rho_i(e) = \rho_i^e \rho_i^t \rho_i^v(e) \quad (2.5)$$

Une approximation importante est faite : dans l'expression (2.4), on ne tient pas compte de la densité d'états de l'énergie cinétique due à la rotation des fragments que l'on considère comme négligeable devant celle de l'énergie cinétique purement translationnelle.

Nous allons maintenant exprimer les constantes d'évaporation à l'aide des densités d'états présentées ci-dessus. Nous présenterons les calculs uniquement pour l'évaporation du monomère et du dimère.

2.1.1 Évaporation d'un monomère

La densité de l'état final pour l'évaporation d'un monomère s'écrit comme la convolution de celle de l'agrégat de taille $N - 1$ et de celle de l'atome évaporé :

$$\rho_f(E_N^*) = \int_0^{E_N^* - D_{N,1}} \rho_1(e) \rho_{N-1}(E_N^* - D_{N,1} - e) de \quad (2.6)$$

où $D_{N,1}$ est l'énergie de dissociation de l'agrégat N nécessaire à l'émission d'un monomère, ρ_1 et ρ_{N-1} sont les densités d'états exprimées dans (2.5). Dans le cas du monomère (atome), il n'existe pas de densité d'états vibrationnels ρ_1^v . Elle sera donc prise égale à l'unité. Pour la réaction inverse à la fragmentation, on obtient le taux de fusion par une relation analogue à celle du taux de fragmentation (2.1) :

$$\frac{N_{fi}}{dt} = \frac{2\pi}{\hbar} |M_{fi}|^2 \rho_i(E_N^*) = j_f \sigma(e) \quad (2.7)$$

où $j_f = p/(\Omega\mu_1)$ et σ sont respectivement le flux et la section efficace de la réaction de fusion (collision). En considérant que l'énergie interne est répartie sur tous les degrés de libertés avant la réaction (équilibre), on peut utiliser le principe du bilan détaillée ($|M_{if}|^2 = |M_{fi}|^2$ et l'équation (2.7) pour obtenir l'expression de $|M_{if}|^2$. Ainsi, en injectant les équations (2.5) et (2.6) dans l'équation (2.1) et en utilisant les expressions de $|M_{if}|^2$ et de ρ_1^t , on obtient :

$$\frac{dN_{if}}{dtde} = \frac{1}{2\pi^2\hbar^3} \frac{\rho_1^e(e)\rho_{N-1}^e\rho_{N-1}^v(E_N^* - D_{N,1} - e)}{\rho_N^e\rho_N(E_N^*)} p^2 \sigma(e) de \quad (2.8)$$

En posant l'énergie cinétique $e = \frac{p^2}{2\mu_1}$ et en intégrant sur l'énergie cinétique du monomère émis, on obtient alors :

$$\frac{dN_{if}}{dt} \equiv k_{N,1}(E_N^*) = \frac{\mu_1}{\pi^2\hbar^3} \int_0^{E_N^* - D_{N,1}} \frac{\rho_1^e(e)\rho_{N-1}^e\rho_{N-1}^v(E_N^* - D_{N,1} - e)}{\rho_N^e\rho_N(E_N^*)} \sigma(e) e de \quad (2.9)$$

Ceci représente la constante d'évaporation d'un monomère depuis un agrégat de taille N où σ est la section efficace géométrique de l'agrégat qui s'exprime dans le modèle classique de Weisskopf $\sigma = \pi R_C^2$. On exprime l'énergie cinétique moyenne du monomère émis par :

$$\bar{e}_{N,1} = \frac{1}{k_{N,1}} \left[\frac{\mu_1}{\pi^2\hbar^3} \int_0^{E_N^* - D_{N,1}} \frac{\rho_1^e(e)\rho_{N-1}^e\rho_{N-1}^v(E_N^* - D_{N,1} - e)}{\rho_N^e\rho_N(E_N^*)} \sigma(e) e^2 de \right] \quad (2.10)$$

Et l'énergie moyenne d'excitation restant dans l'agrégat est la différence entre son énergie initiale et celle transmise au monomère, ce qui s'écrit :

$$\bar{E}_{N,1}^* = E_N^* - \bar{e}_{N,1}$$

2.1.2 Évaporation d'un dimère

Dans le cas de l'évaporation d'un dimère, il faut inclure le nombre de degrés de liberté du dimère évaporé. La densité d'états vibrationnels n'est plus égale à l'unité comme dans le cas du monomère. Ainsi, l'équation (2.6) devient :

$$\rho_f(E_N^*) = \int_0^{E_N^* - D_{N,2}} \rho_2(e') \rho_{N-2}^v(E_N^* - D_{N,2} - e') de' \quad (2.11)$$

On définit $x = e' - e \in [0, D_{2,1}]$ comme l'énergie de vibration du dimère évaporé et $D_{2,1}$ l'énergie de dissociation du dimère depuis l'agrégat parent. Le dimère évaporé possède un nombre de degrés de liberté interne associé à la fréquence angulaire classique de l'oscillateur harmonique ω_d . La densité d'état correspondante est :

$$\rho_2^v(x) = \frac{1}{\hbar\omega_d} \Theta [D_{2,1} - x] \quad (2.12)$$

où Θ est la fonction d'Heaviside. La densité des niveaux translationnels est la même que dans l'équation (2.4) où la masse réduite μ_1 du monomère est remplacée par celle du dimère μ_2 :

$$\rho_2^t(e) \equiv \frac{\Omega 4\pi\mu_2 p}{(2\pi\hbar)^3} de \quad (2.13)$$

On en déduit que la probabilité d'évaporation d'un dimère par unité de temps, d'énergie vibrationnelle et d'énergie cinétique est donnée par :

$$\frac{dN_{if}}{dt dx de} = \frac{2\pi}{\hbar} |M_{if}|^2 \rho_2^e \rho_2^v(x) \rho_2^t(e) \rho_{N-2}^e \rho_{N-2}^v(E_N^* - D_{N,2} - e - x) \quad (2.14)$$

où $x \in [0, D_{2,1}]$ et $e \in [0, E_N^* - D_{N,2} - x]$. Comme pour l'évaporation du monomère, on utilise le principe du bilan détaillée pour expliciter le coefficient de la matrice de transition M_{if} appliqué au cas du dimère :

$$|M_{if}|^2 = |M_{fi}|^2 = \frac{\hbar}{2\pi} j_f \sigma(e) \frac{1}{\rho_N(E_N^*)} \quad (2.15)$$

où $j_f = p/(\mu_2 \Omega)$ est le flux de la réaction de fusion (collision) et $\sigma = \pi R_C^2$ la section efficace géométrique classique. En utilisant les équations (2.1) et (2.13)-(2.15), on obtient la constante d'évaporation d'un dimère depuis l'agrégat parent de taille N par :

$$\frac{N_{if}}{dt} \equiv k_{N,2}(E_N^*) = \frac{\mu_2}{\hbar^3 \pi^2} \frac{1}{\hbar \omega_d} \int_0^\alpha dx \int_0^{E_N^* - D_{N,2} - x} \frac{\rho_2^e \rho_{N-2}^e \rho_2^v(x) \rho_{N-2}^v(E_N^* - D_{N,2} - e - x)}{\rho_N^2 \rho_N^v(E_N^*)} \sigma(e) e de \quad (2.16)$$

avec

$$\alpha = \begin{cases} E_N^* - D_{N,2} & \text{pour } E_N^* - D_{N,2} \leq D_{2,1} \\ D_{2,1} & \text{pour } E_N^* - D_{N,2} > D_{2,1} \end{cases}$$

On obtient respectivement les énergies moyennes cinétique et de vibration du dimère émis par les relations :

$$\bar{e}_{N,2} = \frac{1}{k_{N,2}} \left[\frac{\mu_2}{\hbar^3 \pi^2} \frac{1}{\hbar \omega_d} \int_0^\alpha dx \int_0^{E_N^* - D_{N,2} - x} \frac{\rho_2^e \rho_{N-2}^e \rho_2^v(x) \rho_{N-2}^v(E_N^* - D_{N,2} - e - x)}{\rho_N^2 \rho_N^v(E_N^*)} \sigma(e) e^2 de \right] \quad (2.17)$$

$$\bar{x}_{N,2} = \frac{1}{k_{N,2}} \left[\frac{\mu_2}{\hbar^3 \pi^2} \frac{1}{\hbar \omega_d} \int_0^\alpha x dx \int_0^{E_N^* - D_{N,2} - x} \frac{\rho_2^e \rho_{N-2}^e \rho_2^v(x) \rho_{N-2}^v(E_N^* - D_{N,2} - e - x)}{\rho_N^2 \rho_N^v(E_N^*)} \sigma(e) e de \right] \quad (2.18)$$

L'énergie moyenne d'excitation de l'agrégat $N - 2$ restant est :

$$\bar{E}_{N,2}^* = E_N^* - \bar{e}_{N,2} - \bar{x}_{N,2}$$

2.1.3 Évaporation d'un trimère et de fragments plus gros

Nous ne détaillerons pas les expressions ici (Hervieux et al. [à paraître]). Il est cependant important de mentionner la particularité de ce type de fragment dans le cadre de ce modèle. La complexité du traitement de l'évaporation du trimère (valable pour les fragments de masse supérieure) réside dans le fait qu'il existe des isomères dans la structure des $C_{n \geq 3}$. Ces fragments se présentent sous forme linéaire ou cyclique et chaque géométrie peut avoir des isomères. L'expression de la densité d'états du fragment évaporé est ainsi différente selon l'isomère utilisé puisque le nombre de degré de liberté n'est pas le même. Ainsi, le cas de l'évaporation du C_3 peut être

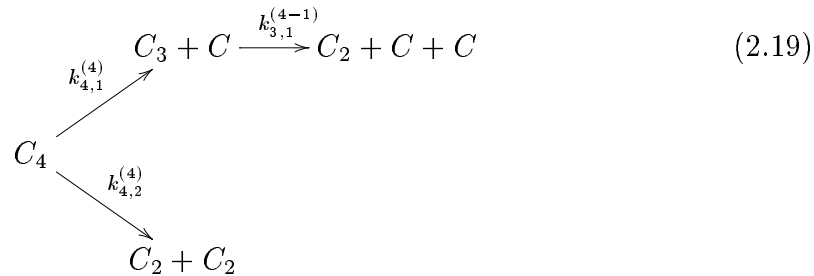
traité en considérant deux isomères. Il convient alors de calculer les constantes d'évaporation pour chacun. Cependant, connaissant l'isomère le plus stable, nous nous servons des résultats obtenus pour celui-ci.

Mais pour l'évaporation de C_4 , la situation est encore plus complexe. La géométrie la plus stable n'est définitivement pas fixée puisque différentes études (*DFT* et *CCSD(T)*) donnent des résultats contradictoires quant à leur géométrie. Comme il est nécessaire de préciser la nature des isomères apparaissant dans le schéma de fragmentation considéré, le traitement de l'évaporation du C_4 n'a pas encore été effectué.

2.1.4 Modèle séquentiel de fragmentation

Les constantes d'évaporation obtenues nous permettent de construire un système d'équations couplées afin de traiter séquentiellement la fragmentation. Pour illustrer le principe, nous allons détailler le calcul pour la fragmentation du C_4 . Pour les masses supérieures, le principe demeure identique et c'est le nombre d'équations du système qui va augmenter. De plus, il est nécessaire de bien préciser les isomères utilisés dans les schémas de fragmentation. La constante d'évaporation $k_{N,x}^{(y)}$ indique l'évaporation d'un fragment de taille x depuis l'agrégat de taille N provenant lui-même de la réaction y . On garde ainsi un historique de la réaction. L'évaporation d'un monomère depuis un dimère ne figure pas dans ces équations. En effet, dans ce cas l'agrégat parent restant est le monomère. Celui-ci ne possédant pas de densité d'énergie de vibration, il ne peut pas être traité par le modèle de *Weisskopf*. Dans ce cas, la densité d'états du dimère étant faible, on peut considérer que la fragmentation s'effectue dès que l'énergie interne dépasse le seuil de dissociation.

Dans le cas du C_4 , on choisit les isomères apparaissant dans la fragmentation (par exemple, tous linéaires) et on obtient le schéma de fragmentation suivant :



Ainsi, en exprimant les populations de chaque voie de fragmentation, on obtient un système d'équations dépendant du temps :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dn_4^{(4)}}{dt} = -n_4^{(4)}(k_{4,1}^{(4)} + k_{4,2}^{(4)}) \text{ avec } k_{4,1}^{(4)} + k_{4,2}^{(4)} = k_4^{(4)} \\ \frac{dn_3^{(4-1)}}{dt} = n_4^{(4)} k_{4,1}^{(4)} - n_3^{(4-1)} k_{3,1}^{(4-1)} \\ \frac{dn_2^{(4-2)}}{dt} = n_4^{(4)} k_{4,2}^{(4)} \\ \frac{dn_2^{(4-1-1)}}{dt} = n_3^{(4-1)} k_{3,1}^{(4-1)} \end{array} \right. \tag{2.20}$$

Ainsi, l'intégration du système (2.20) se fait de manière exacte et nous donne les populations de chacune des voies de fragmentation en fonction de l'énergie interne de départ contenue dans le C_4 pour un temps fixé. Pour les agrégats de masse supérieure, on procède de manière similaire en utilisant un nombre d'équations correspondant au nombre de voies de fragmentation possibles. Les expressions obtenues dans ces cas sont disponibles dans les travaux effectués par S. Díaz-Tendero et collaborateurs [46].

Le grand intérêt du modèle de Weisskopf est de pouvoir prédire les rapports de branchement en tenant compte du temps de vol de l'expérience. Ainsi, pour intégrer les conditions expérimentales, la distance à laquelle on détecte les fragments est introduite par le temps de vol entre la chambre de collision et le détecteur (voir 1 p. 53). On effectue le calcul en affectant à t la valeur du temps de vol de l'expérience. Ceci n'est pas possible avec la méthode que nous allons présenter maintenant.

2.2 Calcul Metropolis

Afin de tenir compte des effets entropiques et de rotation de l'agrégat, un modèle statistique a été développé par P-A Hervieux et S. Diaz Tendero [à paraître] pour le calcul des rapports de branchement issus de la fragmentation des agrégats de carbone. Ce modèle a été initié dans le cadre de la physique nucléaire par Gross et collaborateurs ([61]-[62]) afin d'étudier la fragmentation d'ions lourds lors de réactions nucléaires à haute énergie (entre ~ 10 MeV et 2 GeV). Il a ensuite été adapté par Hervieux et Gross [42] afin de modéliser la fragmentation d'agrégats métalliques de sodium. Du fait de la nature du système étudié (agrégat isolé avec une énergie interne initiale sans échange avec l'extérieur), on se place dans l'ensemble microcanonique. Dans ce cas, les transitions internes se font essentiellement dans l'espace des phases, accessible par les lois de conservation de la masse, la charge, l'énergie totale, ainsi que des moments cinétiques et des quantités de mouvement. Cependant, les théories statistiques ignorent toute information concernant la dynamique de la fragmentation, notamment au niveau de l'aspect temporel. En effet, le résultat de ce type de calcul donne une information pour un temps dit *infini*. L'intérêt principal de l'étude de la structure de l'espace des phases par un calcul Metropolis Monte Carlo dans l'ensemble microcanonique (MMMC) est de rendre accessible quantitativement les propriétés thermodynamiques de ce type de système (énergie interne, température, etc...).

Dans ce type d'approche, on ne s'intéresse pas à la dynamique de l'excitation interne de l'agrégat qui est traitée comme un réservoir thermique que l'on considère comme une énergie moyenne sans tenir compte de ses fluctuations (valable pour un grand nombre d'évènements). Mais on les inclut en invoquant le principe de conservation de l'énergie. Le traitement dans l'ensemble microcanonique est tout à fait valable puisqu'un agrégat libre est un petit système de taille finie sans bain de température mais ayant une énergie constante après la collision (énergie interne avant collision + énergie d'excitation). Cette approche est justifiée par le fait que l'énergie déposée sous forme d'excitation électronique est transférée sur les modes internes en un temps très court ($\sim 10^{-13} - 10^{-12}$ s). Contrairement au cas des noyaux (décrits

par une répartition statistique de *Bose-Einstein*), l'espace des phases correspondant à l'excitation interne joue un rôle très important dans la fragmentation des agrégats du fait que le système est alors décrit par une répartition statistique de *Fermi-Dirac*. Cette différence résulte de l'application du principe d'exclusion de *Pauli* aux systèmes de fermions qui conduit à une densité d'états inférieure d'environ deux ordres de grandeurs par rapport à un système bosonique. L'excitation interne va donc jouer un rôle beaucoup plus important. On effectue cependant une approximation forte : on traite cette excitation dans le modèle de l'oscillateur harmonique et ses variations sont de faible amplitude. Contrairement aux cas dans lesquels ce modèle a déjà été utilisé ([63], [64] et [65]), les monomères sont inclus dans leur état fondamental.

La particularité de ce calcul est de considérer le système à l'équilibre thermodynamique, c'est-à-dire pour des entropies proches du maximum global. Ceci permet d'explorer toutes les configurations possibles de l'espace des phases. On dit alors que le système se trouve à l'*infini* (temps très long après la collision).

2.2.1 Principe de la méthode

La situation est traitée dans l'ensemble microcanonique. On désigne par Ω , l'espace des phases formé par toutes les configurations possibles d'un agrégat constitué de N atomes. Un état de cet espace est alors noté :

$$\mathbf{X} = \left\{ N_f; \{G_i\}_{i=1}^{N_f}; \{N_j, Z_j, S_j, L_j\}_{j=1}^{N_f}; \{\mathbf{r}_j\}_{j=1}^{N_f}; \{\mathbf{p}_j\}_{j=1}^{N_f}; \{\phi_j\}_{j=1}^{N_f}; \{\mathbf{I}_j\}_{j=1}^{N_f}; \{E_j^*\}_{j=1}^{N_f} \right\}$$

N_f est le nombre de fragments, G_i leur géométrie, $\{N_j, Z_j, S_j, L_j\}_{j=1}^{N_f}$ la masse, la charge, la multiplicité de spin et le moment orbital de chaque fragment ($\sum_{j=1}^{N_f} N_j = N$). $\{\mathbf{r}_j\}_{j=1}^{N_f}$ est la position du fragment j , choisie pour qu'il n'y ait pas de recouvrement (approximation de sphères dures), $\{\mathbf{p}_j\}_{j=1}^{N_f}$ est la quantité de mouvement, $\{\phi_j\}_{j=1}^{N_f}$ les angles de rotation qui déterminent leur orientation dans l'espace, $\{\mathbf{I}_j\}_{j=1}^{N_f}$ est le moment cinétique et $\{E_j^*\}_{j=1}^{N_f}$ leur énergie interne d'excitation. Dans toute la suite, nous ne parlerons pas de l'énergie de répulsion coulombienne, puisque tous les fragments portent une charge nulle.

Pour obtenir la valeur moyenne $\langle F \rangle$ d'une observable F de cet espace, on effectue une intégration sur celui-ci par un calcul de type *Monte Carlo* :

$$\langle F \rangle = \frac{\int_{\Omega} F(\mathbf{x}) w(\mathbf{x}) d\mathbf{x}}{\int_{\Omega} w(\mathbf{x}) d\mathbf{x}} \quad (2.21)$$

où $\frac{w(\mathbf{x})}{\int_{\Omega} w(\mathbf{x}) d\mathbf{x}}$ est la distribution de probabilité de l'ensemble Ω et $\mathcal{Z} = \int_{\Omega} w(\mathbf{x}) d\mathbf{x}$ sa fonction de partition.

A l'équilibre microcanonique, toutes les configurations peuvent être accessibles. Du fait de la grandeur de l'espace des phases considéré, on va calculer uniquement les poids statistiques associés aux observables accessibles d'un espace réduit mais formant la région de l'espace ayant l'entropie la plus élevée. Le principe de l'algorithme est de trouver cette région. On associe un poids statistique W à un état $\mathbf{x}$. Pour explorer l'espace des phases, on procède de la manière suivante :

- on part de l'état initial $\mathbf{x}_i$ et on lui associe le poids W_i . On se déplace alors vers un état voisin en modifiant d'une petite quantité une des variables associées à $\mathbf{x}$.
- on calcule le poids W_f de ce nouvel état et il est accepté avec la probabilité $P = \min(1, W_f/W_i)$.
- si le point est rejeté, on choisit un nouveau point en faisant varier d'une petite quantité l'une des variables associées à $\mathbf{x}$. Si ce dernier est accepté, on continue en choisissant un autre point voisin du nouveau de la même manière que pour l'étape initiale.
- on obtient alors la valeur moyenne de l'observable choisie par une intégration de type *Monte Carlo* $\langle F \rangle = \sum_{i=1}^N F_i/N$.

Par ce procédé, on converge vers la zone de l'espace des phases ayant le plus gros poids statistique (la plus grande entropie) puisque si la nouvelle densité d'états est supérieure à la précédente, elle est acceptée automatiquement ($P = 1$). On forme ainsi une chaîne de *Markov* [66] et on intègre les événements générés par la méthode *Monte Carlo*.

2.2.2 Origines des poids intervenant dans la méthode

Le poids microcanonique W est divisé en plusieurs poids représentant chacun une propriété physique de l'agrégat. Nous ne donnerons pas leur expression (Hervieux et al. [à paraître]) puisque ce n'est pas l'objet de ce travail, mais nous expliquerons leur origine. L'expression de W se décompose comme suit :

$$W = w_{NZ} \cdot w_{\phi} \cdot w_r \cdot w_q \cdot w_{pl} \quad (2.22)$$

Nous allons donc voir maintenant à quelles propriétés sont liés chacun des poids utilisés dans ce modèle.

◦ Le poids w_{NZ}

Ce poids est le nombre de partitions de fragmentation en N_f fragments. Si N_T est le nombre total d'atomes et N_f le nombre de fragments, ce poids est le nombre de partition possibles pour former N_f fragments. Comme nous sommes dans la situation d'agrégats neutres, $Z = 0$ et le nombre de partitions est réduit :

$$w_{NZ} = \frac{1}{N_f!} \binom{N_T - 1}{N_f - 1}$$

◦ Le poids w_{ϕ}

Ce coefficient exprime la rotation propre des fragments à partir de leur orientation dans l'espace. Il dépend du groupe de symétrie auquel ils appartiennent ainsi que de leur géométrie. Les monomères ne sont pas pris en compte ici.

◦ Le poids w_r

Ce poids représente la partie spatiale du volume de l'espace des phases occupé par chaque fragment. Il est calculé de telle sorte qu'il n'y ait pas de recouvrement entre

chacun. Pour cela, on considère chaque fragment comme un ellipsoïde de demi-grand axe R_j (distance entre le centre de masse du fragment et l'atome le plus éloigné) et on tire aléatoirement la position $\mathbf{r}_j$ de leur centre de masse. Ce poids est divisé ensuite par le nombre d'essais nécessaires pour obtenir une configuration où les fragments ne se recouvrent pas.

◦ *Le poids w_q*

Ce poids contient les termes tenant compte de l'énergie d'excitation des fragments. Pour l'obtenir, il est important de connaître leurs densités de niveaux en fonction de l'énergie interne ($\rho_j(E_j^*)$ pour le $j^{\text{ième}}$ fragment). Les densités d'états utilisées sont les mêmes que dans le modèle de Weisskopf, à savoir la densité d'énergie électronique et de vibration. Pour obtenir w_q , on intègre les densités d'états de chaque fragment jusqu'à la première énergie de dissociation. Il n'est donc pas permis au fragment de posséder une énergie interne supérieure à son premier seuil de dissociation. Ce poids prend une part très importante par rapport à ceux présentés précédemment.

◦ *Le poids w_{pl}*

La prise en compte de la corrélation entre la position et les moments des fragments se fait par l'intermédiaire du poids w_{pl} en supposant que l'agrégat initial ne possède pas de moment cinétique et de quantité de mouvement ($L_0 = P_0 = 0$). La somme de ces grandeurs associées à chaque fragment doit être conservée et égale à zéro. Ainsi, le choix des positions et des quantités de mouvement ne se fait pas de manière indépendante. L'énergie restante du système, provenant de l'énergie totale diminuée des énergies internes des fragments, est affectée à l'énergie cinétique. Elle est constituée d'une partie translationnelle (quantité de mouvement) et d'une autre purement rotationnelle (moment cinétique). Ce dernier point n'apparaît pas dans le modèle de *Weisskopf*. Tout comme le poids w_q , celui-ci apporte une forte pondération au poids total W .

Finalement, dans le cas d'observables F , chaque évènement est pondéré par $W = w_\phi \cdot w_{NZ} \cdot w_q \cdot w_{pl}$. Les poids w_q et w_{pl} représentent la partie énergétique de l'espace des phases, qui est la partie dominante dans la fragmentation. A ce titre, ce sont les poids les plus importants de l'espace des phases.

2.2.3 Metropolis pass – fonctionnement de l'algorithme

Nous allons maintenant décrire le principe de l'algorithme du calcul *Metropolis* utilisé ici. Dans ce modèle, on n'effectue pas le calcul sur tous les états possibles, mais on procède par étape en suivant une chaîne de *Markov*, parcourant l'espace des phases dont les poids W sont les plus importants. Lors du passage d'un état vers un nouvel état, on modifie faiblement l'une des variables de l'espace des phases afin d'éviter les variations trop brusques d'entropie. Pour obtenir la probabilité de passer d'un état à un autre, on utilise le poids relatif de ces deux états défini par :

$$P = \min\left(1, \frac{W_{new}}{W_{old}}\right) \quad (2.23)$$

où W_{new} représente le poids de l'état vers lequel on se dirige et W_{old} l'état où l'on se situe. Si le tirage est refusé, l'ancien état est accepté et on réitère le choix d'un nouvel état. S'il est accepté, on se place dans le nouvel état et on recommence depuis celui-ci. Le logarithme des poids W étant proportionnel à l'entropie, l'algorithme converge, par construction, vers la zone de l'espace dont l'entropie est la plus élevée. On explore alors plus finement cette région pour calculer la moyenne de l'observable F . Les principales étapes dans le parcours de l'espace des phases sont les suivantes :

étape 1 : Pour un nombre de fragments donné, on échantillonne l'énergie totale du système pour chaque fragment. Si l'énergie interne E_j^* est modifiée, on calcule alors les poids w_q et w_{pl} .

étape 2 : On modifie la composition N_j , S_j et L_j de deux fragments. Pour cela, on les choisit aléatoirement parmi les N_f fragments et on les regroupe. Puis on casse en deux le fragment obtenu en tirant aléatoirement les nouvelles valeurs N_j , S_j et L_j . Les positions et les énergies internes sont modifiés et tous les poids doivent être recalculés. Dans le cas où le nombre de fragments est égal à un, on modifie sa géométrie (isomères cycliques ou linéaires) et sa multiplicité de spin. Les poids doivent être calculés à nouveau.

étape 3 On modifie le nombre de fragments par ± 1 afin d'éviter des variations trop brutales d'entropie. Pour cela, soit on regroupe deux fragments en un, soit on sépare un fragment en deux. Dans les deux cas, l'énergie interne d'excitation E^* est modifiée et il faut recalculer tous les poids.

Pour s'assurer de la conservation de l'énergie, on vérifie à chaque étape la relation :

$$E_k = E_0 - (E_B + E^*) \geq 0$$

où E_k est l'énergie cinétique des fragments, E_0 l'énergie totale initiale, E_B l'énergie de liaison et E^* l'énergie d'excitation.

2.3 Résultats

Nous présentons ici les résultats des deux modèles de fragmentation utilisés afin de mettre en évidence leurs principales différences. Nous approfondirons la comparaison dans la partie III où nous pourrions discuter de la pertinence de ces deux modèles au regard des résultats expérimentaux obtenus. Nous présenterons à ce moment la méthode d'analyse que nous avons utilisée pour l'interprétation de nos résultats en utilisant ces diagrammes de fragmentation.

Il est important de noter que le modèle séquentiel de *Weisskopf* avec un temps très grand (*infini*) donne le même résultat que le calcul *MMMC* si l'on exclut l'énergie cinétique de rotation de ce dernier.

2.3.1 Diagramme de fragmentation pour le C_5

Sur les figures 2.1 et 2.2 sont représentés les diagrammes de fragmentation en fonction de l'énergie interne (en eV) obtenus avec les calculs de *Weisskopf* et *MMMC* pour le C_5 . Dans le cas du digramme obtenu par le modèle de Weisskopf, le calcul

a été réalisé pour un temps de vol correspondant à l'expérience, soit 200 ns. Les différences notables se font pour les espèces totalement fragmentées ainsi que pour la voie $C_4 + C$ qui n'apparaît pas dans le calcul *MMMC*. On voit également un déplacement de 1 eV environ entre les deux modèles lors du passage $C_3 + C_2 \rightarrow C_2 + C_2 + C$. Pour le cas des espèces à grand nombre de fragments (3, 4 et 5 fragments), la différence entre les deux modèles est très importante, notamment sur les pentes d'apparition et de disparition des espèces. Ceci provient de la densité d'états liée à la rotation et à la translation des fragments qui est plus importante dans le cas de *MMMC* puisque la rotation n'est pas prise en compte dans le calcul de *Weisskopf*. Cet effet peut alors produire un décalage de l'ordre de 1 eV sur les seuils d'apparition mais aussi modifier les populations pour une énergie interne fixée. Ainsi, en déposant une énergie de 16 eV par exemple, dans le cas du modèle de Weisskopf, on obtient deux espèces possibles ($C_2 + C_2 + C$ et $C_3 + C + C$) alors que dans le cadre du calcul Metropolis on obtient trois espèces co-existantes ($C_3 + C_2$, $C_3 + C + C$ et $C_2 + C_2 + C$).

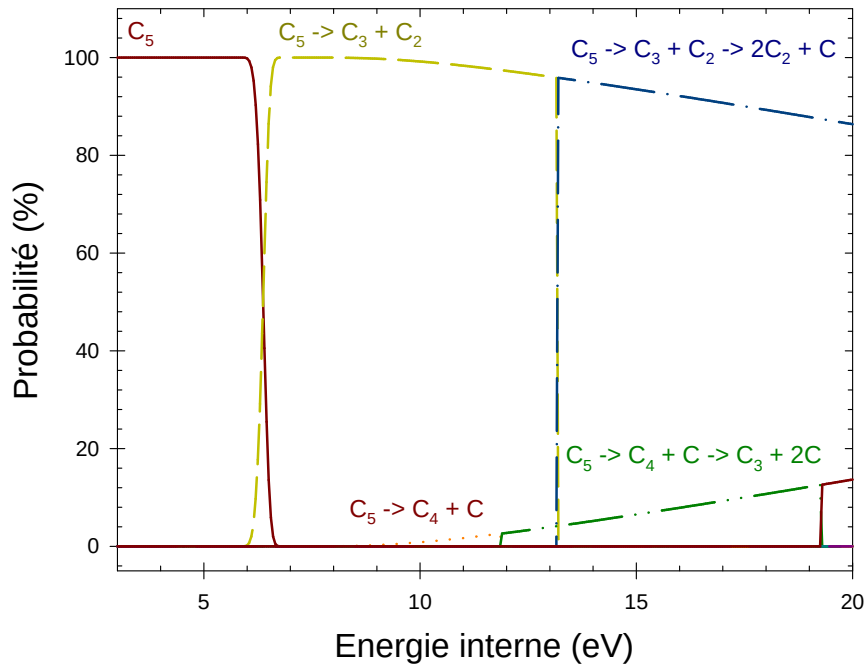


Fig. 2.1: Probabilité de fragmentation du C_5 en fonction de l'énergie interne obtenue avec le modèle de Weisskopf, 200 ns après le dépôt d'énergie.

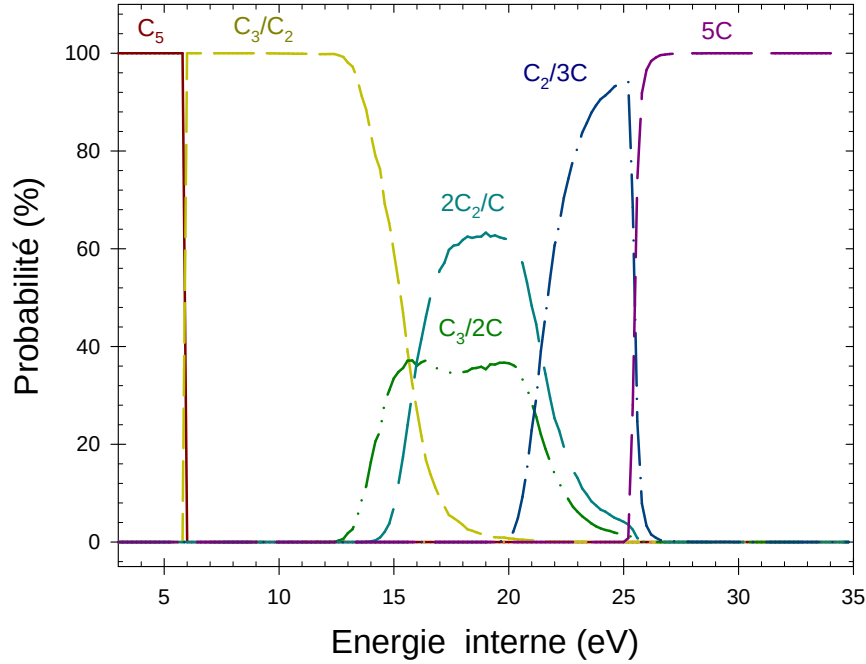


Fig. 2.2: diagramme de fragmentation du C_5 obtenu par le calcul Metropolis

2.3.2 Diagramme de fragmentation pour le C_7

Les figures 2.3 et 2.4 représentent les résultats pour les deux modèles dans le cas du C_7 . Les différences observées sur les pentes des transitions ainsi que sur les seuils d'apparition ont les mêmes origines que pour le cas du C_5 . Ici, les différences sont plus importantes, notamment pour les pentes des transitions qui sont plus douces pour les espèces comportant des fragments composés de plus d'un atome ce qui peut être le résultat de l'énergie de rotation prise en compte dans le calcul Metropolis. On a alors une densité d'état liée au moment cinétique et à la quantité de mouvement qui est plus grande. Par exemple, pour l'espèce $C_4 + C_3$, le domaine d'énergie va de 7 eV à 10.5 eV pour le cas Weisskopf alors que dans l'autre modèle, l'étalement va de 6 eV à 15 eV avec une extinction moins abrupte.

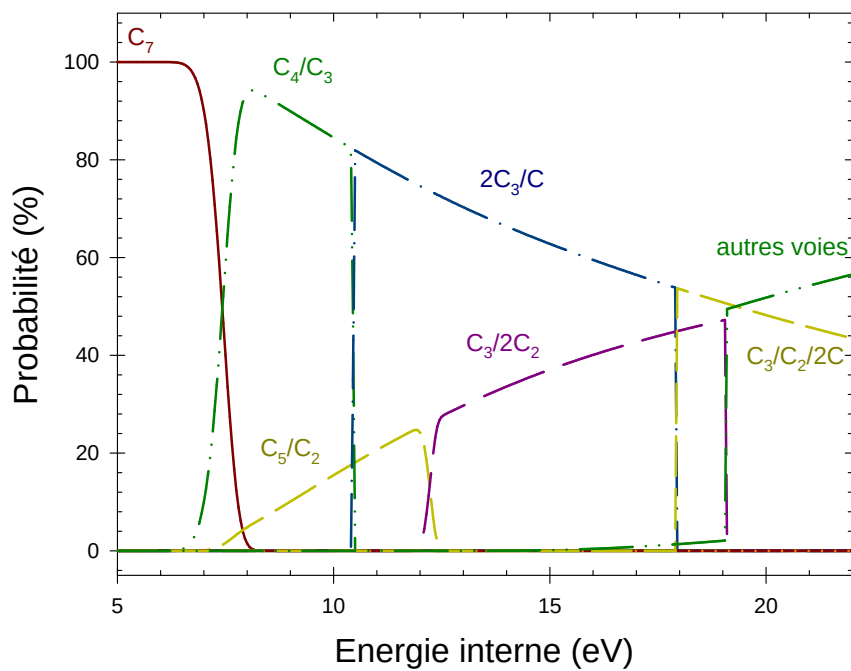


Fig. 2.3: Probabilité de fragmentation du C_7 en fonction de l'énergie interne obtenue avec le modèle de Weisskopf, 200 ns après le dépôt d'énergie.

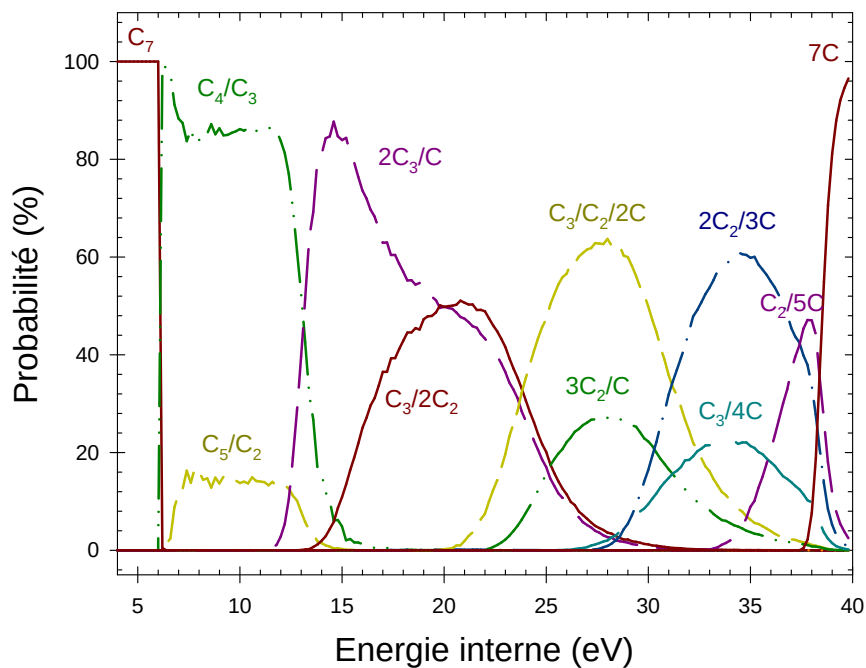


Fig. 2.4: diagramme de fragmentation du C_7 obtenu à l'aide du calcul Metropolis.

2.3.3 Diagramme de fragmentation pour le C_9

Pour le C_9 , seul le diagramme de fragmentation obtenu par le calcul Metropolis (figure 2.5) est disponible car l'évaporation d'un fragment C_4 n'a pas encore été modélisée par la théorie de Weisskopf. Il n'est donc pas possible d'établir une comparaison entre les deux modèles pour cet agrégat. Cependant, à la vue des résultats pour le C_7 , on suppose que l'effet du temps de vol est sûrement plus important, notamment pour les voies ayant peu de fragments. Nous prendrons en compte cet aspect lors de l'analyse de nos résultats expérimentaux. Cependant, on peut remarquer que l'effet de la diminution des pentes pour les différentes transitions devient de plus en plus important avec le nombre de fragments. Comme dans le cas du C_7 , cet effet provient certainement des densités d'états associées à la rotation et à la translation des fragments. Sur cette figure, on remarque aussi que les voies à même nombre de fragments couvrent une même gamme d'énergie. Comme nous le verrons lors de la présentation de nos résultats (voir III), ce diagramme confirme le fait que le critère énergétique semble être pertinent pour la formation des voies à un nombre de fragments donné.

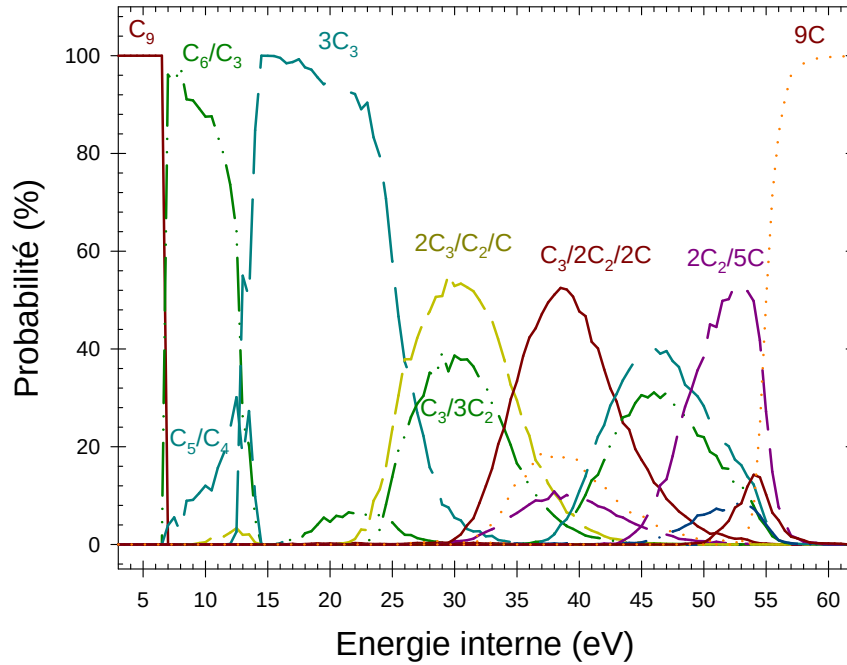


Fig. 2.5: diagramme de fragmentation du C_9 par le calcul metropolis

Chapitre 3

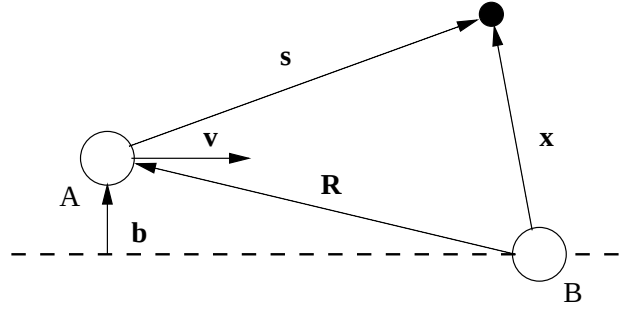
Calcul des processus doubles de capture-ionisation par le modèle à atome et électron indépendants et la théorie de capture *CDW*

Lors de la collision, de façon concomitante à la capture d'un électron de la cible par le projectile (ici, l'agrégat), une ionisation peut avoir lieu. Dans ce cas, si le processus de capture se produit, l'évènement n'est pas détecté puisque la charge de l'agrégat est non-nulle.

Afin d'estimer l'ordre de grandeur de ces processus doubles de capture-ionisation, nous avons utilisé l'approche à atome et électron indépendant développée par l'équipe (Wohrer et al. [67]) pour interpréter les résultats d'ionisations simple et multiple. Dans ce formalisme en fonction du paramètre d'impact, nous devons introduire une probabilité de capture dépendant du paramètre d'impact. Il n'existe aucun calcul concernant la capture d'un électron d'un atome cible par un agrégat monochargé. C'est pourquoi nous avons utilisé un calcul de probabilité en fonction du paramètre d'impact pour la collision ion-atome obtenu par le formalisme des ondes distordues (*CDW*). D'une façon formelle, comme nous le verrons par la suite, la capture par un agrégat est radicalement différente de celle se produisant par un ion. Pour cette raison, nous avons calculé la proportion de capture-ionisation normalisée à la section efficace de capture pour des extensions en paramètre d'impact variant (par facteur 2) autour des résultats obtenus en collision ion-atome.

3.1 Théorie formelle des collisions en terme de paramètre d'impact

Nous nous intéressons ici au transfert de charge induit lors d'une collision entre un atome projectile avec un atome cible. Considérons le système suivant :



où A représente le projectile de charge Z_A et de vitesse v et B l'atome cible de charge Z_B . L'électron est initialement lié à B. En utilisant l'approximation de Born-Oppenheimer (1.3), on peut écrire l'hamiltonien électronique :

$$\begin{aligned} H_{el} &= -\frac{\nabla_{el}^2}{2} - \frac{Z_A}{s} - \frac{Z_B}{x} \\ &= K + V_A + V_B \end{aligned} \quad (3.1)$$

La fonction d'onde électronique $\Psi(x, t)$ est solution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps :

$$\left(H(t) - i \frac{\partial}{\partial t} \right) \Psi(x, t) = 0 \quad (3.2)$$

En théorie des collisions atomiques, on écrit l'amplitude de transition de l'état initial vers l'état final pour la capture électronique en fonction du paramètre d'impact b :

$$a_{if}^+(b) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} \langle \Phi_f(t) | V_B | \Psi^+(t) \rangle dt \quad (3.3)$$

$$a_{if}^-(b) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} \langle \Psi_f^-(t) | V_A | \Phi_i(t) \rangle dt \quad (3.4)$$

où (3.3) est la forme *post* et 3.4 la forme *prior*. Les fonctions d'onde $\Psi(t)$ et $\Phi(t)$ vérifient les conditions :

$$\lim_{t \rightarrow -\infty} \Psi^+(t) = \lim_{t \rightarrow -\infty} \Phi_i(t) \quad (3.5)$$

$$\lim_{t \rightarrow +\infty} \Psi^-(t) = \lim_{t \rightarrow +\infty} \Phi_f(t) \quad (3.6)$$

La probabilité de transition entre les deux états s'écrit alors :

$$P(b) = |a_{if}(b)|^2 \quad (3.7)$$

et la section efficace totale est obtenue en intégrant la probabilité sur les paramètres d'impact :

$$\sigma_{if} = 2\pi \int_0^{+\infty} b P(b) db \quad (3.8)$$

si l'on considère une géométrie cylindrique.

La difficulté réside dans le calcul de l'amplitude de transition $a_{if}(b)$ car on ne connaît pas de manière exacte la fonction d'onde $\Psi(t)$. De nombreuses méthodes ont été proposées pour triter différents systèmes étudiés. Ainsi, le développement

perturbatif de la fonction d'onde permet d'obtenir les approximations de Born pour les hautes vitesses de collision. La théorie *Strong Potential Born* qui en découle [68] [69] permet le traitement des collisions dissymétriques en considérant le potentiel du noyau cible comme faible, ce qui permet de ramener le problème à un traitement perturbatif. D'autres approximations permettent de résoudre ce type de collision comme l'*Impulse Approximation (IA)* [70], l'approximation *Continuum Intermediate State (CIS)* introduite par Belkic [71] ou l'approximation *Eikonale* [72], mais toutes s'appliquent à des collisions à haute vitesse et/ou fortement dissymétriques. Dans le cas de collisions quasi-symétriques et à haute vitesse (mais pas très grande devant celle des électrons actifs), ces traitements ne s'appliquent pas et il est nécessaire d'utiliser une approche plus adaptée, comme l'approximation *Continuum Distorted Wave (CDW)* que nous allons aborder maintenant.

3.2 Approximation des ondes distordues—"Continuum Distorted Wave"

L'idée principale de l'approximation *CDW* est de ramener le problème du potentiel $V_A(t)$ à un potentiel voisin que l'on sait résoudre exactement. Ainsi, la différence $W(t)$ entre les deux potentiels pourra être traitée de manière perturbative.

Partons de la forme *prior* donnée par l'équation (3.4). On suppose que l'on sait résoudre exactement le problème de transfert de charge pour le potentiel $U_A(t)$ voisin de $V_A(t)$. On remplace alors dans l'équation (3.2) H par $K + U_A(t) + V_B$. On note alors $\chi^+(t)$ la solution qui respecte la condition $\lim_{t \rightarrow -\infty} \chi^+(\mathbf{r}, t) = \Psi^+(\mathbf{r}, t)$. Belkic et collaborateurs (voir [73] p. 312) écrivent la fonction d'onde sous la forme :

$$\begin{aligned} \chi^+(\mathbf{r}, t) &= \Phi_i(\mathbf{r}, t) \mathcal{L}^+(\mathbf{s}, t) \\ \text{où } \mathcal{L}^+(\mathbf{s}, t) &= N\left(\frac{Z_A}{v}\right) \exp\left\{i \frac{Z_A Z_B}{v} \ln(\mathbf{v} \cdot \mathbf{R} - v^2 t)\right\} \mathbf{F}\left(i \frac{Z_A}{v}, 1, i(v \cdot \mathbf{s} + \mathbf{v} \cdot \mathbf{s})\right) \end{aligned} \quad (3.9)$$

avec Z_A et Z_B les charges respectives des noyaux projectile et cible, $\mathbf{v}$ la vitesse de collision, $\mathbf{R}$ la distance entre les noyaux, $N\left(\frac{Z_A}{v}\right) = \exp\left\{\frac{\pi Z_A}{2v}\right\} \cdot \Gamma(1 - iZ_A/v)$ où Γ est la fonction *Gamma*, et $\mathbf{F}$ la fonction *hypergéométrique*. Cheshire [43] montre que l'action de la perturbation sur la fonction d'onde peut s'écrire :

$$W(t)|\chi^+(t)\rangle = \frac{\mathbf{x}}{x} \nabla_s \mathcal{L}^+(\mathbf{s}, t) |\Phi_i(t)\rangle \quad (3.10)$$

où $\mathbf{x}$ est le vecteur position de l'électron dans le référentiel du noyau cible.

On obtient une expression similaire avec la forme *post* donnée en (3.3). En tenant compte des conditions aux limites, on écrit alors l'amplitude de transition en fonction du paramètre d'impact sous une forme symétrique :

$$a_{if}(b) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} \langle \chi^-(t) | W(t) | \chi^+(t) \rangle dt \quad (3.11)$$

3.2.1 Présentation du formalisme CDW en terme de moment transféré

Le code de calcul utilisé a été écrit par Belkic, Gayet et Salin. Il s'agit de la version de 1984 [74] qui se base sur les versions antérieures développées depuis 1981 [75]. Ce code utilise le formalisme CDW en fonction du moment transféré qui est la forme utilisée dans l'approximation *Eikonale* ([73], p. 290-296). Ainsi, on note $T_{if}(\eta)$ l'amplitude de transition en fonction du moment transféré η . Belkic et al. (voir [74] p. 155) calculent la section efficace de capture totale pour un électron par la relation :

$$Q_{if}(a_0^2) = \frac{1}{2\pi v^2} \int_0^{+\infty} \eta d\eta |T_{if}(\eta)|^2 \quad (3.12)$$

ou encore :

$$Q_{if}(a_0^2) = 2\pi \int_0^{+\infty} \eta d\eta |R_{if}(\eta)|^2 \quad (3.13)$$

avec $|R_{if}(\eta)|^2 = |\frac{T_{if}(\eta)}{2\pi v}|^2$. Suivant Gayet et al. [76] et s'appuyant sur la théorie développée par Belkic et al. [73], nous avons obtenu l'amplitude de transition en fonction du paramètre d'impact en appliquant la transformée de Hankel :

$$a_{if}(b) = \int_0^{+\infty} \eta d\eta J_m(\eta b) R_{if}(\eta) \quad (3.14)$$

où m est la variation du nombre quantique azimutal entre l'état initial et final et $J_m(\eta b)$ est la fonction de Bessel d'ordre m . On passe ainsi de l'espace des moments transférés à l'espace des paramètres d'impact.

3.2.2 Résultats pour la capture dans la collision $C^+ \rightarrow He$

Le code de calcul CDW utilise pour le noyau cible des orbitales de Slater formées à partir des tables de Clementi [77]. L'orbitale finale où se trouve l'électron après la collision est une orbitale de type hydrogéoïde. Ainsi, dans le cas de la collision $C^+ + He \rightarrow C + He^+$, il est important de distinguer deux cas. Dans le cas de la capture dans un état excité, on a le schéma de réaction illustré par la figure 3.1.

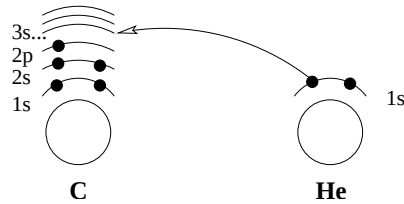


Fig. 3.1: Schéma de la collision $C^+ \rightarrow He$ pour les états excités.

L'orbitale finale de l'électron capturé peut alors être considérée comme hydrogéoïde car la charge vue par l'électron est la charge globale de l'atome C^+ . Cependant, dans le cas de la capture dans l'état fondamental du carbone, la charge vue par l'électron est modifiée. L'approximation d'une orbitale hydrogéoïde n'est donc plus valable et au lieu d'utiliser une charge effective qui ne serait pas correcte,

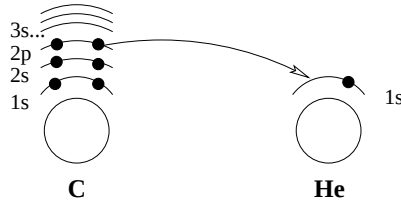


Fig. 3.2: Schéma de la collision $C^+ \rightarrow He$ pour l'état fondamental.

on considère la réaction inverse $C + He^+ \rightarrow C^+ + He$ ce qui donne le schéma de réaction illustré sur la figure 3.2.

L'utilisation de la réciprocité de la réaction permet d'utiliser une orbitale hydrogénoïde pour l'hélium qui est plus cohérente de par sa nature. Dans ce cas, on peut décrire avec les tables de Clementi l'état fondamental du carbone en terme d'orbitales de Slater, et on utilise une charge effective pour He^+ , $Z_{eff} = 1.6875$ qui est bien connue (issue des fonctions d'onde d'Hylleraas [78]). Les résultats des sections efficaces obtenus par le calcul *CDW2* [74] sont présentés dans le tableau 3.1.

Pour utiliser ces sections efficaces, on doit tenir compte du nombre quantique principal N , du moment orbital L et du nombre quantique azimutal m_l , soit un triplet (N, L, m_l) . Les valeurs reportées dans le tableau 3.1 pour $m_l \neq 0$ incluent les deux valeurs de m_l possibles.

On regroupe dans l'état fondamental les états dont les triplets de nombres quantiques sont $(2, 0, 0)$, $(2, 1, 0)$, $(2, 1, -1)$ et $(2, 1, 1)$. Tous les autres états sont sommés pour donner la probabilité de capture dans un état excité. En prenant les électrons du projectile dans leur état fondamental, il y a cinq possibilités sur six de capter un électron de la cible dans son état fondamental. Ainsi, on obtient la section efficace de l'état fondamental :

$$\sigma_{capt}^{fond} = \frac{5}{6}(\sigma_{2,1,0} + \sigma_{2,1,1}) = 1.715 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$$

Pour les états excités, on obtient :

$$\sigma_{capt}^{exc} = 2.761 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$$

Comme la cible comporte deux électrons indiscernables, il faut multiplier les résultats par un facteur deux ce qui permet d'obtenir la section efficace totale de capture :

$$\sigma_{capt}^{cdw} = 3.485 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$$

D'autres théories ont été développées plus récemment. Nous mentionnerons uniquement les travaux de Rivarola et al. [79] qui introduisent deux potentiels pour la molécule H_2 ainsi que ceux de Gulyás et al. [80] utilisant une technique d'états moléculaires dans une représentation adiabatique de la collision qui permet d'étendre la fonction d'onde. Une communication privée avec Gulyás nous donne comme résultat $\sigma_{fond} = 2.11 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$, $\sigma_{exc} = 4.17 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$ soit une section efficace totale :

$$\sigma_{capt} = 5.06 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$$

Sections efficaces de capture par électron pour $C^+ + He \rightarrow C + He^+$

N	L	m_l	section efficace (cm^2)	N	L	m_l	section efficace (cm^2)
2	1	0	$1.756 \cdot 10^{-17}$	5	3	3	$2.145 \cdot 10^{-22}$
2	1	1	$3.023 \cdot 10^{-18}$	5	4	0	$3.635 \cdot 10^{-23}$
3	0	0	$1.158 \cdot 10^{-19}$	5	4	1	$1.522 \cdot 10^{-22}$
3	1	0	$1.959 \cdot 10^{-20}$	5	4	2	$5.408 \cdot 10^{-23}$
3	1	1	$1.046 \cdot 10^{-20}$	5	4	3	$2.002 \cdot 10^{-22}$
3	2	0	$1.389 \cdot 10^{-21}$	5	4	4	$1.213 \cdot 10^{-22}$
3	2	1	$3.133 \cdot 10^{-21}$	6	0	0	$1.477 \cdot 10^{-20}$
3	2	2	$1.547 \cdot 10^{-21}$	6	1	0	$2.665 \cdot 10^{-21}$
4	0	0	$4.942 \cdot 10^{-20}$	6	1	1	$1.465 \cdot 10^{-21}$
4	1	0	$8.686 \cdot 10^{-21}$	6	2	0	$2.693 \cdot 10^{-22}$
4	1	1	$4.723 \cdot 10^{-21}$	6	2	1	$5.159 \cdot 10^{-22}$
4	2	0	$7.720 \cdot 10^{-22}$	6	2	2	$2.988 \cdot 10^{-22}$
4	2	1	$1.563 \cdot 10^{-21}$	6	3	0	$9.847 \cdot 10^{-23}$
4	2	2	$8.621 \cdot 10^{-22}$	6	3	1	$9.170 \cdot 10^{-23}$
4	3	0	$2.617 \cdot 10^{-22}$	6	3	2	$1.992 \cdot 10^{-22}$
4	3	1	$2.402 \cdot 10^{-22}$	6	3	3	$1.360 \cdot 10^{-22}$
4	3	2	$5.549 \cdot 10^{-22}$	6	4	0	$2.297 \cdot 10^{-23}$
4	3	3	$3.457 \cdot 10^{-22}$	6	4	1	$9.963 \cdot 10^{-23}$
5	0	0	$2.544 \cdot 10^{-20}$	6	4	2	$3.467 \cdot 10^{-23}$
5	1	0	$4.548 \cdot 10^{-21}$	6	4	3	$1.276 \cdot 10^{-22}$
5	1	1	$2.492 \cdot 10^{-21}$	6	4	4	$7.941 \cdot 10^{-23}$
5	2	0	$4.407 \cdot 10^{-22}$	6	5	0	$2.378 \cdot 10^{-23}$
5	2	1	$8.593 \cdot 10^{-22}$	6	5	1	$3.608 \cdot 10^{-23}$
5	2	2	$4.905 \cdot 10^{-22}$	6	5	2	$5.776 \cdot 10^{-23}$
5	3	0	$1.573 \cdot 10^{-22}$	6	5	3	$2.045 \cdot 10^{-23}$
5	3	1	$1.457 \cdot 10^{-22}$	6	5	4	$9.615 \cdot 10^{-23}$
5	3	2	$3.229 \cdot 10^{-22}$	6	5	5	$5.275 \cdot 10^{-23}$

Tab. 3.1: Sections efficaces obtenues par le calcul CDW2 par électron en appliquant l'équation (3.13). Les valeurs présentées pour $m_l \neq 0$ tiennent compte du $m_l < 0$.

La section efficace de capture dans les états excités est alors beaucoup plus importante.

Finalement, en appliquant la transformée de *Hankel* (3.14), nous avons obtenu les probabilités de capture par électron en fonction du paramètre d'impact représentées sur la figure 3.3 pour l'état fondamental ainsi que pour les états excités de l'atome de carbone.

Il est important de vérifier que le système étudié ici respecte la limite de validité du formalisme *CDW*. En effet, l'énergie de collision doit satisfaire la relation $E > 80 \sup(|\epsilon_i|, |\epsilon_f|)$ en *kev* par unité de masse atomique, où ϵ_i et ϵ_f sont respectivement les énergies des orbitales initiale et finale de l'électron capturé exprimées en unité atomique. Dans notre cas, cette limite est de $73.44 \text{ kev}/amu$. Comme le carbone

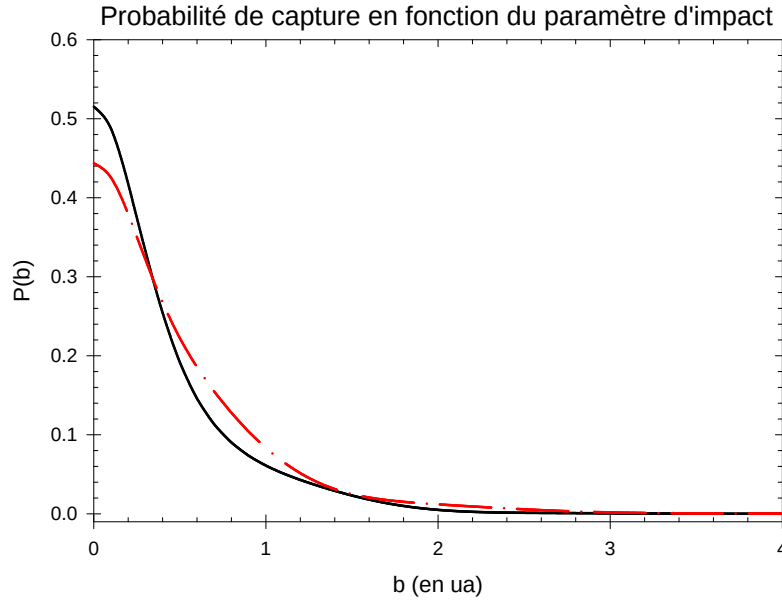


Fig. 3.3: Probabilité de capture dans l'état fondamental (—) et dans les états excités (— · —) en fonction du paramètre d'impact dans la réaction $C^+ + He \rightarrow C + He^+$ pour une vitesse du projectile de 2.6 unités atomiques. La probabilité de capture pour les états excités a été multipliée par un facteur 100 afin de comparer les deux courbes sur le même graphique.

incident possède une énergie de 2 Mev, soit 166.67 keV/amu, on respecte le critère de validité.

3.2.3 Modèle à atomes et électrons indépendants

Whorer et al. [81] ont développé ce modèle pour la prédiction des sections efficaces de multi-ionisation de molécules diatomiques. Il se base sur les hypothèses que les agrégats sont constitués d'atomes indépendants dont les électrons sont eux-même indépendants. On se sert de ce modèle pour obtenir la correction sur la section efficace de capture mesurée qui n'inclut pas les processus multiples de capture+ionisation. Ainsi, en connaissant les probabilités d'ionisation des couches 2s et 2p (couche 1s peu probable) et de capture dans les couches 2p et les états excités pour l'atome de carbone C^+ , on obtient les sections efficaces des différents processus.

Considérons le cas de l'agrégat C_n^+ entrant en collision avec une cible d'hélium comme illustré sur la figure 3.4.

Afin de tenir compte de toutes les orientations possibles de l'agrégat, on détermine aléatoirement son orientation. Puis on tire au hasard le paramètre d'impact du centre de masse de l'agrégat afin de calculer les paramètres d'impact individuels des atomes le constituant. On obtient ainsi les probabilités individuelles d'ionisation et de capture (si la charge est non-nulle sur l'atome considéré). En répétant l'opération un grand nombre de fois, on intègre ces probabilités par un calcul de type *Monte Carlo*.

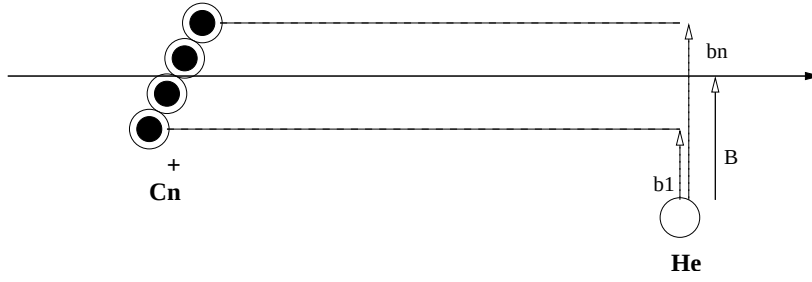


Fig. 3.4: représentation de la collision $C_n^+ \rightarrow He$ en terme de paramètre d'impact pour le traitement à atomes et électrons indépendants. B est le paramètre d'impact entre le centre de masse de l'agrégat et l'atome d'hélium. b_i sont les paramètres d'impact individuels pour chaque atome.

Dans ce calcul, nous avons utilisé les probabilités d'ionisation des couches $2s$ et $2p$ calculées par G. Maynard à l'aide de la méthode “*classical trajectory Monte Carlo*” [82] pour l'atome C et le cation C^+ . Ces probabilités ont déjà été utilisées par R. Fossé [59] pour le calcul des sections efficaces d'ionisation simple et multiple. Nous avons ajouté les probabilités de capture pour le C^+ dans les états fondamental et excités obtenue par le calcul *CDW*. Finalement, en observant la charge totale, on connaît le nombre d'ionisation ainsi que le nombre d'événements relatifs à la capture électronique. On obtient ainsi les sections efficaces de production d'agrégats neutres et de capture-ionisation. La section efficace totale de capture est donnée par la relation :

$$\sigma_{capt}^{th} = \sigma_n^{th} + \sigma_{capt+ion}^{th} \quad (3.15)$$

où σ_n^{th} est la section efficace de production d'agrégats neutres et $\sigma_{capt+ion}^{th}$ celle de capture-ionisation. Dans nos expériences, nous mesurons σ_n^{exp} . Ainsi, par ce calcul, on obtient la correction :

$$R = \frac{\sigma_n^{th}}{\sigma_{capt}^{th}} = \frac{\sigma_{capt}^{th} - \sigma_{capt+ion}^{th}}{\sigma_{capt}^{th}} \quad (3.16)$$

où σ_{capt}^{th} est la section efficace totale de capture obtenue par le calcul et $\sigma_{capt+ion}^{th}$ celle du double processus capture-ionisation. Nous appliquerons cette correction à nos mesures pour obtenir la section efficace totale de capture.

Sur la figure 3.5 est représentée la correction obtenue en fonction de la masse de l'agrégat avec deux géométries différentes du C_4^+ (proches d'un point de vue énergétique). On remarque que la forme cyclique diminue la correction. Ceci s'explique par le fait que la section efficace de capture totale reste constante à celle de l'ion C^+ alors que les processus multiples d'ionisation augmentent avec la compacité de l'agrégat (Wohrer et al. [32]).

Nous avons étendu la probabilité de capture à des paramètres d'impact plus importants en corrigeant le paramètre d'impact $b \rightarrow \lambda b$ afin de voir l'effet de l'extension des fonctions d'onde pour rendre compte des états moléculaires. Ceci est représenté par la figure 3.6 où $\lambda = 0.5$. La dilatation a pour effet de diminuer sensiblement ce rapport. Nous l'expliquons par le fait que pour les paramètres d'impact élevés, seule la capture intervient car l'ionisation s'effectue alors pour des paramètres d'im-

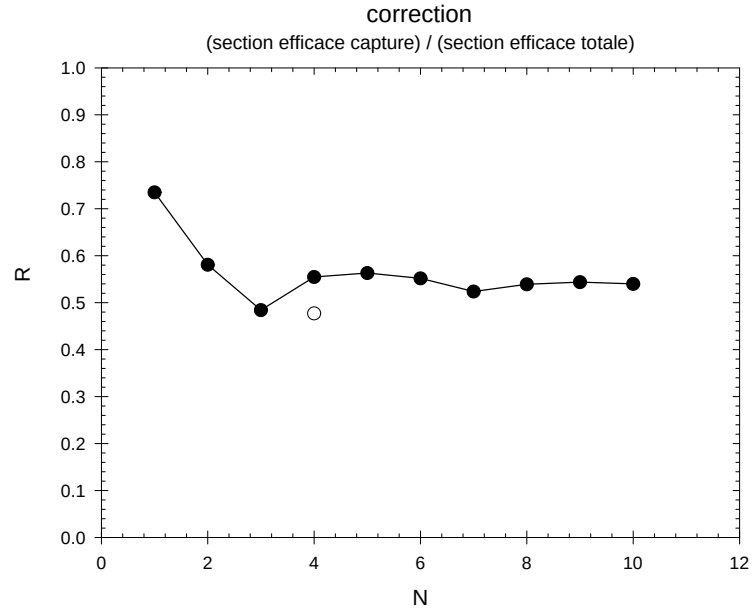


Fig. 3.5: $(-\bullet-)$: rapports de la section efficace de production d'agrégats neutres sur la section efficace de capture en fonction de la taille de l'agrégat. $(\circ)$: cas de la forme cyclique du C_4^+ .

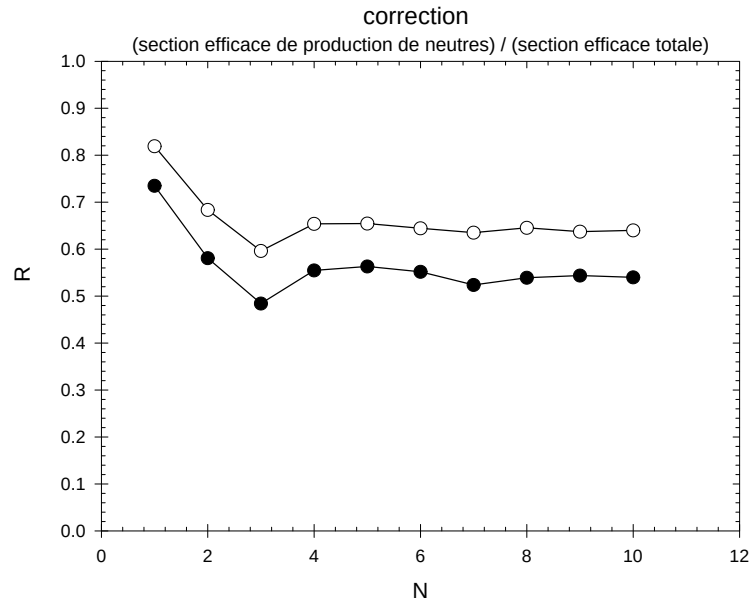


Fig. 3.6: rapports de la section efficace de production d'agrégats neutres sur la section efficace de capture en fonction de la taille de l'agrégat avec le $p(b)$ de capture de CDW normal $(-\bullet-)$ et dilaté d'un facteur 2 $(-\circ-)$

pact plus petits. En tout état de cause, ce modèle nous donne une estimation de la correction à appliquer aux mesures effectuées.

Deuxième partie

Dispositif expérimental et principe de détection

Introduction

L'étude expérimentale des agrégats libres a connu un grand essor ces dernières années, multipliant les développements technologiques d'analyse aussi bien en ce qui concerne les études de structures que les études de dynamique. Un grand nombre de méthodes d'observation sont maintenant disponibles et nous ne pourrions pas toutes les citer [83], [84].

La chromatographie ionique en phase gazeuse est une méthode classique utilisée pour déterminer la forme géométrique des agrégats [5], [4]. Elle est basée sur des mesures de mobilité d'espèces chargées dans un champ électrique au travers d'un gaz. Cette méthode est d'une grande précision mais ne peut pas s'appliquer à l'étude des agrégats neutres et de petite taille.

Les méthodes de spectroscopie par absorption utilisant des lasers infrarouges ou à d'autres longueurs d'ondes sont couramment employées pour mesurer les fréquences de vibration et les potentiels d'ionisation des agrégats [8], [10].

Concernant les dispositifs dédiés à l'étude de la dynamique des agrégats, de nombreux développements expérimentaux ont été effectués. Dans presque tous les cas, l'étude de ce domaine nécessite la détection des fragments émis par l'agrégat excité. Parmi les premières expériences utilisant comme perturbation de l'agrégat aussi bien les collisions que les excitations photoniques citons celles réalisées par l'équipe de C. Bréchignac depuis les années 80 sur les agrégats de sodium [12], de mercure [85] et d'autres espèces. Ces techniques sont basées essentiellement sur des mesures de temps de vol à un fragment. Elles sont toujours utilisées sous des formes plus ou moins sophistiquées par plusieurs laboratoires [13], [22].

Des expériences mesurant plusieurs fragments en coïncidence ont été initiées dans les années 80 [86] par la communauté des collisions ions-molécules. Elles utilisaient une cible fixe, un champ électrique pour extraire les fragments et une détection qui est devenue de plus en plus performante. Ainsi aujourd'hui, il est possible d'obtenir pour plusieurs fragments des mesures corrélées en moments. Malheureusement, ces techniques en cible fixe n'autorisent pas la détection des fragments neutres.

Avec la possibilité de produire des faisceaux d'agrégats de haute vitesse, des mesures en cinématique inverse ont été introduites dans les années 90 [31]. Dans cette méthode les agrégats étudiés possèdent une grande vitesse d'entraînement. Cette technique expérimentale apporte principalement la possibilité de détecter les fragments neutres émis par les agrégats. Dans notre expérience, l'utilisation d'un déflecteur électrostatique et de détecteurs silicium nous permet de posséder pour la première fois un multi-détecteur 100% efficace capable de résoudre l'ensemble des partitions de fragmentation quelle que soit la charge.

Dans cette partie nous décrirons, dans un premier temps, l'accélérateur Tandem

qui nous a permis de produire les agrégats de carbone à haute vitesse. Puis nous détaillerons le détecteur *AGAT* formé d'une chambre de collision, d'un déflecteur électrostatique et d'un ensemble de détecteurs silicium. Nous décrirons ensuite l'électronique et l'acquisition qui ont servi à numériser les signaux de courant issus des détecteurs silicium et qui sont à la base de la nouvelle méthode d'analyse des signaux, cœur de ma participation dans ce domaine. Nous commencerons par faire quelques rappels sur le fonctionnement des détecteurs silicium, puis nous décrirons les signaux obtenus lorsque des agrégats interagissent avec les détecteurs. Nous terminerons par les méthodes utilisées pour l'identification des signaux.

Chapitre 1

Description du dispositif expérimental

1.1 Description de la production des agrégats de carbone au Tandem

Nos expériences se sont déroulées auprès de l'accélérateur Tandem d'Orsay (modèle MP9, figures 1.1 et 1.2) qui est un accélérateur électrostatique de type Van de Graaff pouvant produire des faisceaux d'ions divers et variés allant du proton jusqu'à l'or, en passant par les agrégats de carbone, de silicium et d'or.

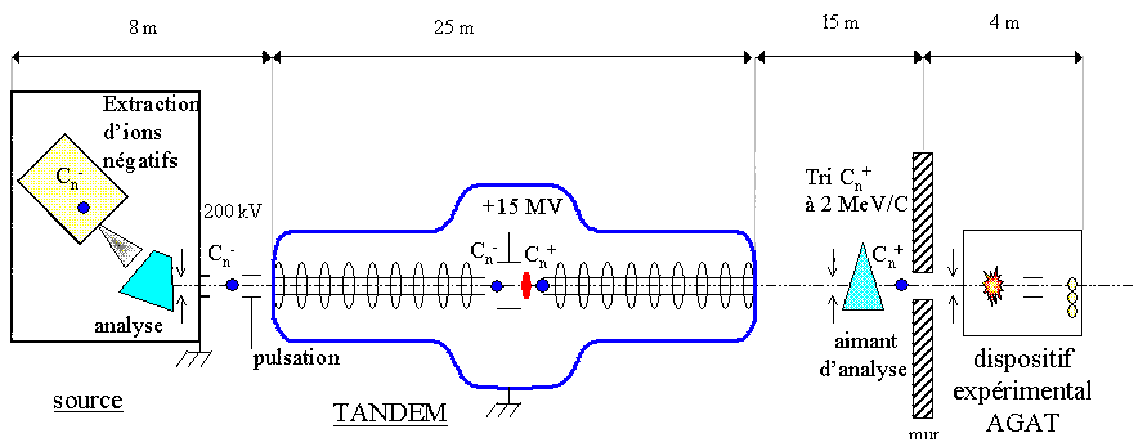


Fig. 1.1: schéma du Tandem

1.1.1 Principe de fonctionnement de l'accélérateur

Les anions produits par la source (voir 1.1.2, p. 56) sont injectés dans le tank du côté basse énergie (BE), accélérés puis extraits du côté haute énergie (HE) (voir fig. 1.1). Au centre de la structure se situe le terminal, où règne une tension positive allant de 0 à 15 MV. Les anions subissent ce potentiel et sont accélérés une première fois jusqu'au terminal. A cet endroit, on modifie l'état de charge des projectiles soit



Fig. 1.2: Vue d'ensemble de l'accélérateur (depuis l'aimant d'analyse)

par une feuille mince (graphite), soit par du gaz (N_2) afin d'éplucher l'ion pour qu'il devienne positivement chargé. Il est alors repoussé par le potentiel positif du terminal et subit une deuxième accélération, dépendante de son nouvel état de charge. Ce principe de double utilisation du potentiel au terminal a donné à l'accélérateur le nom de TANDEM. L'énergie des ions sortant du côté haute énergie est facilement calculée par la relation :

$$E = E_{injection} + eV_{terminal} + qeV_{terminal}$$

où $E_{injection}$ est l'énergie à l'entrée du tank, q l'état de charge de l'ion après l'épluchage (ou "*stripping*") et $V_{terminal}$ la tension du terminal. Dans nos expériences, nous avons utilisé un simple *stripper* à gaz (hélium et azote), une énergie d'injection de 200 keV, et une tension du terminal telle que l'énergie final de l'agrégat soit de 2 MeV par carbone, soit une vitesse de 2.6 unités atomiques.

Le tube accélérateur se situe au centre d'une structure isolante appelée *colonne*, qui relie l'entrée BE et la sortie HE du tank. Cette dernière est divisée en 8 sections de 1,8 mètres espacées entre-elles par des sections mortes de 50 centimètres. Chaque section est divisée en 72 étages formés chacun par la succession d'un isolateur en verre et d'une électrode. Les électrodes sont polarisées depuis le terminal situé entre les sections 4 et 5 par une succession de résistances de $1,2\text{ G}\Omega$ qui les relient entre-elles pour obtenir une décroissance linéaire du potentiel le long de la colonne. Des anneaux équipotentiels l'entourent afin d'homogénéiser le champ dans le réservoir et d'éviter les pointes locales de celui-ci pouvant entraîner des claquages. Le tube accélérateur situé à l'intérieur de la colonne est quant à lui constitué de 8 sections de 84 étages, excepté pour les sections 1 et 5 qui sont constituées de 94 étages. Les électrodes sont polarisées par une chaîne de résistances suivant le même principe que la colonne.

L'élévation du potentiel se fait par le terminal. Ce dernier est isolé de la cuve par un gaz de constante diélectrique élevée (hexafluorure de soufre, SF_6), sous 8 bars de pression, qui permet de maintenir le champ électrique provoqué par la différence de potentiel pouvant atteindre 15 MV. Les charges positives sont amenées au terminal par une chaîne composée alternativement de maillons conducteurs et isolants, le *Laddertron* (situé dans la colonne du côté HE) entraîné par un moteur. Au départ, le maillon conducteur est de charge nulle. Lorsqu'il passe sur le rouleau côté HE, il est relié au moyeux (lui-même relié à la masse) par une piste conductrice. Il est ensuite soumis à un potentiel négatif de quelques kV par deux électrodes et devient chargé positivement en cédant des électrons par effet capacitif. Lors de son trajet vers le terminal, totalement isolé, il traverse les équipotentielles de plus en plus élevées augmentant son propre potentiel. Ainsi, une fois au terminal, l'effet inverse se produit. Le barreau sur le rouleau passe entre deux électrodes chargées positivement par rapport au terminal. Il récupère des charges négatives et redevient de charge nulle tandis que le terminal se charge positivement. Au retour, afin de doubler la capacité de transport de charges de la chaîne, on charge le barreau négativement avec le même procédé.

Il est important de contrôler parfaitement ce qui se passe à chaque étape du transport et de l'évacuation des charges car c'est la stabilité du potentiel du terminal qui va déterminer la dispersion en énergie du faisceau. Pour cela, on peut considérer le terminal comme un nœud électrique et appliquer la loi de Kirchhoff :

$$i_L = i_{HE} + i_{BE} + i_S + i_C + i_T$$

où i_L est le courant de charges amenées par le *Laddertron*, i_{BE} et i_{HE} les courants (égaux en principe) évacués par les chaînes résistives de la colonne, i_S le courant issu de l'ionisation du gaz isolant du tank par deux sources radioactives de césium, i_T la somme du courant du faisceau et celui de fuite du tube et i_C le courant "corona" entre le terminal et la paroi du tank qui est réglable par un ensemble de pointes ionisant le gaz isolant. Ces pointes permettent une contre-réaction sur le terminal afin de maintenir son potentiel constant.

Le potentiel du terminal étant positif et les extrémités de la structure étant reliées à la masse, le champ électrique dans la partie BE n'a pas le même sens que dans la partie HE. Il est nécessaire de modifier le signe de la charge des particules accélérées. Pour cela, l'ion accéléré traverse de la matière, du gaz dans nos expériences (cela peut être des feuilles minces), afin de perdre des électrons. Le dispositif d'épluchage est composé de deux tubes de 60 centimètres de long et de deux centimètres de diamètre situés de part et d'autre du terminal, permettant ainsi d'établir une cible gazeuse homogène. Pour nos expériences, nous avons utilisé le stripper à gaz (figure 1.3) puisque les feuilles ionisent totalement les agrégats qui ne peuvent survivre dans cet état. Les collisions atomiques obéissant aux lois statistiques, on obtient une distribution de charge et de masse en sortie du stripper conduisant à des énergies différentes à la sortie du tube accélérateur. C'est en analysant cette distribution que l'on obtient le faisceau désiré. L'intérêt du stripper à gaz réside dans le contrôle de l'épaisseur de gaz traversée. Un simple jeu de vannes permet, en variant

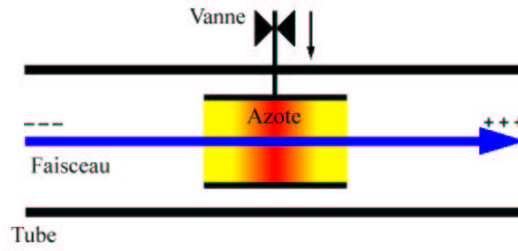


Fig. 1.3: schéma du stripper à gaz

la pression, de modifier la distribution de charges des ions accélérés.

Afin d'amener le faisceau accéléré sur le dispositif expérimental avec les propriétés souhaitées, des jeux de fentes et de déflecteurs permettent de limiter sa dispersion angulaire et d'ajuster son alignement. Des cages de Faraday mesurent son intensité au passage de ces éléments. Ainsi, à chaque étape, on vérifie la transmission du faisceau à l'aide de l'intensité mesurée, que l'on maximise en jouant sur les fentes et les déflecteurs. Enfin, une boîte de diagnostic vérifie la composition du faisceau et la distribution des états de charge au niveau de l'aimant d'analyse. Elle est composée d'un détecteur silicium (pour l'énergie), d'une cage de Faraday et d'une galette micro canaux (temps de vol). L'analyse par temps de vol se fait avec la galette micro-canaux. La pulsation du faisceau donne le signal de référence en temps pour déclencher l'acquisition. Ensuite, lorsque la galette reçoit une particule, elle émet un signal pour donner le temps d'arrivée. Celui-ci varie en fonction de la masse et de l'état de charge de la particule. On tente ici de maximiser le signal du faisceau désiré par rapport aux faisceaux secondaires en modifiant la pression du gaz au stripper. Une fois l'analyse effectuée, l'aimant analyseur sélectionne l'ion ayant la bonne rigidité magnétique (charge, masse et énergie souhaitées), en déviant le faisceau de $1^{\circ}29$ qui correspond à l'entrée de notre dispositif expérimental.

1.1.2 Production et injection des agrégats C_n^- à la source

La source est constituée d'un ensemble de dispositifs permettant la production du faisceau avant l'accélération comme l'illustre la figure 1.4. Elle est située sur une plate-forme portée à un potentiel variable de quelques centaines de kV. Nous verrons plus loin que les réglages utilisés peuvent influencer la température à laquelle les agrégats de carbone sont produits.

Description et principe de fonctionnement

Les ions produits par la source HICONEX 384 ont une charge négative. Le principe de production des agrégats se fait par ionisation de surface (figure 1.5). Un four émet des atomes de césium qui sont ionisés en passant au travers d'une pastille de tungstène élevée à une température de l'ordre de $1000^{\circ}C$. Les ions Cs^+ ainsi produits sont accélérés par un potentiel de 20 kV. Ils sont focalisés sur une pastille de graphite où il vont arracher des agrégats de carbone de toutes tailles par pul-

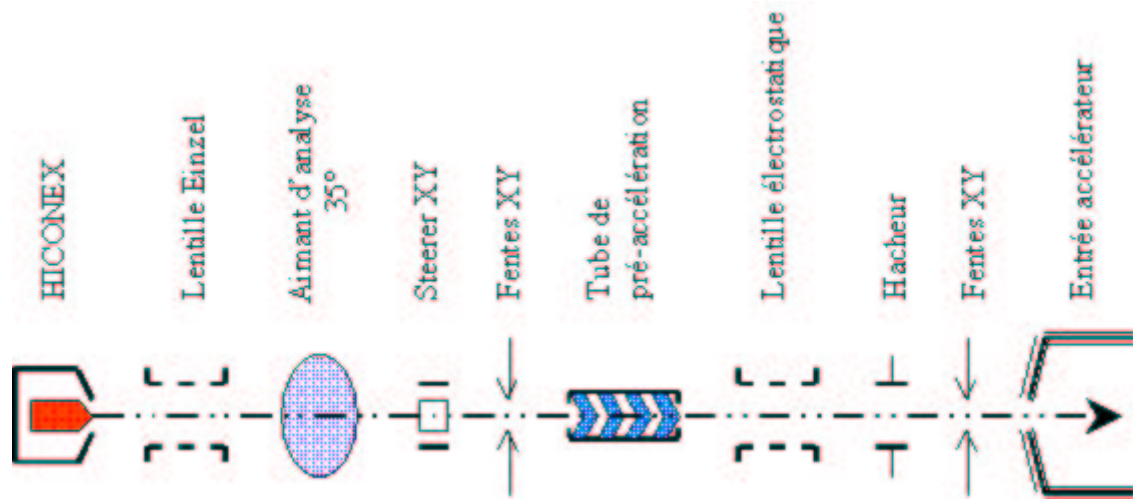


Fig. 1.4: schéma de l'injection d'ion

vérisation. Ce procédé de production d'ion est communément appelé une source à "sputtering". Parmi les agrégats produits, seule une faible proportion va capter un électron du substrat ou du césium pour former des agrégats négatifs (Pargellis et al. [87]). Ces derniers sont extraits par une différence de potentiel de 20 kV à l'aide d'une électrode percée située dans l'axe du faisceau de Cs^+ . Une lentille de Einzel focalise ensuite le faisceau afin d'optimiser son intensité. Puis un aimant trie les espèces en fonction de leur rigidité magnétique afin de sélectionner l'espèce désirée.

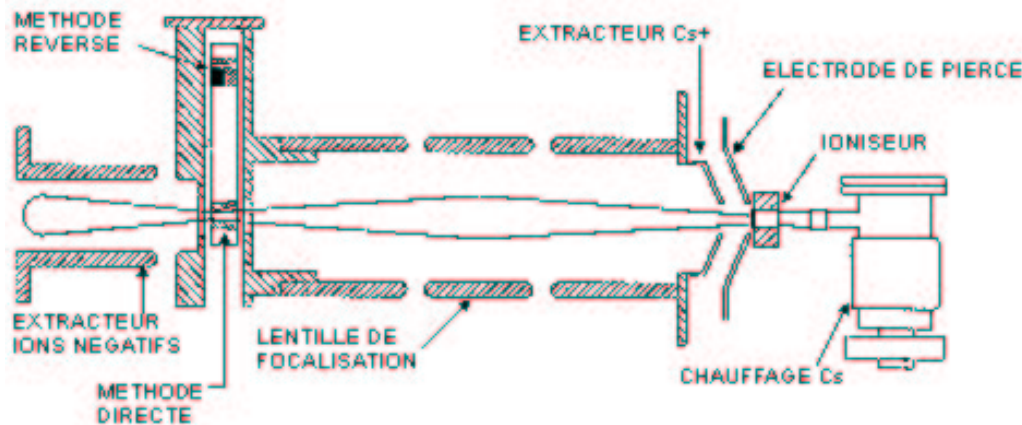


Fig. 1.5: schéma de la source HICONEX 384

Une fois l'espèce sélectionnée, un jeu de déflecteurs électrostatiques dévie le faisceau horizontalement et verticalement afin de l'aligner sur un diaphragme qui élimine les faisceaux parasites possédant une rigidité magnétique proche de celle du faisceau attendu. Un tube de pré-accelération élevé à une tension allant de 0 à 250 kV (tension de la plate-forme) accélère les ions avant l'entrée machine. Une lentille électrostatique focalise le faisceau sur un diaphragme placé à l'entrée de l'accélérateur. Une cage de Faraday est placée juste avant le diaphragme pour mesurer l'intensité du faisceau.

Un hacheur peut-être utilisé pour pulser le faisceau. Il est constitué d'un ensemble de plaques parallèles polarisées à $\pm V/2$, avec $V = 200$ V. Il dévie le faisceau de sa trajectoire périodiquement afin d'obtenir un faisceau pulsé. La longueur des pulses ainsi que leur espacement est ajustable à l'aide de la fréquence avec laquelle on module la variation de champ entre les plaques. La période de base est de 400 ns, soit une fréquence de 2,5 MHz, et elle peut être encore diminuée. Dans nos expériences, ce hacheur a été utilisé afin d'ajuster l'intensité du faisceau à nos besoins.

Mesure de l'intensité partielle et extraction de la température

Comme nous le verrons plus loin (parite III), la température des agrégats avant la collision est à prendre en compte pour l'interprétation de nos résultats. Pour caractériser cette température, on mesure les intensités partielles des espèces produites grâce à un balayage en champ de l'aimant d'analyse de la source (figure 1.6), puis on applique le modèle proposé par Pargellis [88] pour extraire la température de la zone d'émission. Dans ce modèle, on suppose l'équilibre thermodynamique entre le

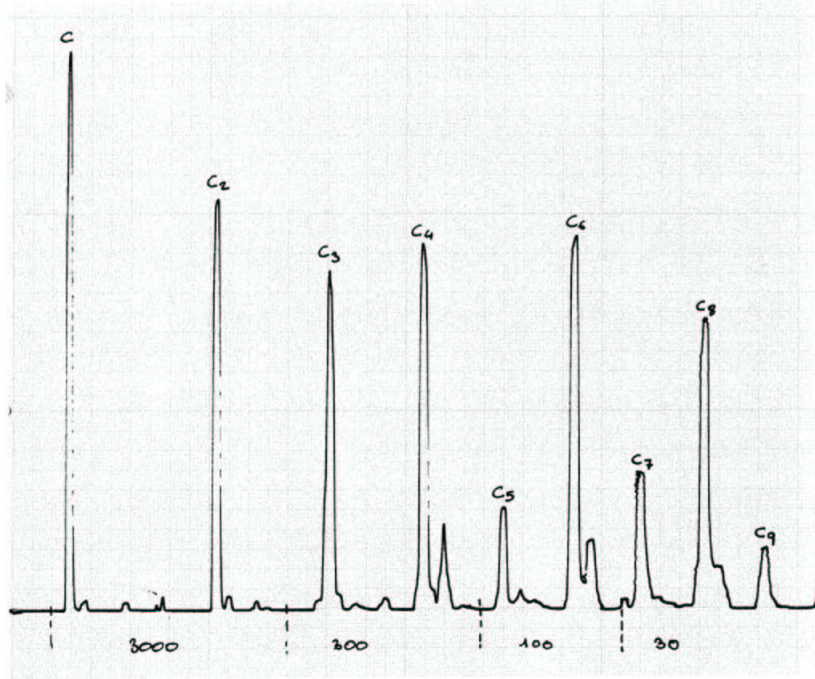


Fig. 1.6: Intensités relatives pour les différentes espèces à la source en fonction du champ dans l'aimant d'analyse. Les chiffres du bas représentent la gamme de mesure en nA.

solide et le gaz. En appliquant la loi de Clausius-Clapeyron, on obtient la relation :

$$P_n = e^{-\frac{\Delta G_n}{kT_s}} \text{ avec } \Delta G_n = \Delta H_n - T_s \Delta S_n \text{ et } \Delta H_n = n\Delta H_1 - B_n \quad (1.1)$$

où P_n est la pression de vapeur des agrégats de taille n , T_s la température de la source, ΔG_n la variation d'énergie libre, ΔH_n l'énergie de formation, ΔS_n la variation d'entropie et B_n leur énergie de liaison. En utilisant l'équation de Knudsen $J_n \propto$

$\frac{P_n}{\sqrt{M_n}}$ (avec J_n courant associé à l'espèce C_n^- et M_n sa masse) ainsi que la relation $\Delta S_n - \Delta S_1 = k(3.1 + 0.9(n - 2))$, Pargellis obtient la relation suivante :

$$\ln \left(\frac{J_n}{J_1} \right) = \frac{1}{kT_s} (B_n - (n - 1)\Delta H_1) - 0.5 \ln n - \alpha + 3.1 + 0.9(n - 2) \quad (1.2)$$

où α est un paramètre permettant de rendre compte du non-équilibre thermodynamique pour la production de l'espèce C^- . En utilisant dans l'équation 1.2 les intensités issues de spectres similaires à celui de la figure 1.6, nous obtenons la température de la source T_s que l'on assimile à l'énergie interne des agrégats par degré de liberté. Nous avons tenté de modifier la température des agrégats en injectant

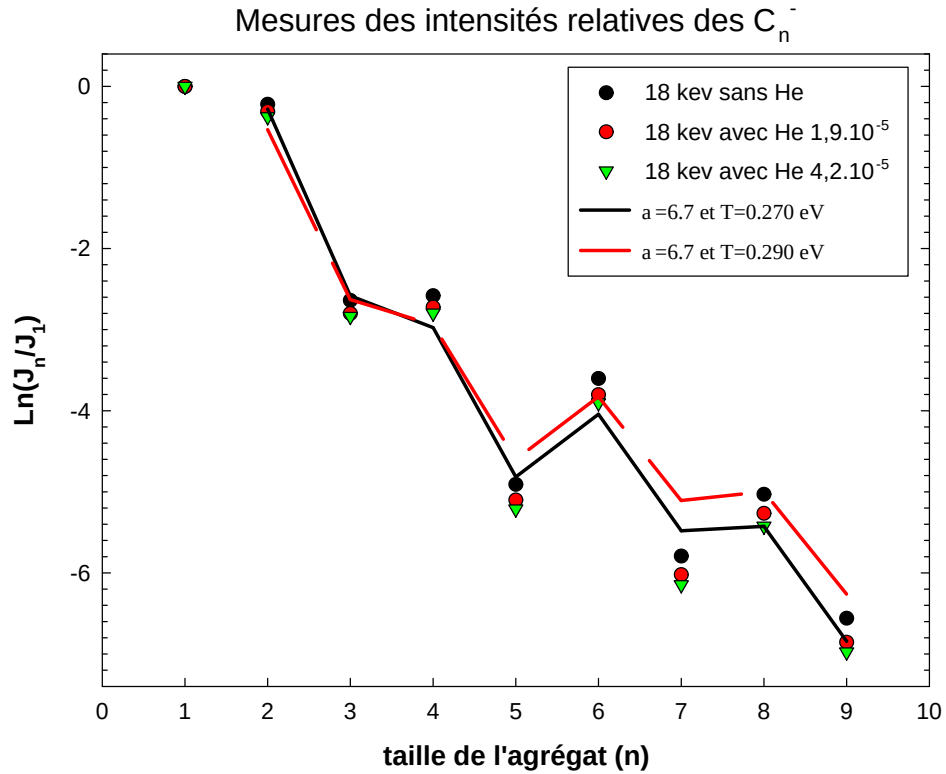


Fig. 1.7: Représentation des intensités relatives en fonction de la taille des agrégats et des ajustements des courbes trouvés pour l'estimation de la température à la source pour différentes pressions d'hélium

de l'hélium au niveau de l'impact entre le faisceau de césium Cs^+ et la pastille de graphite. Par cette méthode, on espère modifier la distribution d'états des agrégats après leur formation. Les intensités relatives des différentes espèces pour différentes pressions de gaz mesurées sur le corps de source sont représentées sur la figure 1.7. En appliquant le modèle de Pargellis avec les intensités obtenues, on obtient deux courbes correspondant aux extrema des températures envisageables. Ainsi, on estime la variation de température occasionnée par l'injection d'hélium à environ $k\Delta T_s \approx 0.02 \text{ eV}$ pour un coefficient $\alpha = 6.7$. L'hélium est injecté durant une phase d'accélération à basse vitesse et les conditions de formation des espèces sont les

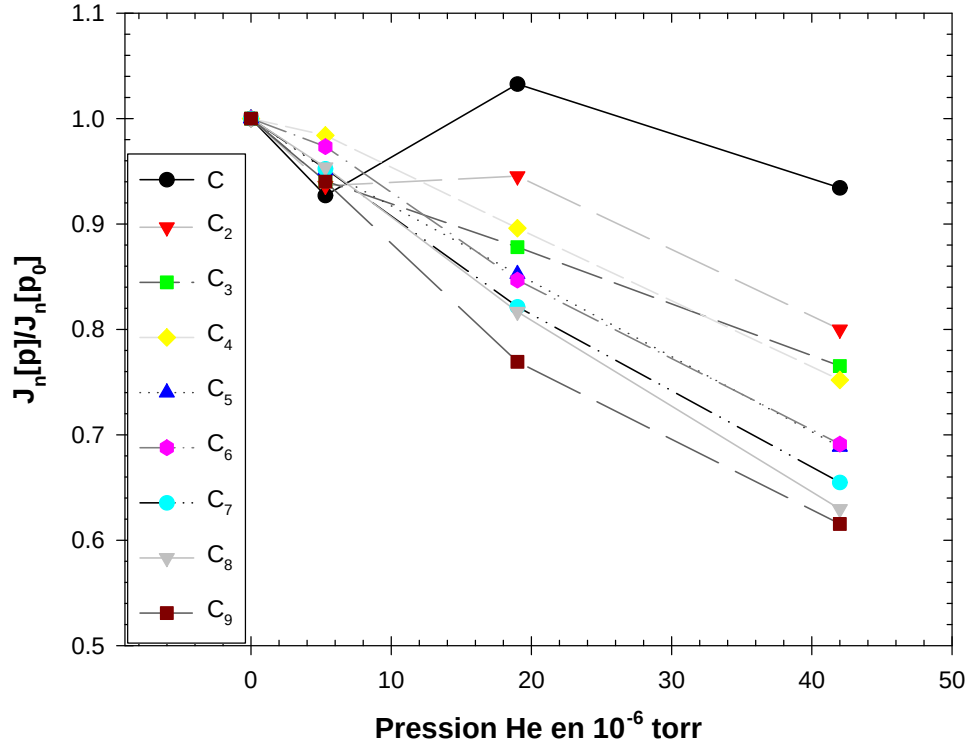


Fig. 1.8: Rapport des intensités pour chaque espèce en fonction de la pression du gaz

mêmes à l'interface solide/gaz du carbone. Cependant, les agrégats vont subir des collisions avec les atomes d'hélium pendant la phase d'extraction (d'accélération). Ceci se traduit par une perte d'intensité que l'on peut voir sur la figure 1.8 où sont représentés les rapports d'intensité pour chaque espèce en fonction de la pression d'hélium. Nous observons sur cette figure une baisse générale des intensités pour des pressions inférieures à 10^{-5} torr environ. Les changements se produisant vers $2 \cdot 10^{-5}$ torr sont dus aux collisions dans le gaz. En effet, les plus grosses espèces vont fragmenter et repeupler les espèces de masse plus petite, augmentant leur intensité relative. Enfin, pour des pressions supérieures, la quantité de gaz devient trop importante et l'intensité diminue à cause des collisions multiples qui vont augmenter l'émission du faisceau ainsi que la fragmentation des agrégats.

Pour conclure, le modèle utilisé n'est sûrement pas approprié à la situation posée par l'injection de gaz. Mais l'interprétation de nos mesures dans le cadre de ce modèle nous révèle une variation d'énergie liée à la température de l'ordre de $k\Delta T_s \approx 0.02$ eV pour une énergie de l'ordre de $kT_s \approx 0.28$ eV par degré de liberté, en supposant que la température des agrégats est la même que celle de la source. On obtient alors, par une répartition équiprobable sur les degrés de liberté, une énergie interne de vibration contenue dans les agrégats, donnée par la relation (1.3) pour une géométrie linéaire :

$$E_{int} = kT_s(3n - 6) \quad (1.3)$$

Distribution de la température

Nous allons maintenant estimer la largeur de la distribution d'énergie interne provenant de la température. Pour cela, nous allons utiliser les travaux de Andersen et al. [89]. Nous partons de l'expression de la température dans l'ensemble microcanonique afin d'obtenir la distribution de température pour un système en contact avec un bain de température, c'est-à-dire la distribution dans l'ensemble canonique.

Si l'on considère le système à l'équilibre avec une énergie interne E , la température microcanonique T_m est obtenue par la relation :

$$\frac{1}{kT_m} = \frac{d}{dE} \ln \rho(E) \quad (1.4)$$

où k est la constante de Boltzmann et ρ la densité d'état. La distribution d'énergie dans l'ensemble canonique pour le système à l'équilibre en contact avec un bain à température T_m est donnée par la relation :

$$P(\epsilon) \propto \rho(\epsilon) e^{-\epsilon/kT_m} \quad (1.5)$$

Si l'on développe cette expression autour de sa valeur la plus probable ϵ_p jusqu'au terme de second ordre, on obtient une approximation gaussienne de la distribution dont l'expression est :

$$P_0(\epsilon) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} e^{-\frac{(\epsilon-\epsilon_p)^2}{2\sigma^2}} \quad (1.6)$$

où $\sigma \simeq T\sqrt{kC_m}$, C_m étant la capacité calorifique dans l'ensemble microcanonique prise égale à la dérivée de l'énergie interne par rapport à la température. En utilisant l'expression (1.3), on obtient pour l'expression de σ :

$$\sigma \simeq kT_m \sqrt{3n-6} \quad (1.7)$$

Finalement, on obtient la distribution d'énergie interne de température par une gaussienne centrée autour l'énergie moyenne obtenue par le modèle de Pargellis :

$$P_0(\epsilon) = \frac{1}{kT_s \sqrt{2\pi(3n-6)}} e^{-\frac{(\epsilon-kT_s(3n-6))^2}{2(3n-6)k^2T_s^2}} \quad (1.8)$$

où kT_s est l'énergie provenant de la température de la source.

La figure 1.9 représente les distributions obtenues avec $kT_s = 0.25 \text{ eV}$ pour les agrégats C_5 , C_7 et C_9 . Ces distributions sont à comparer avec les seuils de dissociations des agrégats. On remarque que pour le C_7 , la distribution dépasse légèrement le seuil de dissociation de 5.51 eV . Pour le C_9 , le seuil de 6.00 eV est dépassé et se trouve proche de la valeur la plus probable. Ces derniers vont alors avoir une énergie interne proche du seuil de dissociation. C'est pourquoi il est difficile de produire des faisceaux d'agrégats composés de plus de dix atomes à partir d'une source à pulvérisation.

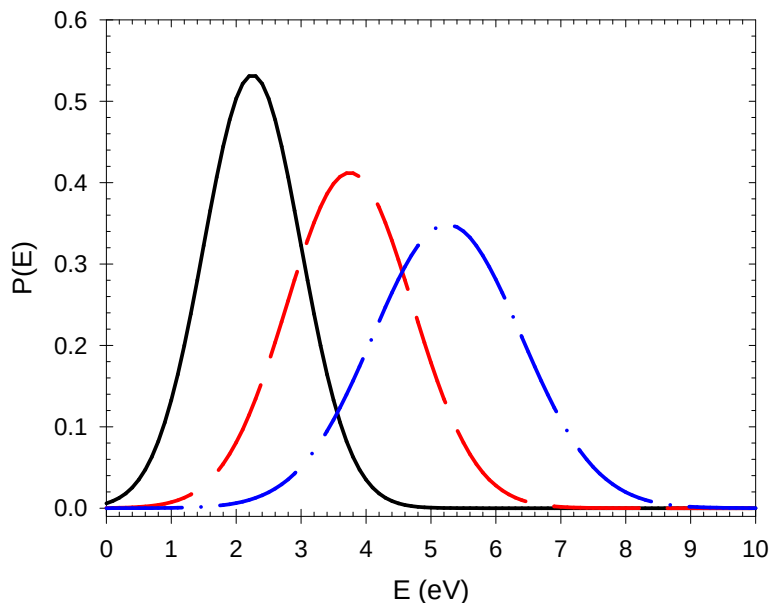


Fig. 1.9: Distributions d'énergie interne des agrégats avec $kT_s = 0.25$ eV :
 (—) C_5 , (---) C_7 et (- · -) C_9 .

1.1.3 Effet du terminal sur l'énergie interne des agrégats

Concernant les agrégats, l'épluchage peut conduire à un dépôt d'énergie qui peut avoir des conséquences sur nos mesures. En effet, il peut se produire des processus multiples d'ionisation et d'excitation. Cependant, le processus d'excitation cumulé au processus d'ionisation est peu probable et s'il a lieu, Chabot et collaborateurs [32] ont montré qu'il conduisait à un dépôt d'énergie de l'ordre de 10 eV. Dans ce cas, le seuil de dissociation de l'agrégat est atteint et l'agrégat fragmente.

Pour le processus de double ionisation, la situation est différente. Pour une ionisation dans les couches internes, le dépôt d'énergie est supérieur au seuil de dissociation et l'agrégat fragmente. En effet, la couche interne la moins énergétique est la couche 2s et se trouve à 19.4 eV du continuum. La couche externe 2p se trouvant à 11.3 eV, une ionisation en couche interne excite l'agrégat avec une énergie de 8.1 eV, bien supérieure à la première énergie de dissociation qui est de l'ordre de 6 eV selon la taille de l'agrégat.

Concernant l'ionisation depuis les couches externes, les états moléculaires 2p ont des énergies proches [90]. Ainsi, il se peut que l'ionisation d'un électron 2p produise un faible apport d'énergie. En moyenne, à cause de cette dégénérescence, le processus de double-ionisation conduit à un dépôt d'énergie de 1 eV environ, ce qui est inférieur au seuil de dissociation. Cette énergie va donc s'ajouter à l'énergie interne de l'agrégat provenant de sa température en sortie de source.

1.2 Le détecteur AGAT.

1.2.1 Principe de fonctionnement du détecteur AGAT

Dans la partie précédente, nous avons vu comment nous préparons les agrégats C_n^+ . Ces derniers arrivent à l'entrée du dispositif (figure 1.10) avec une énergie de 2 MeV/C. Un jeu de fentes horizontales et verticales réglables permet d'ajuster la taille du faisceau à une taille de l'ordre du dixième de millimètre. Puis, les agrégats entrent en collision avec le gaz issu d'un jet effusif sortant d'un capillaire situé dans la chambre de collision. L'énergie déposée durant la collision reste faible (quelques

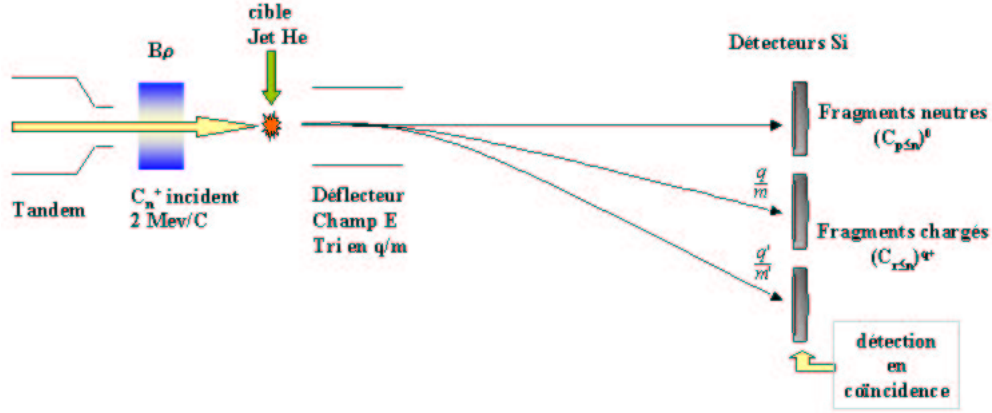


Fig. 1.10: schéma du dispositif expérimental

eV) devant l'énergie du projectile ce qui modifie très peu sa vitesse. De plus, lors de la fragmentation, l'énergie transférée aux fragments sous forme d'énergie cinétique est elle aussi faible devant leur énergie incidente. Cela implique que tous les fragments sont émis vers l'avant avec une faible dispersion angulaire (de l'ordre du mrad). Ainsi leur détection est possible par des détecteurs ayant une surface de l'ordre de quelques dizaines de mm^2 . Après la collision, un déflecteur électrostatique (tensions de 40 kV à 110 kV) est utilisé afin de trier chaque fragment en fonction de son rapport charge sur masse. Le calcul des trajectoires (voir éq. (1.15) p. 68) permet de prévoir la position d'arrivée et la dispersion angulaire des différents types de fragments. En positionnant des détecteurs sur ces trajectoires, il est alors possible de recouvrir tout l'angle solide de la réaction dans le référentiel du projectile.

La vitesse d'entraînement va aussi nous permettre d'obtenir une efficacité de détection de 100% en utilisant des détecteurs semi-conducteurs au silicium. En effet, si la vitesse du projectile est suffisamment importante devant la vitesse des électrons du silicium, on se trouve dans le pouvoir d'arrêt électronique et toute l'énergie va être transmise au réseau cristallin. Leur réponse étant proportionnelle à l'énergie déposée, et la vitesse du projectile demeurant constante, l'énergie mesurée sera proportionnelle à la masse du projectile. Pour un angle fixé, le détecteur est associé à un rapport charge sur masse bien déterminé. Ainsi, en mesurant l'énergie, on obtiendra la masse du projectile et on pourra en déduire sa charge. Si l'on procède ainsi pour toutes les voies en coïncidence, on reconstitue la charge totale de l'agrégat ce qui permet de remonter au processus mis en jeu lors de la collision.

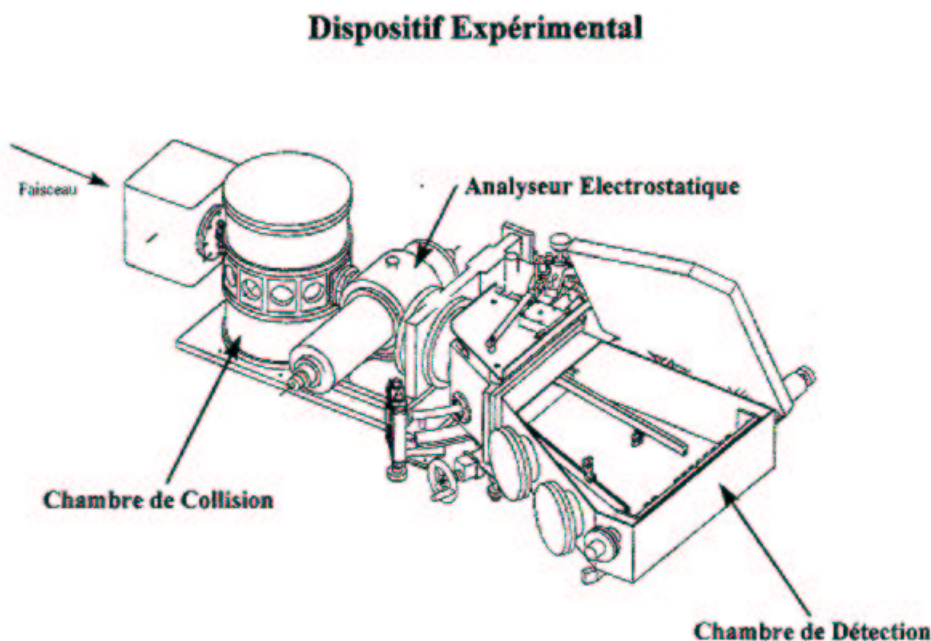


Fig. 1.11: schéma du dispositif AGAT

1.2.2 La cible

La chambre de collision est située environ un mètre après les fentes. C'est un cylindre de 430 mm de diamètre dont la partie supérieure supporte le mécanisme de déplacement du jet ainsi que l'arrivée du gaz. Une pompe turbomoléculaire d'un débit de 1000 l/s est disposée en dessous pour maintenir un vide de l'ordre de 10^{-7} mbar et un ensemble de jauges est placé sur le côté de la chambre pour en contrôler la qualité.

Fonctionnement du jet

Le fonctionnement du jet est illustré par la figure 1.12. Le jet effusif est formé par un capillaire de 9×0.5 mm relié à un réservoir. Il peut être déplacé horizontalement et verticalement par des vis micrométriques avec une précision de l'ordre de $10 \mu m$. Un débitmètre massique électronique permet de réguler le débit de gaz du jet. L'affichage est donné en sccm (*standard centimètre cube par minute* = cm^3 /minute) ce qui équivaut à $4.42 \cdot 10^{17}$ particules par seconde, avec une précision de 0.02 sccm. En fonctionnement normal, les vannes V1, V2, V3 et V4 sont ouvertes. Toutes les autres sont fermées. Un baratron balayant une gamme de pression de 0 à 10 Torr situé en amont du capillaire permet de mesurer la pression du gaz. Ainsi, en connaissant la pression dans la chambre à l'aide d'une jauge, on peut vérifier la loi Knudsen reliant le débit à la pression amont p_0 et à la pression de la chambre p par la relation :

$$\frac{dN}{dt} = \frac{C}{kT}(p_0 - p) \quad (1.9)$$

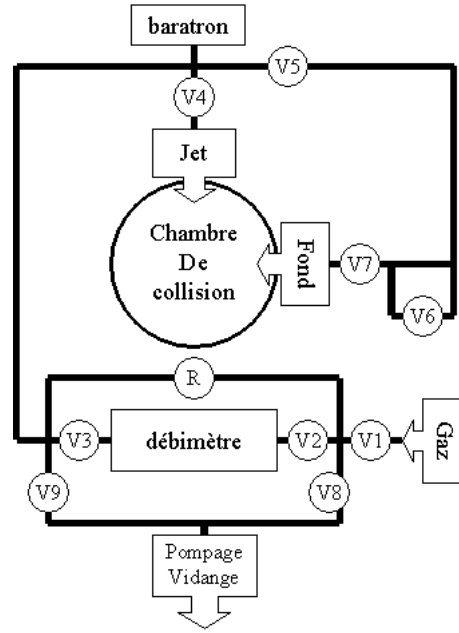


Fig. 1.12: schéma du système d'injection du gaz.

où C la conductance du capillaire donnée par la relation de Delafosse [91] :

$$C = \frac{d^3}{6L} \sqrt{\frac{2\pi kT}{m}} \left[\frac{1 + \frac{d\bar{p}}{\eta} \sqrt{\frac{m}{kT}}}{1 + \frac{1.24d\bar{p}}{\eta} \sqrt{\frac{m}{kT}}} \right] + \frac{\pi d^4}{128\eta L} \bar{p} \quad (1.10)$$

et $\bar{p} = (p_0 - p)/2$, η la viscosité du gaz, d et L le diamètre et la longueur respective du capillaire. Afin d'obtenir les sections efficaces absolues, il est important de s'affranchir du bruit de fond résultant des collisions entre les agrégats et le gaz résiduel. Afin de soustraire ces interactions, un capillaire présentant exactement les mêmes caractéristiques que le précédent est placé sur le côté de la chambre et éloigné de l'axe du faisceau. Ainsi, en se plaçant dans les mêmes conditions de débit, on mesure la contribution du fond. Sa mise en marche se fait en fermant le robinet $V4$ et en ouvrant les robinets $V5$ et $V6$. Typiquement, le rapport signal/jet/fond est de l'ordre de 2 à 3. Les vannes $V6$, $V8$, $V9$ et R (réglage du débit manuel) servent à vidanger le système.

Un point important reste à déterminer. Comment positionner le jet par rapport au faisceau ? Situé trop près, le capillaire peut intercepter une partie du faisceau. On effectue donc tout d'abord un profil vertical en positionnant le jet verticalement et en mesurant l'intensité du faisceau transmis à l'aide d'un détecteur ouvert situé dans le fond de la chambre de détection et relié à une échelle. On obtient ainsi le profil intégré du faisceau. En considérant que le faisceau est gaussien, on obtient un profil du type présenté sur la figure 1.13. On positionne le capillaire entre un et deux dixièmes de millimètre au-dessus du faisceau afin d'avoir une cible homogène. Sur la figure 1.13, le faisceau présente une largeur verticale à mi-hauteur de deux dixièmes de millimètre. On place le capillaire à 3.6 mm.

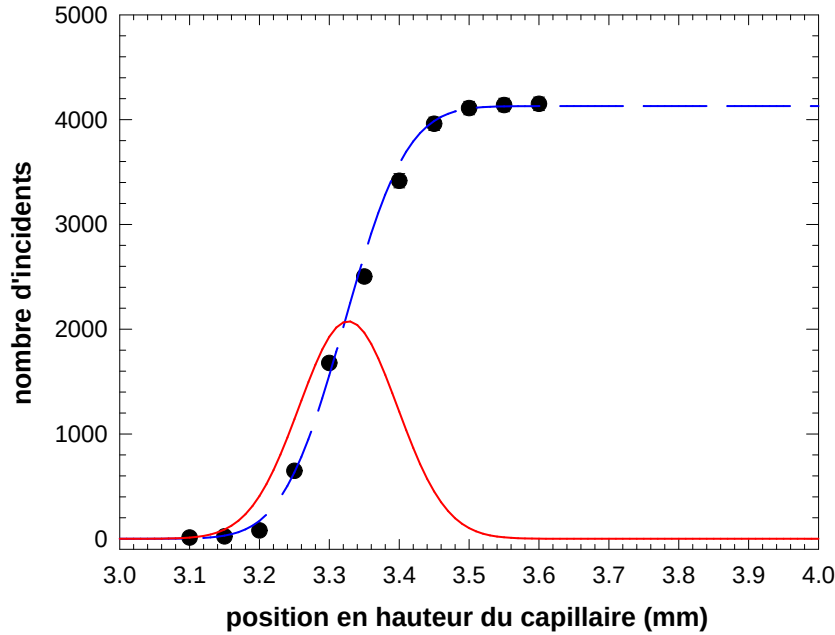


Fig. 1.13: profil vertical intégré du faisceau au niveau du capillaire ($-\bullet-$). ($-$) profil dérivé des mesures.

Caractérisation du jet pour l'obtention des sections efficaces absolues

La mesure du profil de jet se fait avec 2 détecteurs et est indispensable pour l'extraction des sections efficaces absolues. L'un est placé sur le faisceau incident et l'autre sur le faisceau secondaire de fragments de C^+ émis (ou tout autre voie résultante d'une interaction avec le jet). Le déflecteur est mis en fonctionnement et permet le tri des fragments. On mesure alors la probabilité d'interaction avec la cible d'un processus quelconque (ici, émission de C^+) en fonction de la position relative du jet par rapport au faisceau, ce qui nous donne son profil latéral (figure 1.14). Une fois la mesure de profil effectuée, on place le jet au maximum d'interaction afin de maximiser le rapport signal sur bruit.

La mesure du profil du jet étant établie, nous allons expliquer comment l'utiliser pour le calcul du recouvrement jet-faisceau. Cette méthode a déjà été démontrée par Wohrer et al. [92]. Nous ne détaillerons donc pas tous les points ici. Nous rappelons simplement les étapes essentielles pour les mesures des sections efficaces absolues.

La section efficace d'un processus donné s'écrit :

$$\sigma = \frac{\mathcal{P}_{jet} - \mathcal{P}_{fond}}{B_{jet}} \quad (1.11)$$

avec $\mathcal{P}_{jet}$ et $\mathcal{P}_{fond}$ les mesures en jet et en fond des probabilités du processus caractérisé et B_{jet} le recouvrement jet-faisceau [59]. On montre que B_{jet} s'écrit :

$$B_{jet} = \int \int \int \frac{\Phi(x, y, z)}{N_0} n(x, y, z) dx dy dz \quad (1.12)$$

où $\Phi(x, y, z)$ est le flux de projectiles incidents, $n(x, y, z)$ la densité du jet et N_0 le nombre de projectiles incidents par seconde. Après quelques simplifications (Wohrer

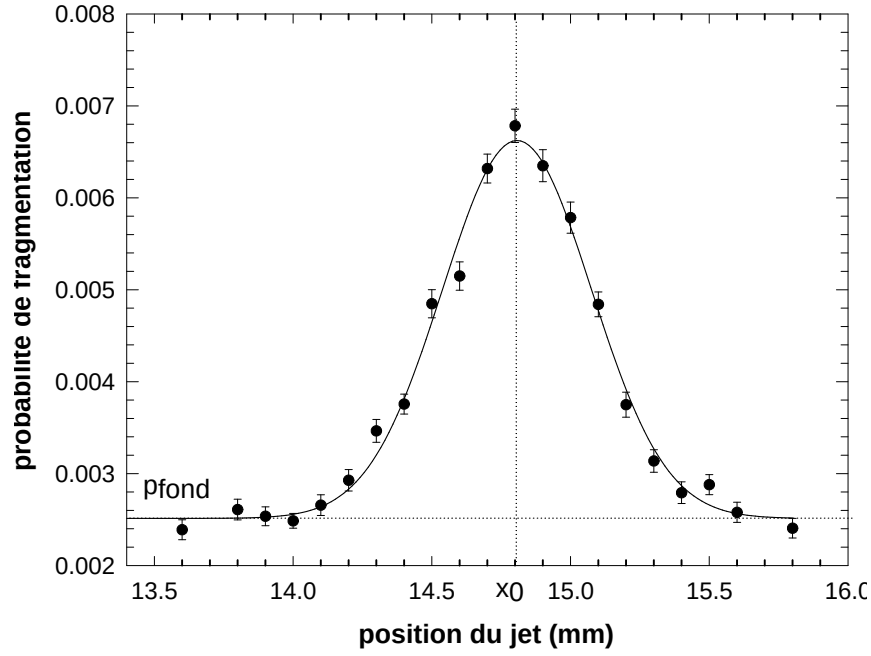


Fig. 1.14: profil horizontal du jet ajusté par un fit gaussien

et al. [92]), il vient :

$$B_{jet} = R_{exp} \frac{dN}{dt} \frac{f_{\lambda}}{v_{th}} \quad (1.13)$$

où f_{λ} est un facteur correctif dépendant du régime d'écoulement (ici, $f_{\lambda} = 1.22$, v_{th} la vitesse thermique moyenne des atomes du gaz à la température T , dN/dt le débit d'atomes et R_{exp} donné par la relation suivante :

$$R_{exp} = \frac{p_{jet} - p_{fond}}{\int p(x) dx} \quad (1.14)$$

avec p_{jet} et p_{fond} tirés du profil du jet $p(x)$ de la figure 1.14 à la position x_0 du jet. Les erreurs proviennent de la statistique, de la mesure de dN/dt ainsi que du fit donnant l'intégrale du profil (fit gaussien $p(x) = p_{fond} + \frac{I}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\{-\frac{(x-x_0)^2}{2\sigma^2}\}$ avec $I = \int p(x) dx$). La valeur $\mathcal{P}_{fond}$ est obtenue en utilisant le capillaire sur le côté de la chambre de collision.

Finalement, les mesures de $\mathcal{P}_{jet}$ et $\mathcal{P}_{fond}$ ainsi que le fit du profil de jet illustré par la figure 1.14 nous permettent d'extraire les sections efficaces absolues, en tenant compte évidemment des conditions expérimentales du fonctionnement du jet ($\frac{dN}{dt}$ ainsi que f_{λ} et $v_{th} = \sqrt{\frac{8kT}{m\pi}} = 1.24 \cdot 10^5$ m/s) pour l'hélium à une température de 293 K.

Nous pouvons aussi vérifier la composition du gaz résiduel grâce à un spectromètre de masse. Outre l'hélium, il met en évidence la présence de O_2 , H_2O , N_2 dont les pressions relatives sont typiquement de 10%, $\leq 1\%$ et $\leq 1\%$ en fonctionnement standard.

1.2.3 Le déflecteur

Le déflecteur utilisé permet un réglage de l'écartement des plaques (jusqu'à 30 mm) et sa longueur est de 150 mm. Nous ne détaillerons pas l'étude des propriétés optiques du déflecteur car celles-ci concernent essentiellement l'étude des processus d'excitation et d'ionisation qui ne sont pas les thèmes de ce travail. Dans ma thèse, ne s'intéressant qu'au processus de capture électronique, le déflecteur est utilisé uniquement pour dévier les fragments chargés hors de l'axe optique du faisceau. On peut cependant dire que pour un fragment de n constituants avec une charge q , sa déviation par rapport à l'axe optique à une distance D du déflecteur sera :

$$y_{C_n^{q+}} = \frac{q}{n} \frac{VL}{2Ed} \left(\frac{L}{2} + D \right) \quad (1.15)$$

où V est la différence de potentiel entre les 2 plaques, L leur longueur, d leur distance d'écartement et E l'énergie par atome. On voit ainsi que la déviation est proportionnelle au rapport q/n des fragments. On pourra donc observer tous les fragments émis en plaçant des détecteurs qui recouvrent l'ensemble des valeurs possibles de q/n .

1.2.4 Positionnement des détecteurs

Les détecteurs sont placés dans la chambre de détection pour couvrir tout l'angle solide de la réaction. A l'intérieur se trouvent deux barreaux rayonnant autour du centre de déflexion de l'analyse électrostatique et un rail au fond de la chambre. Ces supports permettent de fixer un ou plusieurs détecteurs à des distances variables de la cible et sur des trajectoires différentes de l'axe optique. Leurs réglages se font en hauteur et en rotation (pour les barreaux) et en latéral (pour le rail du fond) à l'aide de vis micrométriques, la mesure de position étant réalisée par des lectures de type *piéd à coulisse*.

Le barreau petit angle est situé près de l'axe optique de la ligne. C'est sur celui-ci que sera fixé le détecteur de fragments neutres. Son balayage couvre les angles allant de -2° à $+7^\circ$ autour de l'axe optique. De plus, on peut y ajouter une fente afin d'effectuer un scan du faisceau (horizontal ou vertical selon la fente). Le détecteur de neutres a été placé à plusieurs distances de la cible afin d'explorer différentes fenêtres temporelles de la fragmentation qui correspondent à des temps de vol cible-détecteur de 100 à 250 ns pour une vitesse de 2.6 u.a.

Le barreau grand angle balaye les angles allant de 7° à 16° . Son utilisation est similaire à l'autre barreau. On y place un *doigt* (fil vertical de 1 à 2 mm de diamètre) pour occulter le détecteur interceptant le faisceau incident afin de ne pas saturer l'acquisition lors des mesures des rapports de branchement. Ce détecteur nous sert uniquement aux mesures des sections efficaces absolues qui sont faites séparément de celles des rapports de branchement.

Le rail du fond est composé de trois éléments parallèles. Leur espacement est de 55 mm et 148 mm par rapport à celui du fond. L'ensemble est monté sur le rail qui peut-être déplacé latéralement par une molette ayant une précision de l'ordre du centième de millimètre. Les détecteurs sont placés en quinconce afin de limiter les zones mortes dues à leur support et réaliser un ensemble compact. Outre les

detecteurs de fragments chargés, on y place aussi une fente afin d'aligner l'ensemble des détecteurs sur la position réelle du faisceau.

L'utilisation de faisceaux fins est très importante pour la détection. En effet, si l'on veut collecter tout les fragments, il est important que la taille du faisceau de fragments résultant de la taille du faisceau et de la dispersion due à la fragmentation des agrégats soit inférieure à celle du détecteur. L'énergie transmise aux fragment est de l'ordre de quelques électron-volts, soit une dispersion de l'ordre du milliradian. On obtient ainsi une estimation de la taille de la zone où vont arriver les fragments. Pour calculer le centroïde du faisceau de fragments, on utilise la relation (1.15) qui donne la déviation d'un agrégat de taille n et de charge q soumis au champ du déflecteur. Connaissant la distance entre les plaques et les détecteurs du fond, on en déduit aisément leur position d'arrivée. Ceci nous permet d'obtenir la configuration

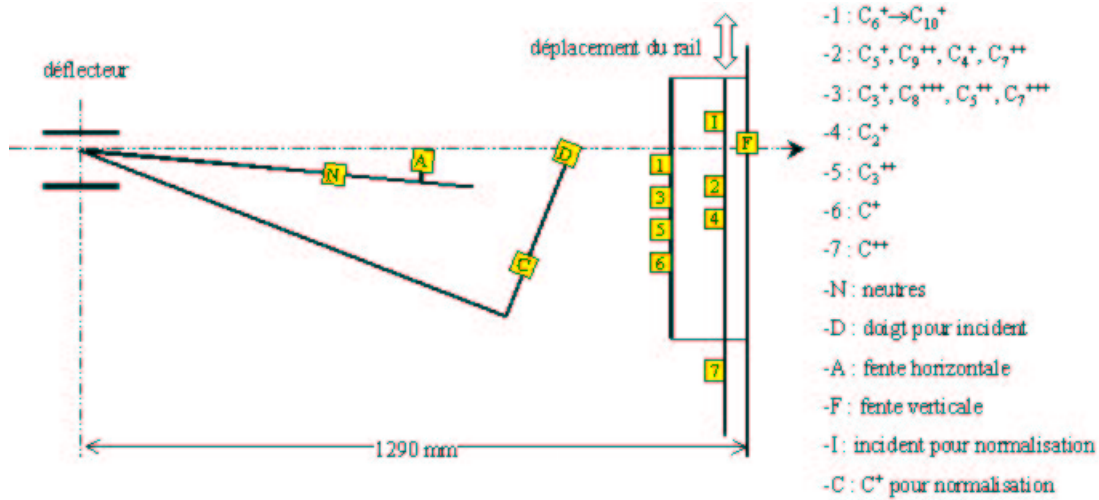


Fig. 1.15: exemple d'une configuration pour un faisceau incident de C_{10}^+ . Les détecteurs numérotés de 1 à 7, ainsi que celui portant la lettre N sont reliés à la chaîne électronique numérique. Tout les autres sont reliés à la chaîne classique.

que nous allons utiliser pour l'expérience. La figure 1.15 donne exemple d'une configuration que nous avons utilisée pour un faisceau incident de C_{10}^+ et utilisable pour des faisceau d'agrégats de taille plus petite (jusqu'au C_5^+).

1.3 Electronique et acquisition

Nous verrons dans la partie sur le traitement du signal comment nous utilisons la forme des impulsions de courant issues des détecteurs silicium pour identifier les fragments. C'est pourquoi, en plus d'une chaîne électronique classique, c'est-à-dire de spectroscopie, les services techniques de l'IPN ont développé une électronique et une acquisition pour permettre une numérisation des signaux.

1.3.1 La chaîne de normalisation et de réglages

Elle est utilisée dans l'expérience pour les mesures de normalisation et les mesures de réglages (profil du jet, alignement des détecteurs avec les fentes, etc). Pour les mesures de normalisation, nous utilisons une acquisition CAMAC avec une chaîne de mesure de type standard, c'est-à-dire un codage des charges produites par l'arrêt des agrégats dans les détecteurs. Cette chaîne est illustrée sur la figure 1.16 et com-

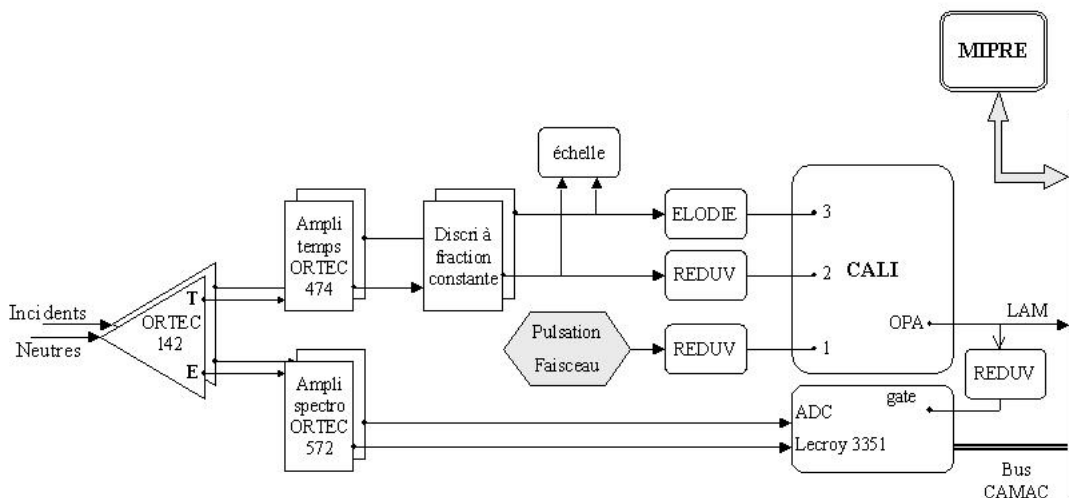


Fig. 1.16: Chaîne de spectrométrie standard de charge intégrée dans un châssis CAMAC

posée de pré-amplis de charge ORTEC 142. Leur sortie est reliée à un amplificateur ORTEC 571 ou 572 (selon le cas) afin d'envoyer les signaux vers un convertisseur analogique numérique (CAN) *Lecroy 3351* intégré dans un châssis CAMAC et codant l'amplitude du signal d'entrée sur 12 bits, soit 4096 canaux.

Afin de synchroniser toute l'acquisition, la sortie temps est branchée à un amplificateur de temps ORTEC 454 ou 474 dont le signal résultant est relié à un discriminateur à fraction constante convertissant un signal analogique en signal logique de type NIM. Les modules REDUV produisent une impulsion logique à durée variable (éventuellement retardée) en réponse à un signal logique. Celle-ci permettra de déclencher le codage des CAN et de fixer la durée de la fenêtre de codage. Le module CALI (coïncidence à logique incorporée) gère la validation des événements. Il déclenche l'acquisition si les critères de sélections de l'événement sont remplis. Pour calibrer les voies énergie, on ajuste les gains des amplificateurs énergie en fonction de la gamme de fonctionnement que l'on va détecter. Les pré-amplis ont un facteur de conversion de 20 mV/Mev, caractéristique des détecteurs silicium. A l'aide des entrées test et d'un générateur d'impulsion, on ajuste le gain pour avoir une correspondance en sortie de l'ampli de 10V pour 30 Mev soit un signal de 600 mV envoyé sur l'entrée. Les 10 volts correspondent à la tension maximale que peut coder le codeur de tension. La pulsation du faisceau (retardée du temps mis par la particule pour arriver sur le dispositif) est raccordée sur la voie maître de CALI. Elle ouvre une fenêtre de coïncidence. Si un événement arrive dans cette fenêtre sur la

voie neutre ou incidente, l'événement est validé. Pour éviter de saturer l'acquisition avec le faisceau incident (temps mort) on utilise le module ELODIE afin de diviser le nombre d'événements de cette voie. En parallèle, les signaux sont envoyés aux échelles pour les mesures de temps mort de l'acquisition, les mesures de normalisation ainsi que pour la visualisation des taux de comptages servant aux réglages grâce à la génération d'un ordre d'acquisition (OPA). La gestion du châssis CAMAC se fait par un PC avec une acquisition MIPRE.

1.3.2 La chaîne numérique

Nous verrons plus loin que cette chaîne nous permet de numériser les signaux et qu'avec un traitement approprié nous obtenons l'identification des événements grâce aux formes numérisées.

Les pré-amplis

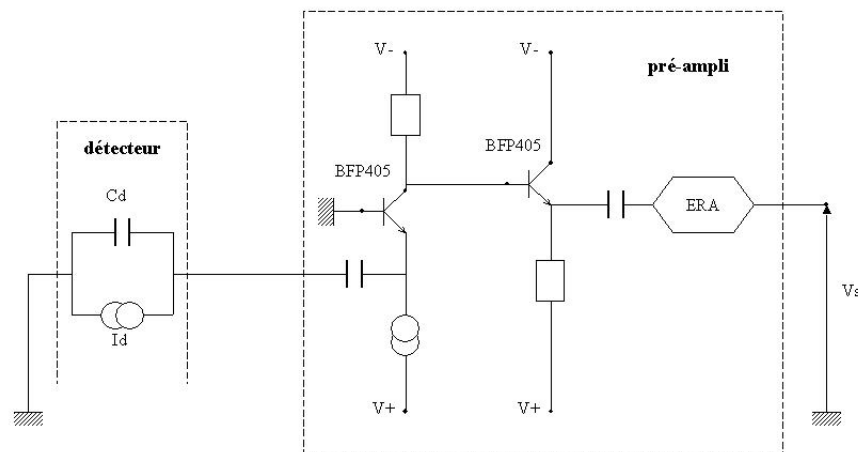


Fig. 1.17: schéma simplifié du pré-ampli de courant 1 ERA à 700 MHz de bande passante.

Les pré-amplis utilisés ici sont des pré-amplis de courant et non de charge comme utilisés par la chaîne standard. On ne va plus mesurer uniquement la charge mais la manière dont elle est collectée dans le temps. Nous avons utilisé dans nos expériences deux versions de pré-amplis de courant. La première génération avait été initialement conçue pour des sondes de phases [93]. Leur bande passante est de 300 MHz avec une impédance d'entrée de 30 Ohms. Le transistor utilisé est un transistor à FET (Field effect transistor) ATF10135 Avantek à l'arséniure de Gallium. La seconde génération (figure 1.17), développée par le SEP de l'IPN pour nos expériences, possède une bande passante de 700 MHz et utilise un transistor bipolaire BFP405 issu des technologies des télécommunications. Il est constitué d'un semi-conducteur Silicium-Germanium et sa fréquence de transition en courant à 0dB est de 25 GHz. Le premier transistor est monté en base commune. L'impédance d'entrée est faible (20 Ohms environ) pour autoriser le passage des hautes fréquences. Le signal d'entrée est alors appliqué à l'émetteur. La résistance en sortie convertit le courant en

tension. Le deuxième transistor est monté en collecteur commun. Il sert à adapter l'impédance de sortie du montage sur 50 Ohms. Le composant ERA est un amplificateur de tension. Deux versions existent selon le gain désiré. L'une avec un seul ERA, et une autre avec deux ERA chaînés.

Acquisition avec oscilloscope GPIB

La première acquisition (figure 1.18) utilisée pour l'analyse en forme utilisait un oscilloscope Tektronix TDS 544 à 1 Giga-échantillons/s et une bande passante de 500 MHz, codant sur 500 canaux de 8 bits de profondeur. Celui-ci était relié à l'acquisition par son port GPIB (*General Purpose Interface Bus*) via un châssis VME. La carte TSVME409 du châssis établit la conversion avec le port GPIB.

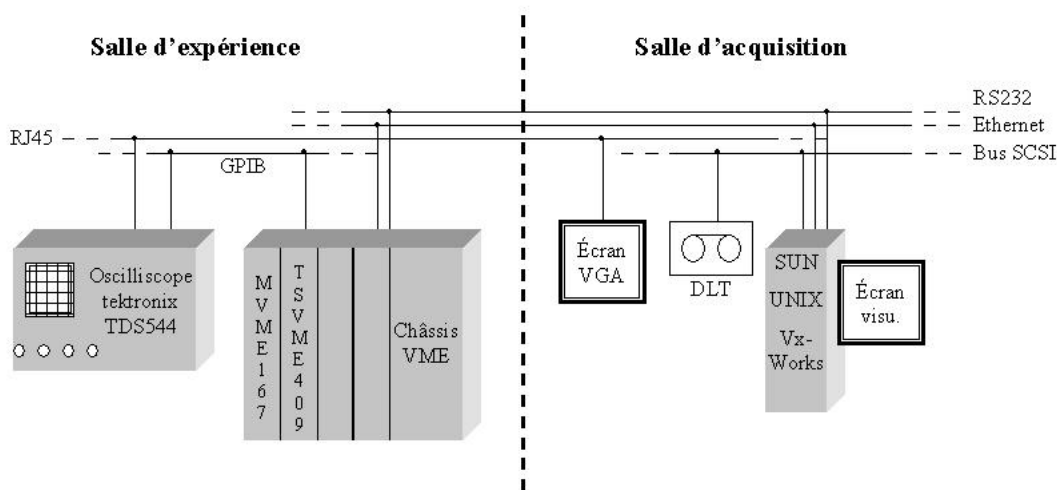


Fig. 1.18: schéma de l'architecture de l'acquisition avec l'oscilloscope TDS 544

Une application client/serveur a été développée en C par le service informatique de l'IPN [94] afin de pouvoir contrôler l'oscilloscope depuis la salle d'acquisition. L'interface client pour le graphisme est gérée sur le Sun avec les motifs X11, tandis que la partie serveur est exécutée sur la carte MVME167 sous VxWorks. Un retour sur un écran VGA depuis l'oscilloscope permet de suivre les modifications de ses paramètres. Comme il ne peut y avoir deux connexions en même temps sur le port GPIB, les modifications de réglages ne peuvent se faire pendant l'acquisition. Ainsi, VxWorks est occupé soit par le contrôle de l'oscilloscope, soit par l'acquisition figure 1.19. L'acquisition est dirigée par Oasis, le système standard de l'IPN. Il contrôle le flux de donnée pour le traitement en ligne ainsi que pour le stockage sur bande magnétique DLT. Il définit les appareils et leurs adresses que ce soit par le châssis CAMAC ou par le châssis VME. Une communication avec VxWorks permet de configurer les appareils reliés au VME ou bien de recevoir les données qui en sont issues. Une partie du programme est réservée à l'utilisateur et peut être écrite en C, C++ ou fortran. On y définit les spectres à visualiser ainsi que les calculs à faire

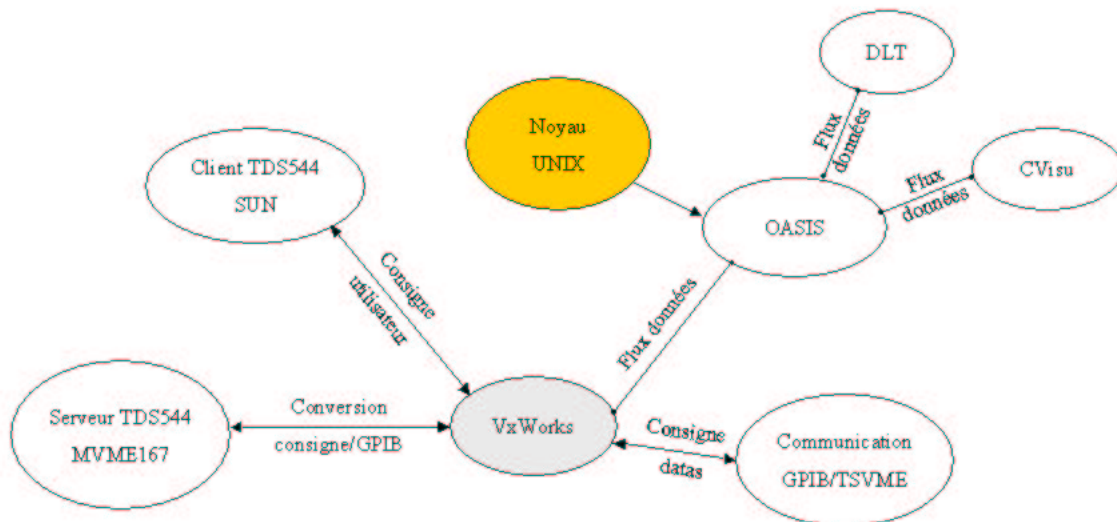


Fig. 1.19: organigramme de l'acquisition avec l'oscilloscope TDS 544

pour l'affichage géré par Cvisu. Les spectres peuvent être à 1 ou 2 dimensions et un nombre important d'outils graphiques sous Cvisu, notamment pour la gestion de contours, permet d'en faire un premier traitement en ligne pour avoir le suivi de l'expérience en temps réel. Le problème de ce dispositif est la limitation de flux de données par le port GPIB à 1Mo/s et le nombre de voies que l'on peut numériser en coïncidence qui reste faible. Ainsi, le taux d'acquisition ne dépasse pas les 10 événements par seconde pour une voie. C'est pourquoi, dès que la faisabilité de la méthode d'identification a été montrée [95], nous avons acquis un système de mesure numérique plus puissant qu'un simple oscilloscope.

Acquisition avec numériseur Acqiris 8 voies

Afin d'améliorer les capacités de l'acquisition pour numériser les signaux sur toutes les voies, nous avons utilisé un numériseur Acqiris, qui permet de coder 8 voies en même temps avec des taux d'acquisition nettement supérieurs à un oscilloscope relié par GPIB (figure 13). Ce système fonctionne au format PCI, format standard pour des PC classiques. Il est composé d'un châssis CC108 comportant 8 slots compacts PCI et de 4 cartes numériseur 8 bits au format cPCI 6U de 2 voies chacune. Une carte IC200 occupe le slot 0 pour relier le châssis au port PCI du PC et assurer un taux de transfert pouvant aller jusqu'à 100 Mb/s. Chaque voie est numérisée à 2 Giga-échantillons par seconde avec une bande passante de 500 Mhz. Les 8 voies sont reliées par un Asbus (Auto-Synchronization-Bus) externe à 1 GHz pour la distribution et la synchronisation du trigger commun aux 4 cartes. Ainsi, en utilisant 8 voies simultanées, il est possible d'atteindre des taux d'acquisition allant jusqu'à quelques milliers d'événements par seconde, avec un codage de 2000 points toutes les 500 ps avec un codage d'amplitude de 8 bits pour chaque voie qui est la limite imposée par les interruptions de bus et l'envoi des données. Le PC bi-processeur (deux Pentium IV à 1,2GHz, 512 Mo RAM) est relié au réseau TCP/IP du tandem

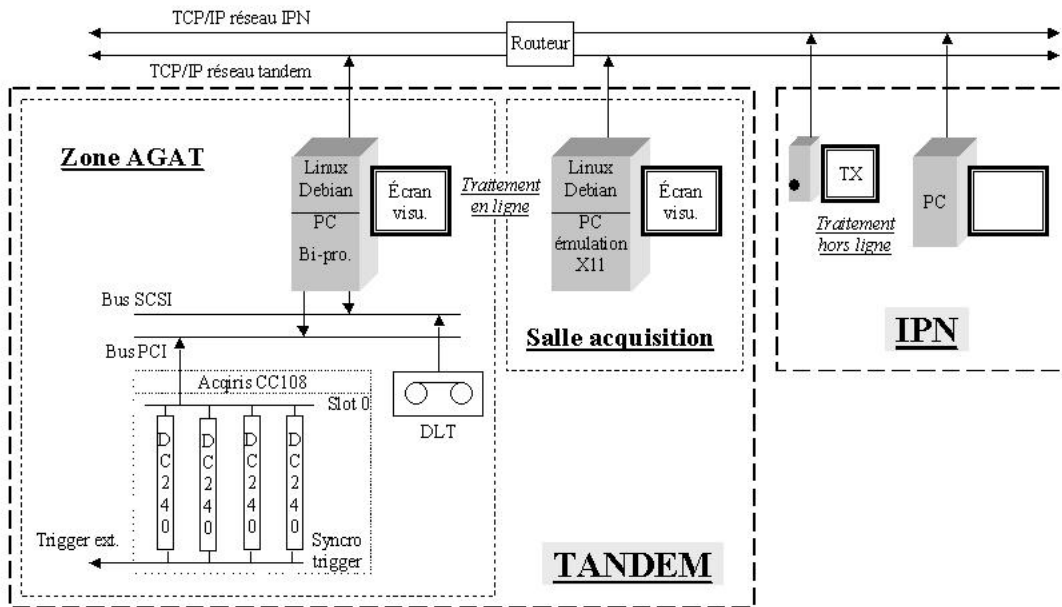


Fig. 1.20: acquisition avec numériseur acqiris 8 voies compact PCI

et gère toute l'acquisition. Il est alors possible de contrôler l'acquisition par un PC client depuis la salle de physique de l'accélérateur. Un traitement après l'expérience est aussi possible depuis un terminal X par le réseau global IPN.

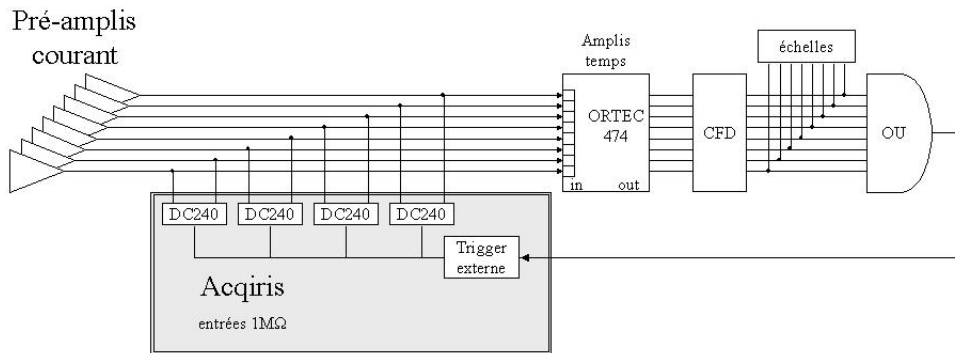


Fig. 1.21: logique de décision pour la numérisation

L'inconvénient de la solution Acqiris est de proposer un trigger commun aux huit voies qui oblige à fixer la voie qui fera le déclenchement. Pour remédier à ce problème, on utilise le déclenchement externe (figure 1.21). On sépare les signaux en deux en entrée du numériseur, que l'on positionne sur 1 M Ω pour accorder les impédances, afin d'envoyer l'un des deux sur un ampli temps ORTEC 474. Le signal résultant est raccordé à un discriminateur à seuil (noté CFD). Le signal ainsi obtenu est utilisé comme signal logique afin d'avoir un comptage sur des échelles d'une part, et un "OU" logique entre les huit voies d'autre part. Ce dernier est envoyé sur le trigger

externe du numériseur. Ainsi, on arrive à déclencher la numérisation sur toutes les voies. On pourra ainsi mesurer les différences de temps d'arrivée des fragments entre les voies pour l'étude de l'excitation et de l'ionisation que nous n'aborderons pas dans ce travail.

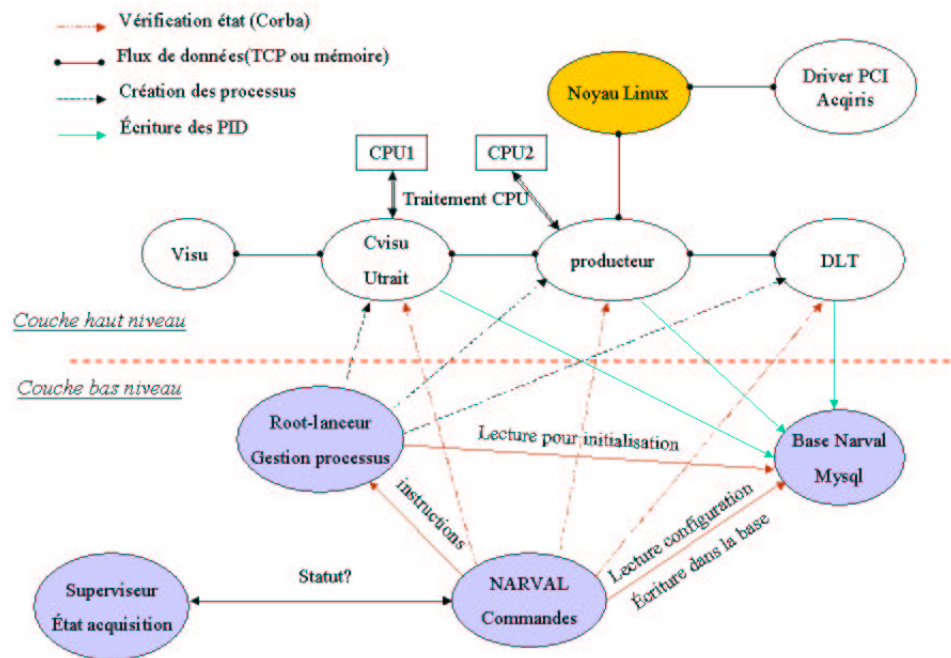


Fig. 1.22: organigramme de l'acquisition NARVAL

Bien que le constructeur fournisse des programmes *plug and play* pour la gestion du module, l'utilisation d'un programme d'acquisition développé à l'IPN sous Linux est nécessaire pour obtenir de meilleures performances et gérer l'écriture sur bande. Ce logiciel forme le cœur de l'acquisition et est appelé NARVAL pour *Nouvelle Acquisition Réel-time Version 0.1 Avec Linux* [96]. Sa vocation est de remplacer le système d'acquisition OASIS de l'IPN. Narval se base sur le principe que le gain de puissance peut se faire en répartissant les processus sur plusieurs machines. Ce système utilise les technologies orientées objets en utilisant le bus logiciel CORBA pour la partie bas niveau, et des langages objets tels que Ada95 ou C++ pour la partie haut niveau. Trois éléments doivent être présents avant le lancement de Narval :

- Le superviseur : donne l'état du système d'acquisition
- La base donnée Mysql : garde une trace des configurations et des processus PID.
- Un Root-lanceur : lance ou supprime les processus acteur (un par machine).

Narval est le cœur de l'acquisition (figure 1.22). Il tient le rôle de chef d'orchestre et gère l'interaction de l'utilisateur avec l'ensemble (start, stop, modifications des paramètres des instruments etc...). Lorsqu'on lance le programme, il charge le fichier de configuration choisi et écrit la configuration dans la base de donnée. Puis il demande au root-lanceur de créer les processus acteurs à partir de la configuration

présente dans la base, qui vont renvoyer leur numéro identification PID correspondant à la base Mysql. Enfin, un prestart vérifie le bon fonctionnement entre les différents acteurs pour ensuite lancer l'acquisition en indiquant au superviseur son état. Ce dernier permet la modification des options du bandeau de commande pour l'utilisateur. Dans le cas d'une expérience avec différents instruments, il faut un root-lanceur par machine, celles-ci pouvant être des châssis VME, VXI, des PC ou autres. Il peut alors y avoir un ou plusieurs producteurs reliés par un concentrateur, l'ensemble communiquant par le protocole TCP/IP. Le producteur assure une gestion en temps réel du flux de données. Les calculs pour la visualisation sont effectués par le programme Utrait géré par Cvisu. Il peut être écrit en C, C++, Ada95 ou fortran.

1.4 Montage pour des temps d'observation courts ($\approx 50 \text{ ns}$)

La fragmentation pouvant différer avec le temps de vol entre la collision et la détection (voir 2.3), nous avons construit le dispositif illustré par la figure 1.23 afin de réduire le temps d'observation. Pour des agrégats ayant une vitesse de 2.6 u.a. , cela correspond à une fenêtre d'observation de 55 ns environ.

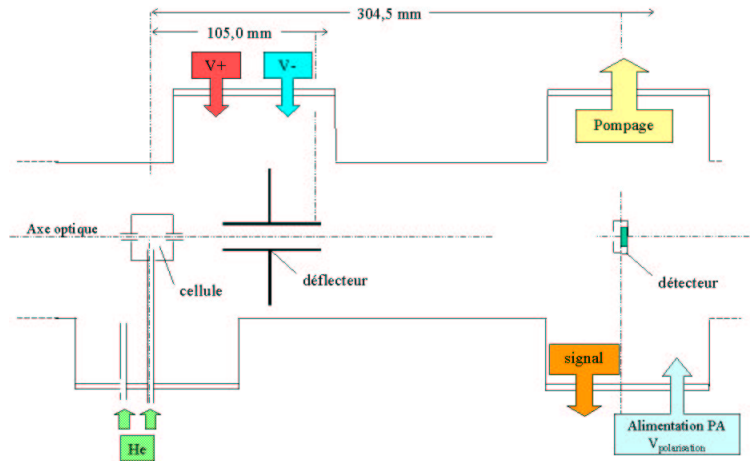


Fig. 1.23: Schéma du montage

Le déflecteur électrostatique, constitué de deux plaques longues de 60 mm et espacées de 16 mm , établit une différence de potentiel allant jusqu'à 25 kVolts environ. Le champ de $15,6 \text{ kV.cm}^{-1}$ ainsi créé est suffisant pour dévier les particules chargées de l'axe optique. La cellule gazeuse ainsi que le détecteur sont positionnés sur l'axe du faisceau. Quatre brides forment les passages pour le gaz, la polarisation des plaques, la polarisation du détecteur ainsi que l'alimentation du pré-ampli, le signal du détecteur et enfin le pompage de l'ensemble.

Le déflecteur, la cellule et l'ensemble détecteur/pré-ampli sont fixés sur leur bride respective (fig. 1.24). On aligne le tout sur l'axe optique grâce à un collimateur en entrée de dispositif. La précision du positionnement se fait au dixième de millimètre, ce qui est suffisant pour les dimensions du dispositif.

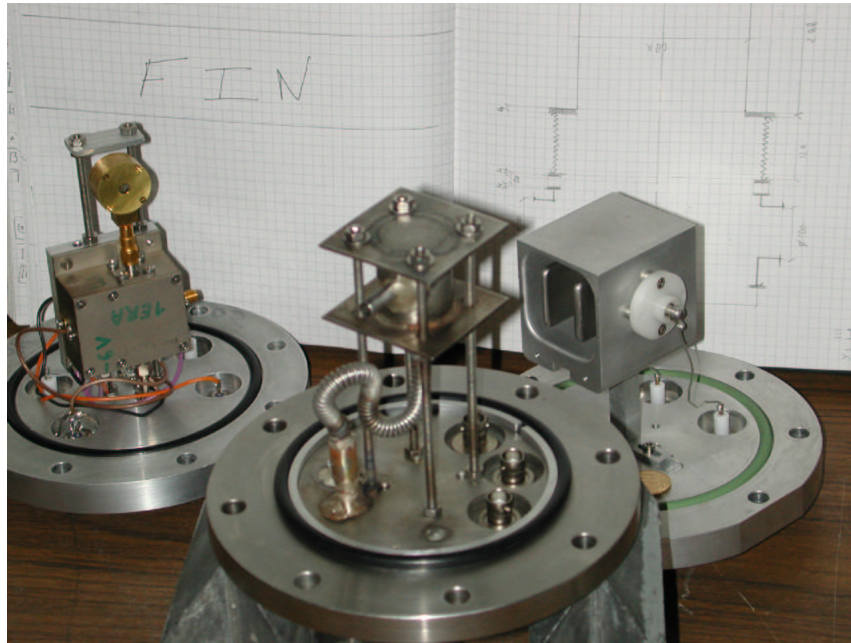


Fig. 1.24: Le détecteur sur son pré-ampli, la cellule gazeuse et le déflecteur montés sur leur bride (de gauche à droite)

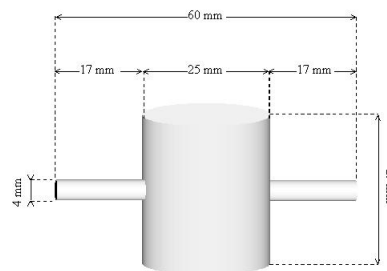


Fig. 1.25: schéma de la cellule gazeuse

La cellule gazeuse (figure 1.25) est composée d'un cylindre de 29 mm de hauteur et 25 mm de diamètre bouché à ses extrémités. Puis deux tubes de 25 mm de longueur et de 4 mm de diamètre ont été ajoutés sur les côtés pour permettre le passage du faisceau dans la cellule. La distance entre l'entrée de la cellule et la sortie est de 60 mm. Le volume total est d'environ 14.7 cm^3 . La cellule est fixée à sa bride par un système d'écrous qui permet son alignement sur l'axe optique au moment du montage. Des tuyaux d'arrivée de gaz y sont reliés pour faire les mesures en tenant compte du fond résiduel (une entrée fond, une entrée cellule). Le débit est maintenu constant par un robinet manuel. Une jauge dans le système de gaz permet de vérifier que la pression ne varie pas pendant la mesure afin d'avoir toujours la même épaisseur de cible.

Le gaz utilisé dans la cellule est de l'hélium. La pression à l'intérieur de la cellule est réglée de manière à avoir une probabilité d'interaction de l'ordre de 5% pour la production de fragments neutres.

Chapitre 2

Identification des partitions de fragmentation par analyse en forme des signaux

Pour étudier la désexcitation de l'agrégat, il est nécessaire de résoudre sans ambiguïté l'état de fragmentation dans lequel il est détecté. Les empilements de la voie neutre (capture) ne sont pas accessibles par une chaîne classique de mesure de charge. Ils ne peuvent pas être triés suivant leur rapport charge sur masse et l'énergie mesurée est la même pour un agrégat neutre entier ou fragmenté. Par exemple, si on étudie le C_5^+ , après capture, nous aurons dans l'axe du faisceau incident toutes les combinaisons possibles de la fragmentation du C_5 , soit 7 possibilités. L'énergie mesurée pour le C_5 ou un état fragmenté comme la voie $C_3 + C_2$ nous donne le même résultat. Il est donc important de pouvoir différencier ces états de fragmentation. Pour se faire, nous avons mis au point une méthode d'identification qui n'a jamais été utilisée auparavant. L'utilisation de pré-ampli de courant va nous donner accès à la manière dont les charges sont créées dans le détecteur. Par analyse de la forme des signaux de courant, on parviendra à identifier l'état de fragmentation de l'agrégat.

Nous aborderons dans un premier temps la description des détecteurs silicium ainsi que les différentes technologies de fabrication. Celles-ci ont une grande importance sur la formation des signaux. Nous verrons ensuite, à l'aide d'un modèle simple de collection de charge (Seibt, 1973 [97]), comment le signal de courant est formé. Ce dernier point mettra en évidence l'effet plasma caractéristique de la taille des agrégats. Nous détaillerons enfin les propriétés des signaux qui permettent, à l'aide des outils du traitement du signal, d'extraire l'information sur l'état de fragmentation dans lequel l'agrégat est détecté.

2.1 Rappel sur le fonctionnement des détecteurs Silicium

Les détecteurs Silicium sont des détecteurs qui, outre leur efficacité (100%), permettent de mesurer l'énergie des particules incidentes. En effet, quand un ion pénètre dans la matière, il crée un nuage de charge le long de son parcours. Dans le semi-

conducteur, ce nombre de charges créées (Q) est égal à l'énergie cinétique (E_c) de la particule divisée par le quantum de charge ($\epsilon = 3.6 \text{ eV}$ dans le Silicium). La dynamique de la collection de ces charges est une observable (courant produit $i(t)$) devenue accessible avec les moyens modernes de mesure (électronique et numérisation). Cette dynamique de collection de charges est une signature du type de la particule détectée. C'est sur ce principe (la mesure du courant) que nous avons pu extraire l'information sur la fragmentation dans nos expériences tout en conservant la mesure de l'énergie déposée dans le détecteur :

$$E_c = \frac{1}{2}mv^2 = Q\epsilon = \epsilon \int i(t)dt \quad (2.1)$$

Nous commencerons par exposer le principe de fonctionnement des détecteurs Silicium, puis nous présenterons les effets agrégat que nous avons mis en évidence.

2.1.1 Le semi-conducteur

Un semi-conducteur est un réseau cristallin dont les bandes de conduction (BC) et de valence (BV) sont séparées par une bande interdite tout comme les isolants. La largeur de cette bande est appelée le gap et a une valeur de 1 à 2 eV alors que dans le cas des isolant, cette bande est plus large (de l'ordre de 5 eV). Le gap est de 1.1 eV pour le silicium et de 0.66 eV pour le germanium. Dans le cas d'un conducteur (métal), les bandes de conduction et de valence se chevauchent. Formellement, à 0°K,

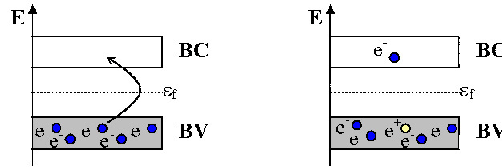


Fig. 2.1: schéma de la création de paire électron-trou

les électrons se trouvent dans la bande de valence et le matériau est alors isolant. En réalité, à cause de la température, mais aussi des impuretés, quelques électrons sont présents dans la bande de conduction et par image de la charge, quelques trous sont créés dans la bande de valence. Ceci est représenté sur la figure 2.1. Ce sont ces proportions de porteurs de charges libres et mobiles qui vont déterminer la résistivité réelle du matériau. Cependant, à l'équilibre, les concentrations d'électrons (notée n_e), dans la bande de valence, et de trous (notée n_t), dans la bande de conduction, sont égales :

$$n_e = n_t = n_i$$

où n_i est la concentration de porteurs définis comme intrinsèques.

On peut substituer des atomes de silicium dans le réseau cristallin par des atomes qui seront donneurs ou accepteurs de trous ou d'électrons. Ainsi, les atomes pentavalents (colonne V) comme le phosphore (P), l'arsenic (As) ou encore de l'antimoine

(*Sb*) vont apporter un excès d'électrons. On dit alors que le semi-conducteur est de type *N* (donneur d'électrons). Au contraire, les atomes trivalents (colonne III) comme le bore (*B*), le gallium (*Ga*) ou l'aluminium (*Al*), vont apporter un excès de trous. Le semi-conducteur ainsi dopé est dit de type *P* (accepteur d'électrons).

2.1.2 Rappel sur la jonction P-N

Pour créer un champ électrique collectant les porteurs de charge, on établit un contact entre un semi-conducteur de type *N* et un autre de type *P*. On forme ainsi une jonction dite *P-N* donnant naissance à un champ électrique à l'interface des deux matériaux (voir figure 2.2).

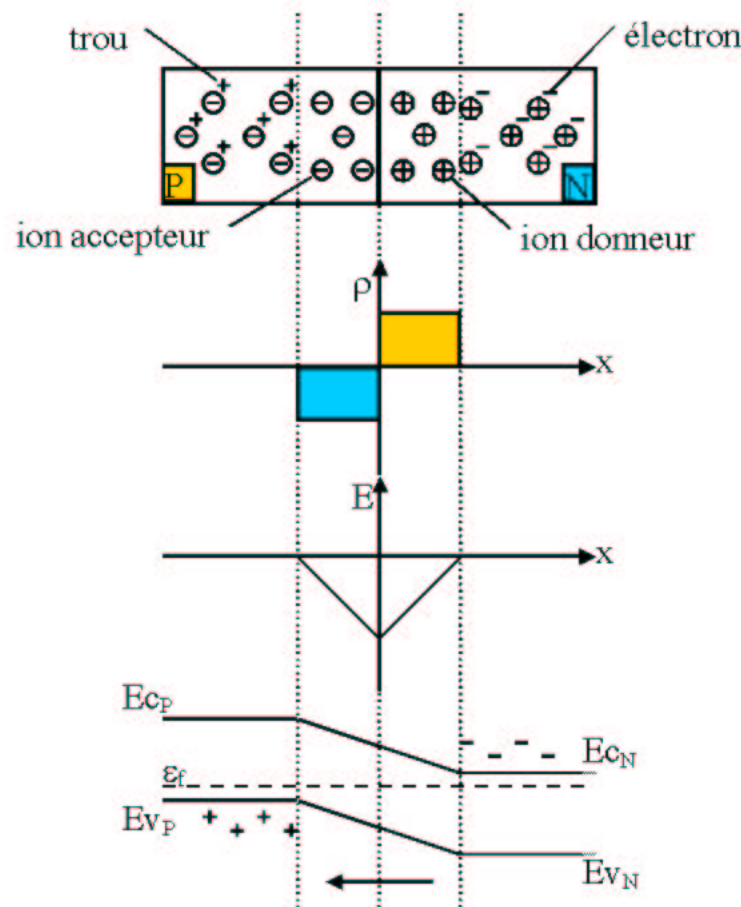


Fig. 2.2: schéma de la formation de la jonction P-N

En effet, la différence de concentration des électrons et des trous dans chaque partie de la jonction provoque une migration des charges. Des électrons de la bande de conduction se déplacent de la partie N vers la partie P et les trous de la partie P vers la partie N. Les semi-conducteurs étant initialement neutres vont se charger créant ainsi un champ électrique au niveau de la jonction formant une zone de déplétion dépourvue de porteurs de charge mobiles. Cette zone s'étend sur quelques micromètres. Si des paires électron-trou sont créées dans la zone déplétée, les porteurs de charges sont soumis à l'action du champ électrique dans la jonction, migrant de part

et d'autre vers les contacts électriques de collection. Cependant, ici, la zone déplétée est très mince. Si une particule a une profondeur de pénétration plus importante que cette zone, les paires électron-trou seront créées hors de la jonction. Elle ne seront pas soumises au champ électrique et les processus de recombinaison vont empêcher la collection de ces charges. Pour étendre la zone déplétée, on polarise la jonction en inverse. Le type N est relié à un potentiel positif, et le type P à la masse. Ce potentiel va s'ajouter au potentiel de diffusion de la jonction et étendre la zone de déplétion en repoussant les trous et les électrons vers les bords extérieurs des semi-conducteurs. Ainsi, toute l'énergie cinétique d'une particule pourra être transmise au milieu dans la zone déplétée. La charge mesurée sera alors proportionnelle à l'énergie incidente de la particule.

En pratique, il existe 3 principales technologies de jonctions qui sont :

- Les détecteurs passivés et implantés : on utilise un support de silicium dopé N par du phosphore. La passivation se fait par une oxydation de façon à former une couche de SiO_2 sur toute la surface du substrat pour protéger les surfaces. On utilise ensuite un masque pour irradier au rayonnement UV par photolithogravure afin de supprimer le SiO_2 des fenêtres qui vont servir de surface de détection. Puis on plante du bore par implantation ionique sur la face avant afin de former le type P^+ . le même procédé est utilisé pour la face arrière où l'on plante du phosphore ou de l'arsenic pour former une zone de type N^+ . La stabilisation de l'implantation se fait par recuit de l'ensemble. La jonction entre les 2 types se fait par simple différence de concentration entre les différents dopants.
- Les barrières de surface : ceci représente tout une gamme de détecteurs fonctionnant sur le principe de la théorie de Shottky. Une jonction P^+N est formée par un contact de surface entre un métal et un semi-conducteur de type N. L'ajout du métal sur un substrat de silicium dopé N va induire une courbure des niveaux de Fermi (élévation) sur la surface de contact. Il forme des niveaux accepteurs sur une faible épaisseur, inversant le type du semi-conducteur qui devient de type P en surface. On a alors un profil de champ beaucoup plus asymétrique et abrupte, augmentant l'efficacité de collection, accentué par une polarisation inverse.
- Les détecteurs de type PIN (*float zone*) : ce sont des détecteurs au silicium compensés au lithium (1960). Le substrat de départ est un silicium dopé P (bore) sur lequel on va déposer un substrat de lithium par évaporation sous vide qui va diffuser. On obtient alors une jonction NP que l'on va polariser en inverse à une température de l'ordre de $120^\circ C$ pour faire migrer le lithium, se neutralisant avec le bore du silicium. La face avant est la zone P et la face arrière la zone N, qui contient une réserve de lithium (reste du dépôt de départ).

2.1.3 Création de charges

Lorsqu'une particule d'énergie cinétique E pénètre dans le détecteur, elle interagit avec le silicium. Elle est ralentie par des chocs successifs avec les atomes du milieu

qui vont alors la récupérer sous plusieurs formes selon la théorie de Schokley [98]. Tout d'abord, si un atome reçoit une énergie supérieure ou égale à celle du gap (E_g), il cède un électron (ou plus) par ionisation. Celui-ci est alors émis avec une énergie cinétique qui correspond à l'énergie transmise par la particule diminuée de celle du gap. Les électrons ainsi émis peuvent avoir suffisamment d'énergie pour ioniser à leur tour les atomes voisins. Si ce n'est pas le cas, l'énergie de l'électron est perdue (E_f). Dans le cas où un atome ne reçoit pas suffisamment d'énergie pour être ionisé, il est excité. Il la transmet alors au réseau sous forme d'énergie de vibration dont le quantum est appelé le phonon (E_r) (théorie de Raman). Ainsi, si l'on considère tous ces processus de manière statistique, il est nécessaire pour produire une paire électron-trou de fournir l'énergie ϵ qui s'exprime alors [99] :

$$\epsilon = E_g + rE_r + E_f \quad (2.2)$$

où E_g est approximativement égale à l'énergie d'ionisation, r est le nombre moyen de phonons produits à l'énergie E_r selon la théorie de Raman, et E_f l'énergie cinétique dissipée insuffisante pour produire une ionisation. C'est pourquoi, dans le cas du silicium qui a un gap de 1.1 eV, il est nécessaire de fournir 3.6 eV en moyenne afin d'obtenir une paire électron-trou.

Il existe de plus l'effet inverse à la création de paires électron-trou. Ce phénomène est appelé la recombinaison. Ceci se produit lorsqu'un électron de la bande de conduction est capté par un trou de la bande de valence en émettant un photon. Le processus de recombinaison est du à la présence de défauts et d'impuretés dans le réseau cristallin. En effet, la présence de ces éléments induit des niveaux d'énergie dans la bande interdite (théorie de Shockley, Read et Hall [98]) provoquant le piégeage des porteurs de charge (figure 2.3). Si les temps de recombinaison et de gé-



Fig. 2.3: Recombinaison et génération induites par les défauts. E_c , E_d et E_v sont respectivement les niveaux d'énergie de conduction, induit par le défaut et de valence.

nération sont inférieurs au temps de collection des charges, la réponse du détecteur en est dégradée. Dans le cas d'un simple semi-conducteur utilisé sans polarisation, des porteurs de charge sont présents dans tout le réseau et le taux de recombinaison est trop important pour observer des signaux.

2.1.4 Collection des charges

Le signal mesuré par les contacts électriques se forme dès qu'il y a déplacement d'une charge dans la jonction. Ainsi, si une charge q se déplace d'une distance Δx entre deux électrodes espacées d'une distance fixe D , la différence de charge perçue par les électrodes est donnée par la relation (Ramo, 1939 [100], Cavalleri, 1963 [101]) :

$$\Delta q = q \frac{\Delta x}{D} \quad (2.3)$$

Le courant mesuré sera alors donné par :

$$i = q \frac{\Delta x}{\Delta t D} = q \frac{v}{D} \quad (2.4)$$

En utilisant la mobilité des porteurs de charges μ et le champ électrostatique E , on a $v = \mu E$ et l'intensité mesurée est donnée par :

$$i = q\mu \frac{E}{D} \quad (2.5)$$

Cependant, ces expressions sont valables pour le cas idéal où l'on mesure le courant directement après le détecteur. Cela ne tient pas compte de la réponse du pré-ampli et de l'effet plasma à l'intérieur du détecteur. Ce dernier est toujours au centre des débats actuellement. Une des premières modélisations de ce phénomène a été faite par Seibt et al. [97]. Dans ce modèle, on tient compte de la densité de charges d'espace créée le long du parcours de la particule selon une géométrie cylindrique. On a alors une diffusion radiale des charges, ce qui modifie la densité de charges au centre de la colonne au cours du temps, donnée par la relation :

$$n_c(t) = \frac{n_1}{4\pi D_a t} \quad (2.6)$$

où n_1 est le nombre initial de charges par unité de longueur et D_a le coefficient de diffusion ambipolaire. Ainsi, en considérant une tranche du cylindre d'épaisseur dx et de surface A , la quantité de charge associée est donnée par :

$$dQ = \frac{qAn_1}{4\pi D_a t} dx \quad (2.7)$$

Le courant par unité de surface $j(t)$ extrait par le haut de la colonne est obtenu par la relation :

$$\frac{dQ}{dt} = j(t)A \quad (2.8)$$

On obtient donc en remplaçant dQ dans (2.7) par son expression (2.8) :

$$j(t)dt = \frac{qn_1}{4\pi D_a t} dx \quad (2.9)$$

En définissant le temps plasma T_{pl} comme le temps nécessaire pour que toutes les charges soient exposées au champ électrique et en utilisant les équations (2.8) et (2.9) on obtient :

$$Q_0 = \int qn_1 dx = 4\pi D_a \int_0^{T_{pl}} t j(t) dt \quad (2.10)$$

où Q_0 est la charge totale créée par la particule incidente. En prenant en considération la profondeur de pénétration du champ dans le plasma et des effets transverses, et en utilisant l'équations (2.6), Seibt obtient pour $j(t)$ l'expression suivante :

$$j(t) = \frac{8\pi^2 D_a \mu (\epsilon \epsilon_0)^2 F^3}{q n_1 A} t \quad (2.11)$$

où F est le champ électrostatique, ϵ_0 est la permittivité du vide et ϵ celle du matériau. On injecte $j(t)$ dans l'équation (2.10), et le temps plasma s'écrit alors :

$$T_{pl} = \frac{1}{F} \left(\frac{3Q_0 q n_1 A}{32\pi^3 \mu (\epsilon \epsilon_0)^2 D_a^2} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (2.12)$$

En introduisant la perte d'énergie de la particule $dE/dx \cong q n_1$ l'expression (2.12) devient :

$$T_{pl} \cong \frac{1}{F} \left(\frac{Q_0 dE/dx}{\mu (\epsilon \epsilon_0)^2 D_a^2} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (2.13)$$

Il est important de noter dans l'expression (2.13) que le temps plasma est directement relié au champ régnant dans la jonction. C'est pour cette raison que nous avons utilisé des tensions de polarisation des détecteurs faibles en regard de leur tension de fonctionnement nominale, ce qui augmente le temps de collection des charges. Ce qu'il faut retenir pour ce qui va concerner l'impact des agrégats, c'est que le temps plasma, dans ce modèle, est dépendant de la densité de charge déposée.

Il va dépendre aussi de la qualité du silicium utilisé et de sa capacité à collecter les charges créées. Ainsi, il est nécessaire d'utiliser un silicium présentant une bonne homogénéité de sa résistivité et de son réseau cristallin. Nous avons testé [95] trois types de silicium différents avec une technologie de type *barrière de surface* :

- Silicium *classique* : C'est un silicium de type N dont le dopage est fait avec du phosphore ou de l'arsenic dans un four. Du fait de son procédé de fabrication, son homogénéité de dopant et de résistivité n'est pas très précise.
- Silicium NTD (*Neutron Thermal Diffusion*) : Il est obtenu en réacteur nucléaire en irradiant un silicium dopé au phosphore (type N) par des neutrons. Le silicium a naturellement une composition isotopique de 97% de ^{28}Si et de 3% de ^{29}Si . Ce dernier va capter un neutron pour former du ^{30}Si qui va se désintégrer vers le ^{31}P en émettant un β^- . On obtient ainsi un Silicium dopé N dont les fluctuations de résistivité et de concentration de dopants n'excèdent par 5%.
- Silicium épitaxie : Partant d'un silicium dopé N^+ (fortement dopé), on fait croître sur sa surface des cristaux de silicium sur une épaisseur de l'ordre de 50 μm qui vont former une couche dopée N. Celle-ci présente une résistivité très homogène et va recevoir le dépôt d'or pour former la jonction. La présence d'une couche N^+ de faible résistivité (1Ω) accolée à la couche épitaxiée de forte résistivité ($10k\Omega$) permet d'obtenir un gradient de résistivité régulier.

Suites aux études antérieures des détecteurs disponibles pour nos expériences sur les agrégats [95], nous avons déterminé qu'une barrière de surface fabriquée à partir de silicium épitaxié (fabrication ITME) présentait les meilleures performances pour nos applications.

2.2 Détection des agrégats C_n ($n=1,...,10$) avec les détecteurs silicium

Lorsque un agrégat pénètre dans le détecteur, il laisse un nuage de charges le long de sa trajectoire. Pour un agrégat C_n , il y a fragmentation totale (nC) en entrée du détecteur. La dispersion angulaire entre les atomes est de l'ordre de la dizaine de nanomètre pour une profondeur de pénétration de l'ordre de 2.5 micromètres (voir [102] et calcul *SRIM* [103]) pour 2 Mev/c. Le nuage de charges créé autour de la trajectoire de chaque atome est considéré en première approximation comme un cylindre ayant un rayon de l'ordre du micromètre [97]. Ainsi, étant donnée la dispersion des trajectoires, on a un recouvrement des nuages. Pour des agrégats incidents fragmentés, la distance séparant les fragments en entrée du détecteur est de l'ordre du millimètre. La superposition des nuages de charges n'aura donc pas lieu.

2.2.1 Signaux de courant mesurés issus d'agrégats C_n

Nous avons trié les signaux correspondant à des agrégats non-fragmentés afin d'en faire la moyenne. Nous avons représenté les signaux moyens obtenus pour les agrégats de même vitesse (2 Mev/C) C , C_2 , C_4 et C_6 sur la figure 2.4. L'intégrale des signaux nous donne l'énergie (voir eq. (2.1)). Comme les projectiles ont tous la même vitesse, cette énergie doit être proportionnelle à la masse. Sur la figure 2.5, on remarque que l'énergie n'est pas tout à fait proportionnelle pour les masses supérieures à 6. Ceci est dû à un défaut de collection de charge. En effet, la densité du nuage de charges créées est telle que le temps de collection devient plus long, ce que l'on peut voir sur les signaux de la figure 2.4. Les charges ont le temps de se recombiner à cause des défauts du réseau cristallin (voir paragraphe 2.1.3). le déficit de collection de charge peut atteindre ici près de 7% pour le C_{10} ce qui est en accord avec de précédentes mesures [104]. Pour mettre en évidence la forme des signaux, on normalise les signaux par leur intégrale respective. Sur la figure 2.6, on voit un déplacement temporel (retardement) du maximum du signal se traduisant par une forme très différente lorsque la masse augmente.

On définit le temps de montée du signal comme différence de temps entre les moments où le signal atteint 10% et 90% de son amplitude maximale sur le front montant. Notons que le pré-ampli contribuant faiblement au temps de montée (inférieur à 1.5 ns). En le mesurant pour les agrégats C_n , nous obtenons la figure 2.7. Il apparaît clairement une dépendance du temps de montée en fonction de n qui suit approximativement une loi en $n^{1/4}$.

Afin de comprendre l'origine de ce phénomène, on se base sur un modèle simple d'atomes indépendants. On considère l'agrégat de taille n comme un ensemble de n atomes de carbone indépendants ayant le même parcours dans le détecteur. Cette hypothèse semble être une approximation correcte en regard des mesures en perte d'énergie effectuées [105] ainsi que la dispersion moyenne des atomes dans le détecteur qui est de l'ordre de quelques nanomètres pour une profondeur de pénétration

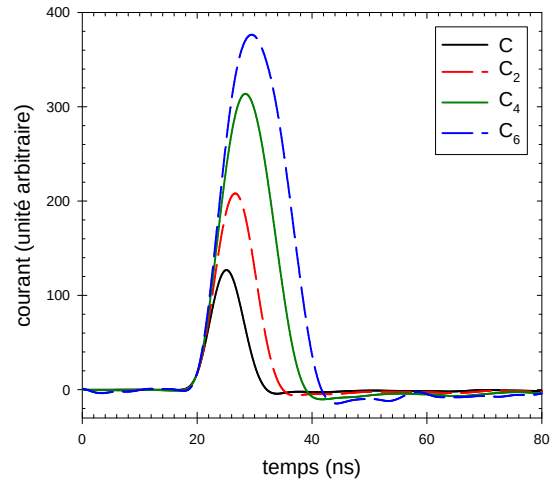


Fig. 2.4: signaux moyens mesurés pour les agrégats $C_{n=(1;2;4;6)}$

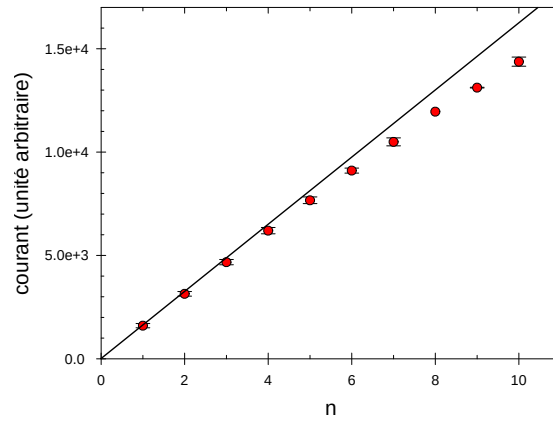


Fig. 2.5: intégrale des signaux de courant en fonction de n pour les C_n

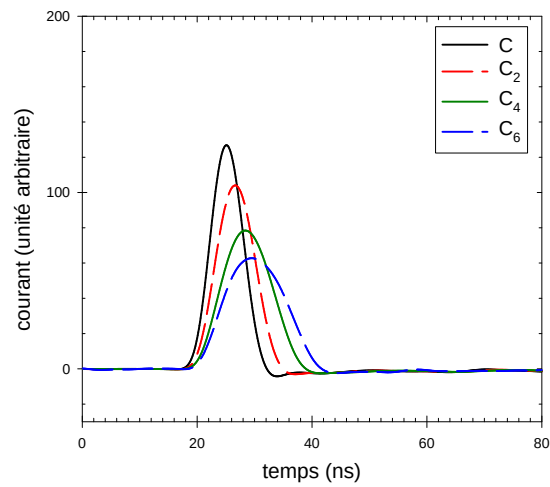


Fig. 2.6: signaux des $C_{n=(1;2;4;6)}$ normalisés à l'intégrale

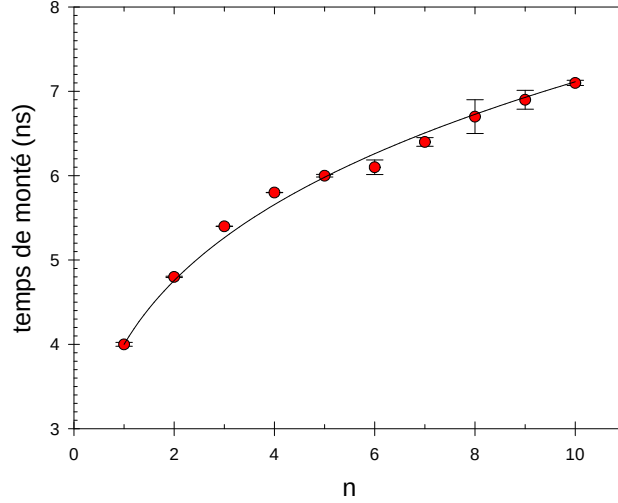


Fig. 2.7: temps de montée des signaux mesurés pour le cas d'agrégats C_n en fonction n ; courbe solide : $T_m = 4.n^{1/4}$

de $2.5 \mu m$ [102]. Le nuage de charges créé autour de chaque atome étant considéré comme un cylindre ayant un rayon de l'ordre du micromètre, on peut négliger la dispersion des fragments devant les dimensions du nuage. Comme le pouvoir d'arrêt du C_n^+ est pris égale à n fois le pouvoir d'arrêt du carbone ($(\frac{dE}{dx})_{C_n} = n(\frac{dE}{dx})_C$ utilisé dans [106] et mesurée dans [105] et [107]), la profondeur de pénétration de l'agrégat est indépendante de sa taille n . Le temps de transit (temps pour qu'une charge créée soit collectée) est donc indépendant de n . La densité d'énergie volumique déposée dans le détecteur augmente alors avec n car de plus en plus d'énergie est déposée dans le même volume.

Mais le temps plasma est fortement dépendant de la densité volumique de charges créées dans le détecteur (eq. 2.12). Celle-ci étant proportionnelle à la densité volumique d'énergie déposée va augmenter avec n . En utilisant l'équation (2.13), on trouve que le temps plasma doit augmenter avec n , comme nous l'avons observé expérimentalement. En appliquant ces considérations ainsi que l'équation (2.1) à l'équation (2.13), on obtient la relation suivante :

$$T_{pl} \cong \left(n^2 \frac{dE}{dx} \Big|_C \right)^{1/3} \cong n^{2/3} \quad (2.14)$$

Il en résulte que le temps plasma devrait suivre une loi en $n^{2/3}$, ce qui est beaucoup plus important que la loi en $n^{1/4}$ obtenue expérimentalement. Le modèle utilisé est donc trop simple pour interpréter quantitativement nos résultats. La différence provient surtout de la géométrie utilisée. En effet, le modèle proposé par Seibt suppose que le parcours de la particule dans le détecteur est bien plus grand que le diamètre du nuage de charges. Or, dans notre cas, cette approximation est trop forte (parcours de $2.5 \mu m$ pour C à $2 Mev$ dans Si, SRIM [103]). Il serait donc préférable de modéliser le phénomène en supposant une géométrie sphérique ou conique pour le nuage de charges (comme cela a été fait dans [108]), et un volume augmentant avec n , ce qui diminuerait la densité de charge créée. Ceci se rapprocherait beaucoup

plus de notre cas. Des modèles sur ce sujet ont déjà été développés ([108], [109] ou [110]) ou sont en cours de développement (*thèse H. Hamrita en cours à l'IPN*) pour prédire la forme des signaux selon la particule incidente.

2.2.2 Signaux de courant mesurés issus d'agrégats totalement fragmentés nC

De la même manière que précédemment, nous avons extrait les signaux issus d'impacts d'agrégats totalement fragmentés représentés sur la figure 2.8, et normalisés par leur nombre de constituants (fig. 2.9). Contrairement au cas d'agrégats

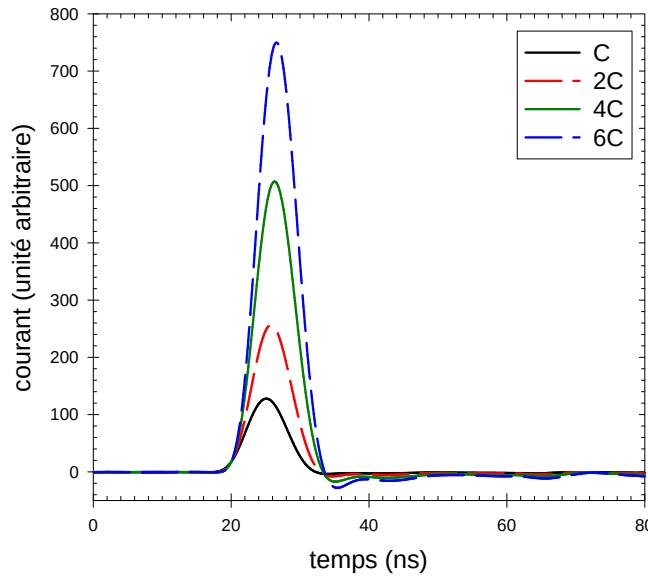


Fig. 2.8: signaux de courant moyens pour les agrégats nC ($n=\{1; 2; 4; 6\}$)

intacts C_n^+ , les signaux normalisés ont exactement la même forme. Ceci montre que lorsque des ions pénètrent dans le détecteur en même temps mais à des positions différentes, le signal de courant résultant est tout simplement la somme des signaux individuels. On entend par *même temps*, un temps relativement court (de l'ordre de la dizaine de ps) par rapport au temps de collection des charges (temps de montée de quelques ns). En effet, le temps de vol entre la chambre de collision et le détecteur distant d'un mètre est typiquement de l'ordre de la centaine de ns. Si on considère une différence d'énergie de l'ordre de 10 eV entre les fragments (due à la fragmentation), cela correspond à une différence de temps d'arrivée inférieure à 300 ps, et à une dispersion angulaire de l'ordre du mrad, soit une séparation sur le détecteur de l'ordre du millimètre. La distance entre les fragments est supérieure au rayon du nuage de charges créé par les fragments qui est de l'ordre du μm pour chacun et il n'y a donc pas recouvrement des nuages.

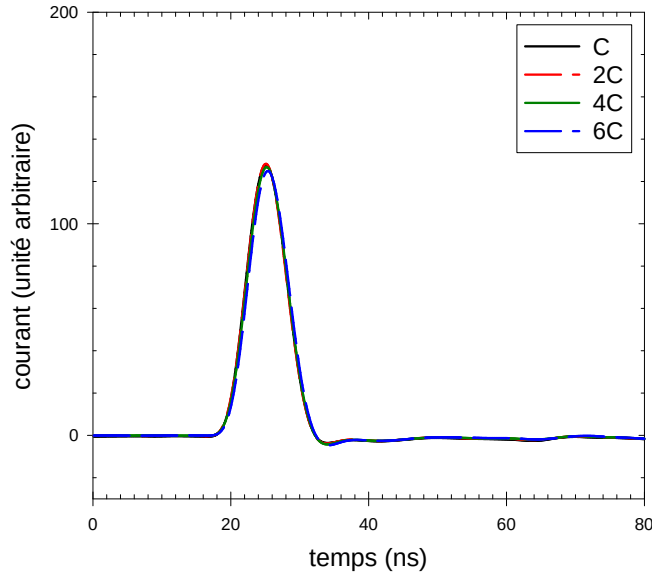


Fig. 2.9: signaux de courant moyens pour les agrégats nC ($n=\{1; 2; 4; 6\}$) normalisés par l'intégrale

2.2.3 Empilements d'agrégats : algèbre des signaux.

Dans le cas où un agrégat fragmente, le signal obtenu résulte de l'empilement des fragments dans le détecteur. Pour illustrer ce cas, nous allons considérer le cas d'un agrégat C_4 qui arrive fragmenté sous forme de $C_3 + C$. En utilisant les mêmes considérations que dans le cas d'agrégats totalement fragmentés, les fragments arrivent en "même temps" mais à des positions différentes. Nous avons vu que le signal issu d'un agrégat non-fragmenté possède une forme propre. Dans le cas d'un agrégat totalement fragmenté, le signal résultant est la somme des signaux individuels du carbone. En appliquant ce principe au cas présent, on en déduit que le signal résultant de l'empilement des agrégats C_3 et C est la somme des signaux individuels. En sommant les signaux obtenus pour le C_3 et le C , on obtient la figure 2.10. On constate que le signal issu de l'empilement des agrégats C_3 et C (trait continu fin) correspond parfaitement au signal simulé (en pointillé) obtenu en faisant la somme des signaux individuels issus du C_3 et du C . On compare de la même façon sur la figure 2.11 les signaux des empilements $C_2 + C_2$ et $C_2 + C + C$ qui sont les 2 autres voies possibles de fragmentation du C_4 . On constate que l'accord est parfait entre les signaux issus des empilements et ceux formés à partir de la somme des signaux des agrégats non-fragmentés. Ceci nous amène à l'analyse suivante : lorsqu'un empilement d'agrégats pénètre dans le détecteur, les fragments ne sont pas corrélés dans l'espace. Il n'y a donc pas recouvrement des nuages de charges. La différence de temps d'arrivée étant négligeable, la collection des charges se fait simultanément. On obtient ainsi la charge totale en sommant les charges créées dans le détecteur par chaque fragment. Le signal de courant qui s'établit dès la mise en mouvement

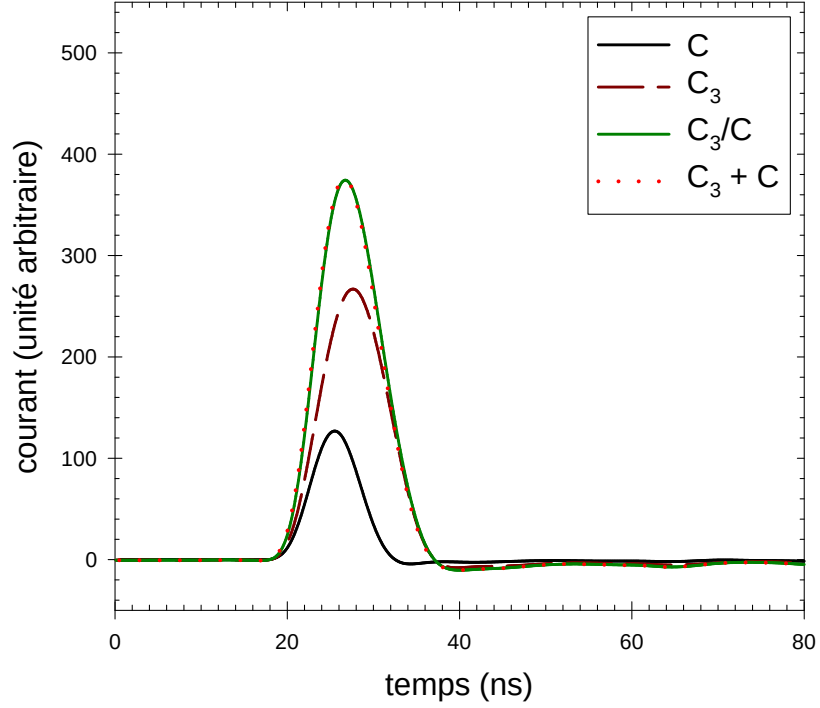


Fig. 2.10: comparaison du signal issu d'un empilement de $C_3 + C$ et de la somme des signaux issus d'un agrégat C_3 et C

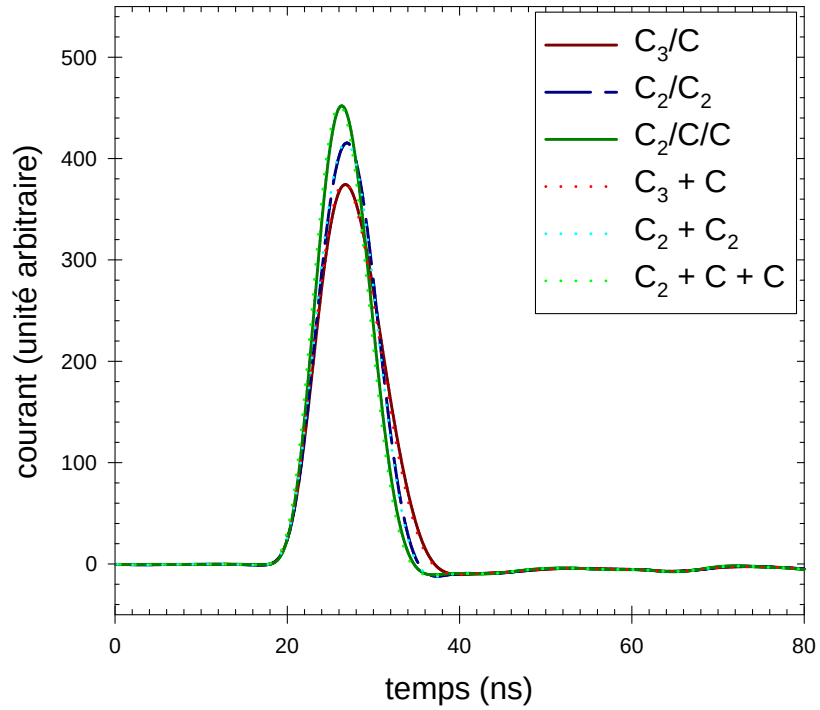


Fig. 2.11: comparaison des signaux issus d'empilement C_3/C , C_2/C_2 et $C_2/C/C$ avec les signaux obtenus en sommant les signaux individuels.

des charges sous l'action du champ de la jonction, est alors donné par :

$$I(t) = \frac{dq}{dt} = \sum_i^n \frac{dq_i}{dt} = \sum_i^n I_i(t) \quad (2.15)$$

où n est le nombre de fragments et i le numéro du fragment.

Comme chaque agrégat entier est associé à une forme de signal qui lui est propre (voir 2.2.1), un signal issu d'un empilement de fragments se décompose sur la base des signaux issus d'agrégats entiers. Soit $S_i(t)$ le signal d'un agrégat entier possédant i atomes de carbone. Soit $S_k(t)$ le signal issu d'un empilement d'agrégats dans le détecteur dont la somme des masses des fragments est égale à n . Alors, $S_k(t)$ se décompose sur la base des signaux de la manière suivante :

$$S_k(t) = \sum_{i=1}^n a_i S_i(t) \quad (2.16)$$

avec $\sum_{i=1}^n i a_i = n$ et a_i le nombre de fragments de masse i . Comme les S_i sont uniques, la décomposition l'est aussi. Ainsi, il est possible d'associer à un signal issu d'un empilement d'agrégats, une combinaison unique de couples $(a_i, S_i(t))$.

Finalement, les signaux d'agrégats entiers S_i constituent une base dont la composition forme une algèbre linéaire. Cette propriété fondamentale de l'effet agrégat n'avait jamais été mise en évidence. C'est cette particularité que nous avons utilisée pour l'identification de l'état de fragmentation d'un ensemble de fragments neutres.

2.3 Outils d'analyse des signaux

Afin d'exploiter au mieux les spécificités des effets agrégats dans le détecteur, il est important de relever les caractéristiques principales des signaux à l'aide des outils habituels de traitement du signal. Nous allons d'abord faire une analyse fréquentielle en appliquant la transformée de Fourier à nos signaux. Ceci nous permettra d'obtenir les composantes fréquentielles caractéristiques afin de leur appliquer un filtre adapté. Puis nous verrons comment nous avons effectué des représentations en forme des signaux afin d'obtenir les résultats sur la fragmentation des agrégats pour la capture électronique.

2.3.1 Représentation fréquentielle des signaux

Généralités sur la transformée de Fourier

L'analyse fréquentielle se fait à l'aide de la transformée de Fourier. En effet, cette opération permet de représenter un signal temporel dans l'espace des fréquences et réciproquement. L'expression de la transformée de Fourier appliquée à une fonction continue $f(t)$ est donnée par la relation :

$$\mathcal{F}(f(t)) = \hat{f}(\nu) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t) e^{-2i\pi\nu t} dt \quad (2.17)$$

où ν est la fréquence.

Réciproquement, à partir d'un signal fréquentiel, on obtient sa représentation temporelle en appliquant la transformée de Fourier inverse :

$$\mathcal{F}^{-1}(\hat{f}(\nu)) = f(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \hat{f}(\nu) e^{+2i\pi\nu t} d\nu \quad (2.18)$$

Il est important de rappeler les propriétés de cette transformation qui vont nous intéresser (valable pour la transformée de Fourier inverse). Tout d'abord, la transformée de Fourier est une application linéaire. Si $S(t) = aS_1(t) + bS_2(t)$ alors on écrit facilement :

$$\mathcal{F}(S(t)) = \int_{-\infty}^{+\infty} (aS_1(t) + bS_2(t)) e^{-2i\pi\nu t} dt = a\hat{S}_1 + b\hat{S}_2 \quad (2.19)$$

On appelle alors $|\mathcal{F}(S(t))|^2$ la densité spectrale du signal.

On pourra être amené à calculer la transformée de Fourier du produit de convolution de 2 fonctions. Soient f et g deux fonctions continues. Alors on a :

$$\mathcal{F}(f \otimes g) = \int_{-\infty}^{+\infty} \left[\int_{-\infty}^{+\infty} f(x)g(t-x)dx \right] e^{-2i\pi\nu t} dt \quad (2.20)$$

$$= \int_{-\infty}^{+\infty} f(x) \int_{-\infty}^{+\infty} g(t-x) e^{-2i\pi\nu t} dt dx \quad (2.21)$$

en posant $u=t-x$ on obtient :

$$\mathcal{F}(f \otimes g) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(x) \int_{-\infty}^{+\infty} g(u) e^{-2i\pi\nu(u+x)} du dx \quad (2.22)$$

$$= \int_{-\infty}^{+\infty} f(x) e^{-2i\pi\nu x} dx \int_{-\infty}^{+\infty} g(u) e^{-2i\pi\nu u} du \quad (2.23)$$

$$= \hat{f}(\nu) \hat{g}(\nu) \quad (2.24)$$

En appliquant la transformée de Fourier inverse, on démontre la réciproque :

$$\mathcal{F}^{-1}(\mathcal{F}(f \otimes g)) = f \otimes g \quad (2.25)$$

$$= \mathcal{F}^{-1}(\hat{f}) \otimes \mathcal{F}^{-1}(\hat{g}) \quad (2.26)$$

$$= \mathcal{F}^{-1}(\hat{f}\hat{g}) \quad (2.27)$$

ainsi, comme la transformée de Fourier possède les mêmes propriétés que sa réciproque, en utilisant les équations (2.24) et (2.27) on déduit la propriété suivante :

$$\mathcal{F}(f \otimes g) = \mathcal{F}(f)\mathcal{F}(g) \quad (2.28)$$

$$\mathcal{F}(fg) = \mathcal{F}(f) \otimes \mathcal{F}(g) \quad (2.29)$$

Cette dernière propriété est fondamentale pour l'étude du filtrage. En effet, appliquer un filtre à un signal revient à multiplier le signal fréquentiel par la fonction de filtrage. Ceci est équivalent à faire le produit de convolution du signal temporel avec la transformée de Fourier inverse de la fonction de filtrage.

Dans ce travail, nous utilisons des signaux numériques. Il nous faut donc utiliser une transformée de Fourier discrète. Soit S_j un signal numérique échantillonné sur n points. Sa transformée de Fourier Y_k est alors donnée par la relation :

$$Y_k = \frac{1}{n} \sum_{j=0}^{n-1} S_j e^{-2i\pi j \frac{k}{n}} \quad (2.30)$$

Si S_j est un signal réel, alors Y_k sera complexe. Ainsi, pour obtenir le spectre fréquentiel, on utilisera le module de Y_k , qui est une représentation classique de la transformée de Fourier. On montrerait facilement que le spectre obtenu est alors symétrique par rapport à $f_e/2$, où f_e est la fréquence d'échantillonnage. Ainsi, seuls les $n/2$ premiers points du spectre sont nécessaires et le pas en fréquence est de f_e/n , ce qui correspond à 1 MHz dans notre cas (signaux de 2000 points échantillonnés à 2GHz).

Caractérisation fréquentielle des signaux

Nous avons appliqué la transformée à nos signaux dans différents cas :

- lorsqu'il n'y avait pas de signal (signal de bruit).
- pour les signaux nC.
- pour les signaux C_n .

Pour chacun des cas, nous avons fait la moyenne des densités spectrales des signaux afin de comparer les caractéristiques dominantes.

◦ *Le bruit*

Sur la figure 2.12 est représentée la densité spectrale moyenne d'un signal de bruit.

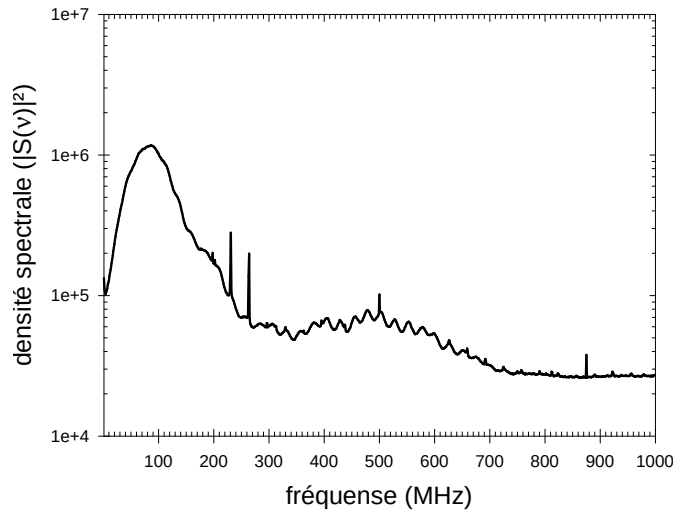


Fig. 2.12: transformée de Fourier moyenne des signaux de bruit pour les fréquences comprises entre 1MHz et 1GHz ($f_e/2$). Les fréquences inférieures à 1 MHz ne sont pas accessibles.

On observe sur ce spectre trois composantes principales qui proviennent de différentes sources. Tout d'abord, une partie provient du bruit thermique du détecteur et des composants électroniques. Dans ce cas, il peut être traité comme une impulsion et on voit alors la réponse impulsionnelle de la chaîne (ici autour de 100 MHz). Ce bruit est aléatoire et généré sur de larges bandes de fréquences. On observe ensuite quelques pics (à 230 , 260 , 500 et 880 MHz) qui correspondent au bruit ambiant du système. Il peut être généré par les composants électroniques à l'intérieur du numériseur ou avoir d'autres origines que nous n'avons pu déterminer. Enfin, on observe deux fréquences de coupure qui interviennent à 500 et 700 MHz environ. Elles correspondent aux bandes passantes du numériseur (500 MHz) et du pré-ampli (700 MHz). Nous verrons par la suite ci-après que le bruit apparaissant au dessus de 200 MHz est présent sur tous les signaux.

◦ Signaux fréquentiels des nC

Nous avons représenté sur la figure 2.13 les spectres en fréquence des signaux des agrégats nC . Sur cette figure, le spectre fréquentiel se décompose en 2 parties. Au-

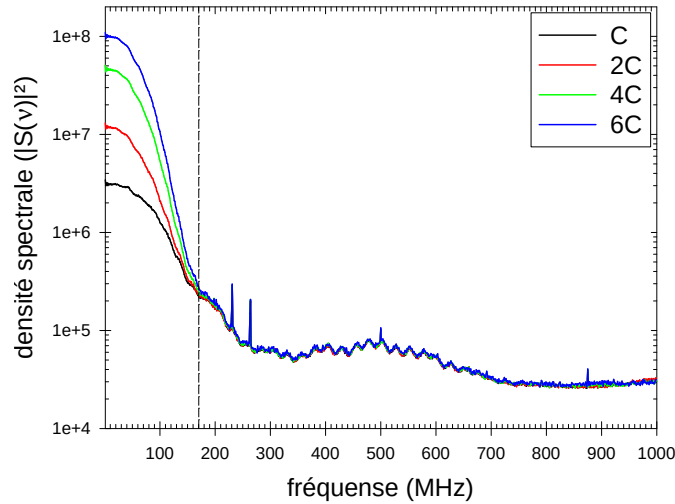


Fig. 2.13: densités spectrales moyennes des signaux de C , $2C$, $4C$ et $6C$. Au-dessus de 170 MHz environ (trait vertical pointillé), on a le même spectre de fréquence caractéristique du bruit (fig. 2.12).

dessus de 170 MHz , on observe le spectre de bruit commun à tous les signaux. En-dessous de cette fréquence, on a la densité spectrale caractéristique de nos signaux. Nous avons vu que les signaux temporels issus d'agrégats nC avaient la même forme (cf. 2.2.2, p. 89). Cela se traduit par un temps de monté indépendant de la taille n . Ainsi, dans le cas idéal, le temps de monté t_m est relié à la bande passante B du signal ($B = [0; \nu_c]$) par la relation $t_m = \frac{1}{2B}$. Il est donc tout à fait normal d'avoir les mêmes caractéristiques fréquentielles, c'est-à-dire de voir la bande passante des signaux s'arrêter à la fréquence de coupure de 170 MHz environ (soit un temps de monté de l'ordre de 3 ns). On observe bien sur la figure 2.13 la fréquence de coupure commune à tous les signaux que nous avons matérialisée par un trait vertical pointillé.

◦ *Signaux fréquentiels des C_n*

Les spectres en fréquence des signaux de C_n sont représentés sur la figure 2.14. Afin de mieux analyser la partie propre aux signaux, on ne représente le spectre que pour les fréquences inférieures à 500 MHz puisque les composantes à plus hautes fréquences sont caractéristiques du bruit mis en évidence sur la figure 2.12. Nous

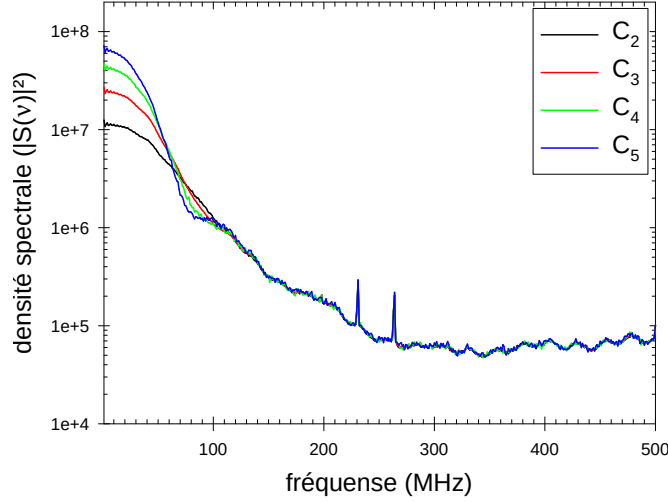


Fig. 2.14: densités spectrales moyennes des signaux de C_2 , C_3 , C_4 et C_5 . la bande passante caractéristique est restreinte par rapport aux nC .

observons que le spectre devient de plus en plus piqué lorsque la masse augmente. Ceci est compréhensible si l'on regarde la forme des signaux temporels (cf. 2.2.1 p. 86). On a vu que la forme des signaux de C_n était totalement dépendante de la taille n de l'agrégat. Le temps de monté s'allonge à mesure que le nombre de constituant augmente. Or, un allongement dans le domaine temporel correspond à une diminution de la bande passante dans le domaine fréquentiel. Il est donc naturel que la densité spectrale devienne plus piquée pour les basses fréquences lorsque n augmente.

On arrive à la conclusion suivante : la bande de fréquence caractéristique des signaux est fixée par les signaux des agrégats totalement fragmentés. Quel que soit l'état de fragmentation des agrégats, les temps de monté des signaux seront toujours supérieurs ou égaux aux temps de monté des nC . Ainsi, les fréquences caractéristiques seront toujours inférieures ou égales à celles des signaux issus de nC .

2.3.2 Notions de bases sur les filtres

Nous allons tout d'abord commencer par présenter quelques notions élémentaires et nécessaires sur les filtres avant de poursuivre sur l'identification des signaux.

Un filtre linéaire est une application R qui transforme linéairement un signal $x(t)$ en $y(t)$.

Ainsi, si $x_1(t) \xrightarrow{R} y_1(t)$ et $x_2(t) \xrightarrow{R} y_2(t)$, alors $Ax_1(t) + Bx_2(t) \xrightarrow{R} Ay_1(t) + By_2(t)$.

Comme nous avons défini une algèbre des signaux linéaire (cf. 2.2.3 p. 90), il est naturel d'utiliser ce type de filtre pour conserver ses propriétés après filtrage.

Un filtre est caractérisé par sa réponse impulsionnelle. Elle est définie comme étant la réponse du filtre à une impulsion de Dirac et est notée $R(t)$. La réponse $y(t)$ du filtre à un signal continu $x(t)$ est donnée par convolution :

$$y(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} R(t-u)x(u)du = x(t) \otimes R(t) \quad (2.31)$$

Le gain du filtre est donné par la transformée de Fourier de sa réponse impulsionnelle :

$$G(\nu) = \mathcal{F}(R(t)) \quad (2.32)$$

Ainsi, en utilisant les propriétés établies sur la transformée de Fourier (cf. 2.3.1 p. 92), l'opération de filtrage d'un signal temporel s'écrit dans l'espace fréquentiel :

$$\hat{y}(\nu) = G(\nu)\hat{x}(\nu) \quad (2.33)$$

Filtrer un signal temporel est donc équivalent à multiplier sa transformée de Fourier par le gain du filtre.

Il existe beaucoup de filtres caractérisés par leur réponse impulsionnelle. Le plus simple est le lissage, qui consiste à faire une moyenne glissante du signal sur N_f points. Pour un signal $y(t_k)$ échantillonné sur N points, il s'exprime de la manière suivante dans l'espace temporel :

$$Y'(t_k) = \frac{1}{N_f} \sum_{i=\lfloor -N_f/2 \rfloor}^{\lfloor N_f/2 \rfloor} Y(t_{k+i}) \quad (2.34)$$

où N_f est impair et représente le nombre de points utilisés pour la moyenne. t_k est le temps associé au canal k du signal. En introduisant la fonction rectangle définie par :

$$rect_{T_{N_f}}(t_k) = \begin{cases} 1 & \text{pour } |t_k| < \frac{T_{N_f}}{2} \\ 0 & \text{pour } |t_k| > \frac{T_{N_f}}{2} \end{cases}$$

il vient naturellement :

$$Y'(t_k) = \frac{1}{N_f} Y \otimes rect_{T_{N_f}} \quad (2.35)$$

On démontre facilement que ce filtre est linéaire.

La transformée de Fourier de la fonction rectangle est bien connue. Si l'on note $\nu_k = \frac{k}{T_N}$ la fréquence :

$$\mathcal{F}(rect_{T_{N_f}})(\nu_k) = T_{N_f} \frac{\sin(\pi \nu_k T_{N_f})}{\pi \nu_k T_{N_f}} = T_{N_f} \text{sinc}(\nu_k T_{N_f})$$

En appliquant la transformée de Fourier à l'équation (2.35) et en utilisant l'équation (2.28) il vient :

$$\mathcal{Y}'(\nu_k) = \text{sinc}(\nu_k T_{N_f}) \mathcal{F}(Y)(\nu_k) \quad (2.36)$$

Le signal filtré présente alors des pôles dès que $\nu_k = \frac{m}{T_{N_f}}$, où $m \in N^*$. Ainsi, la largeur en fréquence du premier lobe est donnée pour $\nu_k = \frac{1}{T_{N_f}}$ soit $k = \frac{T_N}{T_{N_f}} = \frac{N}{N_f}$. On voit que la précision de la fréquence de coupure est fixée par le nombre de points d'échantillonnage N utilisés. Dans notre cas, N est égale à 2000 points. On aura par exemple pour $N_f = 7$ une fréquence de coupure au canal 286 et pour $N_f = 9$ au canal 222. On améliore cette précision en augmentant le nombre de points du signal, c'est à dire en faisant une interpolation. Ceci peut se faire à l'aide du théorème de l'échantillonnage.

Le théorème de l'échantillonnage (*Shannon-Nyquist*) est fondamental en numérisation des signaux. Il permet à partir d'un signal numérique à N échantillons de reconstruire le signal analogique correspondant par interpolation (ou *spline*).

Soit $x(t)$ le signal analogique considéré et $\hat{x}(\nu)$ sa transformée de Fourier. $\hat{x}(\nu)$ est nul en dehors de l'intervalle $[-B, +B]$. Si on connaît les échantillons $x(\frac{k}{2B})$, k entier allant de 0 à N , alors il est possible de reconstituer le signal analogique $x(t)$:

$$x(t) = \sum_k x\left(\frac{k}{2B}\right) \frac{\sin\left[2\pi B\left(t - \frac{k}{2B}\right)\right]}{2\pi B\left(t - \frac{k}{2B}\right)} = x \otimes \text{sinc} \quad (2.37)$$

La conséquence importante de ce théorème concerne la fréquence d'échantillonnage f_e . Si $f_e < 2B$, alors il y a sous-échantillonnage. On a alors un recouvrement de spectre (repliement spectral ou *aliasing*) qui empêchera une interprétation cohérente des résultats car le signal sous-échantillonné apparaîtra comme ayant une fréquence inférieure à la réalité.

Prenons maintenant le cas d'un signal $S(t_k)$ de N points échantillonnés à la fréquence f_e . Soit $\hat{S}(\nu_k)$ la transformée de $S(t_k)$.

$$\text{Soit } \text{rect}_{f_e} = \begin{cases} 1 & \text{si } 0 < |\nu_k| < \frac{f_e}{2} \\ 0 & \text{sinon} \end{cases}$$

On ne change pas $\hat{S}$ en le multipliant par la fonction rectangle. On obtient alors :

$$\hat{S}'(\nu_k) = \hat{S}(\nu_k) \text{rect}_{f_e/2}(\nu_k) \quad (2.38)$$

En utilisant la relation 2.28 il vient :

$$S'(t_k) = S(t_k) \otimes \text{sinc}(t_k f_e) \quad (2.39)$$

On note :

$$\begin{aligned} dt' & \text{ le nouveau pas de codage souhaité} \\ dt & \text{ l'ancien pas de codage } (tk = kdt = k/f_e) \\ C_f & \text{ le facteur de dilatation correspondant : } C_f = \frac{dt}{dt'} \\ N' = NC_f & \text{ le nombre d'échantillons pour le nouveau signal} \\ t'_k = \frac{k}{C_f} dt = kdt' & \text{ le temps au canal } k \text{ pour le nouveau signal} \end{aligned}$$

Il s'en suit que la valeur du signal dilaté au canal k est :

$$S'(t'_k) = \sum_{j=0}^{j < N} S(t_j) \cdot \text{sinc}(f_e(t_j - t'_k)) \quad (2.40)$$

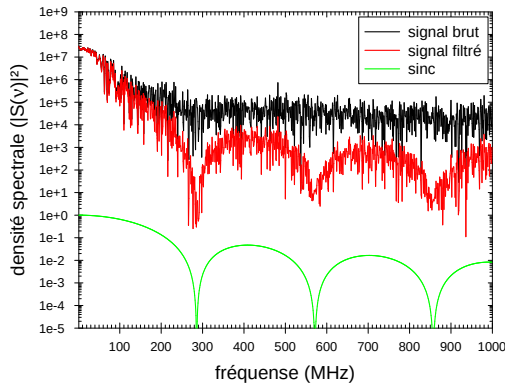
On retrouve le théorème de l'échantillonnage de *Shannon-Nyquist*. On en déduit que pour augmenter artificiellement le pas d'échantillonnage d'un facteur C_f , il est possible d'utiliser soit le produit de convolution du signal par le sinus cardinal dans l'espace temporel, soit la multiplication du signal fréquentiel par la fonction rectangle. Dans ce dernier cas, on rajoute des composantes nulles aux hautes fréquences pour atteindre le nombre de points souhaités soit :

$$\hat{S}'(\nu_k) = \hat{S}(\nu_k) \cdot \text{rect}_{f_e}(\nu_k) \quad (2.41)$$

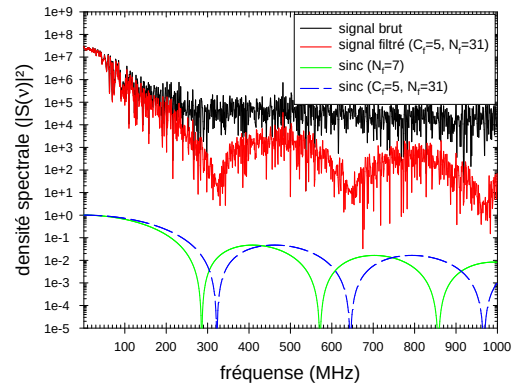
où $\hat{S}'(\nu_k)$ est défini pour N' points. Ceci est possible si la plus haute fréquence observée est inférieure à $f_e/2$. Dans le cas contraire, il nous manque l'information pour reproduire correctement les hautes fréquences et on considèrera ces composantes nulles alors qu'elles ne le seront pas.

2.3.3 Application d'un filtre linéaire aux signaux d'agrégats

Nous avons appliqué le filtre par lissage ainsi que l'interpolation (spline) aux signaux numérisés. Nous présenterons uniquement les effets sur un signal extrait des données.



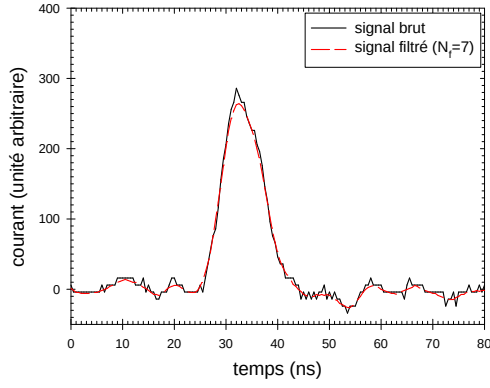
(a) spectre signal filtré : produit du signal brut par le sinus cardinal correspondant $N_f = 7$



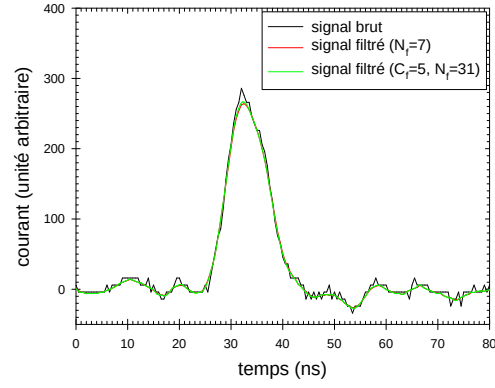
(b) Le signal filtré est le produit du signal brut spliné par le sinus cardinal correspondant à $C_f = 5$ et $N_f = 31$. Le sinus cardinal correspondant à la figure 2.15(a) est aussi représenté.

Fig. 2.15: Comparaison du signal brut et filtré pour différents filtres dans l'espace des fréquences.

Sur la représentation fréquentielle de la figure 2.15(a), on voit l'effet du lissage ($N_f = 7$) sur les signaux sans spline. La densité spectrale du bruit est diminuée d'un



(a) comparaison des signaux sans spline dans l'espace temporel correspondant à la figure 2.15(a)



(b) comparaison des signaux avec spline correspondant au cas de la figure 2.15(b)

Fig. 2.16: effets du filtre et du spline sur les signaux.

facteur 10 à 1000 selon la composante alors que celle du signal n'est pratiquement pas modifiée. Ceci se traduit sur le signal temporel de la figure 2.16(a) par une diminution importante des fluctuations du signal tout en conservant quasiment toute l'amplitude. Il est important de noter que les fréquences caractéristiques du signal sont bien inférieures à $f_e/2$. Ainsi, respectant la condition de *Shannon*, nous pouvons utiliser le théorème de l'échantillonnage pour interpoler nos signaux (*spline*).

Pour les signaux splinés de la figure 2.15(b) ($C_f = 5$) nous avons représenté la densité spectrale allant jusqu'à 1 GHz puisque les composantes de fréquences supérieures sont nulles. Le nombre de points utilisés pour le filtrage correspondant au cas sans spline est de 35 ($N_f = 7C_f$). On voit l'effet du nombre total de points. En effet, dans le cas sans spline, le nombre de points utilisés peut être de 5, 7 ou 9 ce qui correspond respectivement à des largeurs en fréquences pour le premier lobe de 400, 286 et 222 MHz. Dans le cas où le spline est utilisé (fig. 2.15(b)) le nombre de points utilisés pour balayer la même gamme en fréquence (222 à 400 MHz) est de 25, 27, 29, 31, 33, 35, ..., 45 ce qui correspond à des fréquences respectives de 400, 370, 345, 322, 303, 286, ..., 222 MHz. L'intérêt du spline est donc flagrant. Il permet d'affiner la fréquence de coupure du filtre (fig. 2.15(b), décalage du premier lob de 44 MHz). Le résultat sur le signal temporel (fig. 2.16(b)) est perceptible. Le bruit est diminué de la même proportion que dans le cas sans spline mais l'amplitude du signal est légèrement plus grande. Le rapport signal à bruit en est légèrement amélioré.

Le spline est aussi très utile pour tous les traitements qui vont être faits ensuite. Puisque l'on augmente artificiellement la fréquence d'échantillonnage, il est possible d'améliorer la précision afin d'utiliser l'algèbre des signaux pour les agrégats. En effet, pour que la composition des signaux soit la meilleure possible, il est nécessaire de caler la base des signaux au même canal. Le spline améliore cette précision puisque pour un spline de 5 on a un pas de codage de 100 ps au lieu de 500 ps sans spline.

2.4 Identification de la forme des signaux

2.4.1 Résolution de la fragmentation au 1er ordre.

Une méthode pratique pour reconnaître la forme des signaux est une représentation à deux dimensions de tous les événements. Celle-ci consiste à calculer l'intégrale du signal ainsi que son amplitude maximale pour chaque événement et d'incrémenter un spectre bidimensionnel (fig. 2.18). D'après l'équation (2.1), l'intégrale du signal nous donne l'énergie. Or, à intégrale égale, si l'on considère le signal comme un triangle, l'étalement temporel provoqué par l'effet plasma se traduira par un allongement de la base du triangle. Pour conserver l'intégrale (énergie), il est donc nécessaire de diminuer la hauteur (amplitude maximale).

Ainsi, pour comparer un événement C_n et nC , comme l'énergie doit être la même et que le signal de C_n est plus étendu dans le temps à cause du temps plasma, on peut alors en déduire que les signaux de C_n auront une amplitude minimale et que les signaux de nC auront une amplitude maximale. C'est ce que l'on observe pour les signaux représentés sur la figure 2.17. Les autres voies de fragmentation étant des

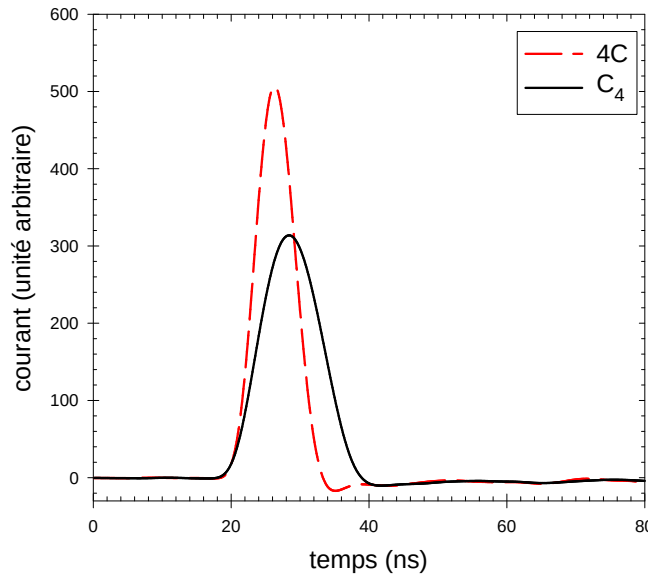


Fig. 2.17: différence de forme entre les signaux de C_4 et de $4C$ traités pour une représentation à 2 dimensions énergie-amplitude.

combinaisons des $C_{q < n}$ (voir équation 2.16), on en déduit que les amplitudes des signaux de courant résultants seront comprises entre ces deux extrêmes. La figure 2.18 présente un spectre à deux dimensions (énergie-amplitude) pour un faisceau incident d'agrégats C_{10}^+ .

Sur la figure 2.19, correspondant à la projection de la figure 2.18 sur l'axe des énergies, on identifie sans ambiguïté les différentes masses des fragments issus de l'agrégat incident. Quant à l'identification de l'état de fragmentation avec l'amplitude, il se fait sans difficulté sur la figure 2.18 pour les masses inférieures ou égales à 5.

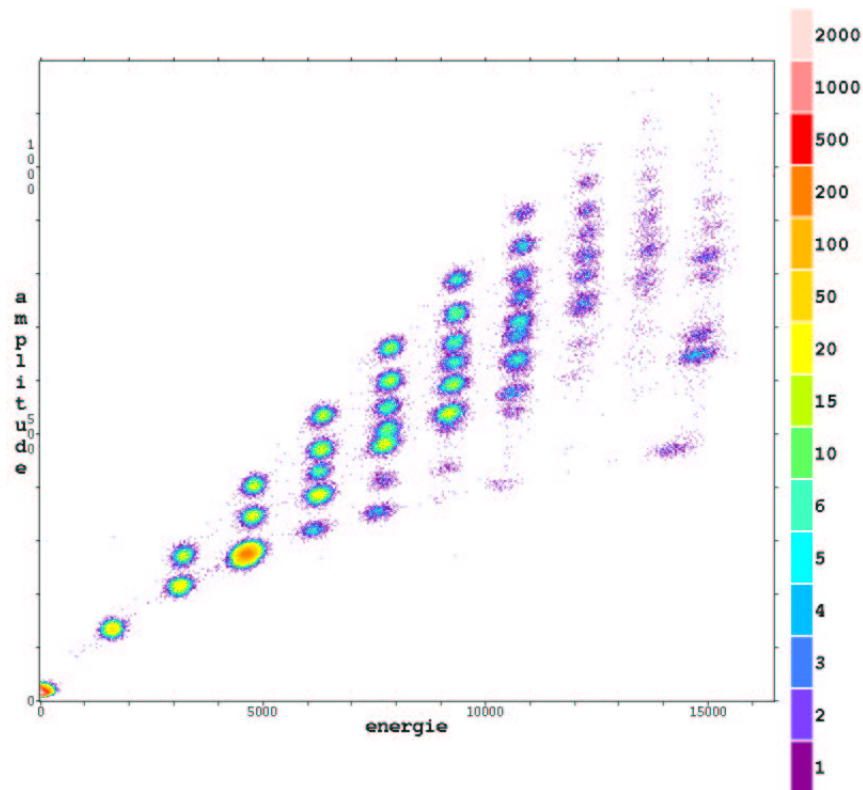


Fig. 2.18: représentation de l'amplitude maximale du signal en fonction de l'intégrale pour un faisceau incident de C_{10}^+ à 20 MeV.

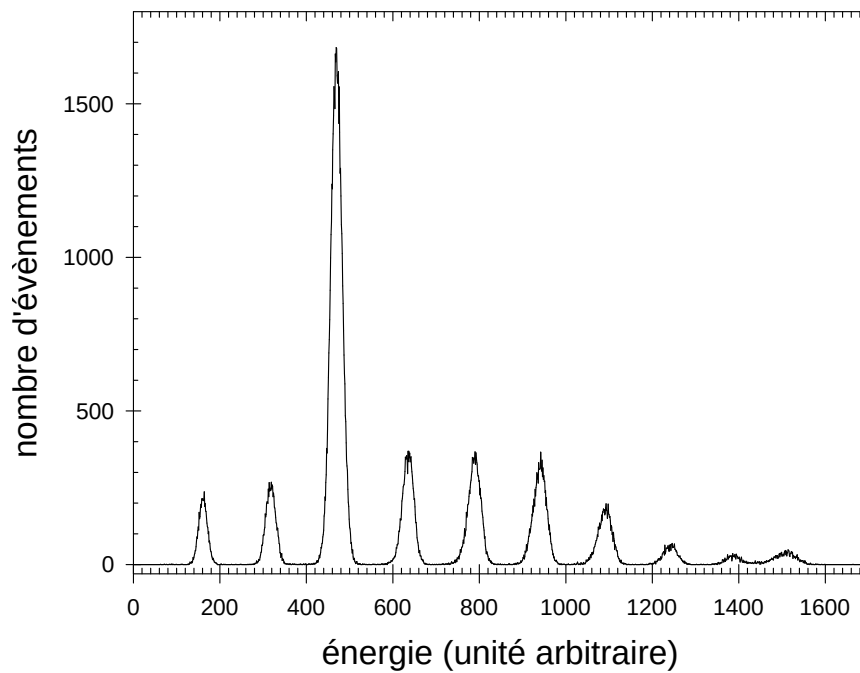


Fig. 2.19: projection de la figure 2.18 sur l'axe des énergies

Pour le C_5 , il existe 7 partitions de fragmentation [111]. On a donc 7 possibilités de signaux (C_5 , C_4+C , C_3+C_2 , C_3+2C , $2C_2+C$, C_2+3C , $5C$) qui correspondent aux sept taches que l'on observe pour la masse 5. En se basant sur l'exemple précédent du C_3 et du $3C$, les agrégats non fragmentés correspondent aux taches les plus basses de la figure 2.18 et les agrégats totalement dissociés correspondent aux plus hautes. Les taches intermédiaires sont donc les différentes combinaisons de fragmentation existantes. Pour le C_6 , cette représentation n'est pas suffisante car on attend onze partitions de fragmentation et l'on ne compte que neuf taches. Si cette méthode ne permet pas de résoudre toutes les partitions de fragmentation, elle est cependant facile à mettre en œuvre et a été utilisée pour visualiser nos signaux en ligne durant les expériences.

2.4.2 Étude des moments d'ordre 1, 2 et 3 des signaux

On remarquerait en observant les signaux que ceux-ci ont des largeurs très différentes les uns des autres (fig. ??). Une méthode classique pour rendre compte de ce fait est le calcul des moments des signaux. Dans ce paragraphe, on considère un signal numérisé quelconque $S(t_k)$.

Moment d'ordre 1 : le temps moyen

Le moment d'ordre 1, représente le temps caractéristique du signal. Il s'exprime par la relation suivante :

$$M_1 = \langle t \rangle = \frac{\sum_k t_k S(t_k)}{\sum_k S(t_k)} \quad (2.42)$$

Ainsi, pour un signal symétrique proche d'une forme triangulaire, il correspond à la position du maximum d'amplitude du signal. C'est ce que l'on vérifie en comparant la position du canal du maximum et le moment d'ordre 1 qui ont une corrélation linéaire. Cette grandeur n'apporte rien à la résolution de la fragmentation, mais est nécessaire pour le calcul des moments d'ordre supérieur.

Moment d'ordre 2 : la largeur du signal électronique

Le moment d'ordre 2 représente la largeur du signal électronique autour du temps moyen obtenue par le moment d'ordre 1. Il s'exprime à l'aide de la formule suivante :

$$M_2 = \frac{\sum_k (t_k - \langle t \rangle)^2 S(t_k)}{\sum_k S(t_k)} \quad (2.43)$$

Nous avons représenté sur la figure 2.20 les moments d'ordre 2 en fonction de la masse de l'agrégat pour les C_n ainsi que les nC . On observe une invariance avec la masse pour l'état dissocié qui correspond bien à la forme des signaux observés. Pour l'état non fragmenté, on observe une dépendance linéaire avec la taille de l'agrégat. Ceci rend compte de l'étalement temporel du signal pour les agrégats entiers.

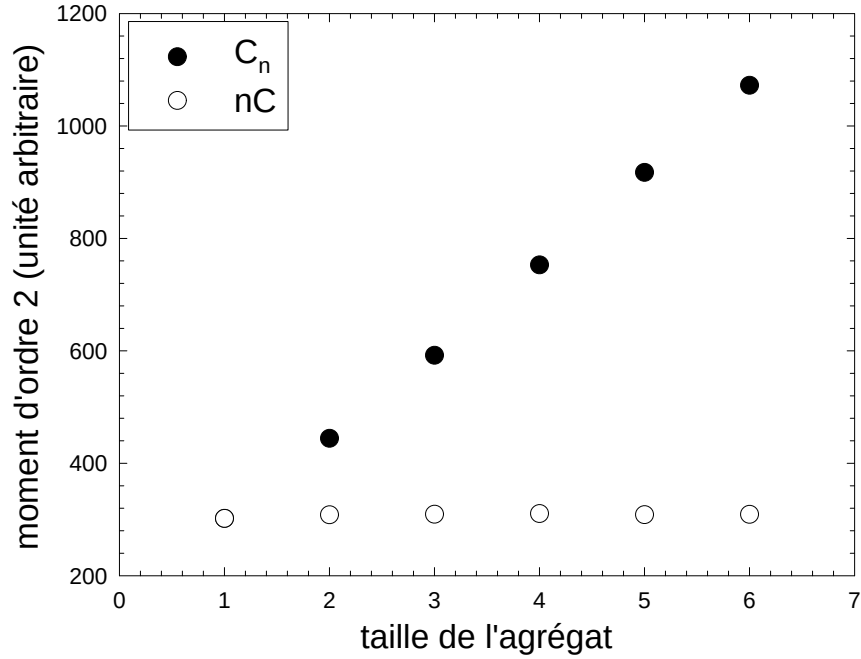


Fig. 2.20: évolution du moment d'ordre 2 des signaux moyens de C_n et nC

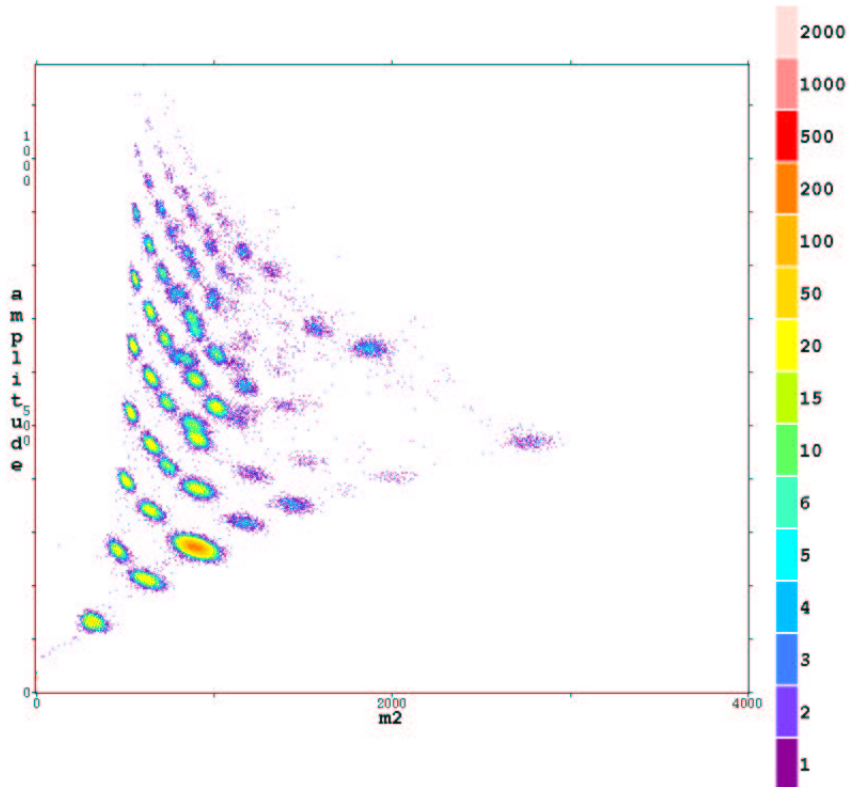


Fig. 2.21: représentation à 2 dimensions de l'amplitude du signal en fonction du moment d'ordre 2.

La figure 2.21 représente le même ensemble de donnée que la figure 2.18 dans l'espace amplitude-moment d'ordre 2. On voit que les agrégats de même énergie se positionnent sur une ligne parabolique. Les moments d'ordre 2 pour les nC sont les taches situées à gauche. On remarquera qu'ils ne sont pas alignés contrairement au cas de la figure 2.20. Ceci est dû à l'intervalle de calcul du moment d'ordre 2 qui est pris inférieur à la largeur du signal de l'évènement afin de minimiser le bruit. Pour ce qui est de la résolution de la fragmentation, on constate une faible amélioration de la résolution comparée à la représentation énergie-amplitude.

Moment d'ordre 3 : l'asymétrie du signal

Le moment d'ordre 3 représente l'asymétrie du signal c'est-à-dire le poids du signal avant ou après le temps caractéristique. Son expression est la suivante :

$$M_3 = \frac{\sum_k (t_k - \langle t \rangle)^3 S(t_k)}{\sum_k S(t_k)} \quad (2.44)$$

En représentant l'amplitude en fonction du moment d'ordre 3 pour les évènements de la masse 6 sur la figure 2.22a, on observe une amélioration importante de la résolution de la fragmentation. Pour identifier les taches, on va se servir de l'algèbre de

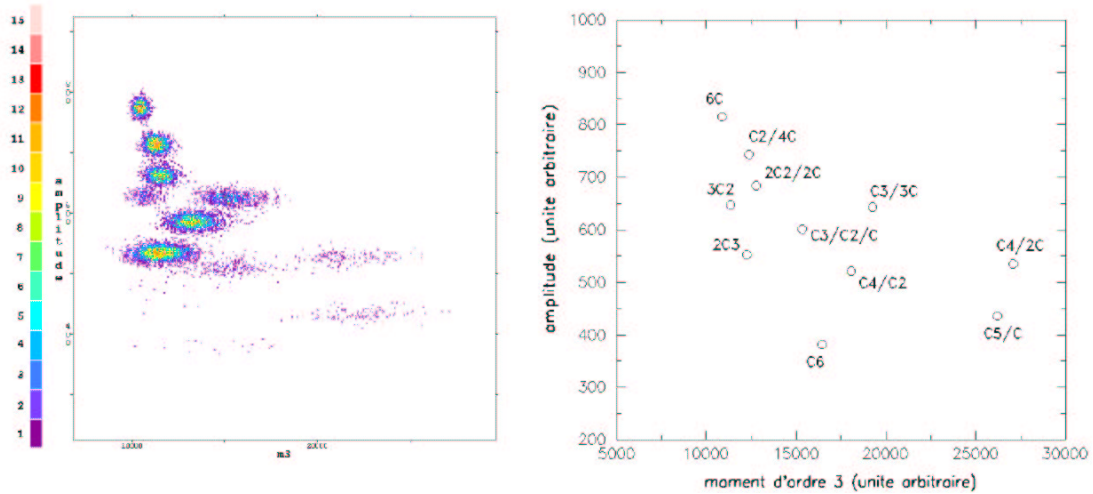


Fig. 2.22: a) (à gauche) représentation des signaux à 2 dimensions. En abscisse sont représentés les moments d'ordre 3 et en ordonnée l'amplitude maximale en unités arbitraires. b) (à droite) représentation obtenue avec les signaux des partitions composés à partir de la base des C_n .

composition des signaux pour les agrégats (équation (2.16)) et des signaux de base S_n (agrégats entiers) extraits dans la représentation énergie-amplitude (fig. 2.18). Ayant ainsi obtenu les signaux pour toutes les partitions possibles, on calcule l'amplitude maximale ainsi que le moment d'ordre 3 de chacune. La figure 2.23 présente les signaux obtenus par composition pour les onze partitions du C_6 à partir desquels ont été calculées les amplitudes et les moments représentés sur la figure 2.22-b. Les valeurs trouvées sont alors les valeurs attendues et en comparant avec la figure 2.22-a, on parvient à identifier les onze taches. On obtient, par les mêmes méthodes, les

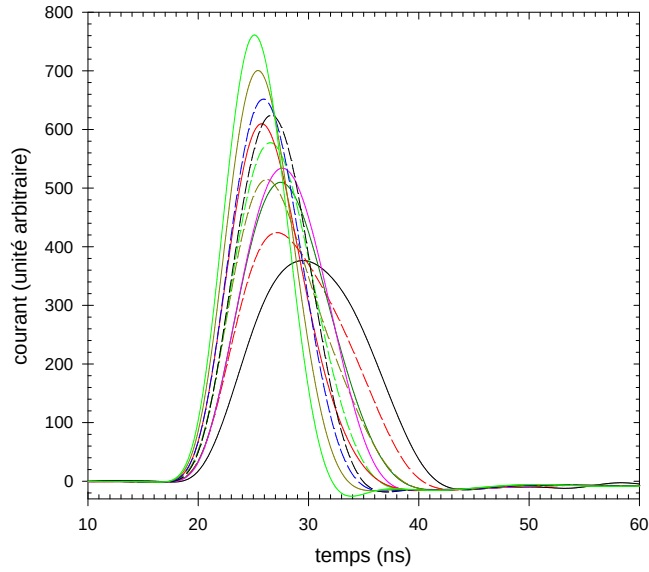


Fig. 2.23: signaux prévus pour les 11 partitions de fragmentation du C_6 .

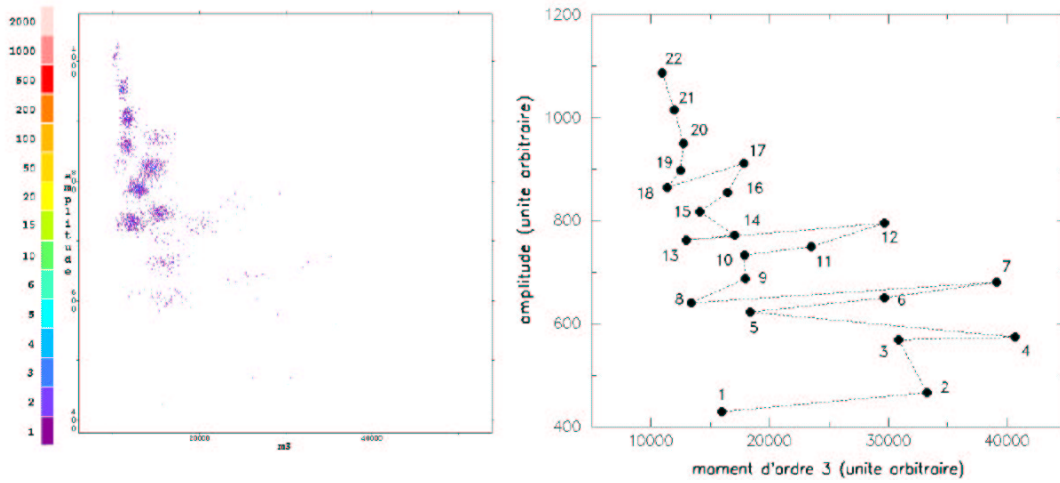


Fig. 2.24: a) (à gauche) représentation de l'amplitude en fonction du moment d'ordre 3 pour tout les signaux de la masse 8. b) (à droite) représentation prédite pour les signaux obtenus avec la base des signaux de C_n

figures 2.24-a et b, qui correspondent aux partitions du C_8 . On distingue sur la figure 2.24-a les 22 taches correspondant aux partitions du C_8 . Celle-ci sont identifiables à l'aide de la figure 2.24-b. Les numéros correspondent au rang de la partition. La correspondance entre le rang et la partition se fait avec le tableau 2.1. Pour les partitions 15 et 16 ($C_3/C_2/3C$ et $C_3/5C$), on distingue très bien les taches. Cependant, elles ne sont pas résolues à la base. Il y a un léger recouvrement (observé pour d'autres partitions) qui nous empêche d'extraire le nombre d'évènements associés à ces partitions de fragmentation.

L'espace amplitude-moment d'ordre 3 nous permet tout de même d'extraire le nombre de partitions présentes. Il apporte plus d'information relative aux signaux

Rang	Partition	Rang	Partition
1	C_8	12	$C_4/4C$
2	C_7/C	13	$2C_3/C_2$
3	C_6/C_2	14	$2C_3/2C$
4	$C_6/2C$	15	$C_3/2C_2/C$
5	C_5/C_3	16	$C_3/C_2/3C$
6	$C_5/C_2/C$	17	$C_3/5C$
7	$C_5/3C$	18	$4C_2$
8	$2C_4$	19	$3C_2/2C$
9	$C_4/C_3/C$	20	$2C_2/4C$
10	$C_4/2C_2$	21	$C_2/6C$
11	$C_4/C_2/2C$	22	$8C$

Tab. 2.1: correspondance entre le rang et les partitions.

que les espaces utilisés précédemment et permet un traitement rapide des événements.

2.4.3 Comparaison de forme : χ^2 .

Si certains paramètres pertinents permettent une bonne résolution des différentes voies de fragmentation, ils ne sont que des simplifications de l'information contenue dans tout le signal. Ainsi, le meilleur moyen de résoudre les différentes classes de signaux est de considérer leur forme dans leur intégralité. Pour se faire on utilise la méthode des moindres carrés.

Cette méthode est basée sur la comparaison d'un signal quelconque à un gabarit donné. Ainsi, supposons que l'on dispose de deux signaux idéaux (gabarits notés G_i) correspondant chacun à une voie de fragmentation et que l'on ait à déterminer à quelle voie appartient un événement donné (S). Alors, on compare le signal $S(t_k)$ aux gabarits $G_i(t_k)$ en calculant le χ^2 normalisé à la largeur de la porte d'observation $[t_{k_1}; t_{k_2}]$:

$$\chi_i^2 = \frac{1}{k_2 - k_1} \sum_{k=k_1}^{k=k_2} (S(t_k) - G_i(t_k))^2 \quad (2.45)$$

On obtient ainsi une valeur de χ_i^2 associée à chaque gabarit G_i . Le signal sera alors attribué à la voie ayant le χ^2 minimum. En pratique, on utilise un paramètre dt permettant de déplacer le signal devant le gabarit. En effet, les calages des signaux dans la fenêtre d'acquisition peuvent varier selon le déclenchement du numériseur (fig. 1.21). La figure 2.25 illustre l'évolution du χ^2 en fonction du paramètre de calage dt donné dans la relation :

$$\chi_i^2(t) = \frac{1}{k_2 - k_1} \sum_{k=k_1}^{k=k_2} (S(t_k - dt) - G_i(t_k))^2 \quad (2.46)$$

On remarque que la vallée en χ^2 présente un minimum local unique. La précision sur le temps de calage est remarquable. Ainsi, si l'on connaît la forme du signal, il serait possible d'obtenir des informations temporelles sur les temps d'arrivée entre

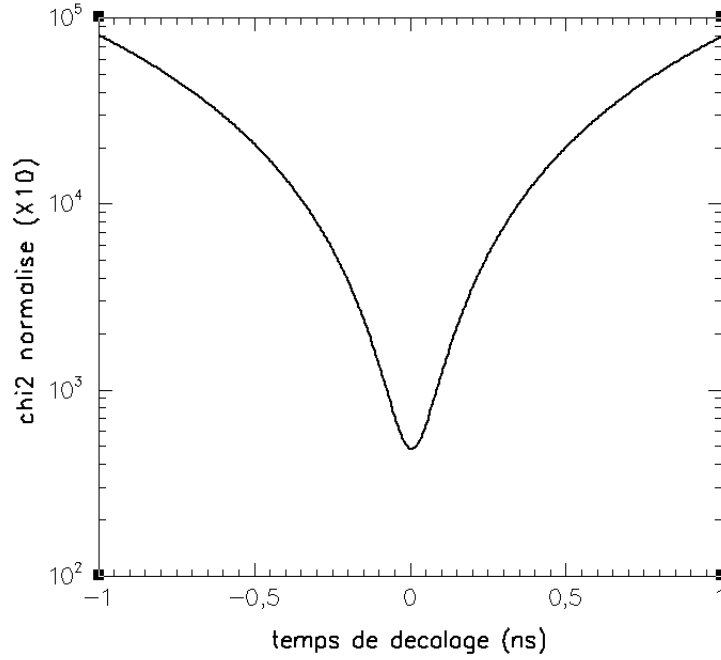


Fig. 2.25: comparaison d'un évènement avec son gabarit associé (signal spliné à 5ps).

différentes voies de détection de manière très précise.

Concrètement, pour former les gabarits des partitions de fragmentation d'une masse, on utilise en premier la représentation énergie-amplitude afin d'en extraire tous les évènements issus des C_n . On fait alors la moyenne des signaux pour chaque C_n afin d'obtenir les signaux de la base pour la composition (eq. (2.16)). Une fois la composition effectuée, on procède à la comparaison par la méthode du χ^2 pour chaque évènement de la masse considérée avec les gabarits qui y sont associés. Le vecteur des χ^2 obtenu pour chaque évènement est alors stocké dans la base de données du logiciel de dépouillement DP2 (*IPN*). Ensuite, pour attribuer les évènements aux gabarits, on utilise une représentation dans le plan des χ^2 des deux formes que l'on veut identifier. En reprenant le cas du C_8 de la figure 2.24, on peut ainsi résoudre à la base les voies 15 et 16 comme le montre la figure 2.26.

Sur les axes des abscisses sont reportées les valeurs de χ^2 obtenues par comparaison avec le gabarit de la voie 15, et sur les axes des ordonnées celles obtenues avec celui de la voie 16. Sur la figure de droite sont représentées les valeurs de χ^2 obtenues en comparant les gabarits entre eux. Ainsi, sur la figure de gauche, la tache proche de l'axe des abscisses correspond aux évènements attribués à la voie 16, et celle proche de l'axe des ordonnées aux évènements attribués à la voie 15. On notera que les valeurs moyennes des χ^2 sur les gabarits ne sont pas nulles. Ceci provient du bruit du signal. En effet, si l'on calcule le χ^2 d'un enregistrement sans signal par rapport à un fond plat, on doit s'attendre à obtenir la même dispersion en χ^2 , à condition que le gabarit du signal soit correct. Ceci est illustré sur la figure 2.27. On remarquera sur cette figure, que l'identité de la distribution des χ^2 pour le signal

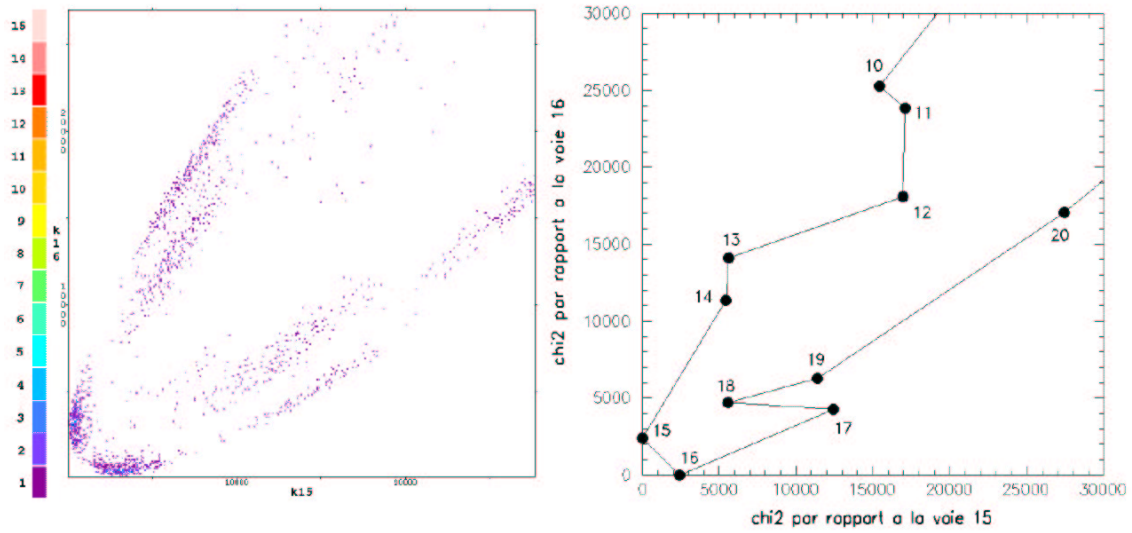


Fig. 2.26: représentation des χ^2 des évènements (à gauche) et des gabarits (à droite) par rapport aux gabarits des voie 15 et 16 du C_8 (voir teb. 2.1).

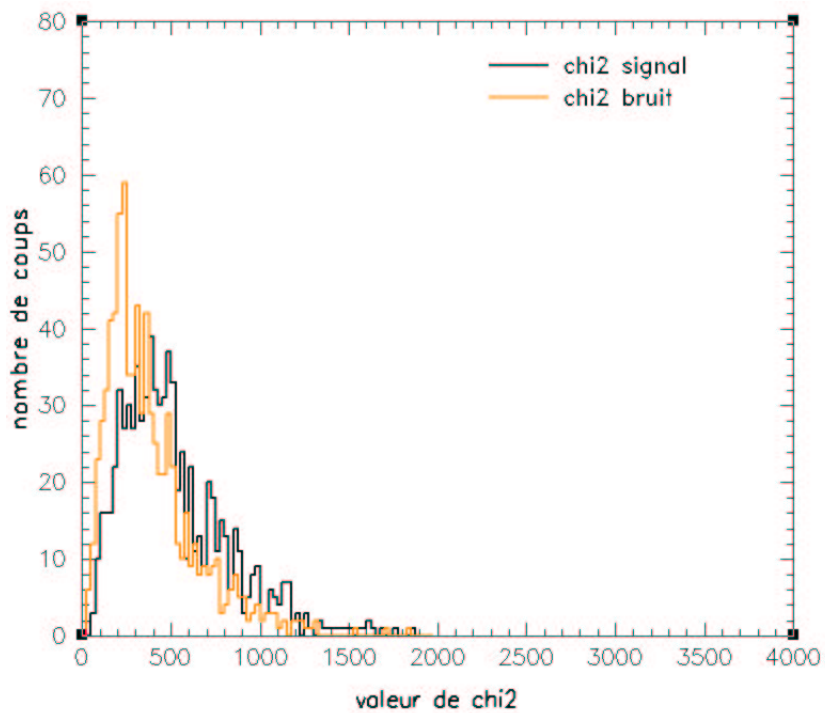


Fig. 2.27: distribution de χ^2 pour le bruit en utilisant un gabarit de type fond plat et pour les évènements associés au gabarit du type C .

et pour les enregistrements sans signal signe le bon accord entre le gabarit utilisé et la réalité. Cependant on observe un léger décalage entre les deux distributions qui provient certainement d'un bruit sur la forme des signaux.

Sur la figure 2.26, outres les voies 15 et 16 aux petites valeurs de χ^2 , on observe d'autres taches correspondant à d'autres voies. La largeur de ces taches devient de plus en plus grande à mesure que le χ^2 augmente. Ceci se comprend facilement si l'on décompose un signal comme la somme de son gabarit G_i avec le bruit B :

$$S(t_k) = G_i(t_k) + B(t_k) \quad (2.47)$$

On exprime alors le χ^2 de la manière suivante (au coefficient $\frac{1}{k_2 - k_1}$ près) :

$$\begin{aligned} \chi_j^2 &= \sum_k (G_i(t_k) + B(t_k) - G_j(t_k))^2 \\ \chi_j^2 &= \sum_k (G_i(t_k) - G_j(t_k))^2 + \sum_k B^2(t_k) + 2 \sum_k B(t_k) (G_i(t_k) - G_j(t_k)) \end{aligned} \quad (2.48)$$

Ainsi, dans le cas où le signal correspond au gabarit étudié ($i=j$), on obtient :

$$\chi^2 = \sum_k B^2(k) \quad (2.49)$$

Si au contraire, le signal ne correspond pas au gabarit étudié, on obtient :

$$\chi^2 = \chi_{i,j}^2 + \sum_k B^2(k) + 2 \sum_k B(t_k) (G_i(t_k) - G_j(t_k)) \quad (2.50)$$

où $\chi_{i,j}^2$ est le χ^2 entre les gabarits i et j (fig. 2.26 droite). On voit très bien dans l'équation (2.50) que le troisième terme est responsable de la dispersion pour les grandes valeurs de χ^2 que l'on observe sur la figure 2.26 à gauche. En comparant les figures 2.26 et 2.24 entre-elles, on observe que la résolution de la méthode en χ^2 est meilleure que celle avec les moments d'ordre 3.

Les résultats expérimentaux des rapports de branchement consécutifs à la capture électronique ont été obtenus en utilisant cette méthode. Concrètement, comme nous l'avons déjà expliqué, nous avons commencé par extraire les signaux de base avec la représentation énergie amplitude. Nous avons ensuite généré les gabarits par composition de la base (eq. (2.16)). Puis nous avons créé une base de donnée sous le logiciel DP2 contenant les vecteurs de χ^2 associés à chaque évènement. Enfin, nous avons extrait les évènements en définissant des contours dans les plans les plus pertinents. Parfois, il s'est avéré que la composition des gabarits n'était pas assez précise pour identifier tous les évènements. Nous avons alors affiné les gabarits de façon itérative en faisant la moyenne des évènements identifiés.

Il est important de noter que la méthode est dépendante du rapport signal à bruit. Nous avons utilisé un faisceau d'agrégats à 4 Mev/C (au lieu de 2 Mev/C) de manière à augmenter le signal par rapport au bruit qui reste le même. Ainsi,

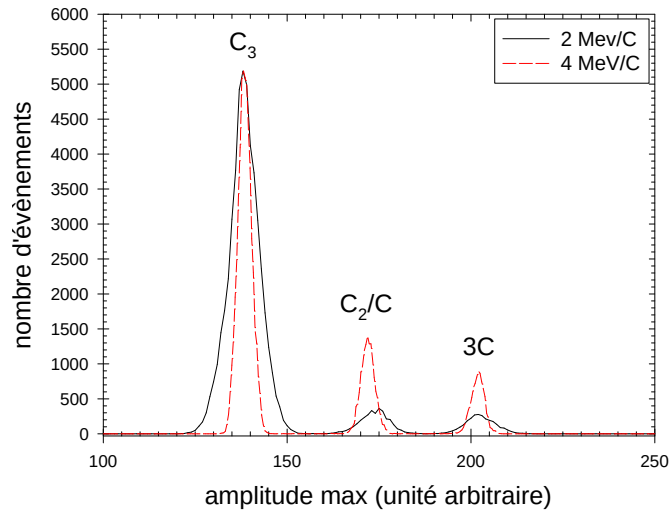


Fig. 2.28: projection de l'amplitude des signaux pour du C_3 à 2 et 4 MeV/C. Le spectre à 4 MeV/C est normalisé par l'écart entre le C_3 et le $3C$ à 2 MeV/C

en effectuant la projection en amplitude de la représentation énergie-amplitude des événements issus de la fragmentation du C_3 , on obtient la figure 2.28. On s'aperçoit sur la figure 2.28 que la résolution en amplitude des signaux est améliorée d'un facteur deux. Il devient intéressant de travailler à des énergies plus importantes afin d'augmenter l'efficacité de l'analyse en forme des signaux. Il serait alors possible d'analyser les voies de fragmentation pour des agrégats de masse supérieure.

2.5 conclusion

Nous avons montré que la forme du signal de courant issu d'un détecteur silicium épitaxié était caractéristique de la partition de fragmentation détectée due à l'effet plasma et à la composition linéaire des courants. Une bonne représentation des signaux permettant une visualisation en ligne est la représentation bidimensionnelle amplitude max/énergie (charge totale). L'analyse en moments des signaux constitue un outil puissant pour exploiter les données. Enfin, la représentation en χ^2 que nous avons développé permet d'extraire *toute* l'information contenue dans la forme des signaux.

Un des points faibles de ce nouveau principe de détection concerne la durée de vie du détecteur. Expérimentalement, une dose de l'ordre de 10^8 *particules/cm²* est suffisante pour rendre inexploitable les signaux, ce qui correspond à la création d'un défaut tout les μm^2 . Canut et al. [112] ont montré que le réseau cristallin du silicium était détruit sur un diamètre de plusieurs dizaines de *nm* par un seul impact. Nous souvenant que la taille de trace de charge est elle aussi de l'ordre du μ^2 , on doit en déduire que la présence d'un seul impact dans la zone de collection de charge est suffisante pour diminuer la qualité des signaux. Ceci met en évidence que le point crucial pour observer l'effet plasma comme nous le faisons dans ce travail est la qualité du réseau cristallin.

A la suite de notre travail sur l'exploitation de la forme des signaux de courant issus de détecteurs silicium, un groupe européen de physiciens nucléaires a bâti un programme de recherche et développement pour développer de nouveaux détecteurs capables d'identifier la charge et la masse d'ions lourds grâce à la forme des impulsions de courant. Cette collaboration utilise un silicium de bonne qualité mais différent de celui que nous avons utilisé : le *NTD*. Ce travail est en cours et fait l'objet de la thèse de Hassen Amritta à l'IPN.

Troisième partie

Analyse et discussion des résultats

Introduction

Nous allons maintenant présenter l'ensemble des résultats expérimentaux concernant les sections efficaces de capture ainsi que la fragmentation (rapports de branchement) pour les agrégats de carbone $C_{n \leq 10}^+$ lors de collisions à vitesse intermédiaire. Nous présenterons dans une première partie les résultats des sections efficaces de capture pour les systèmes $C_n^+ \rightarrow He$ que nous ne discuterons que sommairement ne disposant pas de théorie comparable à nos mesures.

Nous poursuivrons en présentant nos mesures des rapports de branchement des voies de fragmentation des agrégats. Nous verrons sur le taux d'entiers, c'est-à-dire la proportion d'agrégat neutre demeurant intact après la collision, qu'un effet d'alternance pair-impair apparaît en bon accord avec les calculs de structure. Nous utiliserons les rapports de branchement à nombre de fragments fixé avec la théorie *MMMC* afin d'extraire une distribution d'énergie interne.

Ensuite, nous verrons comment nous obtenons l'énergie moyenne déposée par la capture électronique en prenant en compte l'énergie interne initiale provenant de la température d'extraction à la source et de l'épluchage au terminal de l'accélérateur. Ces résultats mettront en évidence un effet propre à la capture des agrégats : la création d'états excités.

Dans une dernière partie, nous montrerons avec le test fin que constituent les rapports de branchement des partitions de fragmentation que la théorie *MMMC* est adaptée à la situation présente.

Chapitre 1

Sections efficaces de capture pour le système $C_n^+ \rightarrow He$.

Comme nous l'avons expliqué dans la partie théorique, les processus de capture sont souvent associés aux processus d'ionisation. Ainsi, la mesure de la section efficace de production d'événements neutres doit être corrigée des processus double de capture-ionisation pour accéder à la section efficace de capture.

1.1 Sections efficaces de production d'agrégats neutres

La figure 1.1 présente les mesures des sections efficaces de production d'événements neutres en fonction de la taille de l'agrégat. Les erreurs obtenues résultent de la statistique et de l'erreur de mesure sur le recouvrement jet-faisceau (B_{jet}).

On observe sur cette figure que la section efficace de production d'agrégats neutres présente une croissance linéaire avec la taille de l'agrégat alors que sa charge est constante et toujours égale à un.

1.2 Sections efficaces de capture corrigées des processus doubles

L'estimation des processus doubles de capture-ionisation relative à la section efficace de capture a été faite avec le formalisme CDW dans un modèle à atomes et électrons indépendants. Ce calcul est présenté en détail au paragraphe 3.2.3 de la partie théorique. Les sections efficaces de capture sont obtenues en écrivant :

$$\sigma_{capt} = \sigma_n^{mes} \frac{1}{R} = \sigma_n^{mes} \frac{\sigma_{capt}^{th}}{\sigma_n^{th}} \quad (1.1)$$

où σ_n^{mes} est la section efficace de production d'événements neutres mesurée, σ_{capt}^{th} et σ_n^{th} celles de capture (production de neutres + capture-ionisation) et de production d'événements neutres théoriques. Les valeurs des sections efficaces totales de capture obtenues à partir de la régression linéaire des mesures de la figure 1.1 sont reportées sur la figure 1.2.

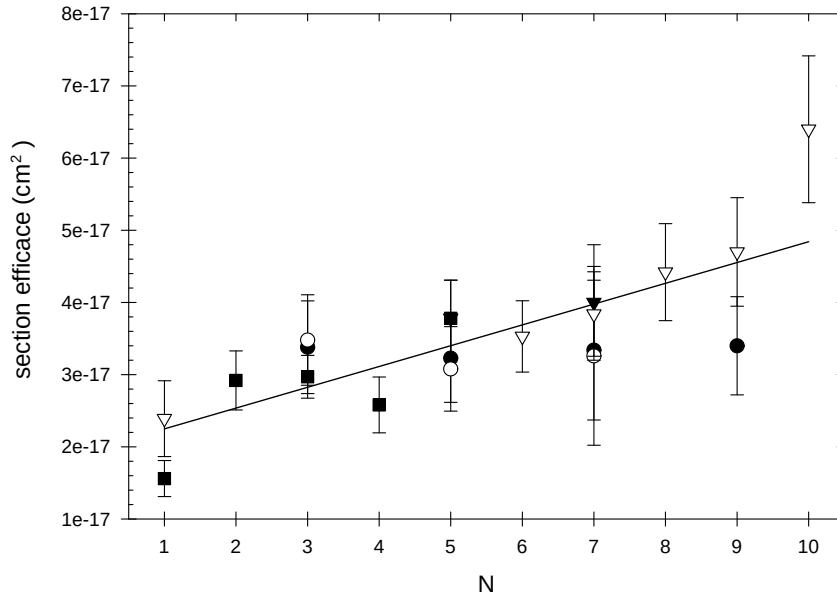


Fig. 1.1: Sections efficaces de production d'événements neutres mesurées en fonction de la taille N de l'agrégat. Ces résultats sont issus des expériences effectuées : (■) en 2000; (●) en 2001; (○) en 2001 avec He à la source; (▼) en 2002; (▽) en 2003; (—) régression linéaire $\sigma = 2.88 \cdot 10^{-18}N + 1.961 \cdot 10^{-17}$.

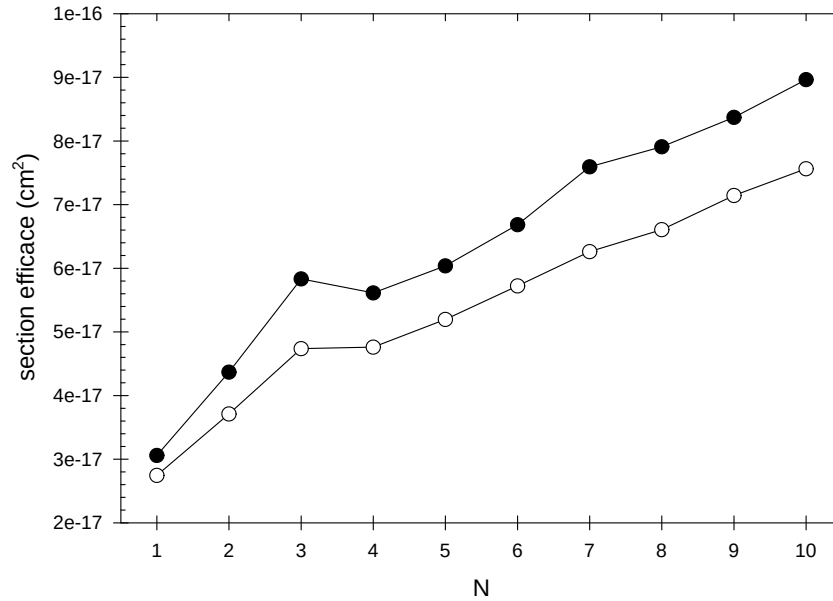


Fig. 1.2: (—●—) section efficace de capture totale corrigée du calcul CDW appliqué à la régression linéaire de la figure 1.1; (—○—) correction avec extension du paramètre d'impact de 25%.

D'une façon remarquable, on observe sur cette figure que la section efficace de capture totale croît avec la taille de l'agrégat de manière plus importante que la section efficace de production d'agrégats neutres. Il n'existe aucun calcul disponible

comparable à nos mesures, le problème étant en tout état de cause difficile d'un point de vue théorique.

Chapitre 2

Résultats expérimentaux sur les rapports de branchement

Nous présentons ici les résultats obtenus en utilisant la méthode d'analyse des signaux développée précédemment. Elle nous a permis d'identifier toutes les voies de fragmentation pour les agrégats de carbone C_3 - C_{10} . De nombreuses variations des conditions expérimentales (temps de détection, stripper He et N_2 , source avec He à $3.5.10^{-5}$ torr et cible He , Ar , Ne) ont été réalisées essentiellement pour le C_5 .

2.1 Rapports de branchement de la capture non-dissociative

Nous avons représenté sur la figure 2.1 les rapports de branchement correspondant aux agrégats non-dissociés après le processus de capture.

Nous remarquons que les rapports de branchement marquent une alternance suivant que le nombre de constituants soit pair ou impair. En supposant que leur énergie interne moyenne est constante (à 20% près) quelle que soit leur taille (ce que nous verrons plus loin sur la figure 3.15), le taux d'agrégats entiers reflète leur énergie de dissociation puisque seuls subsistent ceux dont l'énergie interne est inférieure au seuil de fragmentation. Ce résultat est en bon accord avec les calculs de structure présentés dans le tableau 1.1 en page 20.

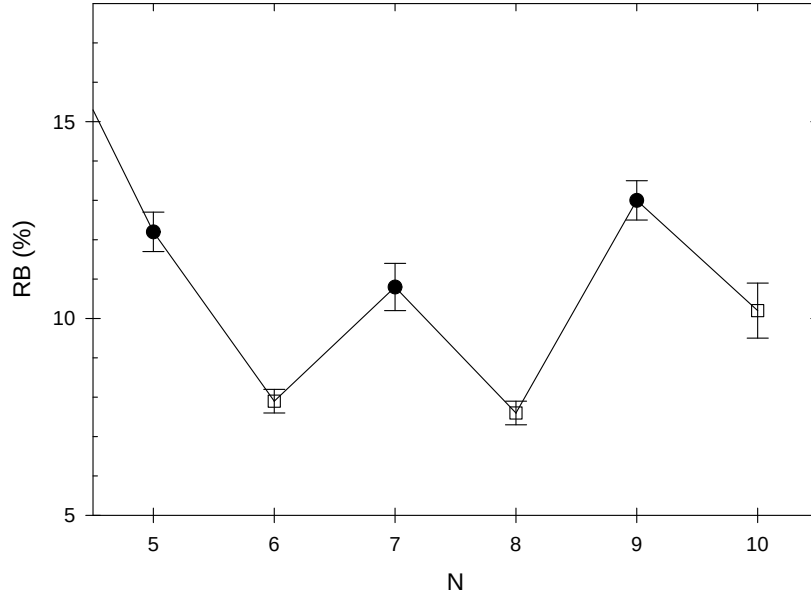


Fig. 2.1: Rapports de branchement de la capture non-dissociative en fonction de la taille de l'agrégat. (●) nombre impair de constituants ; (□) nombre pair de constituants.

2.2 Rapports de branchement des partitions de fragmentation

Nous présentons maintenant l'ensemble de nos résultats expérimentaux que nous utiliserons dans les discussions qui suivront.

2.2.1 C_3

C_3 ($tof = 173\text{ ns}$), stripper He, cible He, variable : *source*

nombre de fragments	voie	$RB \pm dRB$ (en %)	
		sans He	avec He
1	C_3	45.8 ± 3.2	35.6 ± 4.1
2	C_2/C	46.6 ± 3.3	56.0 ± 4.1
3	$C/C/C$	7.6 ± 1.4	8.4 ± 1.8

Tab. 2.1: Rapports de branchement pour le C_3 avec changement des conditions de production à la source

2.2.2 C_4

C_4 , stripper N_2 , cible He , variable : tof

nombre de fragments	voie	$RB \pm dRB$ (en %)	
		56 ns	173 ns
1	C_4	19.7 ± 1.2	18.4 ± 0.5
2	C_3/C	50.1 ± 2.0	50.5 ± 1.4
	C_2/C_2	16.7 ± 1.5	18.2 ± 1.2
3	$C_2/C/C$	11.7 ± 1.1	11.0 ± 0.4
4	$C/C/C/C$	1.9 ± 0.3	1.9 ± 0.2

Tab. 2.2: Rapports de branchement pour le C_4 avec changement du temps de vol cible-décteur.

2.2.3 C_5

 C_5 , stripper N_2 , cible He , variable : tof

nombre de fragments	voie	$RB \pm dRB$ (en %)			
		56 ns	173 ns	191 ns	253 ns
1	C_5	14.1 ± 0.7	12.6 ± 0.6	8.8 ± 3.5	12.2 ± 0.5
2	C_4/C	11.1 ± 1.0	8.8 ± 0.6	8.2 ± 0.8	8.0 ± 0.4
	C_3/C_2	55.1 ± 1.9	58.7 ± 1.4	62.1 ± 4.3	59.0 ± 1.2
3	$C_3/C/C$	10.7 ± 0.7	10.7 ± 0.7	11.6 ± 1.2	12.6 ± 0.6
	$C_2/C_2/C$	6.5 ± 0.5	6.3 ± 0.4	6.4 ± 0.7	6.0 ± 0.4
4	$C_2/C/C/C$	2.0 ± 0.3	2.5 ± 0.3	2.6 ± 0.3	3.0 ± 0.2
5	$C/C/C/C/C$	0.5 ± 0.1	0.5 ± 0.1	0.4 ± 0.1	0.5 ± 0.1

Tab. 2.3: Rapports de branchement pour le C_5 avec changement du temps de vol cible-décteur.

 C_5 ($tof = 173$ ns), stripper He , cible He , variable : $source$

nombre de fragments	voie	$RB \pm dRB$ (en %)	
		sans He	avec He
1	C_5	16.0 ± 1.9	9.8 ± 1.3
2	C_4/C	7.9 ± 1.5	7.4 ± 1.0
	C_3/C_2	58.7 ± 3.7	63.1 ± 4.8
3	$C_3/C/C$	7.7 ± 1.5	13.1 ± 3.8
	$C_2/C_2/C$	6.8 ± 1.2	3.8 ± 1.5
4	$C_2/C/C/C$	2.5 ± 0.8	2.5 ± 0.6
5	$C/C/C/C/C$	0.3 ± 0.3	0.3 ± 0.2

Tab. 2.4: Rapports de branchement pour le C_5 avec changement des conditions de production à la source (voir partie 1 paragraphe 1.1.2).

C_5 ($tof = 173$ ns, stripper N_2 , variable : cible)

nombre de fragments	voie	$RB \pm dRB$ (en %)		
		He	Ne	Ar
1	C_5	12.6 ± 0.6	12.7 ± 1.2	12.5 ± 0.3
2	C_4/C	8.8 ± 0.6	7.5 ± 1.0	8.1 ± 0.3
	C_3/C_2	58.7 ± 1.4	57.3 ± 2.7	55.3 ± 0.8
3	$C_3/C/C$	10.7 ± 0.7	11.6 ± 1.2	11.8 ± 0.4
	$C_2/C_2/C$	6.3 ± 0.4	7.0 ± 0.9	7.9 ± 0.3
4	$C_2/C/C/C$	2.5 ± 0.3	3.4 ± 0.7	3.8 ± 0.2
5	$C/C/C/C/C$	0.5 ± 0.1	0.5 ± 0.2	0.73 ± 0.08

 Tab. 2.5: Rapports de branchement pour le C_5 avec changement de cible

 C_5 ($tof = 173$ ns), cible He , variable : stripper

nombre de fragments	voie	$RB \pm dRB$ (en %)	
		N_2	He
1	C_5	12.6 ± 0.6	16.0 ± 1.9
2	C_4/C	8.8 ± 0.6	7.9 ± 1.5
	C_3/C_2	58.7 ± 1.4	58.7 ± 3.7
3	$C_3/C/C$	10.7 ± 0.7	7.7 ± 1.5
	$C_2/C_2/C$	6.3 ± 0.4	6.8 ± 1.2
4	$C_2/C/C/C$	2.5 ± 0.3	2.5 ± 0.8
5	$C/C/C/C/C$	0.5 ± 0.1	0.3 ± 0.3

 Tab. 2.6: Rapports de branchement pour le C_5 avec changement des conditions d'épluchage au terminal

2.2.4 C_6

C_6 stripper N_2 , cible He , variable : tof

nombre de fragments	voie	$RB \pm dRB$ (en %)	
		191 ns	253 ns
1	C_6	8.3 ± 0.6	7.9 ± 0.3
2	C_5/C	5.6 ± 0.5	6.6 ± 0.3
	C_4/C_2	10.9 ± 0.7	10.3 ± 0.5
	C_3/C_3	54.6 ± 1.5	55.2 ± 0.9
3	$C_4/C/C$	1.1 ± 0.2	1.0 ± 0.1
	$C_3/C_2/C$	15.1 ± 0.8	14.0 ± 0.5
	$C_2/C_2/C_2$	0.8 ± 0.2	0.9 ± 0.1
4	$C_3/C/C/C$	1.8 ± 0.3	1.7 ± 0.2
	$C_2/C_2/C/C$	1.3 ± 0.2	1.6 ± 0.2
5	$C_2/C/C/C/C$	0.5 ± 0.2	0.66 ± 0.09
5	$C/C/C/C/C/C$	0.06 ± 0.05	0.09 ± 0.04

Tab. 2.7: Rapports de branchement pour le C_6 avec changement du temps de vol cible-détecteur.

2.2.5 C_7

 C_7 , cible He , variables : $stripper$ et tof

nombre de fragments	voie	$RB \pm dRB$ (en %)		
		stripper He	stripper N_2	
		173 ns	191 ns	253 ns
1	C_7	11.1 ± 1.2 (12.9 ± 2.0)	10.8 ± 0.6	11.1 ± 1.1
2	C_6/C	0.7 ± 0.3	0.6 ± 0.2	0.3 ± 0.3
	C_5/C_2	12.3 ± 1.2	11.2 ± 1.0	9.4 ± 1.0
	C_4/C_3	46.5 ± 2.4	47.1 ± 1.1	47.9 ± 2.1
3	$C_5/C/C$	0.7 ± 0.3	0.3 ± 0.1	0.4 ± 0.2
	$C_4/C_2/C$	1.7 ± 0.4	1.7 ± 0.2	1.6 ± 0.4
	$C_3/C_3/C$	14.4 ± 1.3	14.8 ± 0.9	14.9 ± 1.2
	$C_3/C_2/C_2$	7.0 ± 0.9	7.8 ± 0.4	8.4 ± 0.9
4	$C_4/C/C/C$	0.0 ± 0.2	0.24 ± 0.07	0.1 ± 0.3
	$C_3/C_2/C/C$	3.1 ± 0.6	3.7 ± 0.3	4.2 ± 0.6
	$C_2/C_2/C_2/C$	0.5 ± 0.4	0.7 ± 0.1	0.6 ± 0.3
5	$C_3/C/C/C/C$	0.7 ± 0.5	0.5 ± 0.1	0.2 ± 0.3
	$C_2/C_2/C/C/C$	1.0 ± 0.6	0.4 ± 0.1	0.7 ± 0.3
6	$C_2/C/C/C/C/C$	0.1 ± 0.4	0.20 ± 0.07	0.1 ± 0.2
7	$C/C/C/C/C/C/C$	0.1 ± 0.3	0.02 ± 0.04	0.0 ± 0.2

Tab. 2.8: Rapports de branchement pour le C_7 avec changement des conditions au terminal et de temps de vol cible-détecteur.

C_7 ($tof = 173$ ns), cible He , variables : *source*

nombre de fragments	voie	$RB \pm dRB$ (en %)	
		sans He	avec He
1	C_7	11.1 ± 1.2	12.9 ± 2.0

Tab. 2.9: Rapports de branchement pour le C_7 avec changement des conditions de production à la source.

2.2.6 C_8

C_8 ($tof = 191$ ns), cible He , stripper N_2

nombre de fragments	voie	$RB \pm dRB$ (en %)
1	C_8	7.6 ± 0.3
2	C_7/C	1.8 ± 0.2
	C_6/C_2	1.7 ± 0.1
	C_5/C_3	54.2 ± 0.8
	C_4/C_4	4.6 ± 0.4
3	$C_6/C/C$	0.0 ± 0.02
	$C_5/C_2/C$	1.1 ± 0.1
	$C_4/C_3/C$	4.5 ± 0.3
	$C_4/C_2/C_2$	0.6 ± 0.1
	$C_3/C_3/C_2$	17.3 ± 0.5
4	$C_5/C/C/C$	0.08 ± 0.04
	$C_4/C_2/C/C$	0.3 ± 0.1
	$C_3/C_3/C/C$	3.0 ± 0.2
	$C_3/C_2/C_2/C$	2.0 ± 0.2
	$C_2/C_2/C_2/C_2$	0.04 ± 0.04
5	$C_4/C/C/C/C$	0.03 ± 0.02
	$C_3/C_2/C/C/C$	0.6 ± 0.1
	$C_2/C_2/C_2/C/C$	0.21 ± 0.05
6	$C_3/C/C/C/C/C$	0.12 ± 0.06
	$C_2/C_2/C/C/C/C$	0.13 ± 0.05
7	$C_2/C/C/C/C/C/C$	0.0 ± 0.01
8	$C/C/C/C/C/C/C/C$	0.0 ± 0.01

Tab. 2.10: Rapports de branchement pour le C_8 .

2.2.7 C_9

C_9 ($tof = 173$ et 191 ns), variables : cible et stripper

nombre de fragments	voie	$RB \pm dRB$ (en %)		
		stripper He (173 ns)		stripper N_2 (191 ns)
		Ne	cible He	
1	C_9	14.3 ± 1.3	14.0 ± 1.1	13.0 ± 0.5
2	C_8/C	0.2 ± 0.3	0.5 ± 0.2	0.2 ± 0.2
	C_7/C_2	1.9 ± 0.5	3.4 ± 0.5	3.1 ± 0.3
	C_6/C_3	27.1 ± 1.7	26.3 ± 1.5	28.6 ± 0.8
	C_5/C_4	12.0 ± 1.1	12.6 ± 1.0	13.6 ± 0.6
3	$C_7/C/C$	1.3 ± 0.5	0.2 ± 0.2	0.05 ± 0.04
	$C_6/C_2/C$	0.1 ± 0.2	0.1 ± 0.2	0.11 ± 0.05
	$C_5/C_3/C$	4.0 ± 0.8	4.7 ± 0.6	4.4 ± 0.3
	$C_5/C_2/C_2$	4.6 ± 0.8	0.9 ± 0.4	0.8 ± 0.2
	$C_4/C_4/C$	1.2 ± 0.5	0.9 ± 0.3	0.5 ± 0.2
	$C_4/C_3/C_2$	5.4 ± 0.8	7.0 ± 0.8	6.7 ± 0.5
	$C_3/C_3/C_3$	21.7 ± 1.5	21.6 ± 1.4	21.5 ± 0.8
4	$C_6/C/C/C$	0.0 ± 0.1	0.0 ± 0.1	0.10 ± 0.04
	$C_5/C_2/C/C$	0.0 ± 0.1	0.2 ± 0.2	0.2 ± 0.1
	$C_4/C_3/C/C$	0.4 ± 0.4	0.4 ± 0.3	0.8 ± 0.2
	$C_4/C_2/C_2/C$	0.0 ± 0.1	0.3 ± 0.2	0.2 ± 0.1
	$C_3/C_3/C_2/C$	3.8 ± 0.8	4.4 ± 0.7	3.9 ± 0.4
	$C_3/C_2/C_2/C_2$	0.3 ± 0.3	0.7 ± 0.3	0.5 ± 0.1
5	$C_5/C/C/C/C$	0.0 ± 0.1	0.0 ± 0.1	0.0 ± 0.02
	$C_4/C_2/C/C/C$	0.0 ± 0.1	0.0 ± 0.1	0.04 ± 0.08
	$C_3/C_3/C/C/C$	0.6 ± 0.4	0.3 ± 0.3	0.4 ± 0.1
	$C_3/C_2/C_2/C/C$	0.6 ± 0.4	1.1 ± 0.4	0.7 ± 0.1
	$C_2/C_2/C_2/C_2/C$	0.0	0.0	0.04 ± 0.03
6	$C_4/C/C/C/C/C$	0.0 ± 0.1	0.0 ± 0.1	0.01 ± 0.03
	$C_3/C_2/C/C/C/C$	0.5 ± 0.4	0.4 ± 0.3	0.22 ± 0.07
	$C_2/C_2/C_2/C/C/C$	0.0	0.0	0.04 ± 0.04
7	$C_3/C/C/C/C/C/C$	0.1 ± 0.2	0.0	0.1 ± 0.1
	$C_2/C_2/C/C/C/C/C$	0.0	0.0	0.0 ± 0.05
8	$C_2/C/C/C/C/C/C/C$	0.0	0.0	0.03 ± 0.04
9	$C/C/C/C/C/C/C/C/C$	0.0	0.0	0.0 ± 0.04

Tab. 2.11: Rapports de branchement pour le C_9 avec changement de cible et des conditions d'épluchage au terminal.

 2.2.8 C_{10}

C_{10} ($tof = 191$ ns), stripper N_2 , cible He

nombre de fragments	voie	$RB \pm dRB$ (en %)
1	C_{10}	10.2 ± 0.7
2	C_9/C	0.5 ± 0.2
	C_8/C_2	0.4 ± 0.1
	C_7/C_3	40.5 ± 1.3
	C_6/C_4	1.9 ± 0.5
	C_5/C_5	14.4 ± 1.0
3	$C_8/C/C$	0.0 ± 0.05
	$C_7/C_2/C$	0.3 ± 0.1
	$C_6/C_3/C$	0.9 ± 0.2
	$C_6/C_2/C_2$	0.06 ± 0.05
	$C_5/C_4/C$	0.9 ± 0.3
	$C_5/C_3/C_2$	6.6 ± 0.7
	$C_4/C_4/C_2$	0.3 ± 0.3
	$C_4/C_3/C_3$	13.9 ± 0.9
4	$C_7/C/C/C$	0.15 ± 0.07
	$C_6/C_2/C/C$	0.02 ± 0.05
	$C_5/C_3/C/C$	0.4 ± 0.3
	$C_5/C_2/C_2/C$	0.3 ± 0.1
	$C_4/C_4/C/C$	0.04 ± 0.08
	$C_4/C_3/C_2/C$	0.8 ± 0.4
	$C_4/C_2/C_2/C_2$	0.1 ± 0.1
	$C_3/C_3/C_3/C$	2.9 ± 0.6
	$C_3/C_3/C_2/C_2$	2.2 ± 0.4
5	$C_6/C/C/C/C$	0.02 ± 0.05
	$C_5/C_2/C/C/C$	0.13 ± 0.09
	$C_4/C_3/C/C/C$	0.2 ± 0.1
	$C_4/C_2/C_2/C/C$	0.1 ± 0.1
	$C_3/C_3/C_2/C/C$	0.8 ± 0.3
	$C_3/C_2/C_2/C_2/C$	0.4 ± 0.2
	$C_2/C_2/C_2/C_2/C_2$	0.0 ± 0.05
6	$C_5/C/C/C/C/C$	0.11 ± 0.06
	$C_4/C_2/C/C/C/C$	0.0 ± 0.05
	$C_3/C_3/C/C/C/C$	0.15 ± 0.08
	$C_3/C_2/C_2/C/C/C$	0.3 ± 0.1
	$C_2/C_2/C_2/C_2/C/C$	0.0 ± 0.05
7	$C_4/C/C/C/C/C/C$	0.0 ± 0.05
	$C_3/C_2/C/C/C/C/C$	0.17 ± 0.08
	$C_2/C_2/C_2/C/C/C/C$	0.06 ± 0.05
8	$C_3/C/C/C/C/C/C/C$	0.15 ± 0.07
	$C_2/C_2/C/C/C/C/C/C$	0.0 ± 0.05
9	$C_2/C/C/C/C/C/C/C/C$	0.02 ± 0.05
10	$C/C/C/C/C/C/C/C/C/C$	0.04 ± 0.05

 Tab. 2.12: Rapports de branchement pour le C_{10} .

Chapitre 3

Analyse des résultats en terme d'énergie déposée à l'aide du modèle *MMMC*

3.1 Analyse en nombre de fragments et extraction des distributions d'énergie

3.1.1 Validation du modèle *MMMC* par la théorie de Weisskopf

Afin d'utiliser les théories développées précédemment pour l'étude de la fragmentation, nous allons vérifier dans un premier temps que nos conditions expérimentales permettent l'utilisation du modèle *MMMC*. En effet, la théorie *MMMC* ne peut s'appliquer que pour un système se trouvant à un temps *infini* après la collision. Les calculs issus du modèle séquentiel de *Weisskopf* ont été effectués à des temps de 200 *ns* et *infini* pour les agrégats C_5 et C_7 .

Cas du C_5

Sur les figures 3.1 et 3.2, sont représentés respectivement les résultats du calcul avec le modèle de *Weisskopf* à un temps de vol de 200 *ns* et infini. On observe que les deux calculs donnent des résultats quasi-équivalents. Par conséquent, suivant les résultats du calcul de *Weisskopf*, le temps de mesure (~ 200 *ns*) peut bien être assimilé à un temps infini.

Les mesures des rapports de branchement expérimentaux pour différents temps d'observation sont reportées sur la figure 3.3. Nous avons choisi de présenter sur cette figure uniquement les voies associées à un et deux fragments ($1F$ et $2F$) que les résultats du calcul précédent nous indiquent comme pertinentes. On observe sur le taux d'entier ($1F$) un léger écart sur le point à 56 *ns* d'un comportement plat caractéristique d'une mesure à l'infini. Néanmoins, la mesure ne montre pas de désaccord avec les prédictions de la théorie de *Weisskopf* sur la dépendance en temps de la fragmentation.

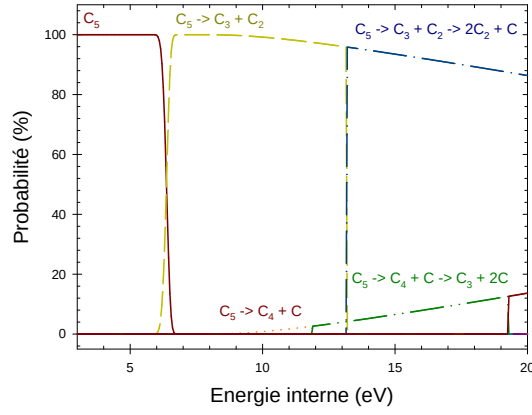


Fig. 3.1: Probabilités de fragmentation du C_5 en fonction de l'énergie interne, 200 ns après le dépôt d'énergie.

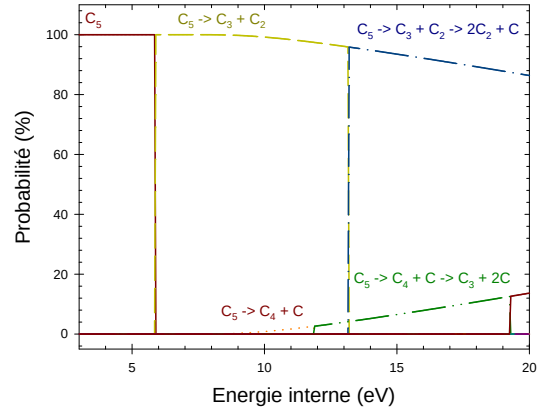


Fig. 3.2: Probabilités de fragmentation du C_5 en fonction de l'énergie interne, pour un temps infini après le dépôt d'énergie.

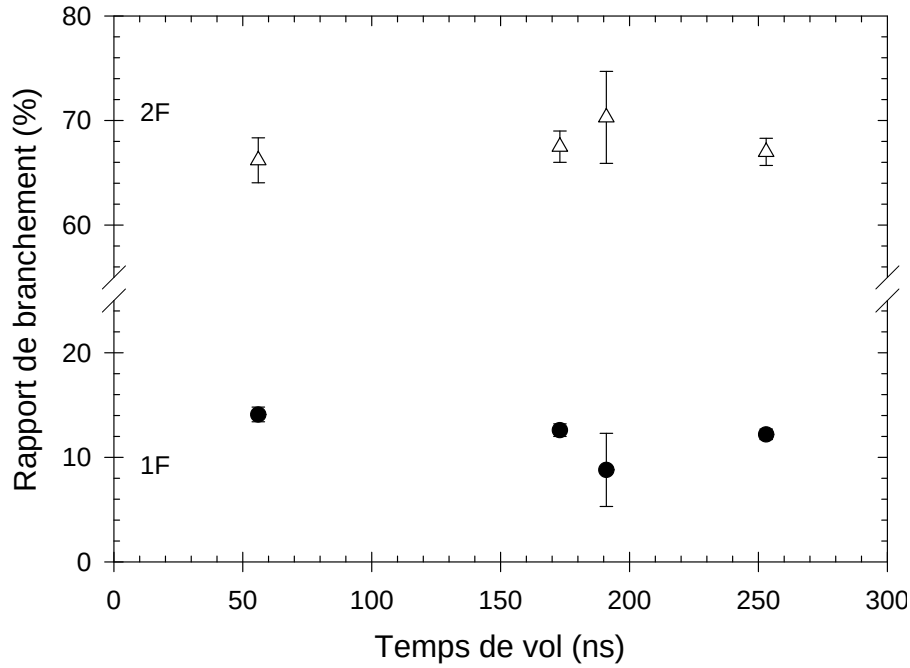


Fig. 3.3: Variation des rapports de branchement sommés pour les voies à 1 (1F) et 2 (2F) fragments en fonction du temps de vol de l'expérience. ($\bullet$) : 1 fragment (C_5) ; ($\triangle$) : 2 fragments ($C_4/C + C_3/C_2$).

Cas du C_7

Les figures 3.4 et 3.5 représentent respectivement les résultats du modèle de Weisskopf à un temps de 200 ns et infini après la collision pour l'agrégat C_7 . On observe qu'ici, les résultats des deux calculs ne sont pas identiques, notamment pour le passage des voies $C_7 \rightarrow C_4 + C_3$ (différence de 2 eV environ). Compte tenu des barres d'erreur et de la très faible variation du temps d'observation (170 et 250 ns) de nos mesures de fragmentation du C_7 (tableau 2.8, p. 125), nos expériences ne peuvent apporter de réponse sur ce point.

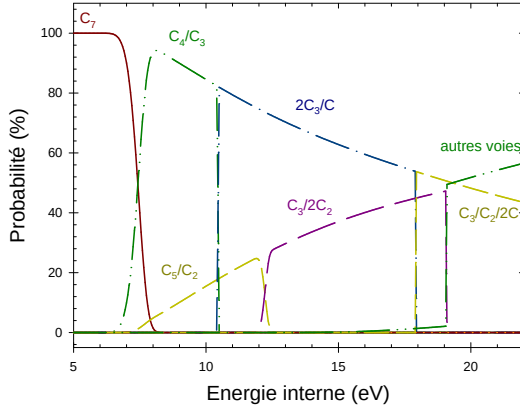


Fig. 3.4: Probabilités de fragmentation du C_7 en fonction de l'énergie interne, 200 ns après le dépôt d'énergie.

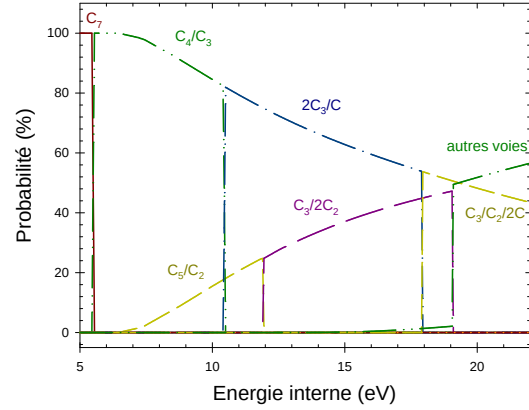


Fig. 3.5: Probabilités de fragmentation du C_7 en fonction de l'énergie interne, pour un temps infini après le dépôt d'énergie.

En conclusion, les calculs du modèle séquentiel de *Weisskopf* nous prédisent que nous sommes à l'infini pour le C_5 . En ce qui concerne le C_7 , une variation du taux d'entier peut exister entre une mesure à l'infini et une mesure autour de 200 ns après la collision. Nous prendrons en compte ces possibles variations lorsque nous utiliserons les résultats à l'infini du calcul *MMMC*. Pour le C_9 , les résultats du calcul de *Weisskopf* ne sont malheureusement pas disponibles, le traitement de l'évaporation du C_4 étant plus difficile à effectuer.

3.1.2 Analyse des résultats en nombre de fragments : mesure de l'énergie interne moyenne

Dans un premier temps, pour analyser nos résultats, nous sommons les voies de fragmentation à même nombre de fragments. En effet, le nombre de fragments est un critère énergétique fort comme nous pouvons le voir sur les figures 3.6, 3.7 et 3.8 où sont représentées les probabilités d'apparition des voies à même nombre de fragments en fonction de l'énergie interne des agrégats C_5 , C_7 et C_9 . Dans toute la discussion qui va suivre, nous allons utiliser les données théoriques présentées sur ces figures.

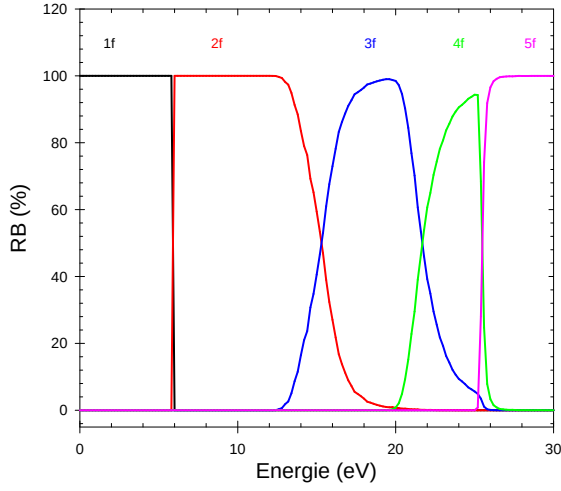


Fig. 3.6: Probabilités de fragmentation d'un agrégat C_5 en fonction de son énergie interne dans le cadre du modèle MMMC

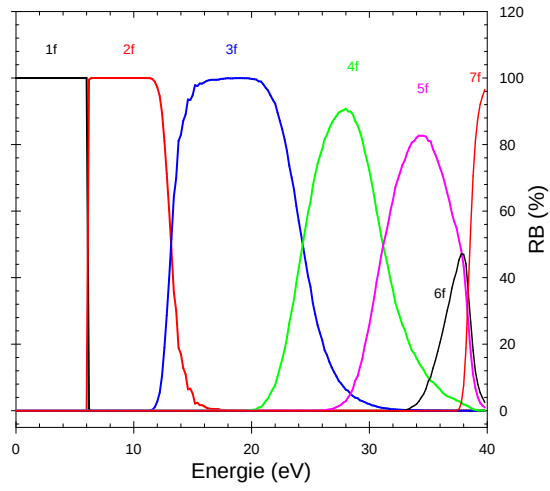


Fig. 3.7: Probabilités de fragmentation d'un agrégat C_7 en fonction de son énergie interne dans le cadre du modèle MMMC

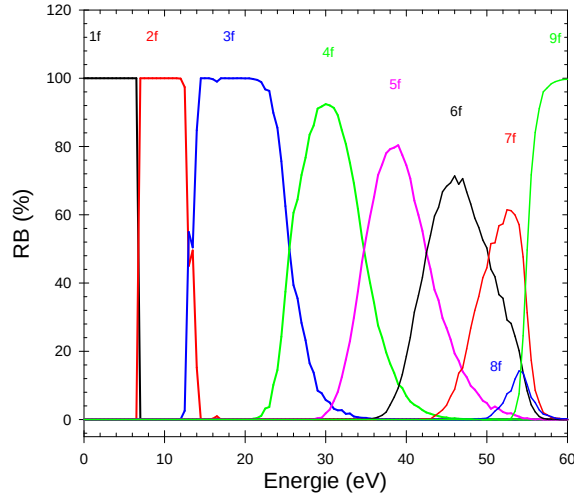


Fig. 3.8: Probabilités de fragmentation d'un agrégat C_9 en fonction de son énergie interne dans le cadre du modèle MMMC

Principe de la méthode

Les résultats des calculs de fragmentation nous donnent la probabilité d'obtenir une voie de fragmentation pour une énergie donnée. En utilisant ces probabilités avec une distribution d'énergie $D(\epsilon)$, nous obtenons les rapports de branchement des différents voies. Si nous avons N_v voies de fragmentation possibles ainsi que leur probabilité d'existence $P_i(\epsilon)$ pour une énergie interne ϵ , on obtient les rapports de branchement qui leur sont associés par la relation :

$$\int_0^{E_{max}} P_i(\epsilon) D(\epsilon) d\epsilon = RB_i \quad (3.1)$$

où RB_i est le rapport de branchement de la voie i , avec $i = 1 \dots N_e$. Connaissant les probabilités associées à chaque voie par le modèle *MMMC*, et ayant les résultats expérimentaux des rapports de branchement RB_i , nous utilisons pour la distribution D des fonctions paramétrées dont on ajuste les paramètres afin de reproduire les résultats expérimentaux. Ainsi, on cherche à minimiser la différence entre les rapports de branchement expérimentaux et ceux obtenus par le calcul (3.1) en modifiant les paramètres de la distribution.

Ne connaissant pas la forme de la distribution réelle, nous avons utilisé trois fonctions ayant des comportements différents qui sont :

$$\begin{aligned} D_1(\epsilon) &= \epsilon^{a_1} e^{-a_2(\epsilon-a_3)^{a_4}} \\ D_2(\epsilon) &= \epsilon^{a_1} \frac{a_2}{(\epsilon-a_3)^{a_4} - a_2^{a_4}} \\ D_3(\epsilon) &= \epsilon^{a_1} (a_2 e^{-a_3\epsilon} + a_4 e^{-a_5\epsilon}) \end{aligned} \quad (3.2)$$

où les a_i sont les paramètres ajustables.

Nous avons ensuite utilisé ces formes sur les résultats obtenus par le calcul *MMMC* et ajustés les paramètres a_i pour reproduire nos résultats. On obtient ainsi les figures des pages 134 et suivantes.

Résultats sur les distributions d'énergie interne obtenues avec le modèle *MMMC*

oCas du C_5

La figure 3.9 représente les trois distributions d'énergie obtenues par un ajustement avec les données expérimentales de la figure 3.10 pour le C_5 . On remarque sur cette figure que l'accord sur les faibles nombres de fragments est toujours correct alors que sur les voies à grand nombre de fragments, la fonction $D_2(\epsilon)$ est hors barres d'erreur. Les énergies moyennes des distributions, malgré leurs aspects très différents, ont cependant des valeurs proches :

$\bar{E}_{C_5}$	χ^2
$D_1(\epsilon) : 11.2 \text{ eV}$	1.92
$D_2(\epsilon) : 11.5 \text{ eV}$	9.83
$D_3(\epsilon) : 10.7 \text{ eV}$	0.33

(3.3)

L'énergie moyenne est donc mesurée de manière robuste à $11.0 \pm 0.2 \text{ eV}$.

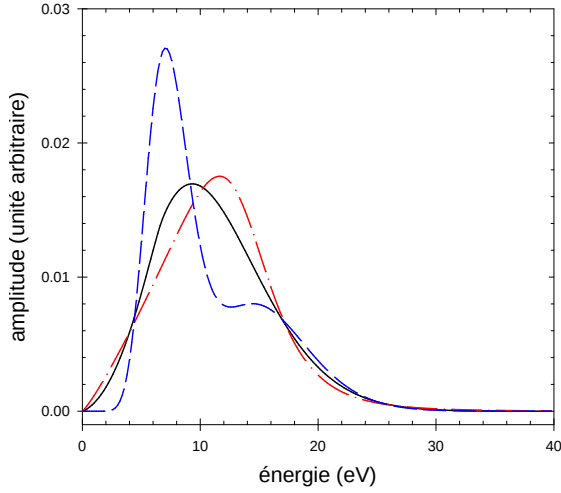


Fig. 3.9: Distributions d'énergie pour le C_5 obtenues avec les expressions $D_1(\epsilon)$ (—), $D_2(\epsilon)$ (— · —) et $D_3(\epsilon)$ (— —).

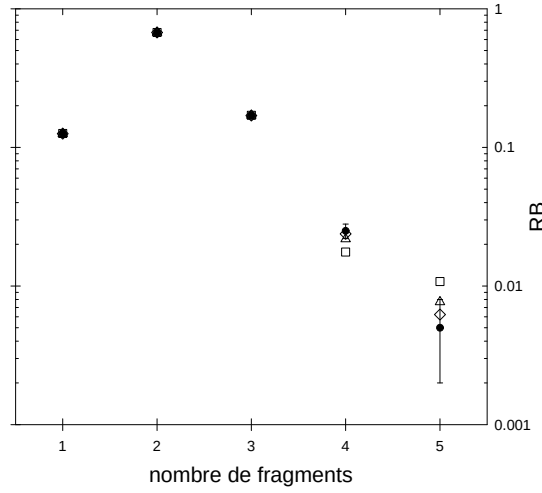


Fig. 3.10: Rapports de branchement du C_5 en fonction du nombre de fragments : expérience (●), calcul MMC avec les distributions d'énergie $D_1(\epsilon)$ (Δ), $D_2(\epsilon)$ ($\square$) et $D_3(\epsilon)$ ($\diamond$).

oCas du C_7

Sur la figure 3.11 sont reportées les distributions d'énergie ajustées sur les résultats de la figure 3.12.

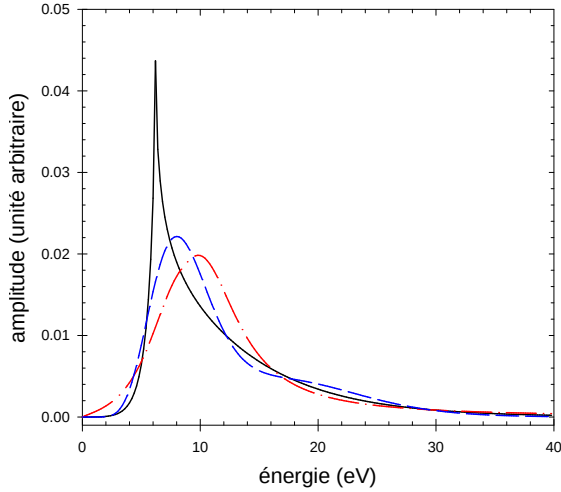


Fig. 3.11: Distributions d'énergie pour le C_7 obtenues avec les expressions $D_1(\epsilon)$ (—), $D_2(\epsilon)$ (— · —) et $D_3(\epsilon)$ (— —).

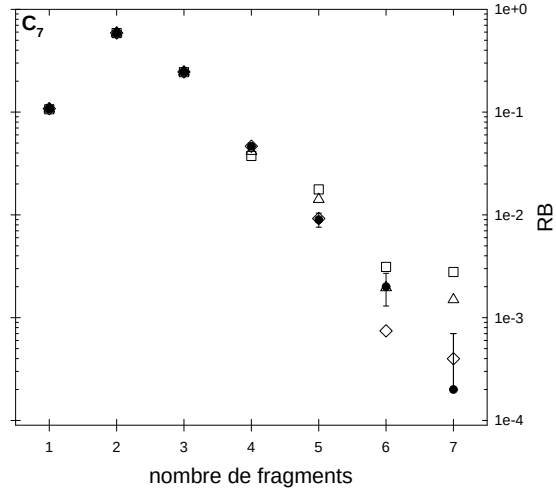


Fig. 3.12: Rapports de branchement du C_7 en fonction du nombre de fragments : expérience (●), calcul MMC avec les distributions d'énergie $D_1(\epsilon)$ (Δ), $D_2(\epsilon)$ ($\square$) et $D_3(\epsilon)$ ($\diamond$).

Ici encore, on observe une forte variation de la forme des distributions d'énergie, mais un bon accord entre les rapports de branchement expérimentaux et théoriques, excepté pour la distribution $D_2(\epsilon)$. Les énergies moyennes obtenues sont stables avec

les différentes distributions :

$\bar{E}_{C_7}$	χ^2
$D_1(\epsilon) : 11.8 \text{ eV}$	22.81
$D_2(\epsilon) : 12.2 \text{ eV}$	75.65
$D_3(\epsilon) : 12.0 \text{ eV}$	3.40

(3.4)

Comme nous l'avons discuté au paragraphe précédent, si pour le C_5 un calcul *MMMC* à l'infini est a priori correct, il n'en est pas de même pour le C_7 . Nous avons donc modifié les calculs *MMMC* en déplaçant le seuil de transition entre les voies à un et deux fragments de 2 eV suivant les prédictions du calcul de *Weisskopf*. L'accord entre les rapports de branchement expérimentaux et théoriques est toujours satisfaisant. Par contre, l'énergie moyenne trouvée par la méthode d'ajustement est augmentée de quelques $0.5 - 0.7 \text{ eV}$. L'énergie interne moyenne obtenue pour le C_7 inclut cet effet dans les barres d'erreur et est prise égale à : $\bar{E}_{C_7} = 12.0^{+1.0}_{-0.2}$.

oCas du C_9

Nous avons représenté sur la figure 3.13, les distributions obtenues avec la méthode d'ajustement sur les rapports de branchement. La figure 3.14 présente les rapports de branchements expérimentaux et théoriques obtenus.

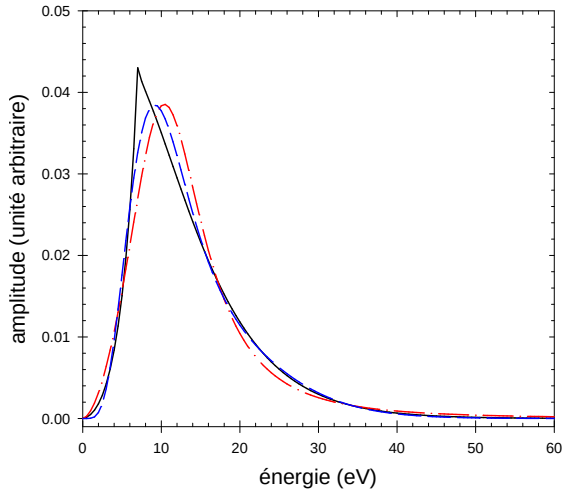


Fig. 3.13: Distributions d'énergie pour le C_9 obtenues avec les expressions $D_1(\epsilon)$ (—), $D_2(\epsilon)$ (— · —) et $D_3(\epsilon)$ (— —).

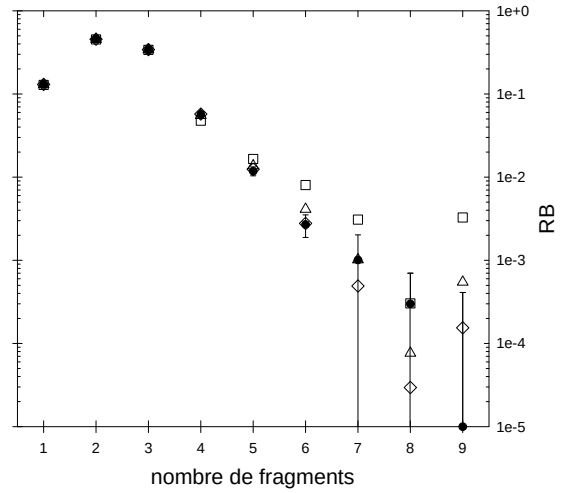


Fig. 3.14: Rapports de branchement du C_9 en fonction du nombre de fragments : expérience (●), calcul *MMMC* avec les distributions d'énergie $D_1(\epsilon)$ (Δ), $D_2(\epsilon)$ (□) et $D_3(\epsilon)$ (◇).

Même si les formes des distributions sont toujours différentes, l'énergie moyenne demeure stable avec les différentes distributions :

$\bar{E}_{C_9}$	χ^2
$D_1(\epsilon) : 13.6 \text{ eV}$	7.03
$D_2(\epsilon) : 13.9 \text{ eV}$	128.5
$D_3(\epsilon) : 13.6 \text{ eV}$	1.08

(3.5)

La distribution $D_2(\epsilon)$ marque toujours le plus grand désaccord avec nos mesures alors que les deux autres ($D_1(\epsilon)$ et $D_3(\epsilon)$) sont encore en bon accord dans l'ensemble.

Concernant le C_9 , nous ne disposons d'aucun calcul de type *Weisskopf*. Se référant à l'effet du temps de vol sur le calcul de l'énergie moyenne dans le cas du C_7 , l'erreur sur la mesure de l'énergie moyenne ($\bar{E}_{C_9} = 13.6 \text{ eV}$) a été prise à ${}^{+2.0}_{-0.2} \text{ eV}$ d'une façon arbitraire.

3.2 Évolution de l'énergie déposée avec la taille de l'agrégat

Les énergies moyennes des distributions que nous venons d'extraire de nos mesures pour les agrégats C_5 , C_7 et C_9 sont représentées en fonction de la taille de l'agrégat sur la figure 3.15.

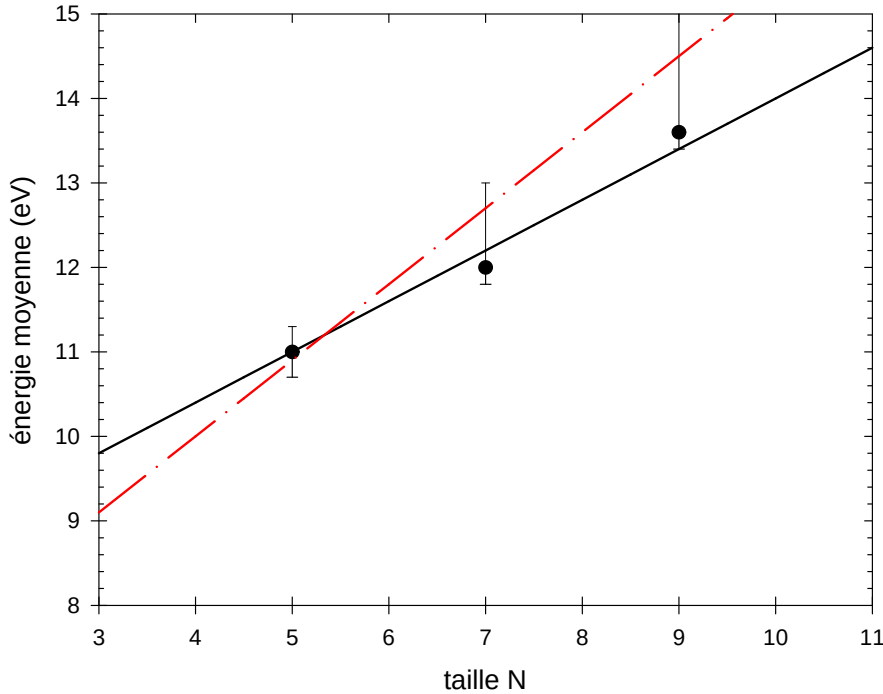


Fig. 3.15: Evolution de l'énergie moyenne en fonction de la taille de l'agrégat. (—) : $kT = 0.2 \text{ eV}$ et $E_{capt} + E_{term} = 9.2 \text{ eV}$. (— · —) : $kT = 0.3 \text{ eV}$ et $E_{capt} + E_{term} = 8.2 \text{ eV}$.

Ces énergies correspondent à la somme de l'énergie interne initiale et de l'énergie électronique des états finaux de capture. L'énergie interne provient, comme nous l'avons détaillé dans la partie expérimentale, d'une part, de la production des agrégats à la source ($\bar{E} = (3n - 6)kT$) et d'autre part, du processus de double ionisation au terminal ($\bar{E}_{term} \approx 1 \text{ eV}$). En écrivant alors que :

$$E_{moy} = (3n - 6)kT + (E_{capt} + E_{term}) \quad (3.6)$$

et en utilisant l'estimation de la mesure de kT au moyen des intensités partielles des espèces négatives à la source ($kT = 0.2 - 0.3$ eV), on trouve une énergie moyenne des états finaux de capture égale à 7 ± 1 eV, indépendante de la taille des agrégats.

Il est notable qu'ici, nous avons un effet spécifique aux agrégats. En effet pour la collision ion-atome à vitesse intermédiaire, l'énergie moyenne des états finaux de capture est proche de zéro (voir 3.2.1 page 42). Ce qui signifie que la capture a lieu préférentiellement dans l'état fondamental alors que dans la collision agrégat-atome elle a lieu majoritairement dans des états électroniques excités.

Chapitre 4

Effet de la variation de la cible et des conditions de production des agrégats

4.1 Effet de la cible

Nous avons mesuré dans nos expériences l'effet d'un changement de cible sur les rapports de branchement de fragmentation du C_5 . Ces résultats sont présentés sur la figure 4.1.

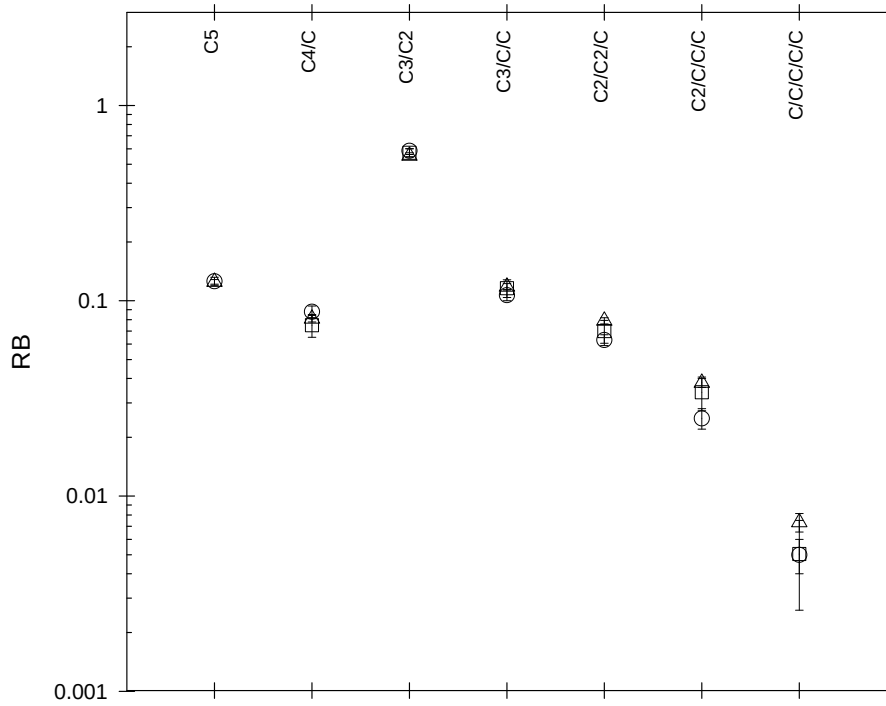


Fig. 4.1: Rapports de branchement du C_5 avec variation de la cible. (o) : hélium. (□) : néon. (△) : argon.

On doit s'attendre, en changeant le numéro atomique de la cible, à deux effets. Tout d'abord, les états initiaux de capture sont modifiés. Une étude sur la capture électronique à basse vitesse entre des cycles C_6H_n et différentes cibles atomiques [113] a montré de façon non-intuitive que les états finaux de capture étaient d'autant plus excités que l'écart entre les potentiels d'ionisation de la molécule et de la cible était grand, comme on peut le voir sur la figure 4.2.

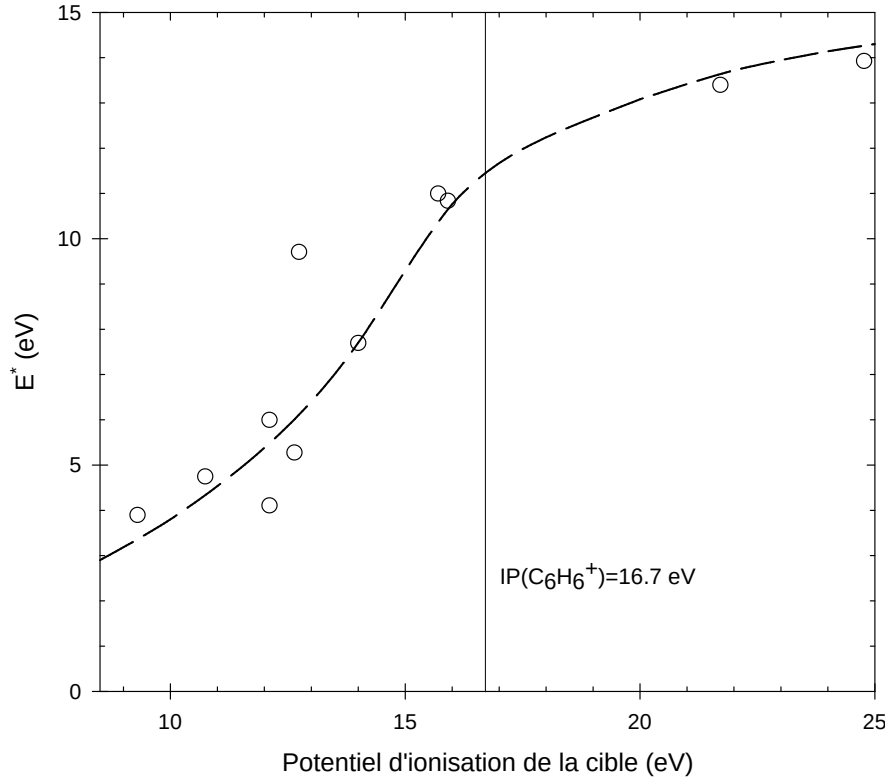


Fig. 4.2: *Energie interne moyenne (E^*) du $C_6H_6^+$ après capture électronique en fonction du potentiel d'ionisation de la cible (figure issue de [113]).*

En transposant leurs observations à nos conditions expérimentales ($IP_{He} = 24.6$ eV ; $IP_{Ne} = 21.6$ eV ; $IP_{Ar} = 15.8$ eV ; $IP_{C_n} \sim 11 - 12$ eV), il vient que le premier effet d'un changement de cible (passage de l'hélium à l'argon) peut être la diminution de l'énergie moyenne. Cependant, s'appuyant sur la même étude, l'effet attendu doit être faible dans tous les cas.

Le second effet du changement de cible concerne la contribution relative des processus doubles (capture+ excitation) à la section efficace de capture totale. En effet, les processus doubles de capture-excitation contribuent aux forts dépôts d'énergie dans l'agrégat d'une part (une excitation donne ~ 10 eV à l'agrégat, thèse de F. Mezdari à paraître), et d'autre part, la section efficace de ces processus croît avec la charge (l'excitation à haute vitesse croît avec la charge de la cible en Z_c^2). Par conséquent, en passant d'une cible d'hélium à une cible d'argon, on doit s'attendre à une augmentation de l'énergie moyenne. Le processus double de capture-excitation est cependant un processus minoritaire, comme le montrent les taux de production

à trois fragments ou plus sur la figure 4.1 qui n'excèdent pas quelques pourcents. En effet, ce processus conduit à une énergie moyenne supérieure à environ 20 eV ($((3n-6)kT + \bar{E}_{term} + \bar{E}_{capt} + \bar{E}_{exc})$) et donc à la production d'un nombre de fragments supérieur à trois.

Pour résumer les effets de la variation de la cible, deux effets sont attendus faibles et de sens contraires, ce qui peut certainement expliquer la faible dépendance des résultats avec la cible que l'on observe sur la figure 4.1.

4.2 Effet de la source

De façon exploratoire, nous avons modifié les conditions de production à la source pour les agrégats C_3 , C_5 et C_7 . Sur la figure 4.3 sont représentés les rapports de branchement pour l'agrégat C_3 avec les deux conditions d'injection (avec et sans injection d'hélium, voir partie expérimentale, 1.1.2). Les résultats pour le C_5 sont présentés sur la figure 4.4.

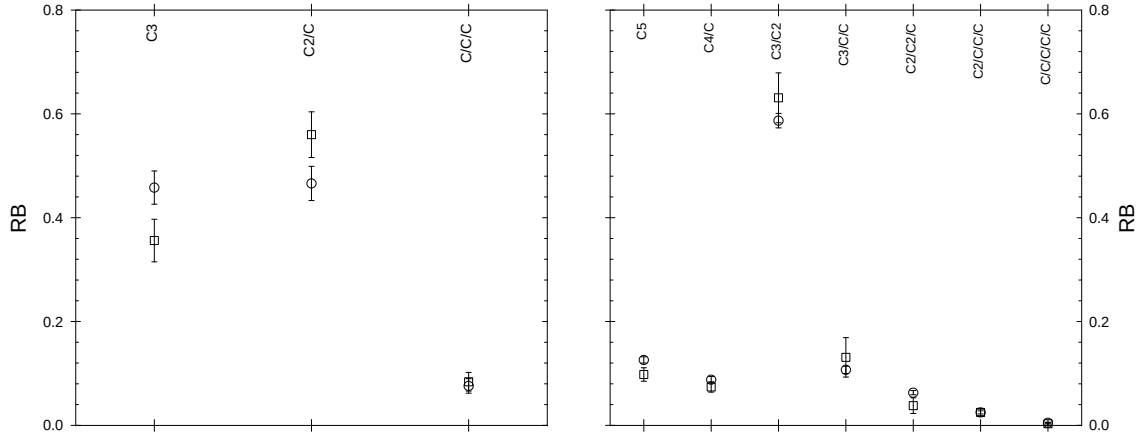


Fig. 4.3: rapports de branchement du C_3 avec changement des conditions de production à la source. (o) : sans hélium. (□) : avec hélium. **Fig. 4.4:** rapports de branchement du C_5 avec changement des conditions de production à la source. (o) : sans hélium. (□) : avec hélium.

Pour le C_3 , on observe un léger effet sur les voies C_3 et C_2/C . L'injection d'hélium à la source a pour conséquence de diminuer le taux d'agrégats non-fragmentés, augmentant celui des fragments C_2/C . Pour le C_5 , un léger effet est aussi observé sur le taux d'entiers.

Dans le cas de l'agrégat C_7 , aucun effet n'est observé sur la production d'entier (voir tableau 2.9 p. 126).

Les résultats nous montrent que l'injection d'hélium semble augmenter légèrement la fragmentation, c'est-à-dire une légère augmentation de l'énergie interne lors de la production. Ce résultat est qualitativement en bon accord avec les observations faites à la source où le taux de fragmentation (et donc la température interne

des agrégats) augmente légèrement avec l'injection de gaz (voir partie expérimentale 1.1.2, p. 58).

Chapitre 5

Test des prédictions du calcul MMMC sur les rapports de branchement des voies de fragmentation.

Nous utilisons dans cette partie les calculs *MMMC* présentés sur les figures 2.2, 2.4 et 2.5 dans la partie théorique en page 33.

5.1 Analyse du C_5

La figure 5.1 montre les rapports de branchement expérimentaux et théoriques des partitions de fragmentation obtenus pour le C_5 avec les trois distributions en énergie interne précédemment présentées.

On remarquera d'abord que les prédictions théoriques sont très peu dépendantes de la forme de la distribution d'énergie utilisée. L'accord observé entre le calcul et les mesures est bon, exception faite de la voie C_4/C .

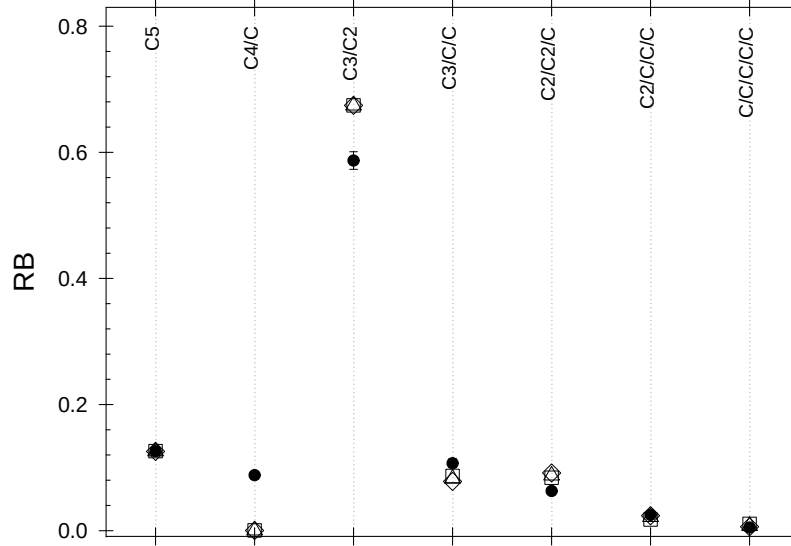


Fig. 5.1: Comparaison des rapports de branchement des partitions de fragmentation du C_5 : expérience (●), théorie MMMC avec les distributions d'énergie $D_1(\epsilon)$ (Δ), $D_2(\epsilon)$ (□) et $D_3(\epsilon)$ (◇).

5.2 Analyse du C_7

Sur la figure 5.2 sont représentés les rapports de branchement des partitions de fragmentation pour le C_7 . Afin d'affiner la comparaison expérience-théorie, la figure 5.3 présente les mêmes résultats mais normalisés aux rapports de branchement à nombre de fragments donné.

On observe que, excepté pour les voies faiblement peuplées, l'accord est assez bon dans l'ensemble. Comme dans le cas du C_5 , on peut remarquer que les voies de fragmentation contenant le fragment C_4 sont mal estimées.

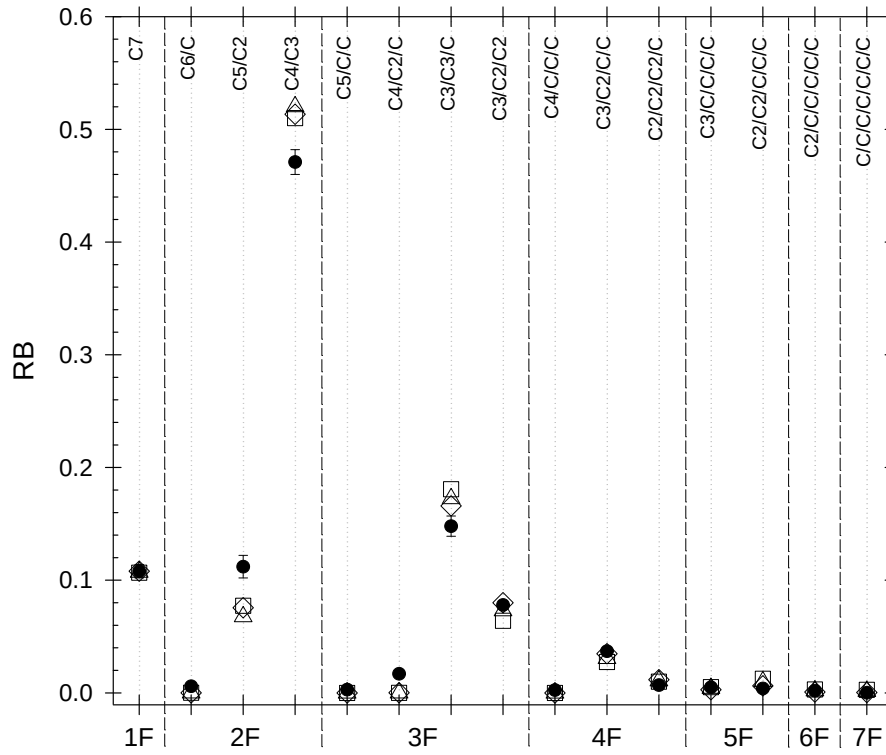


Fig. 5.2: Comparaison des rapports de branchement des partitions de fragmentation du C_7 : expérience (●), théorie MMC avec les distributions d'énergie $D_1(\epsilon)$ (Δ), $D_2(\epsilon)$ (□) et $D_3(\epsilon)$ (◇).

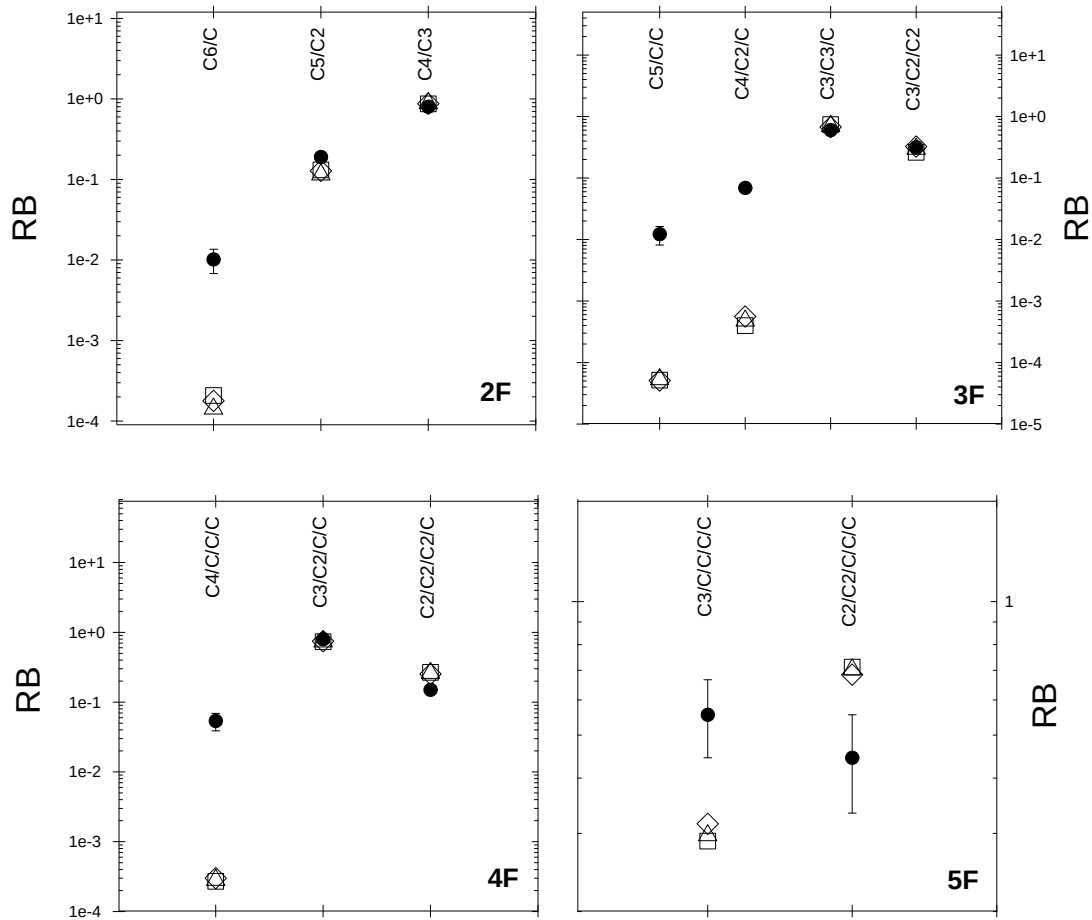


Fig. 5.3: Comparaison des rapports de branchement du C_7 pour un même nombre de fragments. 2F pour 2 fragments, 3F pour 3, 4F pour 4 et 5F pour 5. Les rapports de branchement ont été normalisés à 100% dans chacun des cas. Les points représentent : expérience ($\bullet$), théorie MMMC avec les distributions d'énergie $D_1(\epsilon)$ ($\triangle$), $D_2(\epsilon)$ ($\square$) et $D_3(\epsilon)$ ($\diamond$).

5.3 Analyse du C_9

Pour le C_9 , les résultats obtenus sont présentés sur les figures 5.4 et 5.5.

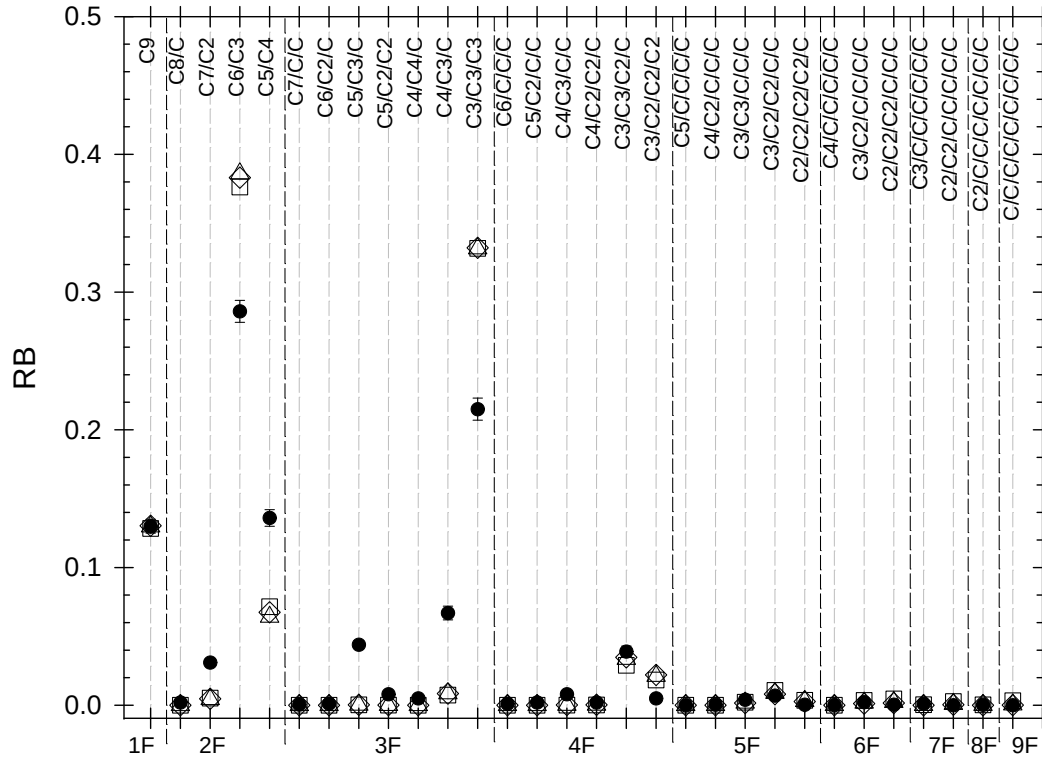


Fig. 5.4: Comparaison des rapports de branchement des partitions de fragmentation du C_9 : expérience (●), théorie MMMC avec les distributions d'énergie $D_1(\epsilon)$ (Δ), $D_2(\epsilon)$ ($\square$) et $D_3(\epsilon)$ ($\diamond$).

On observe ici que les prédictions du calcul *MMMC* ne sont pas en accord avec les résultats expérimentaux, bien que l'ordre des positionnements relatifs des partitions soit bien prédit par la théorie.

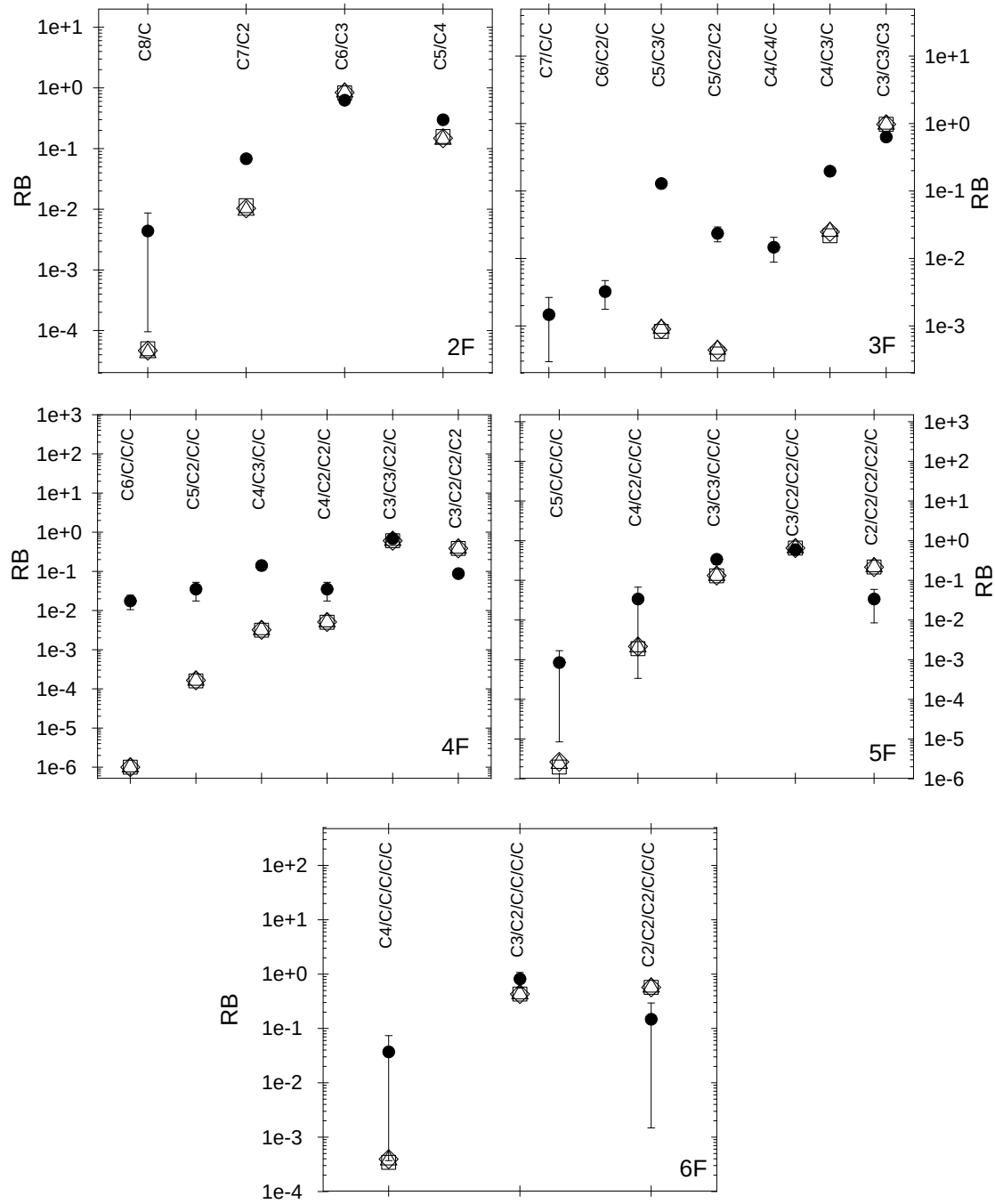


Fig. 5.5: Comparaison des rapports de branchement du C_9 pour un même nombre de fragments. 2F pour 2 fragments, 3F pour 3, 4F pour 4, 5F pour 5 et 6F pour 6. Les rapports de branchement ont été normalisés à 100% dans chacun des cas. Les points représentent : expérience (●), théorie MMMC avec les distributions d'énergie $D_1(\epsilon)$ (△), $D_2(\epsilon)$ (□) et $D_3(\epsilon)$ (◇).

5.4 Conclusion sur la théorie *MMMC*.

Nos mesures, capables de tester les calculs théoriques indépendamment de la distribution d'énergie interne de l'agrégat, indiquent que le calcul *MMMC* fournit finalement des résultats relativement corrects pour le C_5 et le C_7 , à l'exception des partitions de fragmentation contenant le fragment C_4 , mais n'est pas juste pour le C_9 . Plusieurs raisons peuvent être invoquées pour expliquer ce désaccord sans qu'il soit possible aujourd'hui d'en retenir une en particulier.

Tout d'abord, les calculs de structure du C_9 ne sont peut être pas corrects. On peut également penser à des effets d'anharmonicité. Pour rappel, nous avons vu dans la partie théorique que les densités d'états sont calculées dans la théorie *MMMC* avec des potentiels harmoniques. Le comportement statistique peut éventuellement ne pas être correct pour le C_9 , rendant les modèles statistiques inappropriés à la situation. De plus, des effets de barrières peuvent intervenir de manière plus importante pour le C_9 et ne sont pas inclus dans les deux théories.

Enfin, aux vues de l'évolution des prédictions de la théorie de Weisskopf entre le C_5 et le C_7 , l'explication la plus plausible est sans doute que l'utilisation d'un calcul réalisé pour un temps infini n'est pas justifié dans le cas du C_9 à cause de notre fenêtre de temps d'observation.

Compte tenu de ce point, on est en droit d'affirmer que la théorie *MMMC* est bien prédictive pour la fragmentation des agrégats de carbone à forte énergie d'excitation.

Conclusion

Nous avons étudié le processus de capture électronique dans le système de collision $C_{n=\{1,\dots,10\}}^+ \rightarrow He$ à la vitesse de 2.6 ua . Nous avons mesuré les sections efficaces absolues de production d'espèces neutres que nous avons corrigées des processus multiples de capture-ionisation à l'aide d'un calcul de probabilité en fonction du paramètre d'impact calculé en *CDW* et d'un modèle à atome et électron indépendants. Nous avons observé une croissance linéaire des processus de capture avec la taille de l'agrégat. Dans notre travail, nous avons mesuré les rapports de branchement de la fragmentation. Observant la part non-dissociative de la capture, nous avons constaté une alternance du taux d'agrégats entiers suivant la parité du nombre de constituants qui reflète l'énergie de dissociation donnée par les calculs de structure. Se servant de l'ensemble des partitions de fragmentation, nous avons analysé ces résultats en terme d'énergie interne grâce à des calculs de type *Weisskopf* et *Microcanonical Metropolis Monte Carlo* réalisés par les théoriciens de la collaboration. Nous avons montré que l'énergie moyenne des états finaux de capture est d'une part indépendante de la taille, et d'autre part qu'elle est importante ($\approx 80\%$ du premier potentiel d'ionisation). Enfin nous avons montré que la théorie *MMMC* est capable de rendre compte de nos observations expérimentales pour le C_5 et le C_7 .

Conclusion

Au cours de ce travail, nous avons étudié la capture électronique dans les collisions agrégat-atome. Pour cela, nous avons utilisé l'accélérateur Tandem d'Orsay capable de produire des faisceaux d'agrégats C_n^+ ($n = 1$ à 10) à une vitesse de 2.6 ua . Cette étude a pu se faire à l'aide du détecteur AGAT permettant d'observer en cinématique inverse la collision produite par le croisement du faisceau avec un jet effusif d'hélium principalement. Si la mesure des sections efficaces de capture ne présente pas de difficulté particulière, la mesure de l'état de l'agrégat après la collision est quant à elle plus délicate.

Dans ce but, nous avons développé un nouveau concept de détection exploitant les signaux impulsionnels de courant issus de détecteurs silicium épitaxiés. Nous avons ainsi montré que l'identification des partitions de fragmentation se fait très précisément. En effet, l'analyse de la forme des signaux nous a permis d'identifier sans ambiguïté toutes les partitions du C_{10} , soient 42 partitions, ce qui n'avait jamais été réalisé auparavant. Ce nouveau principe est actuellement en cours de développement en physique nucléaire au sein d'une collaboration européenne (AZ4II) sur une base de silicium *NTD* pour identifier le nombre de nucléons et de protons des noyaux ayant la même énergie incidente par nucléon.

Dans nos expériences, nous avons mesuré les sections efficaces de production d'agrégats neutres pour la collision $C_n^+ \rightarrow He$ ($n = 1$ à 10). Nous avons ainsi montré que la section efficace de capture croît linéairement avec la taille de l'agrégat. En identifiant toutes les partitions de fragmentation des agrégats issues de la collision, nous avons montré que la majorité du processus de capture conduit à la fragmentation de l'agrégat. La part non-dissociative nous montre une alternance paire-impair reflétant l'énergie de dissociation des agrégats calculée par les théories *Coupled Cluster* et *Fonctionnelle de la densité*. Nos mesures des rapports de branchement utilisées avec des calculs de type *Weisskopf* et *Microcanonical Metropolis Monte Carlo* nous ont permis de confirmer la validité de ces théories pour le C_5 et le C_7 . Nous avons utilisé la théorie *MMMC* afin d'obtenir une distribution d'énergie interne de l'agrégat juste après la collision. Ayant discuté de ces résultats en terme d'énergie interne moyenne, nous avons vu qu'elle correspondait à l'énergie interne de température initiale et à l'énergie moyenne des états finaux électroniques de capture. Par cette méthode d'analyse, nous avons mis en évidence que cette dernière est indépendante de la taille de l'agrégat, et importante, contrairement au cas de l'atome où les états finaux sont prédits par les théories de collision atomique comme étant majoritairement les états du niveau fondamental. Cette caractéristique est une signature forte du processus d'échange de charge dans l'agrégat. Enfin, la comparaison des mesures expérimentales avec une théorie dans l'ensemble microcanonique nous montre que la fragmentation de l'agrégat peut bien être décrite de manière statistique.

Dans le futur, plusieurs voies sont à explorer. Tout d'abord, est-ce que le calcul *Microcanonical Metropolis Monte Carlo* reste valable pour les agrégats chargés ? La différence principale avec le cas des agrégats neutres réside dans le calcul de l'énergie de répulsion coulombienne intervenant dans le traitement des fragments chargés. Les mesures des rapports de branchement pour les processus d'ionisation et d'excitation permettront d'apporter un éclaircissement sur ce point. L'analyse de ces processus est actuellement le sujet de la thèse de F. Mezdari. Dans le cadre du traitement de la fragmentation, il reste deux points importants à aborder qui sont la désexcitation

électronique par émission de photons ainsi que l'énergie cinétique des fragments. Concernant les photons, les modèles théoriques utilisés ne prennent pas en compte la désexcitation par ce processus qui est considéré comme négligeable. Afin de clarifier ce point, nous avons prévu d'effectuer la mesure des photons émis en coïncidence avec la fragmentation. En ce qui concerne l'énergie cinétique des fragments émis, il est possible de la mesurer avec les différences de temps d'arrivée entre les fragments ou en utilisant un détecteur segmenté. On obtiendrait ainsi les distributions de vitesses relatives que l'on pourrait comparer avec celles données par le calcul *Microcanonical Metropolis Monte Carlo* tout en conservant l'information sur l'état de fragmentation de l'agrégat. Il serait aussi intéressant d'approfondir l'étude de l'influence de la température initiale sur la fragmentation des agrégats. Pour cela, il est nécessaire de modifier les conditions d'injection des agrégats dans l'accélérateur en utilisant un piège de *Penning* par exemple afin de diminuer l'énergie interne due à la température d'extraction à la source. La mesure des rapports de branchement des partitions de fragmentation en fonction de la température permettrait d'obtenir plus précisément l'énergie finale des états de capture. Enfin, ayant atteint les limites en masse des agrégats de carbone produits par l'accélérateur Tandem et nos résultats pouvant servir les modèles astrophysiques, l'équipe prévoit d'étudier les chaînes de carbone hydrogénées afin d'observer leur comportement lors de collisions atomiques. Ces données expérimentales sont importantes pour l'étude des mécanismes aboutissant à la formation des hydrocarbures aromatiques polycycliques (*PAH*) dans le milieu interstellaire et il en existe peu sur ce sujet dans ce domaine de vitesses.

Bibliographie

- [1] W. Huggins. Preliminary Note of the Photographic Spectrum of Comet b 1881. *Proceedings of the Royal Society of London*, 33 :1, 1881.
- [2] H. Kroto, J. Heath, S. O'Brien, R. Curl, and R. Smalley. C_{60} buckminsterfullerene. *Nature*, 318 :162–163, 1985.
- [3] G. von Helden, M.-T. Hsu, and M. T. Bowers. Structures of carbon cluster ions from 3 to 60 atoms : Linear to rings fullerenes. *J. Chem. Phys.*, 95 :3835–3837, 1991.
- [4] N.G. Gotts, G. von Helden, and M.T. Bowers. Carbon cluster anions : Structure and growth from C_5^- to c_{62}^- . *Int. J. Mass Spectrom. Ion Processes*, 149/150 :217–229, 1995.
- [5] J.M. Hunter, J.L. Fye, and M.F. Jarrold. Annealing and dissociation of carbon rings. *J. Chem. Phys.*, 99 :1785–1795, 1993.
- [6] T.F. Giesen, A. Van Orden, H.J. Hwang, R.S. Fellers, R.A. Provencal, and R.J. Saykally. Infrared laser spectroscopy of the linear c_{13} carbon cluster. *Science*, 265 :765, 1994.
- [7] M. Vala, T. M. Chandrasekhar, J. Szczepanski, R. Van Zee, and W. Weltner. C_5 molecule - Structure and infrared frequencies. *J. Chem. Phys.*, 90 :595, 1989.
- [8] P. Freivogel, J. Fulara, M. Jakobi, D. Forney, and J.P. Maier. Electronic absorption spectra of linear carbon chains in neon matrices. II. C_{2n}^- , C_{2n} and $C_{2n}H$. *J. Chem. Phys.*, 103 :54–59, 1995.
- [9] M. Kolbuszewski. *Ab initio* study of the optical spectra of C_3 , C_5 and C_7 chains. *J. Chem. Phys.*, 102 :3679–3684, 1994.
- [10] D. Forney, M. Grutter, P. Freivogel, and J.P. Maier. Electronic absorption spectra of carbon chain anions $C_{2n+1(n=2-5)}^-$ in neon matrices. *J. Phys. Chem. A*, 101 :5292–5295, 1997.
- [11] K. Hansen, K. Hoffmann, and E.E.B. Campbell. Thermal electron emission from the hot electronic subsystem of vibrationally cold C_{60} . *J. Chem. Phys.*, 119 :2513–2522, 2003.
- [12] C. Bréchnignac, P. Cahuzac, J. Leygnier, R. Pflaum, and J. Weiner. Direct observation of charge-exchange collisions between mass-selected Na_n^+ clusters and Cs atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 61 :314–317, 1988.
- [13] M. Barat, J.C Brenot, H. Dunet, J.A. Fayeton, and Y.J. Picard. Collision induced fragmentation of small ionic sodium clusters : competition between electronic and impulsive mechanisms. *J. Chem. Phys.*, 110 :10758–10765, 1999.

- [14] Heinebradt et al. *Eur. Phys. J. D*, 9 :133, 1999.
- [15] Weidele et al. *Eur. Phys. J. D*, 9 :173, 1999.
- [16] O. Echt, R. Parajuli, S. Matt, A. Stamatovic, P. Scheier, and T.D. Märk. Kinetic energy release in exciton-driven metastable decay of neon cluster ions. *Chim. Phys. Lett.*, 361 :91–98, 2002.
- [17] B. Farizon, M. Farizon, M.J. Gaillard, E. Gerlic, and S. Ouaskit. Neutral fragment production induced by collision of 60 keV H_{25}^+ clusters with helium. *Int. J. Mass. Spectrom. Ion Processes*, 144 :79–86, 1995.
- [18] H. Haberland, B. v. Issendorf, R. Fröchtenicht, and J.P. Toennis. Absorption spectroscopy and photodissociation dynamics of small helium cluster ions. *J. Chem. Phys.*, 102 :8773–8779, 1995.
- [19] S. Matt, R. Parajuli, A. Stamatovic, P. Scheier, and T.D. Märk. Quantitative investigation of kinetic energy release in metastable decay reactions of $(O_2)_{n=2-10}^+$ ions : evidence for change in the metastable decay mechanism as a function of cluster size. *J. Chem. Phys.*, 116 :7583–7588, 2002.
- [20] C. Bobbert, S. Schütte, C. Steinbach, and U. Buck. Fragmentation and reliable size distributions of large ammonia and water clusters. *Eur. Phys. J. D*, 19 :183–192, 2002.
- [21] T. LeBrun, H.G. Berry, S. Cheng, R.W. Dunford, H. Esbensen, D.S. Gemmell, and E.P. Kanter. Ionization and multifragmentation of C_{60} by high-energy, highly charged Xe ions. *Phys. Rev. Lett.*, 72 :3965–3968, 1994.
- [22] S. Martin, L. Chen, and J. Désesquelles. Production and asymmetric fragmentation of multicharged fullerene ions in $Xe^{8+} + C_{60}$ collisions. *Phys. rev. A*, 57 :4518–4521, 1998.
- [23] D. Bordenave-Montesquieu, P. Moretto-Capelle, A. Bordenave-Montesquieu, and A. Rentenier. Scaling of C_{60} ionization and fragmentation with the energy deposited in collisions with H^+, H_2^+, H_3^+ and He^+ ions (2 – 130 keV). *J. Phys. B*, 34 :L137, 2001.
- [24] L. Adoui, C. Caraby, A. Cassimi, D. Lelièvre, J.P. Grandin, and A. Dubois. Fast ion-induced CO molecule fragmentation in the strong interaction regime. *J. Phys. B*, 32 :631–647, 1999.
- [25] B. Siegmann, U. Werner, H.O. Lutz, and R. Mann. Complete Coulomb fragmentation of CO_2 in collisions with 5.9 MeV/u Xe^{18+} and Xe^{43+} . *J. Phys. B*, 34 :3755–3765, 2002.
- [26] P.C. Engelking. Determination of cluster binding energy from evaporative lifetime and average kinetic energy release : Application to $(CO_2)_n^+$ and Ar_n^+ clusters. *J. Chem. Phys.*, 87 :936–940, 1987.
- [27] B. Dünser, M. Lezius, P. Scheier, H. Deutsch, and T.D. Märk. Electron impact ionization of C_{60} . *Phys. Rev. Lett.*, 74 :3364–3367, 1995.
- [28] H. Handschuch, G. Ganteför, B. Kessler, P.S. Bechthold, and W. Eberhardt. Stable configurations of carbon clusters : chains, rings and fullerenes. *Phys. Rev. Lett.*, 74 :1095–1098, 1995.

- [29] M.E. Geusic, T.J. Mclirath, M.F. Jarrold, L.A. Bloomfield, R.R. Freeman, and W.L. Brown. Photofragmentation of mass-resolved carbon cluster ions : Observation of a "magic" neutral fragment. *J. Chem. Phys.*, 84 :2421–2422, 1986.
- [30] J.A. Fayeton, M. Barat, J.C Brenot, H. Dunet, Y.J. Picard, U. Saalman, and R. Schmidt. Detailed experimental and theoretical study of collision-induced dissociation of Na_2^+ ions on he and h_2 targets at keV energies. *Phys. Rev. A*, 57 :1058–1068, 1998.
- [31] K. Wohrer, M. Chabot, R. Fossé, D. Gardès, P.A. Hervieux, F. Calverac, P.G. Reinhard, and E. Suraud. Swift cluster-atom collisions : a progress report. *NIM B*, 146 :29–38, 1998.
- [32] M. Chabot, R. Fossé, K. Wohrer, D. Gardès, G. Maynard, F. Rabilloud, and F. Spiegelman. Multi-ionization cross-sections of small ionic carbon clusters by particle impact as a tool to investigate their shapes. *Eur. Phys. J. D*, 14 :5–8, 2001.
- [33] R.J. Barlett and G.D. Purvis. Structures, stability and fragmentation of small carbon clusters. *Int. J. Quant. Chem.*, 14 :516, 1978.
- [34] K. Raghavachari and J.S. Binkley. Structures, stability and fragmentation of small carbon clusters. *J. Chem. Phys.*, 87 :2191–2197, 1987.
- [35] J.D. Watts, J. Gauss, J.F. Stanton, and R.J. Barlett. *J. Chem. Phys.*, 97 :8372, 1992.
- [36] J.M.L. Martin and P.R. Taylor. Structure and vibrations of small carbon clusters from coupled-cluster calculations. *J. Phys. Chem.*, 100 :6047–6056, 1996.
- [37] M.G. Giuffreda, M.S. Deleuze, and J.P. François. Structural, rotational, vibrational and electronic properties of ionized carbon clusters c_n^+ ($n=4-19$). *J. phys. Chem.*, 103 :5137–5151, 1999.
- [38] A. Szabo and N.S. Otslund. *Modern Quantum Chemistry*. Revised. Ed. MacGraw-Hill, 1982.
- [39] R.J. Barlett. *Coupled-cluster : An overview of recent developments*. D.R. Yarkony, editor. Modern electronic structure theory. Singapore : World Scientific, 1995. Part II. p.1047.
- [40] R. Bauernschmitt and R.J. Ahlrichs. Stability analysis for solutions of the closed shell Kohn-Sham equation. *J. Chem. Phys.*, 104 :9047–9052, 1996.
- [41] V. Weisskopf. *Phys. Rev.*, 52 :95, 1937.
- [42] D.H.E Gross and P.A. Hervieux. Statistical fragmentation of hot atomic metal clusters. *Z. Phys. D*, 35 :27–42, 1995.
- [43] I.M. Cheshire. *Proc. Phys. Soc.*, 84 :89, 1964.
- [44] C.C.J. Roothaan. New Developments in Molecular Orbital Theory. *Rev. Mod. Phys.*, 23 :69–89, 1951.
- [45] J.A. Pople and R.K. Nesbet. Self consistent orbitals for radicals. *J. Chem. Phys.*, 22 :571, 1954.

- [46] S. Díaz-Tendero Victoria. Estudio teórico de agregados de carbono : Estabilidad, propiedades y fragmentación de las especies c_n , c_n^+ y c_n^{2+} ($n=1-8$). DEA, Universidad Autónoma de Madrid, Departamento de Química, 2002.
- [47] P. Hohenberg and W. Kohn. *Phys. Rev.*, 136 :B864, 1964.
- [48] W. Kohn and L.J. Sham. Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects. *Phys. Rev.*, 140 :1133–1138, 1965.
- [49] C. Lee, W. Yang, and R.G. Parr. Development of the Colle-Salvetti correlation-energy formula into a functional of the electron density. *Phys. Rev. B*, 37 :785, 1988.
- [50] A.D. Becke. Density-functional thermochemistry.iii. the role of exact exchange. *J. Chem. Phys.*, 98 :5648–5652, 1993.
- [51] J.P. Perdew, K. Burke, and Y. Wang. Generalized gradient approximation for the exchange-correlation hole of a many-electron system. *Phys. Rev. B*, 54 :16533, 1996.
- [52] M.J. Frish and al. *Gaussian 98*, revised A3 edition, 1999.
- [53] S. Díaz-Tendero, F. Martín, and M. Alcamí. Structures, dissociation energies and harmonic frequencies of small doubly charged carbon clusters c_n^{2+} ($n=3-9$). *J. Phys. Chem. A*, 106 :10782–10789, 2002.
- [54] J.M.L. Martin and P.R. Taylor. Accurate *ab initio* total atomization energies of the c_n clusters ($n=2-10$). *J. Chem. Phys.*, 102 :8270–8273, 1995.
- [55] J.M.L. Martin, J.P. François, and R. Gijbels. *Ab initio* of the infrared spectra of linear c_n clusters ($n=2-9$). *J. Chem. Phys.*, 93 :8850–8861, 1990.
- [56] K. Raghavachari, R.A. Whiteside, and J.A. Pople. Structures of small carbon clusters : Cyclic ground state of c_6 . *J. Chem. Phys.*, 85 :6623–6628, 1986.
- [57] U. Frenzel, A. Roggenkamp, and D. Kreisle. 'black-body' radiation of free niobium clusters heated by oxydation. *Chem. Phys. Lett.*, 240 :109–113, 1995.
- [58] G. Ganteför, W. Eberhardt, H. Weidele, D. Kreisle, and E. Recknagel. Energy dissipation in small clusters : direct photoemission, dissociation and thermionic emission. *Phys. Rev. Lett.*, 77 :4524–4527, 1996.
- [59] R. Fossé. *Excitation et fragmentation de petits agrégats de carbone par impact atomique à haute vitesse*. PhD thesis, Paris VI, 2000.
- [60] P.A. Hervieux, B. Zarour, J. Hanssen, M.F. Politis, and F. Martín. Fragmentation in collisions of Na_9^+ clusters with Cs atoms. *J. Phys. B*, 34 :3331–3355, 2001.
- [61] ZHANG Xiao-Ze, D.H.E. GROSS, XU Shu-Yan, and ZHENG Yu-Ming. On the decay of very hot nuclei. *Nuclear Physics A*, 461 :668–690, 1987.
- [62] D.H.E. Gross. Statistical decay of very hot nuclei—the production of large clusters. *Rep. Progr. Phys.*, 53 :605–658, 1990.
- [63] P.A. Hervieux and D.H.E. Gross. Evaporation of hot mesoscopic atomic metal clusters. *Z. Phys. D*, 33 :295–299, 1995.
- [64] O. Schapiro, P.J. Kuntz, K. Möhring, P.A. Hervieux, D.H.E. Gross, and M.E. Madjet. Fragmentation phase transitions in atomic clusters III. *Z. Phys. D*, 41 :219–227, 1997.

- [65] D.H.E. Gross, M.E. Madjet, and O. Schapiro. Fragmentation phase transitions in atomic clusters I. *Z. Phys. D*, 39 :75–83, 1997.
- [66] P. Gordon. *Théorie de chaînes de Markov finies et ses applications*. Dunod. Paris, 1965.
- [67] K. Wohrer and R.L. Watson. Model calculations of multielectron ionization of O_2 molecules by fast-heavy-ion impact. *Phys. Rep. A*, 48 :4784–4786, 1993.
- [68] Macek and Shakeshaft. *Phys. Rev. A*, 22 :1441, 1980.
- [69] Macek and Alston. *Phys. Rev. A*, 26 :250, 1982.
- [70] G.F. Chew and G.C. Wick. *Phys. Rev.*, 85 :636, 1952.
- [71] Dz. Belkic. *J. Phys. B*, 10 :3491, 1977.
- [72] T.A Osborn. *Ann. Phys. (N.Y.)*, 58 :417, 1970.
- [73] Dz Belkic, A. Gayet, and R. Salin. Electron capture in high-energy ion-atom collisions. *Phys. Rep.*, 56 :279–369, 1979.
- [74] Dz Belkic, A. Gayet, and R. Salin. Computation of total cross-section for electron capture in high energy collisions. III. *Comp. Phys. Com.*, 32 :385–397, 1984.
- [75] Dz Belkic, A. Gayet, and R. Salin. Computation of total cross-section for electron capture in high energy collisions. *Comp. Phys. Com.*, 23 :153–167, 1981.
- [76] A. Gayet, R.D. Rivarola, and R. Salin. Double electron capture by fast nuclei. *J. Phys. B*, 14 :2421–2427, 1981.
- [77] E. Clementi and C. Roetti. Atomic data nuclear data tables. *Phys. Rev. Lett.*, 14 :177–478, 1974.
- [78] E. Hylleraas. *Z. Phys.*, 54 :347, 1929.
- [79] S.E. Corchs, H.F. Busnengo, and R.D. Rivarola. Importance of the multicenter character of molecular aggregates in the theoretical description of the charge transfer process. *NIM B*, 149 :247–256, 2000.
- [80] S. Suzuki, L Gulyás, N Shimakura, P.D. Fainstein, and T. Shirai. Electron capture processes in collisions between Be^{q+} ions and he atoms. *J. Phys. B*, 33 :3307–3318, 2000.
- [81] K. Wohrer and R.L. Watson. Model calculations of multielectron ionisation of O_2 molecules by fast-heavy-ion impact. *Phys. Rev. A*, 48 :4784–4786, 1993.
- [82] K. Katsonis and G. Maynard. Evaluation of cross sections at intermediate collision energy (1-1000 keV/amu) using classical trajectory Monte Carlo (CTMC) method. *J. Phys.*, C1 :313, 1991.
- [83] A. Van Orden and R. J. Saykally. Small carbon clusters : spectroscopy, structure and energetics. *Chem. Rev.*, 98 :2313–2357, 1998.
- [84] C. Lifshitz. Carbon clusters. *Int. J. Mass. Spect.*, 200 :423–442, 2000.
- [85] C. Bréchnignac, M. Broyer, P. Cahuzac, G. Delacretaz, P. Labastie, and J.P. Wolf. Probing the transition from van der Waals to metallic mercury clusters. *Phys. Rev. Lett.*, 60 :275–278, 1988.

- [86] R.L. Watson and R.J. Maurer. Time-of-flight analysis of dissociation products from collisions of 40 MeV Ar^{13+} with molecular oxygen. *NIM A.*, 262 :99–105, 1987.
- [87] A.N. Pargellis and M. Seidl. Sputtering carbon ions from cesiated graphite surfaces. *J. Vac. Sci. Tech.*, A1 3 :1388–1393, 1983.
- [88] A.N. Pargellis. Estimation carbon cluster binding energies from mesured C_n distributions, $n \leq 10$. *J. Chem. Phys.*, 93 :2099–2108, 1990.
- [89] J.U. Andersen, E. Bonderup, and K. Hansen. On the concept of temperature for a small isolated system. *J. Chem. Phys.*, 114 :6518–6525, 2001.
- [90] M. Ohno, V.G. Zakrzewski, J.V. Ortiz, and W. von Niessen. Theoretical study of the valence ionization energies and electron affinities of linear C_{2n+1} ($n = 1 - 6$) clusters. *J. Chem. Phys.*, 106 :3258–3269, 1997.
- [91] J. Delafosse and G. Mongolin. *Les calculs de la technique du vide*. the french society of engineers and vacuum technicians, 1962.
- [92] K. Wohrer, M. Chabot, R. Fossé, and D. Gardès. A method for "on-line" determination of beam-jet overlaps ; application to cluster fragmentation studies. *Rev. Sci. Instrum.*, 71 :2025, 2001.
- [93] A. Servajean. *Étude expérimentale du pouvoir d'arrêt d'ions lourds multichargés dans un plasma d'hydrogène*. PhD thesis, Paris VII, 1990.
- [94] N. Barré, G. Lalu, and C. Véron. Pilotage à distance d'un oscilloscope. Rapport d'activité de l'IPN 2000/2001, 2002.
- [95] G. Martinet. Étude d'un nouveau procédé d'identification de particules. application à l'étude de la fragmentation des agrégats c_n ($n=1..9$). Rapport de stage DEA MIP, 2001.
- [96] J.F. Clavelin, C. Diarra, X. Grave, S. Du, O. Hubert, F. Lefebvre, A. Lesage, and S. Rousseau. Instrumentation informatique. Rapport d'activité de l'IPN 2000/2001, 2002.
- [97] W. Seibt, K.E. Sundström, and P.A. Tove. Charge collection in silicon detectors for strongly ionizing particles. *NIM*, 113 :317–324, 1973.
- [98] W. Shockley. *J. Phys. B*, 11 :81, 1961.
- [99] G. Dearnaley. Basic limitations on detector performance. In National Academy of Sciences, editor, *Semiconductor nuclear-particle detectors and circuits*, volume 44 of *Nuclear sciences series report*, pages 5–18. Committee on instruments science, 1969.
- [100] S. Ramo. Currents induced by electron motion. *Proc. IRE*, 27 :584–585, 1939.
- [101] G. Cavalleri, E. Gatti, and V. Svello. On the induced charge in semiconductor detectors. *Nucl. Instr. and Meth.*, 21 :177–178, 1963.
- [102] A. Perez, M. Döbeli, and H.A. Synal. Measurements of point defect creation related to high densities of electronic excitations produced by energetic carbon cluster bombardments. *NIM B.*, 88 :25–28, 1994.
- [103] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, and U. Littmark. *The stopping and range of ions in solids*. Pergamon Press, New York, 1985.

- [104] M. Seidl, H. Voit, S. Bouneau, A. Brunelle, S. Della-Negra, J. Depauw, D. Jacquet, Y. Le Beyec, and M. Pautrat. Mev carbon cluster-induced pulse height defect in a surface barrier detector. *NIM B*, 183 :502–508, 2001.
- [105] D. Ben-Hamu, A. Baer, H. Feldman, J. Levin, O. Heber, Z. Amitay, Z. Vager, and D. Zajfman. Energy loss of fast clusters through matter. *Phys. Rev. A*, 56 :4786–4794, 1997.
- [106] M. Döbeli, F. Ames, R.M. Ender, M. Suter, H.A. Synal, and D. Vetterli. Defect production by mev cluster impacts. *NIM B*, 106 :43–46, 1995.
- [107] K. Baudin, A. Brunelle, M. Chabot, S. Della-Negra, J. Depauw, D. Gardès, P. Hakansson, Y. Le Beyec, A. Billebaud, M. Fallavier, J. Remillieux, J.C. Poizat, and J.P. Thomas. Energy loss by mev carbon clusters and fullerene ions in solids. *NIM B*, 94 :341–344, 1994.
- [108] Ikuo Kanno. Models of formation and erosion of a plasma column in a silicon surface-barrier detector. *Rev. Sci. Instr.*, 58(10) :1926–1932, 1987.
- [109] C. Leroy, P. Roy, G.L. Glaser, E. Grigoriev, and F. Lemeilleur. Charge transport in non-irradiated and irradiated silicon detectors. *NIM A*, 434 :90–102, 1999.
- [110] A. Menchaca-Rocha, J.I. Cabrera, R. Alfaro, E. Belmont-Moreno, and A. Martínez-Davalos. A new approach to deal with non-linearities in si detector response. *NIM B*, 207 :356–367, 2003.
- [111] M. Chabot, G. Martinet, and al. Shape analysis of current pulses delivered by semiconductor detectors : A new tool for fragmentation studies of high velocity atomic clusters and molecules. *Nucl. Instr. and Meth. B*, 197 :155–164, 2002.
- [112] B. Canut, N. Bonardi, and S.M.M. Ramos S. Della-Negra. Latent tracks formation in silicon single crystals with fullerenes in the electronic regime. *NIM B*, 146 :296–301, 1998.
- [113] Károly Vékey, A. Gareth Brenton, and John H. Beynon. Electron Capture Induced Decomposition of the Benzene $C_6H_6^{2+}$ Ion. *J. Phys. Chem.*, 90 :3569–3577, 1986.